

论川东北地区发现的高密度甲烷包裹体类型与油裂解气和页岩气勘探评价

刘德汉¹, 肖贤明¹, 田 辉¹, 王一刚², 汪泽成³, 闵育顺¹

1. 中国科学院 广州地球化学研究所 有机地球化学国家重点实验室, 广东 广州 510640
2. 中国石油 四川分公司, 四川 成都 610081
3. 中国石油勘探开发研究院, 北京 100083

LIU Dehan¹, XIAO Xianming¹, TIAN Hui¹, WANG Yigang², WANG Zecheng³, MIN Yushun¹

1. *State Key Laboratory of Organic Geochemistry, Guangzhou Institute of Geochemistry, Chinese Academy of Sciences, Guangzhou 510640, China*
2. *Sichuan Branch, CNPC, Chengdu 610081, China*
3. *Research Institute of Petroleum Exploration and Development, CNPC, Beijing 100083, China*

LIU Dehan, XIAO Xianming, TIAN Hui, et al. Multiple types of high density methane inclusions and their relationships with exploration and assessment of oil-cracked gas and shale gas discovered in NE Sichuan. *Earth Science Frontiers*, 2013, 20(1): 064-071

Abstract: In recent years, multiple types of high density methane inclusions have been discovered in northeast Sichuan. The geological occurrences of methane inclusions were investigated, and their microscopic Raman spectra were analyzed. Pyrobitumen-bearing high density methane inclusions occur in Triassic carbonate and clastic reservoir rocks in Puguang gas field, and were postulated resulting from later stage high temperature cracking of oil inclusions trapped at early stage of oil reservoir formation; H₂S-bearing, instead of pyrobitumen-bearing, high density methane inclusions occur in carbonate reservoir rocks in the well Puguang 5, indicating that CH₄ inclusions and “TSR”-formed H₂S fluid inclusions were trapped in newly grown calcite crystals at the stage of high temperature cracking of old oil reservoirs; abundant high density methane inclusions and small quantity of light hydrocarbon inclusions occur in lower Silurian siliceous rocks drilled from the well Wuke 1, indicating that the organic-rich lower Silurian black shale showing high maturation contains high pressure methane and light hydrocarbon in its geological history. These different types of high density methane inclusions listed above show different genetic mechanisms and different high temperature and high pressure conditions. The authors believe that the results would be helpful for exploration and assessment of gas resulting from cracking of old oil reservoirs and gas from Silurian shale in northeast Sichuan.

Key words: high density methane inclusions; micro-Raman spectroscopic analysis; high-temperature cracking of crude oil and gas form shell

摘 要: 据甲烷包裹体的产出特征和显微激光拉曼分析研究, 近年来在川东北地区先后发现了多种类型的高密度甲烷包裹体, 揭示了油气藏和石油包裹体的高温热演化作用的重要信息: 普光气田三叠系碳酸盐和碎屑岩储层中含焦沥青的高密度甲烷包裹体分别反映了早期油藏阶段矿物捕获的石油包裹体经后期高温极端裂解的成因; 普光 5 井碳酸盐储层中含 H₂S 而不含焦沥青的高密度甲烷包裹体, 反映了古油藏高温裂解阶段新生方解石捕获了储层中富含 CH₄ 也有“TSR”成因的 H₂S 流体的信息; 五科一井下志留统黑色硅质石英中

收稿日期: 2012-09-10; 修回日期: 2012-12-04

基金项目: 国家重点基础研究发展计划“973”项目(2012CB214705); 国家自然科学基金项目(41072095); 国家油气专项(2011ZX05008-002-40)

作者简介: 刘德汉(1935—), 男, 研究员, 主要从事石油天然气地质地球化学、有机岩石学和流体包裹体研究工作。E-mail: liudh@gig.ac.cn

<http://www.earthsciencefrontiers.net.cn> 地学前缘, 2013, 20(1)

发现的高密度甲烷包裹体和少量含轻烃包裹体,反映了本区富有机质的下志留统高演化程度的黑色页岩在地质历史中存在高压甲烷和轻烃产出的证据。以上各种高密度甲烷包裹体成因机理和形成的高温高压条件,为川东北地区古油藏裂解气和志留系“页岩气”的勘探评价提供了科学依据。

关键词:高密度甲烷包裹体;显微激光拉曼分析;油裂解气;页岩气

中图分类号:P618.13 文献标志码:A 文章编号:1005-2321(2013)01-0064-08

地壳中含甲烷气的矿物流体包裹体分布较广,而大于甲烷临界密度($0.162 \text{ g} \cdot \text{cm}^{-3}$)的包裹体主要产于比较特殊的地质地球化学环境。例如:Vratislav 等^[1]在喀尔巴阡山脉推覆断层带发现密度高达 $0.43 \text{ g} \cdot \text{cm}^{-3}$ 甲烷包裹体作为该区经历了重要构造热事件的信息;Liu 和 Fei^[2]发现在古太平洋板块碰撞带的蛇绿岩橄榄石中存在富甲烷的包裹体;Song 等^[3]将北祁连山斜方辉橄岩中包含的高密度甲烷包裹体作为板块衰减带的古流体证据;Chen 等^[4]报道了在东营凹陷方沸石中含密度为 $0.309 \text{ g} \cdot \text{cm}^{-3}$ 的甲烷包裹体,认为其可能与玄武岩的热液作用中甲烷的非生物成因有关;Lu 等研究了甲烷的拉曼位移与压力^[5];刘德汉等^[6-8]先后在四川盆地普光气田中的下三叠统飞仙关组碳酸盐储层的方解石中和须家河组碎屑岩储层的石英脉中发现了密度达 $0.344 \text{ g} \cdot \text{cm}^{-3}$ 的高压甲烷包裹体和含固体焦沥青的高密度甲烷包裹体,分别揭示了油裂解气藏的形成条件和石油包裹体极端裂解以及 H_2S 成因的重要信息;特别是最近在川东北五科一井下志留统龙马溪组黑色硅质页岩石英中发现一批纯度高和密度大的甲烷包裹体和少量轻烃包裹体,其产出特征与显微激光拉曼分析结果,揭示了下古生界地层在地质历史中存在富含高压甲烷和轻烃的信息。本文将综合剖析各种类型的高密度甲烷包裹体形成的地质地球化学条件和产出分布规律,对于探讨川东北地区油气成藏演化与“油裂解气”和“页岩气”的勘探评价有理论和实际意义。

1 高密度甲烷包裹体的基本特征

据文献资料^[6,9],纯甲烷包裹体的临界密度为 $0.162 \text{ g} \cdot \text{cm}^{-3}$,在拉曼谱图中的位移约为 2914 cm^{-1} 。通常,在油气田储层中产出的天然气包裹体中 CH_4 拉曼位移主要在 $2917 \sim 2914 \text{ cm}^{-1}$ 左右,室温下包裹体薄片中的气体包裹体或两相包裹体中的甲烷主要为气相,甲烷包裹体的拉曼位移也能反映包裹体捕获的压力和密度^[5]。本文把样品中甲烷拉曼位移 $<2912 \text{ cm}^{-1}$,密度 $>0.162 \text{ g} \cdot \text{cm}^{-3}$ 的包裹体称为

高密度甲烷包裹体,它们在室温下为单相超临界态,在透射光下主要为浅灰色到灰黑色^[9-10]。根据样品观察分析,通常捕获于石英中的高密度甲烷包裹体往往形态比较规则和保存相对较好,捕获于方解石中高密度甲烷包裹体由于碳酸盐矿物的强度低、脆性大,一些粒径较大的易发生破裂,主要保存粒径 $<6 \sim 8 \mu\text{m}$ 的高密度甲烷包裹体。样品中含高密度甲烷包裹体储层常充填有热演化程度较高的焦沥青以及结构构造比较特殊的球粒状中间相焦沥青。例如图 1a 为普光气田三叠系储层中产出的焦沥青在透射光下为黑色不规则充填状和球粒状;图 1b 为川东北 WK1 井下志留统黑色硅质烃源岩石英中含高密度甲烷包裹体的样品,富含热演化程度很高的焦沥青在反射光下条纹状和团块状焦沥青为黄白色;图 1c 为普光三叠系碎屑岩储层石英的薄片中包含大量粒径为 $3 \sim 35 \mu\text{m}$ 左右的高密度甲烷包裹体群;图 1d 为 WK1 井下志留统黑色硅质页岩石英中包含形态比较规则、其粒径达 $20 \sim 40 \mu\text{m}$ 的高密度甲烷包裹体;图 1e 为普光 5 井碳酸盐储层方解石中包含粒径在 $2 \sim 6 \mu\text{m}$ 左右的高密度甲烷包裹体群;图 1f 为方解石矿物中粒径较大高密度甲烷包裹体已经破裂,只保存了粒径小的高密度甲烷包裹体照片;图 1g 为高倍显微镜下 WK1 井下志留统黑色硅质页岩石英中产出的高密度甲烷包裹体特征;图 1h 为 WK1 井富含高密度甲烷包裹体的样品中也含有少量轻烃包裹体的显微照片,在紫外光下无荧光,在拉曼光谱测定中具有强的正烷烃特征峰(图 2e)。

样品中各种无荧光包裹体和高密度甲烷包裹体的有效鉴别,主要是在包裹体显微观察的基础上进行显微激光拉曼检测。样品中含 CH_4 等烃类包裹体和含 CO_2 、 H_2S 、 N_2 等非烃气体包裹体以及含包裹体的主矿物在显微激光拉曼光谱图中都有十分特征的特征峰和强度,不仅可以对包裹体组分进行精确定性和半定量分析;而且根据包裹体中 CH_4 的位移(ν_1)向低波数的漂移量,可以计算包裹体的密度和捕获压力^[5],在刘德汉等的文献中已有比较详细的论

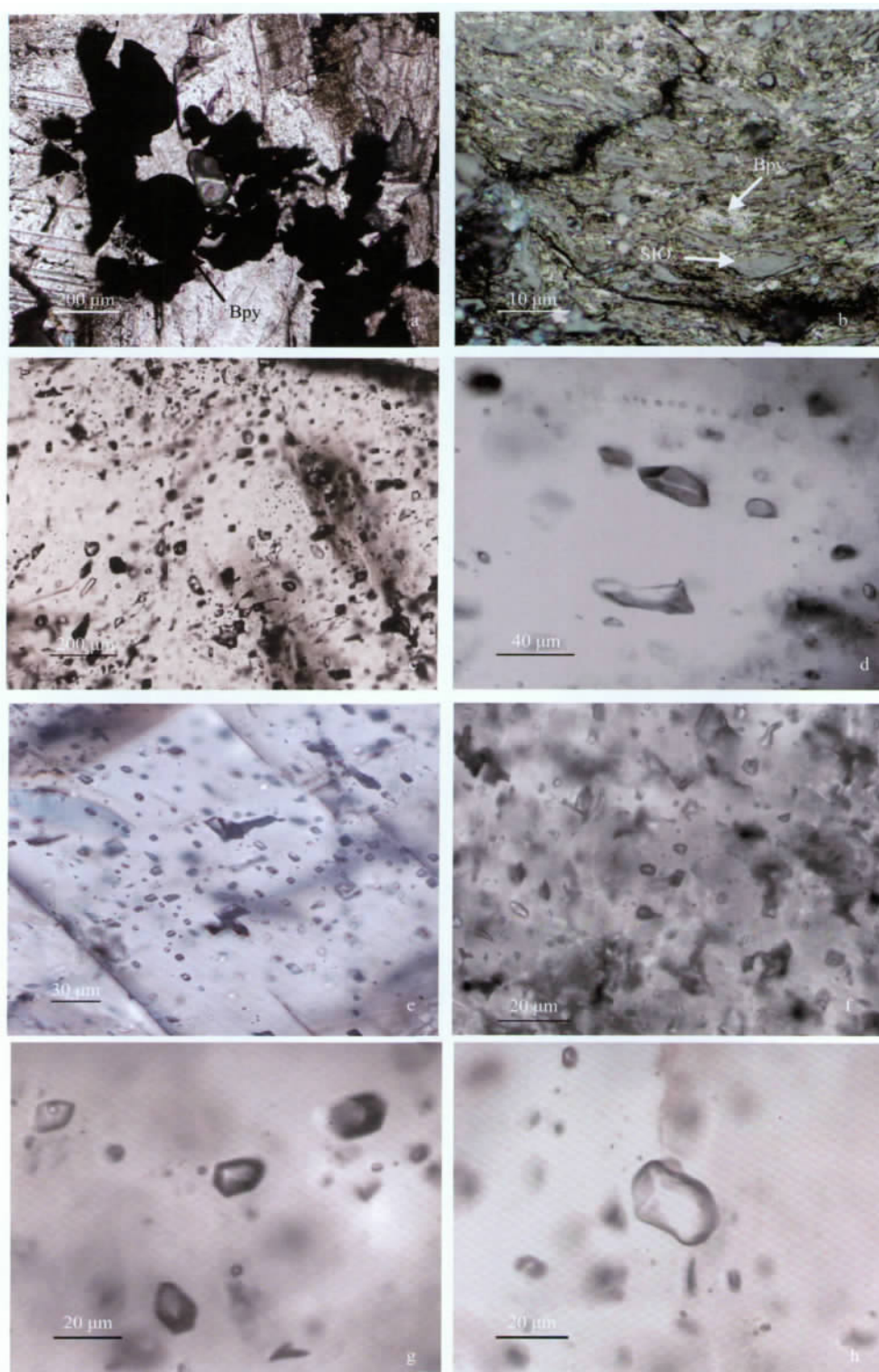


图1 样品中高密度甲烷包裹体产出和形态特征

Fig.1 The occurrences and morphological characteristics of high density methane inclusions in samples a—PG5 井碳酸盐储层中分布的焦沥青(Bpy 黑色),透射光照片;b—黑色硅质页岩中分布的焦沥青反光照片(Bpy 黄白色);c—PG3 井石英中分布的高密度甲烷包裹体群,透射光照片;d—WK1 井黑色页岩石英中分布的高密度甲烷包裹体,透射光照片;e,f—PG5 井碳酸盐储层中分布的高密度甲烷包裹体群,透射光照片;g—WK1 井黑色页岩石英中分布的高密度甲烷包裹体;h—WK1 井石英中分布的轻烃包裹体。

述^[6]。本文对数百件包裹体的激光拉曼光谱的精细观测,发现在普光地区三叠系储层和川东北五科一井下志留统黑色硅质页岩石英中发现的甲烷包裹体拉曼位移主要在 $2\,912\sim 2\,910\text{ cm}^{-1}$,比一般 CH_4 的 $2\,917\text{ cm}^{-1}$ 漂移了 6~7 波数,说明这些包裹体中的压力很高,都具有高密度甲烷包裹体的基本特征,并且据普光地区三叠系储层和川东北五科一井下志留统黑色硅质页岩中高密度甲烷包裹体的产出的地质地球化学条件和组成特征,进一步划分出几种高密度甲烷包裹体的成因类型,为天然气的勘探评价提供科学依据。

2 高密度甲烷包裹体的成因类型

根据普光地区天然气储层样品和川东北地区下志留统黑色硅质页岩中甲烷包裹体的显微激光拉曼分析结果和样品中的包裹体组合特征,主要有以下 4 种高密度甲烷包裹体以及轻烃包裹体类型:

(1)石油包裹体受高温裂解成因的高密度甲烷包裹体。在早期石英或方解石矿物中捕获的石油包裹体经后期埋深作用,经受 $180\sim 200\text{ }^\circ\text{C}$ 以上的高温裂解,在未破裂的小包裹体封闭体系中原油极端裂解的气体产物和裂解残余的固体焦沥青都可能保存在包裹体微封闭体系中,因此拉曼谱图中不仅检测到高浓度和高密度的甲烷而且检测到十分明显的焦沥青的拉曼特征峰,图 2a,b 分别代表在石英和方解石矿物中包含有固体焦沥青的高密度甲烷包裹体,在谱图中 CH_4 的拉曼位移在 $2\,910\sim 2\,911\text{ cm}^{-1}$ 的强度很高,根据普光气田储层中甲烷包裹体拉曼位移在 $2\,910\sim 2\,911\text{ cm}^{-1}$ 的包裹体冷冻—加热测定,甲烷包裹体的均一温度 $< -118\text{ }^\circ\text{C}$,进一步由 PVTsim 软件计算,包裹体中 CH_4 的密度达 $0.344\text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$ ^[6-9];此外,在谱图 2a,b 中有特殊意义的是很少含 H_2S 而富含明显的焦沥青“D”峰和“G”峰。根据刘德汉等建立的焦沥青拉曼反射率 ($R_{o,L}$) 的计算公式: $R_{o,L}/\% = 0.0538 d(G-D) - 11.13$ ^[10],计算高密度甲烷包裹体中焦沥青拉曼反射率 $R_{o,L} = 2.9\%\sim 3.5\%$,其结果与储层中实测的焦沥青反射率 $R_{o,b} = 2.85\%\sim 3.3\%$ 的数据基本相当,表明这类包裹体经历的热演化程度很高。从这类高密度甲烷包裹体的产出和分布特征可见,主要为比较细小和未破裂的微封闭体系中方解石在油藏阶段捕获的石油包裹体受后期高

温热演化作用,形成的油裂解成因的甲烷和裂解残余的固体焦沥青都保存在小包裹体封闭体系中,成为含焦沥青的高密度甲烷包裹体。反映了本区油裂解气成因的微观模型。

(2)是在封盖层很好的碳酸盐油藏中受高温裂解作用,并伴随有“TSR”生成 H_2S 的高温高压流体被同期矿物捕获的含 H_2S 而不含焦沥青的高密度甲烷包裹体。图 2c 代表 PG5 井碳酸盐储层中广泛含 H_2S 的高密度甲烷包裹体,在拉曼谱图中 CH_4 的拉曼位移主要在 $2\,910.79\text{ cm}^{-1}$ 左右,为明显含 H_2S 的高密度甲烷包裹体。含这种高密度甲烷包裹体的储层样品中往往富含热演化程度很高的焦沥青 ($R_{o,b} = 3.2\%\sim 3.5\%$),表明这类高密度甲烷包裹体捕获于油藏高温裂解时期,储层流体中不仅有裂解成因高压甲烷,而且有“TSR”成因的 H_2S 被矿物包裹体捕获^[6]。据图 2a,b 为含焦沥青而基本不含 H_2S 的高密度甲烷包裹体的拉曼谱图,说明在普光地区碳酸盐储层中初始原油的有机硫含量低,因此封闭体系中石油包裹体裂解成因高密度甲烷包裹体中 H_2S 的特征峰十分微小,而捕获于油藏高温裂解时期明显含 H_2S 而不含焦沥青的高密度甲烷包裹体的现象,可能与储层体系中原油裂解成因的焦沥青易发生凝聚并充填在储层空隙中而不易被高密度甲烷包裹体捕获。

(3)产于烃源岩中不含 H_2S 也不含焦沥青的高密度甲烷包裹体。图 2d 代表 WK1 井下志留统黑色硅质烃源岩中,含 CH_4 的拉曼位移在 $2\,911\text{ cm}^{-1}$ 时浓度很高,并且很少含有其他非烃组分的高密度甲烷包裹体。表明其成因和产出条件与普光地区气藏的高密度甲烷包裹体明显不同。据 CH_4 的拉曼位移主要在 $2\,910\sim 2\,911\text{ cm}^{-1}$ 左右和甲烷包裹体冷冻—加热测定的均一温度 $< -182.45\text{ }^\circ\text{C}$,表明石英中的高密度甲烷包裹体是捕获于优质烃源岩在热演化干气阶段,明显存在高压甲烷气产出的地质地球化学条件。

(4)与高密度甲烷包裹体共生的轻烃包裹体。图 2e 可见在 WK1 井下志留统黑色硅质烃源岩中同时产出有少量轻烃包裹体与高密度甲烷包裹体共生。在图 2d,图 2e 拉曼谱图中 $\text{C}_n\text{H}_{2n+2}$ 的低碳数正烷烃的拉曼位移峰十分突出,表明川东北 WK1 井下古生界地层,在地质历史中富含有机质的下志留统黑色硅质烃源岩的烃类生成、运移、聚集的地质地球化学环境比较复杂,在富含高密度甲烷的流体中也存在微量低碳数正烷烃。

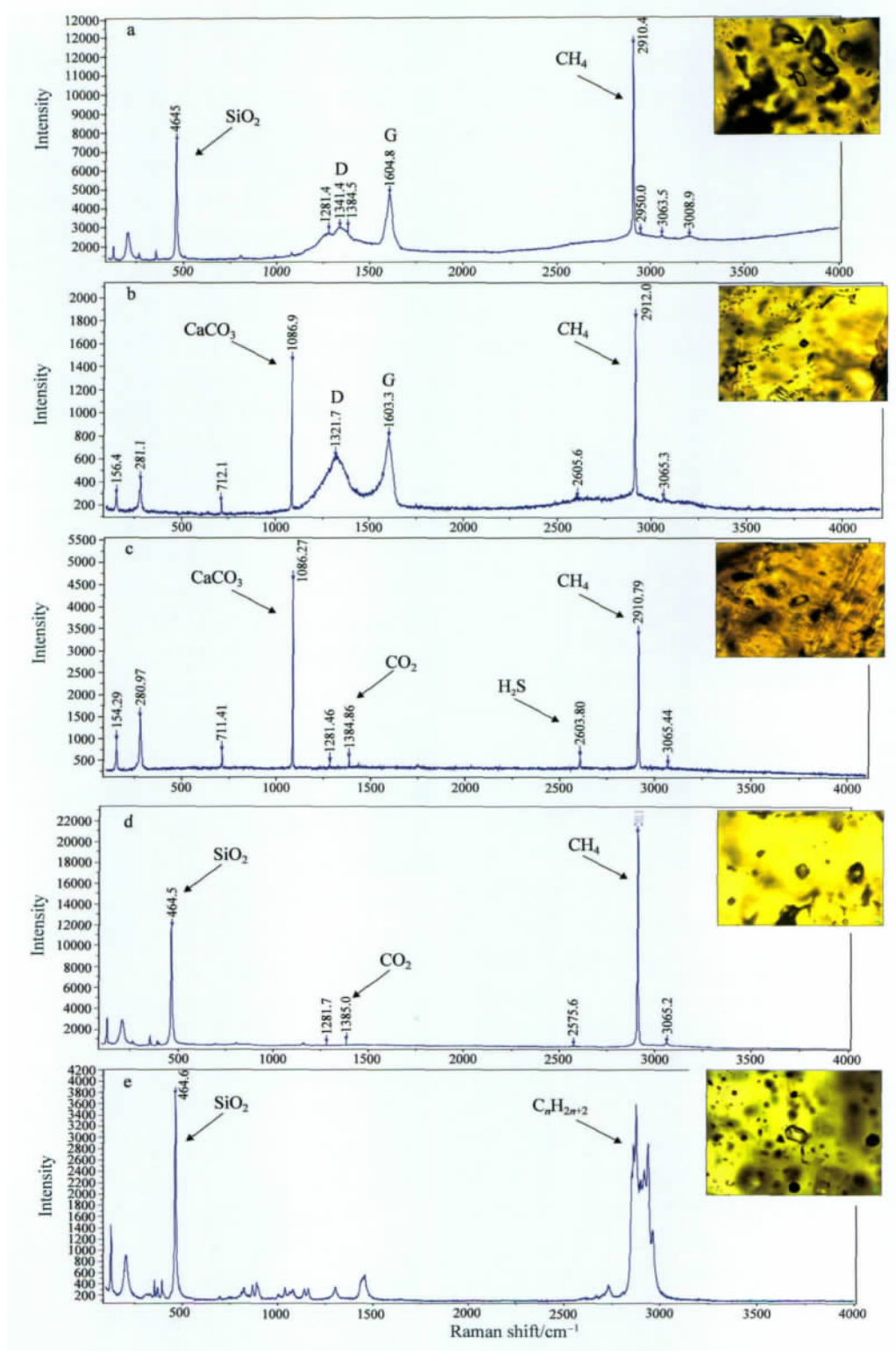


图2 高密度甲烷包裹体和轻烃包裹体激光拉曼谱图

Fig. 2 Raman spectra of the high density methane and the light hydrocarbon inclusions

a—PG3 井石英中含焦沥青和微量 CO₂ 的高密度甲烷包裹体; b—PG5 井方解石中含焦沥青的高密度甲烷包裹体; c—PG5 井方解石中含 H₂S 和微量 CO₂ 的高密度甲烷包裹体; d—WK1 井石英中含微量 CO₂ 的高密度甲烷包裹体; e—WK1 井石英中包含的轻烃包裹体。谱图中 CH₄ 拉曼位移为 2 910.4~2 911.97 cm⁻¹, 焦沥青 D 峰为 1 321.7~1 341.4 cm⁻¹, G 峰为 1 603.3~1 604.8 cm⁻¹; H₂S 拉曼位移为 2 603.8 cm⁻¹; CO₂ 拉曼位移为 1 281.46 cm⁻¹ 和 1 384.86 cm⁻¹; 主矿物石英拉曼位移为 464.5 cm⁻¹; 方解石拉曼位移为 1 086.27~1 086.9 cm⁻¹。

<http://www.earthsciencefrontiers.net.cn> 地学前缘, 2013, 20(1)

3 高密度甲烷包裹体的形成条件与天然气勘探前景

3.1 油裂解气

在文献资料中关于普光气田的烃源岩,有下三叠统、下志留统泥质烃源岩和部分侏罗系煤等多种认识^[11-18],据储层中发现的高密度甲烷包裹体类型和产出特征分析,以及有机地球化学和硫同位素与碳同位素资料,对于普光气田为油裂解成因的气藏已有很多共同认识。关于成藏阶段:根据原油裂解的热力学和动力学模拟资料(图3)^[12],古油藏在142 Ma,古地温>150 °C开始大量裂解生气,并在古地温约200 °C时大量生气阶段发生第一次超压突破,在132 Ma古地温达220 °C时湿气进一步裂解为干气,发生第二次超压突破。储层中可能达到的最大压力为150~170 MPa。发生超压突破与气体泄漏后与地层的静水压力达到平衡再封闭的流体压力在70 MPa左右。白垩系末储层抬升后储层的流体压力降低到约60 MPa,气藏压力系数在1.1左右^[12]。

据普光气田储层中含H₂S的高密度甲烷包裹体中CH₄的拉曼位移2 910~2 911 cm⁻¹与高密度甲烷包裹体的均一温度-117~-118 °C的PVTsim模拟计算,古地温在180~200 °C的压力为158~170 MPa,表明含H₂S的高密度甲烷包裹体是在142 Ma和132 Ma强烈超压时期储层流体高温高压

环境中有“TSR”生成H₂S的重要证据^[19-22]。但是在储层古流体演化的地质历史中储层流体压力不是都处于强烈超压状态,由图3和图4可见在气藏超压泄漏到再平衡封闭期方解石矿物也捕获有少量非高密度的甲烷包裹体记录。

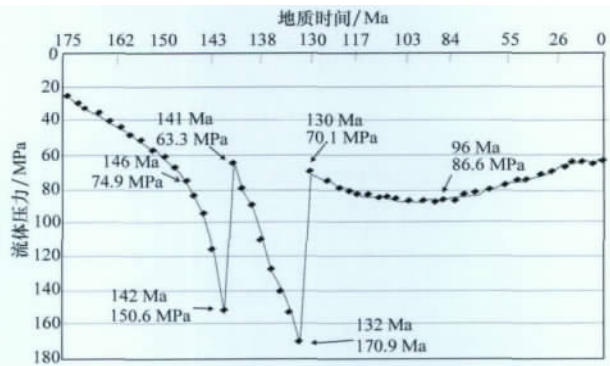


图3 普光气藏储层流体压力的热动力学PVTsim模拟曲线 (据刘德汉等^[12])

Fig. 3 The thermokinetic PVTsim simulative hydro-press curve of the reservoir in the Puguang gas field

此外,烃源岩和矿物流体包裹体观测结果表明:川东北富有机质下三叠统飞仙关组、上二叠统大隆组、下志留统龙马溪组等都是很好的生油岩,它们在157 Ma以前形成古油藏。侏罗—白垩纪时期,地层中存在高温热演化作用,具有形成油裂解气的地质地球化学条件和广泛的天然气勘探前景。

3.2 页岩气

大型油气盆地中的页岩气是当前国外勘探研究的一个热点,近年来我国也十分重视。邹才能^[23]、王

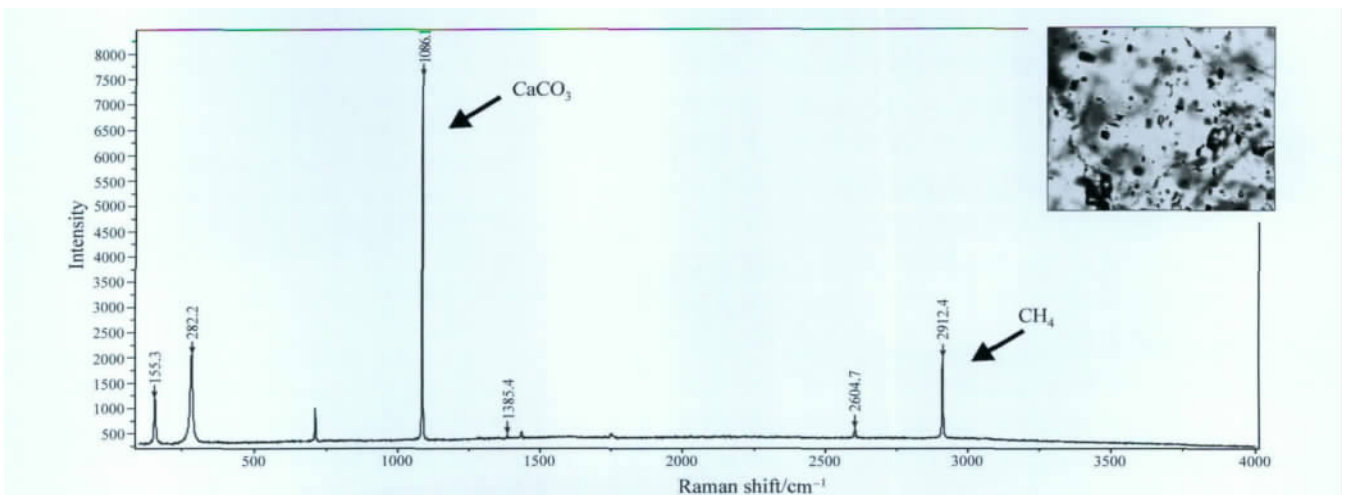


图4 普光气藏中非强烈超压时期捕获的少量甲烷包裹体的拉曼光谱

Fig. 4 The Raman spectra of methane inclusion captured in the non-super-press periods in the Puguang gas field CH₄的拉曼位移为2 912.4~2 915 cm⁻¹。

兰生等^[24]和王世谦等^[25]认为:四川盆地下古生界有页岩气的勘探前景。目前,四川南部以页岩气为目标钻探的长芯1井,已得到了大量页岩气的地质信息。区域地质资料表明:四川盆地下古生界页岩气的勘探目标,首选为厚度较大的下寒武黑色页岩,同时川东北地区志留系比较发育,由上奥陶统顶部到下志留统底部的五峰组和龙马溪组,富有机质的烃源岩厚度 $>30\sim 50$ m,残余有机碳含量可达2.47%,据有机岩石学观察,烃源岩原始有机母质类型好,黑色硅质页岩中微粒体和残余固体沥青丰富(图1b),焦沥青反射率 $R_{o,b}=2.7\%\sim 3.3\%$,黑色页岩中的石英等矿物比较发育,符合页岩气勘探的有利条件。并且在五科1井中的4277.5~4900 m下志留统地层中见裂缝衰竭性低产气层^[26],特别是研究工作中在龙马溪组黑色硅质页岩中新发现了一批浓度高、密度大甲烷包裹体(图1d和g,图2d)以及少量轻烃包裹体(图1h和图2e),它们为下古生界地层页岩气和油裂解气的勘探评价提供了重要信息,进一步剖析龙马溪组黑色页岩石英中捕获的高密度甲烷包裹体产出地质地球化学条件有重要的理论和实际意义。

根据下志留统黑色页岩石英中富含大量高密度甲烷包裹体的拉曼位移主要在 $2910\sim 2911.4\text{ cm}^{-1}$ 和拉曼谱图中 CH_4 的纯度较高,其他组分含量很少的基本特征,其应属于热演化程度很高的高密度干气包裹体,说明尽管当前国外一些产页岩气的盆地主要为常压、低产气田,但是,我国下志留统黑色页岩在地质历史中存在高压甲烷包裹体产出事实,表明高压流体的成因可能与页岩油的裂解有关,据黑色页岩中残余有机类型的观察分析,由腐泥型干酪根热演化成因的微粒体和由液态烃裂解的残余焦沥青丰富,说明下志留统黑色页岩有多种生气作用和生气阶段。据下志留统黑色页岩中甲烷包裹体的拉曼光谱分析与普光三叠系油裂解气储层中高密度甲烷包裹体的组成特征明显不同,产于志留系黑色页岩地层中的高密度甲烷包裹体 H_2S 的含量很少,表明不存在“TSR”的地质地球化学条件,而且不同地质构造条件下页岩气的生气机理、赋存形式、储聚层位多种多样,地质历史中部分富甲烷的高压气可以向上部石炭系碳酸盐地层供气,成为川东北地区的石炭系气田重要气源。总之,有关下古生界黑色页岩气的勘探评价有待更多的观察研究与勘探实践。

4 结论

川东北地区三叠系碳酸盐与碎屑岩储层和志留系黑色页岩中先后发现了多种类型不同的高密度甲烷包裹体。其中三叠系储层中含焦沥青反映了油藏阶段捕获的石油包裹体经后期高温裂解的成因;碳酸盐中含 H_2S 高密度甲烷包裹体反映了油裂解气储层中有“TSR”的地球化学环境;志留系黑色页岩中发现基本不含 H_2S 的高密度甲烷包裹体揭示了下古生界高演化黑色页岩在地质历史中存在富含高压甲烷的流体现象,为川东北地区寻找“油裂解气”与“页岩气”的勘探评价提供了重要依据。

参考文献

- [1] Vratislav H, Frantisek M, Antoni K T. Fluid inclusion evidence for deep burial of the Tertiary accretionary wedge of the Carpathians[J]. *Terra Nova*, 2006, 18(6): 440-446.
- [2] Liu W, Fei P X. Methane-rich fluid inclusions from ophiolitic dunite and post-collisional mafic-ultramafic intrusion: The mantle dynamics underneath the Palaeo-Asian Ocean through to the post-collisional period[J]. *Earth and Planetary Science Letters*, 2006, 242: 286-301.
- [3] Song S G, Niu Y L, Lai Y, et al. CH_4 inclusions in orogenic harzburgite: Evidence for reduced slab fluids and implication for redox melting in mantle wedge[J]. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 2009, 73: 1737-1754.
- [4] Chen Y, Zhou Y Q, Zhang L P, et al. Discovery of CH_4 -rich high-pressure fluid inclusions hosted in analcime from Dongying depression, China[J]. *Journal of Petroleum Science and Engineering*, 2007, 56: 311-314.
- [5] Lu W J, Chou I M, Burruss R C, et al. A unified equation for calculating methane vapor pressures in the CH_4 - H_2O system with measured Raman shifts[J]. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 2007, 71: 3969-3978.
- [6] 刘德汉,戴金星,肖贤明,等. 普光气田中高密度甲烷包裹体的发现及形成的温度和压力条件[J]. *科学通报*, 2010, 55(3/4): 359-366.
- [7] 刘德汉,肖贤明,田辉,等. 油气藏和石油包裹体极端演化模式和 H_2S 成因的高密度甲烷包裹体证据[J]. *矿物岩石地球化学通报*, 2011, 30(增刊): 364.
- [8] 刘德汉,肖贤明,田辉,等. 应用储集层流体包裹体和沥青特征判别天然气的成因[J]. *石油勘探与开发*, 2009, 36(3): 375-382.
- [9] 刘德汉,卢焕章,肖贤明. 油气包裹体及其在石油勘探开发中的应用[M]. 广州: 广东科技出版社, 2007: 60.

- [10] 刘德汉,肖贤明,田辉,等. 固体有机质拉曼光谱中“D-G”峰的热演化模式与镜质组反射率的关系[C]//第13届全国有机地球化学学术会议论文摘要汇编. 北京:中国海洋石油总公司, 2011: 66-67.
- [11] 蔡立国,饶丹,潘文蕾,等. 川东北地区普光气田成藏模式研究[J]. 石油地质实验, 2005, 27(5): 462-467.
- [12] 刘德汉,肖贤明,田辉,等. 论普光原油裂解气的动力学和热力学模拟方法与结果[J]. 天然气地球科学, 2010, 21(2): 175-183.
- [13] 马永生,蔡勋育,李国雄. 四川盆地普光大型气藏基本特征及成藏富集规律[J]. 地质学报, 2005, 79(6): 858-865.
- [14] 马永生,蔡勋育,郭彤楼. 四川盆地普光大型气田油气充注与富集成藏的主控因素[J]. 科学通报, 2007, 52(增刊): 149-155.
- [15] 刘德汉,肖贤明,熊永强,等. 四川东部飞仙关组鲕滩气藏储层含自然硫不混溶包裹体及硫化氢成研究[J]. 中国科学: D辑, 2006, 36(6): 520-532.
- [16] 张水昌,朱光有,陈建平,等. 四川盆地东北部飞仙关组高含硫化氢大型气田群气源探讨[J]. 科学通报, 2007, 52(增刊): 86-94.
- [17] 朱光有,张水昌,李剑,等. 中国高含硫化氢天然气的形成及其分布[J]. 石油勘探与开发, 2004, 31(3): 18-21.
- [18] Cai C F, Xie Z Y, Worden R H, et al. Methane-dominated thermochemical sulphate reduction in the Triassic Feixianguan Formation in East Sichuan Basin, China[J]. Marine and Petroleum Geology, 2004, 21: 1265-1279.
- [19] 赵文智,汪泽成,王一刚. 四川盆地东北部飞仙关组高效气藏形成机理[J]. 地质论评, 2006, 52(5): 708-718.
- [20] 赵文智,王兆云,张水昌,等. 不同地质环境下原油裂解生气条件[J]. 中国科学: D辑, 2007(增刊II): 63-68.
- [21] 田辉,肖贤明,杨立国,等. 原油高温裂解生气潜力与气体特征[J]. 科学通报, 2009, 54(6): 781-786.
- [22] Tian H, Xiao X M, Wilkins R W T, et al. New insights into the volume and pressure changes during the thermal cracking of oil to gas in reservoirs: Implications for the in-situ accumulation of gas cracked from oils[J]. AAPG Bulletin, 2008, 92(2): 181-200.
- [23] 邹才能. 非常规油气地质[M]. 北京:地质出版社, 2011: 128-159.
- [24] 王兰生,邹春艳,郑平,等. 四川盆地地下古生界存在页岩气的地球化学依据[J]. 天然气工业, 2009, 29(5): 59-62.
- [25] 王世谦,陈更生,董大忠,等. 四川盆地地下古生界页岩气藏形成条件与勘探前景[J]. 天然气工业, 2009, 29(5): 51-58.
- [26] 汪泽成,赵文智,张林,等. 四川盆地构造层序与天然气勘探[M]. 北京:地质出版社, 2002: 277-286.

欢迎向新英文刊《Geoscience Frontiers》投稿

《Geoscience Frontiers》是2010年获国家新闻出版总署批准的新英文刊物,由中国地质大学(北京)、北京大学主办,2010年10月创刊出版。《Geoscience Frontiers》的办刊宗旨为:瞄准国际地学领域学科前沿,发表国内外地学前缘研究成果,探索地学前缘发展态势,为推动地学事业和加速我国现代化建设服务。诚邀国内外地学专家向《Geoscience Frontiers》投稿。

本刊参考文献采用著者—出版年制。

投稿系统: <http://www.elsevier.com/locate/gsf>

地址:北京市学院路29号中国地质大学(北京)《Geoscience Frontiers》编辑部

邮编:100083 电话/传真:010-82322283 E-mail: geofrontier@cugb.edu.cn