

引用格式:徐聃,张聪,贾慧敏,等.沁水盆地南部3号煤层气稀有气体同位素特征及氦的稀释[J].油气藏评价与开发,2025,15(5):921-932.

XU Dan, ZHANG Cong, JIA Huimin, et al. Noble gas isotopic characteristics and helium dilution of coalbed methane from the third coal seam in southern Qinshui Basin[J]. Petroleum Reservoir Evaluation and Development, 2025, 15(5): 921-932.

DOI: 10.13809/j.cnki.cn32-1825/te.2025.05.021

沁水盆地南部3号煤层气稀有气体同位素特征及氦的稀释

徐聃^{1,2,3}, 张聪⁴, 贾慧敏⁴, 李玉宏^{1,2,3}, 秦胜飞^{2,5}, 张文^{2,6}, 周俊林^{1,2,3}, 马尚伟^{1,2,3}, 范焱^{1,2,3}

(1.中国地质调查局西安地质调查中心,陕西西安 710119;2.中国地质调查局氦气调查研究中心,陕西西安 710119;3.中国地质调查局北方古生界油气地质重点实验室,陕西西安 710119;4.中国石油华北油田山西煤层气勘探开发分公司,山西长治 046000;5.中国石油勘探开发研究院,北京 100083;6.中国地质科学院地质研究所,北京 100037)

摘要:氦气作为关键战略性资源,储量十分有限,但其在气藏中的富集与稀释机制尚未明确。稀有气体同位素在表征气相与地下水相互作用方面发挥着重要作用。对沁水盆地南部3号煤层气中稀有气体组分含量和同位素进行测试分析,明确该区域煤层气中稀有气体同位素组成特征,建立氦气成藏模式。采集13口煤层气生产井的气体样品,结果显示:煤层气中氦含量普遍比空气中高一个数量级,氦同位素³He/⁴He值为0.002 9~0.021 8 R_a,幔源贡献极低(0~0.31%);²⁰Ne/²²Ne值为10.09~10.43,²¹Ne/²²Ne值为0.029 6~0.031 9,均略高于空气值,²¹Ne相对空气过剩;⁴⁰Ar/³⁶Ar值为295.23~779.44,整体大于空气值,受壳源⁴⁰Ar年代累积效应显著影响;氪和氙的同位素特征与空气类似。氦产量定量计算揭示,自生自储煤层气系统中存在来自煤层外部的⁴He通量。⁴He与²⁰Ne的线性关系表明,氦在脱气进入气藏前溶解于地下水中,从煤层解吸的甲烷稀释了地下水伴生气中的氦(氦、氩),因此,品位较低的气藏反而更容易富集氦气。氦气主要分布在具有有效氮源岩、古老地下水系统、高效运移通道和适当生烃强度的地区,这在煤层气中寻找氦气资源提供了理论基础。瑞利分馏和稀释模型以及采气量量化显示,每口井采气过程中的水量为8.03×10³~1.63×10⁶ m³,煤层气开采仅影响每口井周围的局部水,以此为依据可以优化井距设计。

关键词:沁水盆地;煤层气;氦气;稀有气体同位素;瑞利分馏

中图分类号:TE133

文献标识码:A

Noble gas isotopic characteristics and helium dilution of coalbed methane from the third coal seam in southern Qinshui Basin

XU Dan^{1,2,3}, ZHANG Cong⁴, JIA Huimin⁴, LI Yuhong^{1,2,3}, QIN Shengfei^{2,5}, ZHANG Wen^{2,6}, ZHOU Junlin^{1,2,3}, MA Shangwei^{1,2,3}, FAN Yan^{1,2,3}

(1. Xi'an Center, China Geological Survey, Xi'an, Shaanxi 710119, China; 2. Research Center for Helium, China Geological Survey, Xi'an, Shaanxi 710119, China; 3. Key Laboratory of Palaeozoic Oil and Gas Geology in North China, China Geological Survey, Xi'an, Shaanxi 710119, China; 4. Shanxi Coalbed Methane Exploration and Development Company, PetroChina Huabei Oilfield, Changzhi, Shanxi 046000, China; 5. PetroChina Research Institute of Petroleum Exploration & Development, Beijing 100083, China; 6. Institute of Geology, Chinese Academy of Geological Sciences, Beijing 100037, China)

Abstract: Helium is a crucial strategic resource with very limited reserves, but its enrichment and dilution mechanisms in gas reservoirs remain unclear. Noble gas isotopes play an important role in characterizing the interactions between gas and groundwater. In this study, noble gas compositions and isotopic signatures of coalbed methane (CBM) from the third coal seam in the southern Qinshui Basin were analyzed to determine the isotope composition characteristics of noble gas and to establish a helium reservoir formation model. Gas samples were collected from 13 CBM production wells. The results showed that the helium (He) content in CBM was generally one order of magnitude higher than in the atmosphere. The ³He/⁴He ratios were 0.002 9-0.021 8 R_a, with a very low mantle source contribution (0-0.31%). The ²⁰Ne/²²Ne ratios (10.09-10.43) and ²¹Ne/²²Ne ratios (0.029 6-0.031 9) were slightly higher than those in the atmosphere, reflecting an excess of ²¹Ne relative to the atmosphere. The ⁴⁰Ar/³⁶Ar ratios (295.23-779.44) were overall higher than the atmospheric values, suggesting a significant influence of crustal ⁴⁰Ar accumulation over time. The isotopic signatures of krypton (Kr) and xenon (Xe) were similar to those of

收稿日期:2025-01-16。

第一作者简介:徐聃(1991—),男,硕士,助理工程师,主要从事油气及非常规能源地质调查工作。地址:陕西省西安市长安区常宁新区仓台西路555号,邮政编码:710119。E-mail:xdan@mail.cgs.gov.cn

基金项目:国家重点研发计划“复杂地质介质中氦气运聚及富氦气藏封盖机制研究”(2021YFA0719003);中国地质调查局战略性矿产资源调查评价项目“氦气资源调查评价与示范”(DD20230026);中国地质调查局战略性矿产资源调查评价项目“汾渭盆地氦气资源勘查示范”(DD20230268);陕西省重点研发计划“俄罗斯-中亚氦气资源潜力评价与可利用性研究”(2024GH-YBXM-04)。

the atmosphere. Quantitative calculations of helium production revealed an external ^4He flux into the self-generating and self-preserving CBM system. The linear relationship between ^4He and ^{20}Ne indicated that helium dissolved in groundwater before degassing into the gas reservoir, while methane desorbed from coal seams diluted helium (as well as neon and argon) in the groundwater-associated gases. Therefore, gas reservoirs with lower grades were more likely to accumulate helium. Helium was mainly distributed in areas with effective helium source rocks, ancient groundwater systems, efficient migration channels, and appropriate hydrocarbon generation intensity, providing a theoretical basis for exploring helium resources in CBM. Rayleigh fractionation, dilution modelling, and gas production quantification showed that the water output per well during gas production was $8.03 \times 10^3 - 1.63 \times 10^6 \text{ m}^3$. CBM exploration affected only the local water around each well, offering a basis for optimizing well spacing design.

Keywords: Qinshui Basin; coalbed methane; helium; noble gas isotopes; Rayleigh fractionation

稀有气体是研究地下流体运移与聚集过程的优良示踪剂^[1]。近年来,对稀有气体及其同位素的研究逐渐受到重视^[2-6],其蕴含丰富的油气成藏地质信息,已广泛应用于油气地质与地球化学研究领域^[7]。稀有气体具有化学活动性低、自然界丰度极低以及特定成因等特征,可用于研究天然气成因、气源追踪、壳幔物质相互作用、运聚过程、大地构造及大地热流等,是进行气源对比和判断幔源混入成分的重要手段^[8]。

氦气作为重要的稀缺型战略资源,其富集与稀释机制尚未明确。氦(He)有空气氦、幔源氦及壳源氦3种来源,但因天然气中空气氦含量极低,通常认为天然气中的氦来自幔源或壳源^[9-10]。幔源氦(^3He)为地球形成时保留于地幔中的氦^[11],可通过深大断裂或火山活动进入地壳^[12-13];壳源氦(^4He)由地壳岩石中铀(U)、钍(Th)元素的放射性衰变产生^[14]。氖(Ne)有 ^{20}Ne 、 ^{21}Ne 、 ^{22}Ne 3个稳定同位素,其中 ^{21}Ne 和 ^{22}Ne 可由地壳物质的放射性核反应生成,导致其相对于大气组成存在过剩^[15],样品中 $^4\text{He}/^{20}\text{Ne}$ 可用于评估天然气受空气污染的程度^[16]。氩(Ar)的稳定同位素为 ^{36}Ar 、 ^{38}Ar 、 ^{40}Ar ,地球上的 ^{36}Ar 和 ^{38}Ar 来自原始空气, ^{40}Ar 则由U、Th和K的放射性衰变产生^[15], $^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$ 值随地层时代变老而增大,呈现年代积累效应^[17]。氪(Kr)有 ^{78}Kr 、 ^{80}Kr 、 ^{82}Kr 、 ^{83}Kr 、 ^{84}Kr 和 ^{86}Kr 6个稳定同位素。氙(Xe)有 ^{124}Xe 、 ^{126}Xe 、 ^{128}Xe 、 ^{129}Xe 、 ^{130}Xe 、 ^{131}Xe 、 ^{132}Xe 、 ^{134}Xe 、 ^{136}Xe 9个稳定同位素。地球中 ^{129}Xe 的主要来源为元素合成时期已灭绝的 ^{129}I 放射衰变, $^{131-136}\text{Xe}$ 则主要来自 ^{238}U 的自发裂变或已灭绝的 ^{244}Pu 放射衰变^[15]。地幔中 ^{129}Xe 同位素常显示出过剩,而由 ^{238}U 自发裂变产生的 $^{131-136}\text{Xe}$ 通常在地壳物质中表现出过剩^[18]。

沁水盆地气水关系复杂,产气过程中存在产水率高的现象。稀有气体的富集与稀释均与地下水及碳氢化合物密切相关,且其在地下几乎不与其他物质发生各种化学反应,因而是定量研究地下气水相互作用的最佳工具之一。对沁水盆地南部3号煤层气开展稀有气体组分含量及同位素研究,通过分析该区域煤层气中稀有气体同位素组成,明确稀有气体的成因来源;利用稀有气体同位素特征模拟研究区气水分离平衡,对比预测值与测量

值的差异,解释氦气富集与稀释特征,建立氦气成藏模式,并分析氦气富集的主控因素。

1 地质背景

沁水盆地为华北地台中部的山间断陷盆地,其东为太行山隆起,西为霍山隆起,南为中条山隆起,北为五台山隆起,总体呈轴向北北东的宽缓复式向斜,先后经历海西期、印支期、燕山期及喜马拉雅期构造运动^[19]。盆地内发育前寒武系、寒武系、奥陶系、石炭系、二叠系、三叠系、侏罗系及新生界地层,南北两端地层倾角较小、产状平缓,中部倾角较大、地层较陡^[20]。主要含煤地层为石炭系上统一二叠系下统太原组与二叠系山西组,其中山西组3号煤和太原组15号煤为主要煤层(图1)。

沁水盆地南部构造类型主要为一系列轴向北北东及南北向的宽缓褶皱,地层倾角一般介于 $5^\circ \sim 15^\circ$,两翼基本对称,断层较少。盆地南部总体构造形式呈向北倾的单斜,其东为伊候山断褶带,西为寺头—土沃弧形断裂系,南为驾岭—南岭断裂系,北为河西断裂系^[19]。山西组下部的3号煤层厚度大、分布稳定,为目前煤层气的主要勘探开发目的层。

沁水盆地南部3号煤形成于三角洲平原泥炭沼泽沉积环境,沉积稳定,煤层厚度介于4~7 m,平均厚度为6 m,横向连续稳定分布,为该区煤层气富集提供物质基础,有利于成藏^[22]。3号煤镜质体反射率(R_0)介于2.41%~3.03%,热演化程度较高,属于高阶煤,平面上呈现从南向北逐步降低的趋势^[22]。煤层埋深800 m以浅,大部分区域不超过500 m,该埋藏深度利于煤层气开发。煤层埋藏后,先后经历三叠纪末深层变质作用与白垩纪中期岩浆热变质作用,晚白垩世受喜马拉雅运动影响,经历持续抬升剥蚀及较强烈断裂作用。一系列构造运动使3号煤达到高阶煤阶段,吸附能力强,但也导致煤层气大量散失。

沁水盆地南部主要含奥陶系、石炭—二叠系及第四系3个主要含水层^[23],区域内山西组砂岩含水层与太原组灰岩含水层对煤层气赋存影响较大,其中山西组煤层上、下围岩裂隙含水层是影响山西组煤层气赋存的主要含水

层。东南部太行山与西北部霍山为该区域地下水的主要补给区,阳城与沁水一带水位最低,地下水运移过程中会携带途经区域的煤层气,在滞留区形成煤层气富集^[20]。

2 样品与分析

2.1 样品采集

样品取自沁水盆地南部3号煤的地面煤层气生产井,采样位置见图1。因样品中稀有气体含量低且极易受空

气污染,对采样过程及采样装置要求十分严格。稀有气体常用铜管采样器,铜管材质为制冷级别,长度约50 cm、外直径为10 mm、壁厚为1 mm,铜管两端为不锈钢夹。取样步骤为:先将井口压力表泄压后取下,将取样铜管一端通过三通(排空口关闭)连接管线,再接于井口拆下压力表的接口,另一端管线伸入饱和食盐水溶液;然后用排出的气体对管线与铜管冲洗超过10 min,以完全排出管内空气;随后将铜管远离井口一端用不锈钢夹具密封,同时打开三通排空口使多余井口气可顺利排出;最后密封铜管近井端。本次共采集沁水盆地南部3号煤煤层气样品13件。

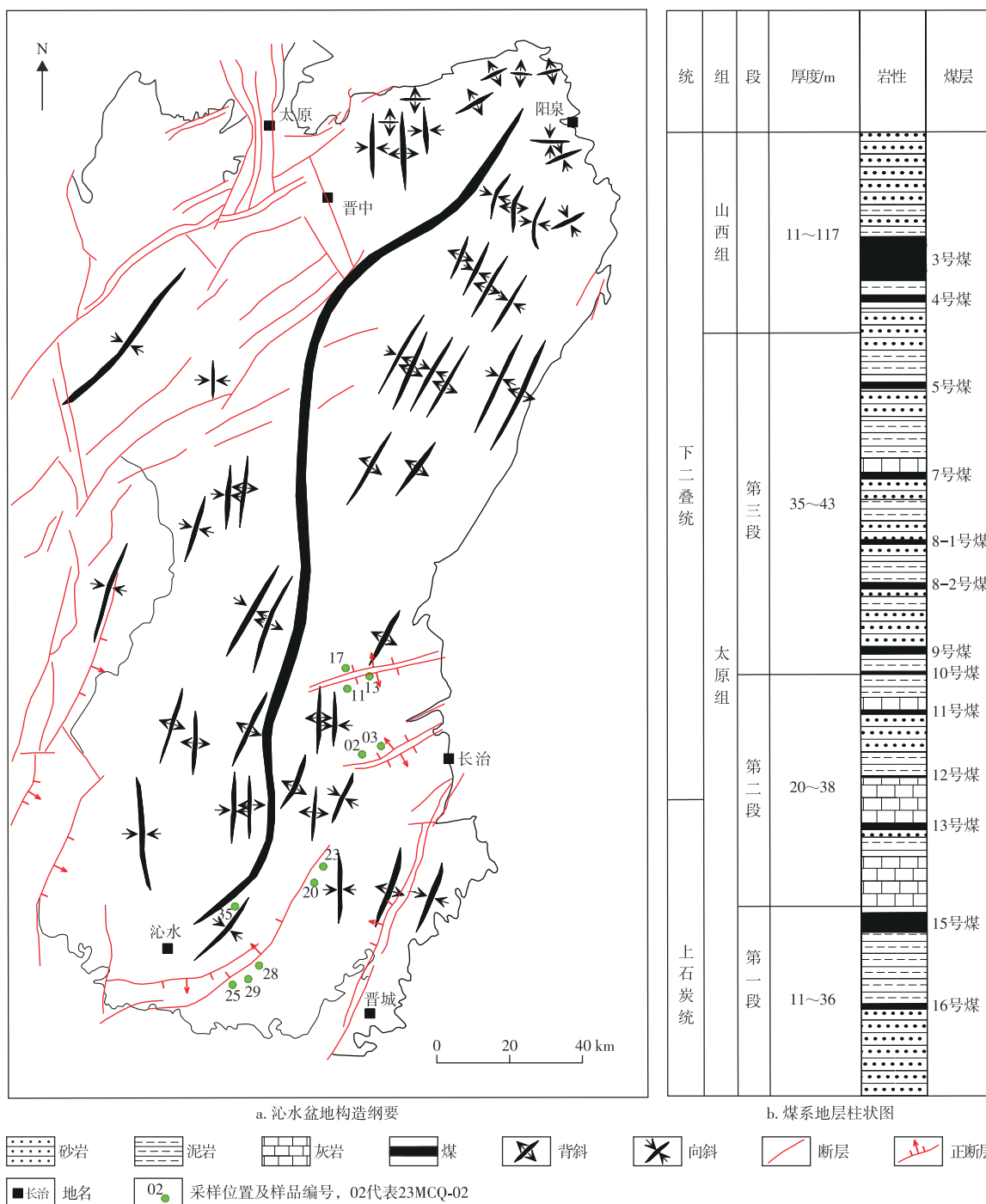


图1 沁水盆地构造纲要及煤系地层柱状图(据文献[21]修改)

Fig. 1 Structural outline and coal measure stratigraphic column of Qinshui Basin (modified from reference [21])

2.2 测试分析

13件气样被送往中国地质科学院地质研究所稀有气体同位素实验室进行测试,测试工作依据中华人民共和国石油天然气行业标准《稀有气体分离与组分含量分析 四极杆质谱法》(SY/T 7361—2017)和《稀有气体同位素比值测定法》(SY/T 7359—2017)相关技术标准与规范开展。分析测试过程分进样、气体纯化、稀有气体分离及稀有气体测试4个部分,具体过程见文献[24]。

采用峰高比测试方法,在相同实验条件下对样品及空气标样中的稀有气体进行测试,获得各自的离子流强度,进而计算得到稀有气体含量及同位素值。样品测试过程中同步开展空白样品与空气标样测试,以确保仪器本底及稳定性满足测试要求。因运输过程中可能发生泄漏,2件样品的测试分析结果被判定为漏气,因此舍去该数据。

3 结果

3.1 常规组分

前期工作还获取了气体组分含量及碳氢同位素的测试数据(表1)。沁水盆地南部所有样品中甲烷是主要成分(>99.00%),含量介于99.31%~99.75%,平均为99.57%;乙烷含量极低(<0.10%),仅为0~0.10%,平均为0.02%;含少量 N_2 (0.13%~0.59%)和微量 CO_2 (0.01%~0.09%)。煤层气干燥系数(C_1/C_{2-5})接近1.00,表明沁水盆地煤层气为典型干气。甲烷碳同位素介于-31.7‰~-39.8‰,平均为-35.15‰,且 C_1/C_{2+} 极高(>1 000);甲烷氢同位素介于-175.4‰~-200.5‰,平均为-186.81‰。

微生物作用生成的甲烷 $\delta^{13}C_1$ 偏轻(普遍小于-50‰),热成因甲烷 $\delta^{13}C_1$ 一般较重(常大于-50‰)。沁水盆地煤层气甲烷碳同位素介于-31.7‰~-39.8‰,表明

甲烷为热成因。根据煤岩热模拟回归公式($\delta^{13}C_1/\text{‰}=12.97\lg R_0-34.6$),可计算未经分馏的甲烷碳同位素值^[25],由3号煤的镜质组最大反射率计算得到沁水盆地未经分馏的煤层甲烷 $\delta^{13}C_1$ 为-28.36‰~-29.65‰。运移分馏会使甲烷碳同位素变重,而实测甲烷 $\delta^{13}C_1$ 为-31.7‰~-39.8‰,比未经分馏的煤层甲烷 $\delta^{13}C_1$ 轻,因此,运移分馏无法解释此现象。以地表温度20℃、煤层最大埋深800 m、最大古地温梯度6℃/hm^[26]计算,煤层最高温度小于75℃,满足生物气生成的温度条件^[25]。沁水盆地煤层气 C_1/C_{2+} 大于1 000,甲烷碳同位素介于-31.7‰~-39.8‰,甲烷氢同位素介于-175.4‰~-200.5‰,符合次生生物成因甲烷的地球化学特征^[26-27]。

3.2 稀有气体

表2—表3给出了沁水盆地南部3号煤层气中稀有气体组分含量及同位素比值。

1) 样品中He含量为(8.83~106.10) $\times 10^{-6}$,平均为38.13 $\times 10^{-6}$,普遍比空气中的He含量(5 $\times 10^{-6}$)高一个数量级。由于样品中的²⁰Ne全部来自空气或空气饱和地下水,因此,⁴He/²⁰Ne值可用于判断空气混入情况。样品的⁴He/²⁰Ne值为202.98~3 224.67,远高于空气中⁴He/²⁰Ne值(0.318)^[28]及空气饱和地下水中的该值(0.288)^[29],表明采样及地下水补给过程中大气来源氦气可忽略,氦气来自地壳或地幔。采用氦同位素比值(³He/⁴He)区分沁水盆地煤层气中氦气来源。样品中³He/⁴He用 R_s 表示,大气中³He/⁴He值(1.4 $\times 10^{-6}$),用 R_a 表示^[30],样品 R_s 为0.002 8~0.021 8 R_a 。

2) 样品中Ne含量为(2.27~18.87) $\times 10^{-8}$,平均为7.01 $\times 10^{-8}$ 。²⁰Ne/²²Ne值为10.09~10.43,位于大气值9.80附近且略有升高,²¹Ne/²²Ne值为0.029 6~0.031 9,略高于空气值(0.029)^[31]。

3) 样品中Ar含量为(1.41~25.69) $\times 10^{-5}$,平均为

表1 沁水盆地南部3号煤层气中气体组分含量及碳氢同位素

Table 1 Gas composition and carbon-hydrogen isotopes of coalbed methane from the third coal seam in southern Qinshui Basin

样品号	层位	日产水量/m ³	日产气量/m ³	累计产气量/m ³	气体组分含量/%				$\delta^{13}C_1/\text{‰}$	$\delta D_{CH_4}/\text{‰}$
					N_2	CO_2	C_1	C_2		
23MCQ-02	山西组	0.01	140		0.13	0.03	99.69	0.10	-32.7	-183.7
23MCQ-03	山西组	0.10	185		0.22	0.05	99.62	0.04	-33.4	-189.0
23MCQ-11	山西组	3.20	663	2 417 819	0.31	0.02	99.63	0.01	-39.8	-200.5
23MCQ-13	山西组	0.40	450	2 675 283	0.48	0.01	99.42	0.01	-38.8	-197.8
23MCQ-17	山西组	1.20	101	261 325	0.19	0.01	99.75	0.02	-34.9	-196.6
23MCQ-20	山西组	1.00	9 429	12 728 142	0.23	0.01	99.72	0.01	-35.5	-182.0
23MCQ-23	山西组	15.00	3 161	4 610 224	0.41	0.03	99.48	0.01	-34.2	-185.3
23MCQ-25	山西组	2.50	4 220	5 638 917	0.24	0.02	99.72	0.00	-32.7	-177.9
23MCQ-28	山西组	5.20	3 188	9 053 788	0.59	0.03	99.31	0.00	-36.9	-181.6
23MCQ-29	山西组	0.01	11 159	17 522 610	0.40	0.03	99.52	0.00	-36.0	-185.1
23MCQ-35	山西组	16.10	6 166	16 528 352	0.40	0.09	99.36	0.02	-31.7	-175.4

表2 沁水盆地南部3号煤层气中稀有气体组分含量

Table 2 Noble gas composition of coalbed methane from the third coal seam in southern Qinshui Basin

样品号	稀有气体组分含量				
	He/10 ⁻⁶	Ne/10 ⁻⁸	Ar/10 ⁻⁵	Kr/10 ⁻¹⁰	Xe/10 ⁻¹¹
23MCQ-02	67.40±4.75	2.30±0.03	1.41±0.01	8.50 ± 0.49	5.30±0.34
23MCQ-03	50.11±0.95	2.66±0.03	1.94±0.02	12.32 ± 0.45	8.94±0.50
23MCQ-11	25.03±1.27	7.44±0.11	15.41±0.15	111.50 ± 4.99	24.86±0.82
23MCQ-13	39.20±0.46	9.50±0.10	19.00±0.19	139.73±10.79	28.28±1.52
23MCQ-17	27.22±0.41	6.46±0.07	6.75±0.07	41.07 ± 0.88	16.07±0.56
23MCQ-20	34.82±2.49	18.87±0.20	17.09±0.17	104.94 ± 3.80	35.18±1.37
23MCQ-23	106.10±7.41	12.81±0.49	14.53±0.15	85.42 ± 2.83	14.11±1.22
23MCQ-25	16.68±0.21	4.41±0.05	10.11±0.10	85.78 ± 4.04	4.25±0.26
23MCQ-28	18.98±0.23	6.07±0.07	25.69±0.26	163.92 ± 5.13	14.51±0.60
23MCQ-29	8.83±0.17	4.32±0.07	16.96±0.17	129.57 ± 4.83	12.96±0.56
23MCQ-35	25.03±0.33	2.27±0.03	4.91±0.05	26.43 ± 0.69	6.71±0.39

注:±后为1σ误差,下同。

表3 沁水盆地南部3号煤层气中稀有气体同位素比值

Table 3 Noble gas isotope ratios of coalbed methane from the third coal seam in southern Qinshui Basin

样品号	(³ He/ ⁴ He)10 ⁻⁸	⁴ He/ ²⁰ Ne	²⁰ Ne/ ²² Ne	²¹ Ne/ ²² Ne	⁴⁰ Ar/ ³⁶ Ar	³⁸ Ar/ ³⁶ Ar
23MCQ-02	1.59±0.72	3 224.67	10.27±0.18	0.031 0±0.001 1	779.44±7.80	0.173 0±0.008 2
23MCQ-03	1.62±0.55	2 069.52	10.34±0.17	0.031 9±0.000 9	651.35±6.52	0.190 7±0.004 3
23MCQ-11	3.05±1.23	370.47	10.19±0.27	0.030 9±0.001 0	295.23±2.96	0.180 3±0.003 3
23MCQ-13	1.51±0.21	454.38	10.13±0.15	0.030 6±0.000 6	295.51±2.96	0.180 3±0.003 4
23MCQ-17	1.68±0.34	463.34	10.33±0.15	0.029 6±0.000 7	325.06±3.25	0.183 6±0.002 7
23MCQ-20	2.54±0.36	202.98	10.32±0.15	0.030 2±0.000 7	317.94±3.18	0.187 4±0.003 5
23MCQ-23	1.68±0.29	912.33	10.13±0.43	0.030 6±0.001 0	305.26±3.05	0.178 6±0.002 7
23MCQ-25	2.24±0.59	416.22	10.18±0.17	0.031 3±0.000 8	306.39±3.07	0.180 1±0.005 3
23MCQ-28	1.62±0.35	344.49	10.09±0.16	0.030 5±0.000 7	295.53±2.96	0.182 5±0.003 0
23MCQ-29	0.79±0.21	224.50	10.43±0.20	0.029 9±0.000 7	298.56±2.99	0.185 9±0.004 8
23MCQ-35	0.40±0.12	1 216.20	10.16±0.16	0.031 0±0.000 7	425.31±4.25	0.184 4±0.002 8

12.16×10⁻⁵。⁴⁰Ar/³⁶Ar值介于295.23~779.44,部分样品与大气中⁴⁰Ar/³⁶Ar值(298.56±0.31)有显著差异^[32],样品³⁸Ar/³⁶Ar值为0.173 0~0.190 7,与空气中³⁸Ar/³⁶Ar值(0.188)难以区分。

4) 样品中Kr含量为(8.50~163.92)×10⁻¹⁰,平均为82.65×10⁻¹⁰;Xe含量为(4.25~35.18)×10⁻¹¹,平均为15.56×10⁻¹¹。Kr和Xe的同位素特征与空气类似。

4 讨论

4.1 稀有气体成因来源

4.1.1 氦

⁴He/²⁰Ne值已证实样品中氦气来自地壳或地幔。根据壳幔二元混合模型,幔源氦所占份额计算公式为:

$$He_m = \frac{R_s - R_c}{R_m - R_c} \times 100\% \quad (1)$$

式中:He_m为幔源氦,单位%;R_s为样品中氦同位素值;R_c为地壳中氦同位素值;R_m为地幔中氦同位素值。因样品最小氦同位素值0.002 8 R_s小于上地壳端元值0.008 R_s^[33],因此,R_c取0.002 8 R_s(避免幔源氦所占百分比的计算结果为负数),R_m取次大陆岩石圈地幔值6.1 R_s^[30]。

结果显示,样品中幔源氦所占份额极低(0~0.31%),表明研究区氦气以壳源为主,来自地壳中的放射性衰变。氦的来源详见4.3.1节。

4.1.2 氖

²⁰Ne来自原始大气,²¹Ne和²²Ne主要由地壳中¹⁷O、¹⁸O(α, n)²⁰Ne、²¹Ne、¹⁹F(α, n)²²Na(β⁺)²²Ne、²⁴Mg、²⁵Mg(n, α)²¹Ne、²²Ne、²³Na(n, α)²⁰Ne及¹⁹F(α, p)²²Ne的放射性核反应产生^[33]。²⁰Ne/²²Ne值10.09~10.43略高于大气值9.80,可由微量质量分馏解释;²¹Ne/²²Ne值0.029 6~0.031 9略高于空气值0.029,表明存在壳源放射成因²¹Ne的混入(图2)。²⁰Ne、²¹Ne及²²Ne同位素的分异

可以由空气的质量分馏和壳源放射成因 ^{21}Ne 的混入共同解释。

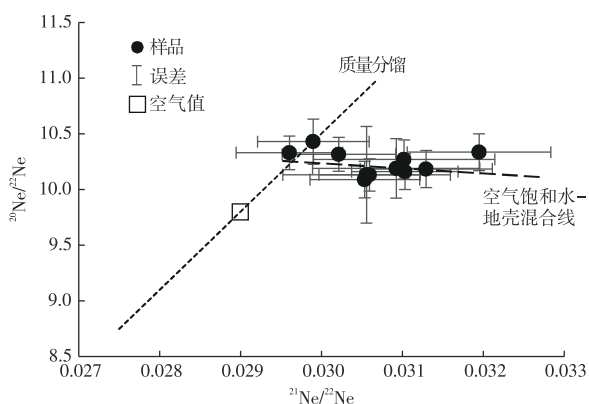


图2 $^{20}\text{Ne}/^{22}\text{Ne}$ 和 $^{21}\text{Ne}/^{22}\text{Ne}$ 同位素特征

Fig. 2 Isotopic characteristics of $^{20}\text{Ne}/^{22}\text{Ne}$ and $^{21}\text{Ne}/^{22}\text{Ne}$

4.1.3 氦

地壳中的氦主要由空气氦(^{36}Ar 、 ^{38}Ar)及放射性成因氦(^{40}Ar)组成,其中空气氦主要来自空气溶解于地表水并随其补给进入地下,为原始成因,沉积岩中 ^{40}K 的衰变为放射性成因氦的主要来源^[15]。样品 $^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$ 值普遍高于大气中该比值(298.56 ± 0.31)^[32],显示明显的放射性成因贡献,氦同位素中 ^{36}Ar 以空气成因为主,由于样品中地幔贡献很小,因此,大量的 ^{40}Ar 由地壳中矿物放射性衰变而累积而成,具有显著年代累积效应^[17,34]。样品 $^{38}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$ 值与空气中的 $^{38}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$ 值(0.188)差异较小,此类微小差异由空气在地下水中的分馏所致。

将研究区氦、氩同位素值投点于徐永昌等^[35]总结的“横人字型”图中,气样点均落在壳源区(图3),表明研究区氦、氩均为壳源成因,无地幔贡献。

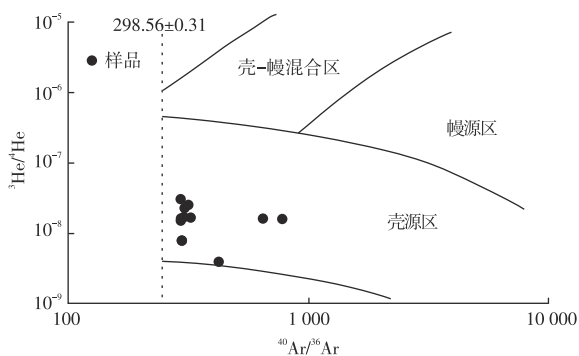


图3 氦氩成因判别(据文献[35]修改)

Fig. 3 Genetic determination of helium and argon (modified from reference [35])

4.2 稀有气体运移聚集

稀有气体 ^{20}Ne 、 ^{36}Ar 、 ^{84}Kr 及 ^{130}Xe 主要来自空气,无放射源、核源或裂源的重大贡献^[1]。这些气体最初在补给条件下溶解于地表水,并在含水层补给期间进入地下^[1]。稀有气体在水中的溶解度随分子质量增加而增大($\text{Ne} < \text{Ar} < \text{Kr} < \text{Xe}$),并受补给条件(如温度、盐度及补给高度)影响^[1]。当地下水与油气藏接触时,这些元素会进入石油或天然气中,该过程受亨利定律控制^[36-37]。通常认为,这些流体中空气来源稀有气体的特征稳定,因其化学性质不活泼且地下来源有限。因此,空气来源稀有气体(^{20}Ne 、 ^{36}Ar 、 ^{84}Kr 及 ^{130}Xe)及其比值可用于模拟常规与非常规油气系统内多组分(水、气和油)相互作用的历史^[38-39]。假设沁水盆地地下水补给条件为:温度 $10\text{ }^\circ\text{C}$, NaCl盐度 0 mol/L ,高程 700 m 。储层深度如下:23MCQ-02、23MCQ-03为 800 m ;23MCQ-11、23MCQ-13、23MCQ-17、23MCQ-20、23MCQ-23、23MCQ-35为 700 m ;23MCQ-25、23MCQ-28、23MCQ-29为 450 m 。温度和压力按平均地温梯度 $3.53\text{ }^\circ\text{C/hm}$ ^[40]和平均压力梯度 $6.4\times 10^5\text{ Pa/hm}$ ^[41]计算,地下水化学类型以Na-HCO₃型为主,矿化度取平均值 1.3 g/L ^[42],换算为NaCl盐度 0.022 mol/L 。根据上述参数,通过经验方程计算了逸度系数(r)和活度系数(φ)修正^[1,43]的水中稀有气体亨利系数(K_i)(表4)。

表4 水中稀有气体亨利系数

Table 4 Henry's law constants of noble gases in water

深度/m	稀有气体	K_i
450	Ne	89.673
	Ar	30.808
	Kr	17.814
	Xe	11.705
700	Ne	90.571
	Ar	34.189
	Kr	20.428
	Xe	14.057
800	Ne	90.521
	Ar	35.366
	Kr	21.387
	Xe	14.948

假设气相中的稀有气体在气-地下水平衡过程中直接从地下水脱气。由于Ne在水中的溶解度较低,所以Ne比Ar更容易从地下水脱气,意味着水相与水平衡的气相相比,具有更高的 $^{20}\text{Ne}/^{36}\text{Ar}$ 值。气相中 $^{20}\text{Ne}/^{36}\text{Ar}$ 值随气/水体积比增加而降低,在开放系统中接近0,在封闭系统中无限接近原始空气饱和水(ASW)的值(0.143)。封闭系统中平衡气相的最低 $^{20}\text{Ne}/^{36}\text{Ar}$ 值等于ASW的初

始 $^{20}\text{Ne}/^{36}\text{Ar}$ 值(0.143),高于部分样品实测的 $^{20}\text{Ne}/^{36}\text{Ar}$ 值(0.064~1.154),因此,只有开放系统分馏模型可解释该数据。地下水矿化度较低,表明其处于开启与封闭之间,存在有自由交替水半封闭—开启的水文地质环境^[44]。开放系统中,800、700、450 m 储层气相中可能出现的最 $^{20}\text{Ne}/^{36}\text{Ar}$ 值分别为0.365、0.378、0.415,无法解释23MCQ-02、23MCQ-03样品的实测 $^{20}\text{Ne}/^{36}\text{Ar}$ 值(1.154和0.814)。因此,该模型不适用于23MCQ-02、23MCQ-03样品的数据解释。

瑞利分馏定律用于模拟开放系统中的气水平衡过程^[1,43]。

根据亨利定律,气相中的 ^{36}Ar 体积分数可由下式计算得到:

$$^{36}\text{Ar}_{\text{gas}} = \frac{^{36}\text{Ar}_{\text{ASW}} f K_{\text{Ar}}}{Z} \quad (2)$$

式中: $^{36}\text{Ar}_{\text{gas}}$ 为气相中的 ^{36}Ar 体积分数; $^{36}\text{Ar}_{\text{ASW}}$ 为原始空气饱和水中的 ^{36}Ar 体积分数; f 为地下水相剩余 ^{36}Ar 的分数; K_{Ar} 为地下水中Ar的亨利系数; Z 为标准状态(STP)→储层状态(RTP)的压缩因子,公式为:

$$Z = \frac{273.15 p_{\text{R}}}{10^5 T_{\text{R}}} \quad (3)$$

式中: p_{R} 为储层压力,单位Pa; T_{R} 为储层温度,单位K。

若测得另一种空气来源稀有气体*i*与 ^{36}Ar 的比值 $i/^{36}\text{Ar}$,地下水相中剩余的 ^{36}Ar 可通过瑞利分馏由式(4)—式(6)计算:

$$(i/^{36}\text{Ar})_{\text{gas}} = (i/^{36}\text{Ar})_{\text{water}} \alpha \quad (4)$$

$$(i/^{36}\text{Ar})_{\text{water}} = (i/^{36}\text{Ar})_{\text{ASW}} f^{\alpha-1} \quad (5)$$

$$\alpha = \frac{K_i}{K_{\text{Ar}}} \quad (6)$$

式中: $(i/^{36}\text{Ar})_{\text{gas}}$ 为平衡后气相中的 $i/^{36}\text{Ar}$ 值; $(i/^{36}\text{Ar})_{\text{water}}$ 为平衡后地下水相中的 $i/^{36}\text{Ar}$ 值; $(i/^{36}\text{Ar})_{\text{ASW}}$ 为原始空气饱和水中的 $i/^{36}\text{Ar}$ 值; α 为气—地下水系统的分馏系数; K_i 为地下水中稀有气体*i*的亨利系数。

根据式(2)—式(6),可由气样中实测的 $^{20}\text{Ne}/^{36}\text{Ar}$ 值来预测 ^{36}Ar 体积分数,计算得到气相中 ^{36}Ar 体积分数范围介于 $(1.018\sim 9.467)\times 10^{-7}$,是天然气中 ^{36}Ar 体积分数的0.66~6.20倍,且大部分样品计算值大于实测值(表5)。计算值与实测值差距较小的样品,可通过储层温度、压力及地下水盐度等参数采用沁水盆地平均值,与储层及地下水实际情况存在一定误差解释。但部分样品计算值明显高于其实测值数倍,因此,气水平衡前后可能存在另一过程稀释空气来源稀有气体,即气水平衡前地下水中空气来源稀有气体被稀释,或气水平衡后该类气体被其他过程稀释。从地下水脱溶进入气相的气体含有大量分馏稀有气体,而煤层解吸的甲烷未参与气—地下水平衡过程,井口样品为地下水脱溶气体与煤层解吸甲烷的混合物。因此,煤层气开采过程中煤层解吸甲烷的加入稀释了与地下水平衡气体中的 ^{36}Ar 体积分数。同时, ^{36}Ar 计算值/实测值数值越大的样品,其 ^{36}Ar 体积分数越小,这也证实解吸气对 ^{36}Ar 的稀释作用,煤层解吸甲烷含量越多,对 ^{36}Ar 的稀释作用越强。因此,沁水盆地煤层气中空气来源稀有气体的稀释可归因于开采过程中煤层解吸甲烷的加入。ZHOU等^[45]研究也证明了圣胡安盆地煤层气开采过程中稀有气体的同位素及元素比值发生了变化。

沁水盆地煤层气开采过程中,煤层解吸甲烷的混入导致空气来源稀有气体被稀释。为此引入稀释系数*D*表征该过程的稀释程度,其定义为空气来源稀有气体体积分数预测值与测试值比值的倒数(最大值取1)。假设开采过程对各空气来源稀有气体的稀释程度一致,以 ^{36}Ar 为例计算得到*D*为0.16~1.00。

前人研究^[39,46]认为,在与气藏接触前, ^4He 与 ^{20}Ne 随地下水共同运移,因二者在水中的溶解度相近,因此,样品中 ^4He 与 ^{20}Ne 应呈良好的线性关系。沁水盆地煤层气样品中 ^4He 与 ^{20}Ne 的关系显示(图4), ^4He 含量随 ^{20}Ne 含量增加呈上升趋势,且具有一定的线性关系,表明二者随地下水共同运移并进入气藏。结合前文空气来源稀有气体的计算分析,煤层气开采过程在稀释空气来源稀有气

表5 气水平衡计算结果

Table 5 Calculation results of gas-water balance

样品	$^{20}\text{Ne}/10^{-8}$	$^{36}\text{Ar}/10^{-7}$	$^{20}\text{Ne}/^{36}\text{Ar}$	^{36}Ar 计算值/ 10^{-7}	^{36}Ar 计算值/实测值
23MCQ-11	6.76	5.20	0.130	5.893	1.13
23MCQ-13	8.63	6.40	0.135	6.023	0.94
23MCQ-17	5.87	2.07	0.284	9.467	4.58
23MCQ-20	17.16	5.36	0.320	1.018	1.90
23MCQ-23	11.63	4.74	0.245	8.662	1.83
23MCQ-25	4.01	3.29	0.122	8.071	2.46
23MCQ-28	5.51	8.66	0.064	5.743	0.66
23MCQ-29	3.93	5.66	0.069	6.013	1.06
23MCQ-35	2.06	1.15	0.179	7.148	6.20

体含量的同时,也稀释了He含量。煤层气开采中,煤层解吸甲烷的混入降低了He含量,导致煤层气样品中He含量普遍较低,且解吸甲烷含量越多,对He的稀释作用越强。前人通过计算沁水盆地石炭纪—二叠纪煤中U、Th含量的生氦量,结合视煤气发生率得出的煤含气量,计算得到煤层气氦气含量仅为 31.7×10^{-6} ,由于煤中有机碳含量高且以生气为主,烷烃气对氦气的稀释作用显著,进一步导致煤层气中氦气含量偏低^[47]。

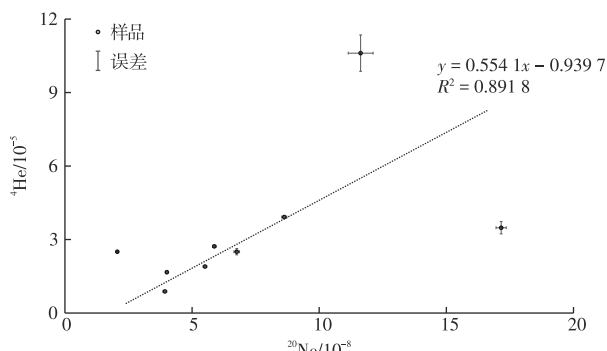


图4 沁水盆地煤层气样品中 ^4He 与 ^{20}Ne 关系

Fig. 4 Relationship between ^4He and ^{20}Ne in coalbed methane samples from Qinshui Basin

假设从煤层解吸的甲烷气体对氦气和空气来源稀有气体的稀释程度一致,结合样品氦气含量实测结果及稀释系数,可计算得到与水平衡气体的氦气含量为 $(9.36 \sim 194.16) \times 10^{-6}$ 。

4.3 氦气的富集与稀释

4.3.1 氦的来源

由于氦与氖在储层条件下的水相亨利常数相近,因此,溶解度控制的分馏对从水相溶出气体中 $^4\text{He}/^{20}\text{Ne}$ 值几乎没有影响。分配为气相前,地下水中初始氦体积分数可通过 ^{20}Ne 体积分数估算如下:

$$^4\text{He}_{\text{water}} = ^{20}\text{Ne}_{\text{ASW}} \times (^4\text{He}/^{20}\text{Ne})_{\text{g}} \quad (7)$$

式中: $^4\text{He}_{\text{water}}$ 为脱气前地下水中初始 ^4He 体积分数; $^{20}\text{Ne}_{\text{ASW}}$ 为空气饱和水中的 ^{20}Ne 体积分数; $(^4\text{He}/^{20}\text{Ne})_{\text{g}}$ 为气体样品中氦氖比值。假设原位生成的氦完全从储集岩转移至地层水,仅由储层产生的 ^4He 在地下水中的原位累积可估算如下^[48]:

$$^4\text{He}_{\text{in-suite}} = \frac{\rho \Lambda J (1 - \varphi)}{\varphi} t \quad (8)$$

式中: $^4\text{He}_{\text{in-suite}}$ 为地下水中的原位累积 ^4He ,单位 cm^3/cm^3 ; ρ 为煤层的密度,单位 g/cm^3 (取 $1.45 \text{ g}/\text{cm}^3$)^[49]; Λ 为 ^4He 从源岩向周围地下水的转移效率,假设为1; φ 为煤层孔隙度,单位%(平均取8%)^[20]; t 为地下水停留时间,单位a;

J 为地下水中 ^4He 的放射性产量,单位 $\text{cm}^3/(\text{g} \cdot \text{a})$,可根据CRAIG等^[50]的公式计算:

$$J = 0.2355 \times 10^{-6} \omega(\text{U}) \left[1 + 0.123 \left(\frac{\omega(\text{Th})}{\omega(\text{U})} - 4 \right) \right] \quad (9)$$

式中: $\omega(\text{U})$ 和 $\omega(\text{Th})$ 分别为岩石中U和Th的质量分数,所有 ^4He 都是在岩石中生成,平均U、Th质量分数分别为 2.35×10^{-6} 和 3.72×10^{-6} ^[51]。结果显示,沁水盆地地下水中 ^4He 的累积时间为5.25~83.42 Ma,而该盆地地下水年龄介于0.8~3.3 Ma^[42],表明仅靠原位生成无法提供足够的氦气,需要外部氦气通量的补充。铝土岩、煤、花岗岩、烃源岩等含U、Th的岩石均可视为有效氦源^[52]。沁水盆地本溪组发育铝土岩系,基底花岗岩体不发育^[40,53],因此,氦气可能来自铝土岩及煤层中U、Th的放射性衰变。

4.3.2 氦气成藏模式

综合上述氦气来源与运聚过程的论述,并结合煤层气富集成藏规律,沁水盆地南部氦气成藏模式(图5)如下:

1) 含 ^{20}Ne 、 ^{36}Ar 等的空气饱和水随地下水补给进入地下流体系统中。

2) 沁水盆地氦气存在2个来源:储层地层U、Th的原地生成及外部铝土岩生成的补充氦源。随着地层沉积与盆地形成,U、Th放射性衰变产生的氦气从岩石中释放,经初次运移赋存于孔隙或裂隙的地下水中。

3) 三叠纪末期煤层埋深达最大,在正常古地温的区域变质作用下开始生成煤层气。煤层气以次生热成因为主,可能存在次生生物成因气。以甲烷为主的煤层气随溶解有氦气的地下水共同运移,地下水在补给-运移-汇聚过程中,空间上依次形成补给区-径流区-滞流区,其中滞流区为煤层气的有利聚集区。煤层甲烷与溶解度极低的氦气从地下水脱溶进入气相,煤中气体主要通过煤基质吸附或微孔吸收储存。甲烷对氦气聚集的影响体现在两方面:一是作为氦迁移的有效载体;二是大量烃类气体会稀释气藏中的氦气^[54]。

煤层气开采时,井口样品含大量从煤层解吸且未参与气-地下水平衡过程的甲烷,其混入稀释了与地下水平衡气体中的 ^4He ,导致煤层气中氦气含量普遍较低。

4.3.3 氦气富集主控因素

根据上述成藏模式,氦气富集的主控因素包括有效氦源岩、古老地下水系统、高效运移通道及适当的生烃强度,具体如下:

1) 有效氦源岩是氦气富集的必备条件,花岗岩、铝土岩、煤、烃源岩等含有U、Th的岩石均为有效氦源岩。壳源氦的氦源多为古老基底,其具有规模大、发生放射性衰

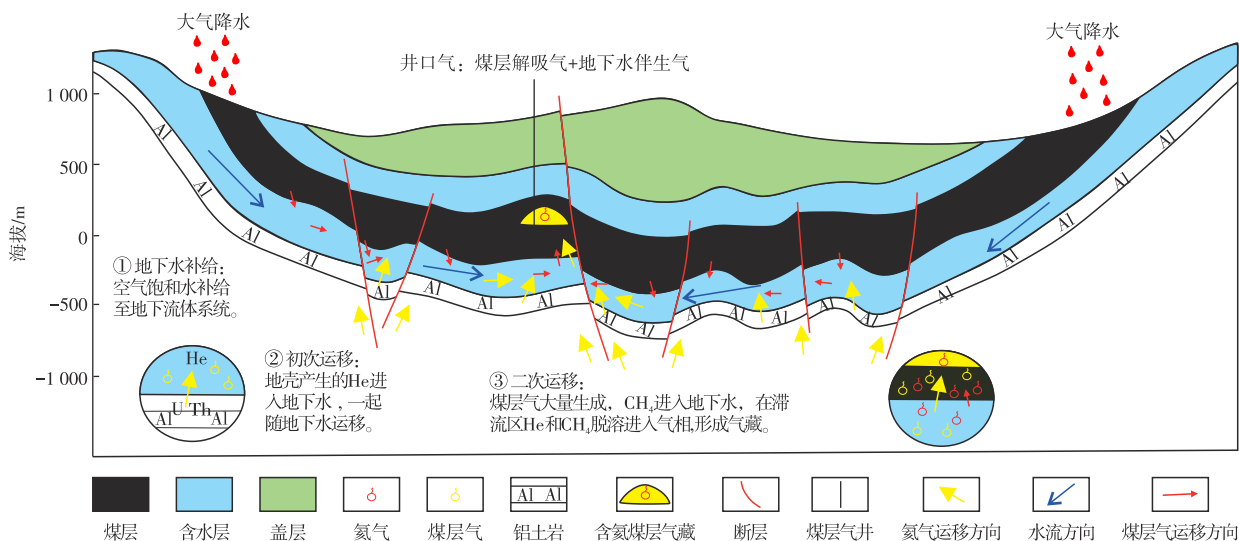


图5 沁水盆地南部氦气成藏模式

Fig. 5 Helium accumulation model in southern Qinshui Basin

变时间长的特征,⁴He生成量与U、Th含量及衰变时间呈正比,可累积生成大量氦气并形成富氦气藏^[52]。沁水盆地本溪组发育的铝土岩系可作为主要氦源岩,控制氦气供给。

2) 古老地下水系统可积累更多氦气。气藏中⁴He与空气来源的²⁰Ne存在良好线性关系,且地下水分布广泛,因此,氦源岩释放的氦气会溶解于地下水,与²⁰Ne共同随地下水运移并进入气藏。沁水盆地山西组煤层上、下围岩裂隙含水层不仅影响山西组煤层气赋存,还为氦气的累积与运移提供了条件。

3) 断裂和不整合面等连接基底与气藏的通道控制着氦气和烃类气体的运移。强烈构造运动产生的断裂有助于深部流体向上运移,氦气溶解于地下水后,仅靠地下水和氦在孔隙水中的缓慢扩散难以到达浅部气藏并富集,需借助断裂体系连通深部氦源与浅部气藏,使其成为深部含氦流体向上运移的高效通道^[52]。本次样品采集井位附近均发育断层,为氦气运移提供了高效运移通道。

4) 适量烃类气体可作为载体气,但应尽可能减少对氦气的稀释。优质烃源岩提供成藏所需的烃类气体,当地下水运移遇到游离气相时,气相与水相之间的平衡会使溶解度极低的氦气不断脱溶进入气藏,然而,烃类气体的补给量需适中,后期补给的烃类会稀释前期形成的高氦气藏,气藏品位较低时往往更易发现富氦气藏。沁水盆地3号煤煤层气为氦气运聚提供了充足载体,但由于煤中有机碳含量高、生气量大,烷烃气对氦气的稀释作用强,导致煤层气中氦气含量低。

4.4 气水比

煤层气和地下水的相对数量可根据前文讨论的模

型量化。对于开放系统的气-水瑞利分馏模型,如果各阶段 $V_{\text{gas}}/V_{\text{water}}$ 体积比均较低,逐步气水平衡可近似瑞利分馏^[45]。根据气水相单一平衡过程, $V_{\text{gas}}/V_{\text{water}}$ 可由下式计算^[1,43]:

$$\frac{V_{\text{gas}}}{V_{\text{water}}} = \frac{22\,400 \times T_{\text{R}} \times \rho_{\text{water}} \times (1-f)}{18 \times 273 \times f \times K_{\text{Ar}}} \quad (10)$$

式中: V_{gas} 为气体体积,单位 m^3 ; V_{water} 为水体积,单位 m^3 。

假设各阶段均有少量气与地下水达到平衡($V_{\text{gas}}/V_{\text{water}} = 3 \times 10^{-5}$ ^[45])则每一阶段地下水相中保留³⁶Ar的分数(f_{single})可通过式(10)计算。此外,气水平衡各个阶段的数量(n)可由 $f = f_{\text{single}}^n$ 计算,气与水的总体积比为各阶段体积比之和,即总 $V_{\text{gas}}/V_{\text{water}} = 3 \times 10^{-5} \times n$ 。计算结果显示,参与平衡的气水比为4.11~43.44,该值远低于生产井的产出气水比,这一结果合理,因为煤层气井产水率受多种因素影响^[55-56],产气过程中仅有少量地下水产出。

结合产气量、稀释比及计算的气-地下水比,可量化沁水盆地产气相关的地下水水量,这是仅通过测量地表采出水量无法获得的数据。当前各井累计产气量为 $2.61 \times 10^5 \sim 1.75 \times 10^7 \text{ m}^3$,据此计算出与产气量相关的总水量为 $8.03 \times 10^3 \sim 1.63 \times 10^6 \text{ m}^3$ 。

假设煤层为主要含水层,取平均煤层厚度 6 m ^[22]、平均孔隙度8%,将与每口井煤层气生产相关的水近似为圆柱体,计算得出该圆柱体半径为73~1 039 m。因实际含水层厚度可能大于煤层厚度,实际半径可能更小。由该半径可知,在生产时间尺度上,煤层气开采仅影响各井周围的局部水体,表明地下水无动态流动,水环境相对静态。此外,可根据该半径合理设计井距,以提高生产效率。

5 结论

沁水盆地南部3号煤层气中幔源氦贡献仅0~0.31%,氦气以壳源放射性来源为主;Ne同位素除受微量质量分馏影响外,还存在一定壳源放射成因²¹Ne混入;⁴⁰Ar有显著的壳源年代累积效应。氦气在脱气进入气藏前溶解于地下水,煤层外部的⁴He通量为自生自储煤层气系统中氦的富集提供了重要来源,这为类似地质背景地区的氦勘探提供了理论基础。

煤层气开采时,煤层解吸甲烷的混入稀释了气水平衡过程中富集的He,导致煤层气中He含量普遍较低,这是其氦气含量偏低的原因之一,指示在煤层气高产区寻找富氦气藏可能存在勘探误区。

根据氦气来源与运聚过程建立的成藏模式表明,有效氦源岩、古老地下水系统、高效运移通道及适当的生烃强度是氦气富集的主控因素。同时量化了与每口产气井相关的地下水水量:根据当前各井累计产气量,与产气量相关的总水量为 $8.03 \times 10^3 \sim 1.63 \times 10^6 \text{ m}^3$,其影响范围仅为生产井周围半径73~1 039 m的水体,据此可合理设计井距。

参考文献

- [1] BALLENTINE C J, BURGESS R, MARTY B. Tracing fluid origin, transport and interaction in the crust[J]. *Reviews in Mineralogy and Geochemistry*, 2002, 47(1): 539-614.
- [2] 张文, 陈文, 李玉宏, 等. 国内外典型富氦气藏稀有气体地球化学特征及对氦气成藏过程的示踪意义[J]. *天然气地球科学*, 2024, 35(6): 1099-1112.
ZHANG Wen, CHEN Wen, LI Yuhong, et al. Geochemical characteristics of noble gases in typical helium-rich gas reservoirs and the significance for tracing helium enrichment process[J]. *Natural Gas Geoscience*, 2024, 35(6): 1099-1112.
- [3] 李伟, 陈践发, 王杰, 等. 松辽盆地天然气中稀有气体地球化学特征及其地质意义[J]. *石油实验地质*, 2024, 46(3): 576-589.
LI Wei, CHEN Jianfa, WANG Jie, et al. Geochemical characteristics and geological significance of noble gases in natural gas from Songliao Basin, China[J]. *Petroleum Geology & Experiment*, 2024, 46(3): 576-589.
- [4] 何大祥, 唐友军, 胡锦杰, 等. 塔里木盆地天然气中稀有气体地球化学特征[J]. *石油与天然气地质*, 2020, 41(4): 755-762.
HE Daxiang, TANG Youjun, HU Jinjie, et al. Geochemical characteristics of noble gases in natural gases from the Tarim Basin [J]. *Oil & Gas Geology*, 2020, 41(4): 755-762.
- [5] 韩伟, 刘文进, 李玉宏, 等. 柴达木盆地北缘稀有气体同位素特征及氦气富集主控因素[J]. *天然气地球科学*, 2020, 31(3): 385-392.
HAN Wei, LIU Wenjin, LI Yuhong, et al. Characteristics of rare gas isotopes and main controlling factors of radon enrichment in the northern margin of Qaidam Basin[J]. *Natural Gas Geoscience*, 2020, 31(3): 385-392.
- [6] CHEN B, STUART F M, XU S, et al. Evolution of coal-bed methane in Southeast Qinshui Basin, China: Insights from stable and noble gas isotopes[J]. *Chemical Geology*, 2019, 529: 119298.
- [7] 徐永昌, 王先彬, 吴仁铭, 等. 天然气中稀有气体同位素[J]. *地球化学*, 1979, 8(4): 271-282.
XU Yongchang, WANG Xianbin, WU Renming, et al. Rare gas isotopic composition of natural gases[J]. *Geochimica*, 1979, 8(4): 271-282.
- [8] 魏国齐, 王东良, 王晓波, 等. 四川盆地高石梯—磨溪大气田稀有气体特征[J]. *石油勘探与开发*, 2014, 41(5): 533-538.
WEI Guoqi, WANG Dongliang, WANG Xiaobo, et al. Characteristics of noble gases in the large Gaoshiti-Moxi gas field in Sichuan Basin [J]. *Petroleum Exploration and Development*, 2014, 41(5): 533-538.
- [9] MAMYRIN B A, TOLSTIKHIN I N. Helium isotopes in nature[M]. Amsterdam: Elsevier, 1984.
- [10] KANEOKA I, TAKAOKA N. Noble-gas state in the Earth's interior: Some constraints on the present state[J]. *Chemical Geology: Isotope Geoscience Section*, 1985, 52(1): 75-95.
- [11] POREDA R J, JENDEN P D, KAPLAN I R, et al. Mantle helium in Sacramento basin natural gas wells[J]. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 1986, 50(12): 2847-2853.
- [12] MOREIRA M, SARDA P. Noble gas constraints on degassing processes[J]. *Earth and Planetary Science Letters*, 2000, 176(3/4): 375-386.
- [13] ZHANG R H, HU S M. A case study of the influx of upper mantle fluids into the crust[J]. *Journal of Volcanology and Geothermal Research*, 2002, 118(3/4): 319-338.
- [14] O'NIONS R K, OXBURGH E R. Helium, volatile fluxes and the development of continental crust[J]. *Earth and Planetary Science Letters*, 1988, 90(3): 331-347.
- [15] 王先彬. 稀有气体同位素地球化学和宇宙化学[M]. 北京: 科学出版社, 1989.
WANG Xianbin. Noble Gas Isotope Geochemistry and Cosmochemistry[M]. Beijing: Science Press, 1989.
- [16] WAKITA H, SANO Y, URABE A, et al. Origin of methane-rich natural gas in Japan: Formation of gas fields due to large-scale submarine volcanism[J]. *Applied Geochemistry*, 1990, 5(3): 263-278.
- [17] 徐永昌, 沈平, 刘文汇, 等. 天然气中稀有气体地球化学[M]. 北京: 科学出版社, 1998.
XU Yongchang, SHEN Ping, LIU Wenhui. Geochemistry of noble gases in natural gas[M]. Beijing: Science Press, 1998.
- [18] ROCHOLL A, HEUSSER E, KIRSTEN T, et al. A noble gas profile across a Hawaiian mantle xenolith: Coexisting accidental and cognate noble gases derived from the lithospheric and asthenospheric mantle beneath Oahu[J]. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 1996, 60(23): 4773-4783.
- [19] 王勃. 沁水盆地煤层气富集高产规律及有利区块预测评价[D]. 徐州: 中国矿业大学, 2013.
WANG Bo. Coalbed methane enrichment and high-production rule & prospective area prediction in Qinshui basin[D]. Xuzhou: China University of Mining and Technology, 2013.
- [20] 李金海. 沁水盆地东南部3号煤层气藏富集高渗控制因素分析

- [D]. 焦作: 河南理工大学, 2009.
- LI Jinhai. Controlling factors on the accumulation and permeability of the No.3 coalbed methane reservoir in the southeastern Qinshui basin[D]. Jiaozuo: Henan Polytechnic University, 2009.
- [21] 贾慧敏, 胡秋嘉, 张聪, 等. 山西省沁水盆地南部4#煤薄煤层试采获得煤层气工业气流[J]. 中国地质, 2024, 51(4): 1447-1448.
- JIA Huimin, HU Qiuqia, ZHANG Cong, et al. Industrial gas flow obtained from the trial production of No.4 thin coal seam in southern Qinshui Basin, Shanxi Province[J]. *Geology in China*, 2024, 51(4): 1447-1448.
- [22] 杨延辉, 张鹏豹, 刘忠, 等. 沁水盆地南部深层高阶煤层气成藏特征[J]. 中国石油勘探, 2024, 29(5): 107-119.
- YANG Yanhui, ZHANG Pengbao, LIU Zhong, et al. Gas accumulation characteristics of high-rank coal in deep formations in the southern Qinshui Basin[J]. *China Petroleum Exploration*, 2024, 29(5): 107-119.
- [23] 王红岩, 张建博, 刘洪林, 等. 沁水盆地南部煤层气藏水文地质特征[J]. 煤田地质与勘探, 2001, 29(5): 33-36.
- WANG Hongyan, ZHANG Jianbo, LIU Honglin, et al. Hydrogeologic feature of coalbed methane reservoir in the southern Qinshui Basin [J]. *Coal Geology & Exploration*, 2001, 29(5): 33-36.
- [24] ZHANG W, CHEN W, LI Y H, et al. Noble gas characteristics of microbial gas in the Qaidam Basin, China: Implications for helium enrichment processes[J]. *Marine and Petroleum Geology*, 2024, 165: 106897.
- [25] 姚永坚, 何家雄, 徐行, 等. 南海北部大陆边缘盆地天然气/水合物成因类型与气源综合认识[J]. 矿产勘查, 2024, 15(11): 2075-2088.
- YAO Yongjian, HE Jiaxiong, XU Xing, et al. Comprehensive identification of natural gas/hydrate genesis types and gas sources in the northern continental margin basins of the South China Sea[J]. *Mineral Exploration*, 2024, 15(11): 2075-2088.
- [26] 徐占杰. 沁水盆地北部煤层气同位素地球化学及成因研究[D]. 北京: 中国矿业大学(北京), 2017.
- XU Zhanjie. Study on isotopic geochemistry and origins of coalbed methane in the northern Qinshui basin[D]. Beijing: China University of Mining & Technology, Beijing, 2017.
- [27] 方鲁加, 陈碧莹, 能惠, 等. 沁水盆地煤层气井排采水地球化学特征及来源示踪[J]. 天然气地球科学, 2024, 35(11): 1935-1949.
- FANG Lujia, CHEN Biying, NAI Hui, et al. Geochemical characteristics and source trace of coalbed methane co-produced water in Qinshui Basin[J]. *Natural Gas Geoscience*, 2024, 35(11): 1935-1949.
- [28] SANO Y, FISCHER T P. The noble gases as geochemical tracers[M]. Berlin: Springer, 2013.
- [29] KIPFER R, AESCHBACH-HERTIG W, PEETERS F, et al. Noble gases in lakes and ground waters[J]. *Reviews in Mineralogy and Geochemistry*, 2002, 47(1): 615-700.
- [30] GAUTHERON C, MOREIRA M. Helium signature of the subcontinental lithospheric mantle[J]. *Earth and Planetary Science Letters*, 2002, 199(1/2): 39-47.
- [31] BOTTOMLEY D J, ROSS J D, CLARKE W B. Helium and neon isotope geochemistry of some ground waters from the Canadian Precambrian Shield[J]. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 1984, 48(10): 1973-1985.
- [32] LEE J Y, MARTI K, SEVERINGHAUS J P, et al. A redetermination of the isotopic abundances of atmospheric Ar[J]. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 2006, 70(17): 4507-4512.
- [33] BALLENTINE C J, BURNARD P G. Production, release and transport of noble gases in the continental crust[J]. *Reviews in Mineralogy and Geochemistry*, 2002, 47(1): 481-538.
- [34] 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 Wenhui, XU Yongchang. Significance of helium and argon isotopic composition in natural gas[J]. *Chinese Science Bulletin*, 1993, 38(9): 818-821.
- [35] 徐永昌, 刘文汇, 沈平, 等. 天然气地球化学的重要分支: 稀有气体地球化学[J]. 天然气地球科学, 2003, 14(3): 157-166.
- XU Yongchang, LIU Wenhui, SHEN Ping, et al. An important branch of gas geochemistry: Noble gas geochemistry[J]. *Natural Gas Geoscience*, 2003, 14(3): 157-166.
- [36] 李玉宏, 张文, 王利, 等. 亨利定律与壳源氦气弱源成藏: 以渭河盆地为例[J]. 天然气地球科学, 2017, 28(4): 495-501.
- LI Yuhong, ZHANG Wen, WANG Li, et al. Henry's Law and accumulation of crust-derived helium: A case from Weihe Basin, China[J]. *Natural Gas Geoscience*, 2017, 28(4): 495-501.
- [37] BARRY P H, LAWSON M, MEURER W P, et al. Determining fluid migration and isolation times in multiphase crustal domains using noble gases[J]. *Geology*, 2017, 45(9): 775-778.
- [38] BARRY P H, KULONGOSKI J T, LANDON M K, et al. Tracing enhanced oil recovery signatures in casing gases from the Lost Hills oil field using noble gases[J]. *Earth and Planetary Science Letters*, 2018, 496: 57-67.
- [39] BYRNE D J, BARRY P, LAWSON M, et al. Determining gas expulsion vs retention during hydrocarbon generation in the Eagle Ford Shale using noble gases[J]. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 2018, 241: 240-254.
- [40] 刘润川. 华北克拉通中部沁水盆地中-新生代热体制与岩石圈减薄研究[D]. 西安: 西北大学, 2020.
- LIU Runchuan. Meso-Cenozoic thermal regime and lithospheric thinning in the Qin Shui basin, CNCC[D]. Xi'an: Northwest University, 2020.
- [41] 景兴鹏. 沁水盆地南部储层压力分布规律和控制因素研究[J]. 煤炭科学技术, 2012, 40(2): 116-120, 124.
- JING Xingpeng. Study on pressure distribution law and control factors of coal bed methane reservoir in south part of Qinshui Basin [J]. *Coal Science and Technology*, 2012, 40(2): 116-120, 124.
- [42] 卫明明, 据宜文. 沁水盆地南部煤层气田产出水地球化学特征及其来源[J]. 煤炭学报, 2015, 40(3): 629-635.
- WEI Mingming, JU Yiwen. Chemical characteristics and origin of produced waters from coalbed gas field in the southern of Qinshui Basin[J]. *Journal of China Coal Society*, 2015, 40(3): 629-635.
- [43] ZHANG W, LI Y H, ZHAO F H, et al. Quantifying the helium and hydrocarbon accumulation processes using noble gases in the North Qaidam Basin, China[J]. *Chemical Geology*, 2019, 525: 368-379.
- [44] 宋岩, 柳少波, 洪峰, 等. 中国煤层气地球化学特征及成因[J]. 石油学报, 2012, 33(增刊1): 99-106.

- SONG Yan, LIU Shaobo, HONG Feng, et al. Geochemical characteristics and genesis of coalbed methane in China[J]. *Acta Petrolei Sinica*, 2012, 33(Suppl. 1): 99-106.
- [45] ZHOU Z, BALLENTINE C J, KIPFER R, et al. Noble gas tracing of groundwater/coalbed methane interaction in the San Juan Basin, USA [J]. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 2005, 69(23): 5413-5428.
- [46] BROWN A A. Formation of high helium gases: A guide for explorationists[C]// Paper 80115 presented at AAPG Convention, New Orleans, Louisiana, USA, April 11-14, 2010.
- [47] 秦胜飞, 陶刚, 罗鑫, 等. 氦气富集与天然气成藏差异、勘探误区[J]. *天然气工业*, 2023, 43(12): 138-151.
- QIN Shengfei, TAO Gang, LUO Xin, et al. Difference between helium enrichment and natural gas accumulation and misunderstandings in helium exploration[J]. *Natural Gas Industry*, 2023, 43(12): 138-151.
- [48] ZHOU Z, BALLENTINE C J. ^4He dating of groundwater associated with hydrocarbon reservoirs[J]. *Chemical Geology*, 2006, 226(3/4): 309-327.
- [49] 刘旭东. 沁水盆地柿庄南示范工程二氧化碳驱煤层气地质封存数值模拟研究[D]. 徐州: 中国矿业大学, 2023.
- LIU Xudong. Study on numerical simulation of CO_2 -ECBM for Shizhuangnan demonstration project in Qinshui basin[D]. Xuzhou: China University of Mining and Technology, 2023.
- [50] CRAIG H, LUPTON J E. Primordial neon, helium, and hydrogen in oceanic basalts[J]. *Earth and Planetary Science Letters*, 1976, 31(3): 369-385.
- [51] 车青松, 黄文辉, 久博, 等. 沁水盆地霍州矿区石炭-二叠纪煤中微量元素地球化学特征及沉积环境分析[J]. *煤炭科学技术*, 2022, 50(9): 138-146.
- CHE Qingsong, HUANG Wenhui, JIU Bo, et al. Geochemical characteristics and sedimentary environment analysis of trace elements in Carboniferous-Permian coal in Huozhou Area, Qinshui Basin[J]. *Coal Science and Technology*, 2022, 50(9): 138-146.
- [52] 秦胜飞, 窦立荣, 陶刚, 等. 氦气富集理论及富氦资源勘探思路[J]. *石油勘探与开发*, 2024, 51(5): 1160-1174.
- QIN Shengfei, DOU Lirong, TAO Gang, et al. Helium enrichment theory and exploration ideas for helium-rich gas reservoirs[J]. *Petroleum Exploration and Development*, 2024, 51(5): 1160-1174.
- [53] 李济远, 李玉宏, 胡少华, 等. “山西式”氦气成藏模式及其意义[J]. *西安科技大学学报*, 2022, 42(3): 529-536.
- LI Jiyuan, LI Yuhong, HU Shaohua, et al. “Shanxi-type” helium accumulation model and its essentiality[J]. *Journal of Xi'an University of Science and Technology*, 2022, 42(3): 529-536.
- [54] HALFORD D T, KAROLYI R, BARRY P H, et al. High helium reservoirs in the Four Corners area of the Colorado Plateau, USA[J]. *Chemical Geology*, 2022, 596: 120790.
- [55] 刘广景. 煤层气高产水井原因分析及水源识别: 以沁水盆地柿庄南区块3号煤井为例[J]. *天然气勘探与开发*, 2023, 46(3): 123-130.
- LIU Guangjing. Reasons on high water production and identifying water source in CBM wells: An example from No. 3 coal seam, southern Shizhuang block, Qinshui Basin[J]. *Natural Gas Exploration and Development*, 2023, 46(3): 123-130.
- [56] 张瑾, 张凤奇, 邹彦荣, 等. 地热水溶型和天然气伴生型氦气来源特征对比: 以渭河盆地和鄂尔多斯盆地北部为例[J]. *油气藏评价与开发*, 2025, 15(3): 463-470.
- ZHANG Jin, ZHANG Fengqi, ZOU Yanrong, et al. Comparison of helium source characteristics between geothermal water-dissolved type and natural gas-associated type: A case study of Weihe Basin and northern Ordos Basin[J]. *Petroleum Reservoir Evaluation and Development*, 2025, 15(3): 463-470.

(编辑 柳超超)