2018 年度陈嘉庚科学奖专辑

陈嘉庚科学奖——地球科学奖

获奖项目名称

煤成气及鉴别理论

获奖项目介绍

戴金星

天然气地质和地球化学家, 1995 年遴选为中国科学院院士。煤系成烃以气为主以油为辅的发现者, 煤成气理论推进中国从贫气国迈向产气大国。1987 和 1997 年先后获国家科技进步一等奖, 2010 年获国家自然科学二等奖。

发现了腐殖型煤系, 从低阶煤至高阶煤的成煤作用全过程中, 成烃以气为主以油为辅的基本规律, 仅在中煤阶产少量轻质油和凝析油, 从而创立了完整的煤成气理论, 突破之前传统认为煤系不是烃源岩, 为中国开辟了煤成气勘探新领域, 进而发现了许多煤成大气田; 突破了传统鉴别天然气仅以气组分, 综合发展利用气液(轻烃、油)固(干酪根)三相中相关科学信息, 论证并建立了识别煤成气、油型气和无机气系列指标、图版和公式的鉴别理论, 为复杂地质条件下天然气成因鉴别提供了一套可信度大、精度高的方法; 发现了中亚煤成气聚集域、亚洲东缘煤成气聚集域, 域内煤系气源岩大区域、洲际性展布, 气田分布富集规律相似、成藏条件相近, 气源成因相同, 故可用域内某区已知气田富集特征, 预测域内未发现气田富集区, 并科学预测了上述聚集域内中国区域大气田的发现。煤成气理论为中国天然气工业快速发展提供了理论依据。2016 年中国天然气和煤成气储量, 天然气和煤成气产量, 与煤成气理论出现之前的 1978 年相比, 分别提高了 52 倍和 408 倍, 10 倍和 216.6 倍, 使中国从贫气国迈向世界第 6 产气大国。近 12 年来共产煤成气 $6620.53 \times 10^8 \text{ m}^3$, 相当抵减用煤 $16.76 \times 10^8 \text{ t}$, 减排 CO_2 $28.46 \times 10^8 \text{ t}$, 对改善环境起了重大作用。

煤成气及鉴别理论研究进展

戴金星

中国石油勘探开发研究院, 北京 100083

E-mail: djx@petrochina.com.cn

2018-03-29 收稿, 2018-04-17 修回, 2018-04-18 接受, 2018-05-18 网络版发表

摘要 煤系成烃理论形成经历了3个阶段: 20世纪40年代发现煤能生气并可成藏, 但未关注成油, 创立了纯朴的煤成气理论; 60年代发现煤中壳质组成油贡献大, 可形成煤成油田, 产生煤成油理论, 但未关注成烃中的油气比例; 70年代中国学者发现煤系成烃以气为主以油为辅, 创立了完整的煤成气理论. 煤系成烃以气为主以油为辅的根据: 一是8个煤种中都发现有成气作用产物的气孔; 二是煤的原始物质是由生气为主、低H/C原子值的纤维素和木质素组成; 三是化学结构上煤以利于生气的甲基和缩合芳环为主; 四是从泥炭至无烟煤热模拟实验获得大量气346~422 m³/t, 只有少量轻质油. 以往天然气类型鉴别以气相组分为主, 现在把鉴别指标发展为气液固(干酪根)三相, 扩大了鉴别范畴. 从碳同位素、轻烃和生物标志物三方面, 综合研制了鉴别煤成气和油型气的26个指标, 还研编了若干鉴别图版和 $\delta^{13}\text{C}$ -Ro关系式, 提高了天然气鉴别可信度. 煤成气理论开辟了天然气勘探新领域, 使指导勘探天然气理论从“一元论”(油型气)发展为“两元论”(煤成气和油型气), 为中国天然气工业快速发展提供了理论依据. 2016年中国天然气和煤成气储量、产量与煤成气理论出现之前的1978年相比, 分别提高了52, 408, 10和216.6倍, 使中国从贫气国变为世界第6产气大国.

关键词 煤成气, 天然气鉴别, 碳同位素, 轻烃, 大气田

能源是国民经济和社会现代化的重要基础, 能源消费结构则是度量一个国家环境清静或污染的指标. 2017年世界和中国能源结构中, 化石能源占比分别为85.05%和85.9%, 可见世界能源消耗以化石能源占绝对优势, 这种优势至少可保持至22世纪初. 因此, 以低碳能源(天然气)替代高碳能源(煤炭和石油)是治理污染的重要途径. 世界2017年能源结构中, 天然气占24.87%, 中国为7.0%, 这导致我国一些城市污染严重, 而北美和中东地区则分别为31.1%和52.3%, 则远离污染. 提高中国天然气在能源结构中的比例, 重要是勘探开发更多天然气. 研究天然气成因, 开发新气种(煤成气)是重要一环.

完整的煤成气理论, 为中国天然气工业快速发展提供了理论依据, 使中国从贫气国迈向世界

第6产气大国.

1 煤系成烃以气为主以油为辅

1.1 完整的煤成气理论的形成

腐殖煤(煤系)在成煤作用中成烃理论产生于20世纪40~70年代. 中国和世界的煤均以腐殖煤为主^[1], 德国学者在20世纪40年代指出煤能生气, 而且气能从煤中运移出来在煤系中或其外聚集成藏^[2], 但未意识到成油, 创立了纯朴的煤成气理论^[1,3]. 20世纪60年代后期, 澳大利亚学者指出煤中壳质组对成油有重要贡献, 并以吉普斯兰盆地为例说明煤不仅能成气还可以形成煤成油田^[4,5], 形成了煤成油理论. 煤成油理论以及壳质组成油观点丰富了煤成烃理论, 但

引用格式: 戴金星. 煤成气及鉴别理论研究进展. 科学通报, 2018, 63: 1291–1305

Dai J X. Coal-derived gas theory and its discrimination (in Chinese). Chin Sci Bull, 2018, 63: 1291–1305, doi: 10.1360/N972018-00303

<https://engine.scichina.com/doi/10.1360/N972018-00303>

还没有研究煤系成煤作用全过程成烃中油气比例的关系. 20世纪70年代戴金星发现煤系成烃以气为主以油为辅的总规律, 指出成煤作用全过程中成烃分为3期: 前干气期、气油兼生期和后干气期. 在长焰煤至瘦煤阶段的气油兼生期(相当腐泥型源岩“生油窗”), 成烃是以气为主以油为辅, 煤成油往往是凝析油和轻质油^[6,7], 故煤系是“全天候”的气源岩, 为煤系勘探天然气提供了理论根据, 形成了完整的煤成气(烃)理论或成熟的煤成气(烃)理论^[1-3]. 王鸿祯、李德生、孙枢、赵文智院士等, 俄罗斯科学院院士Galimov等人高度评价该理论的代表作“成煤作用中形成的天然气与石油”, “一般作为天然气地质学的开端”^[8], “开启了煤成烃地质研究的先驱”^[9], “建立了成熟的煤成气(烃)理论”^[10], “是中国煤成气理论研究的里程碑”^[11], “对全球天然气勘探意义重大”^[9].

1.2 煤系成烃以气为主以油为辅的依据

煤系成烃包括其中煤、碳质泥页岩和暗色泥页岩的成烃.

(i) 气孔. 苏联学者在20世纪50年代, 应用电子显微镜发现顿涅茨盆地烟煤中一些孔径相近的圆孔相互衔接, 构成长链孔, 是煤中产生的气泡链现象, 表明在成煤作用过程中气体缓慢而均匀逸出的迹象^[12]. 在20世纪80年代初, 根据山西、新疆等12个省、自治区33个煤矿和6口钻井岩心中, 选取了褐煤、长焰煤、气煤、肥煤、焦煤、瘦煤、贫煤和无烟煤85个煤样, 应用扫描电子显微镜进行观察研究, 在这8个煤种中均发现了气孔, 但不同煤样中气孔率(单位面积内气孔数量)是不同的. 气孔一般呈圆形, 部分为椭圆形, 其直径大者可达3.5 μm 左右, 小者约0.2 μm . 8种煤都有气孔说明成煤作用所有煤种都在成气, 气孔是成气作用的产物与痕迹^[13].

(ii) 腐殖煤原始物质主要为木本植物利于成气. 煤的原始物质以木本植物为主, 其组成中以生气为主的低H/C(原子)值的纤维素和木质素占60%~80%, 以生油为主的高H/C(原子)值的蛋白质和类脂类含量一般不超过5%^[14]. 煤的这种原始物质组成特征, 决定了以生气为主成油为辅. 从煤的不同显微组分H/C值(原子)的模拟成烃实验获得的气/油当量比证明, 占腐殖煤绝大部分镜质组和惰质组H/C值(原子)低, 其成烃以气为主, 即气/油当量比均大于1, 最大的超过6(图1)^[15].

图1 不同显微组分H/C原子比与气/油比关系^[15]

Figure 1 Relationship of H/C ratios of different macerals and the gas/oil ratios^[15]

(iii) 化学结构上腐殖型干酪根以利于生气的甲基和缩合芳环为主. 在化学结构上, 腐殖型干酪根含有大量甲基和缩合芳环, 少量短侧链, 利于生成成烃气及一定量轻烃; 而腐泥型干酪根则含很多长侧链, 有利于形成液态烃^[16].

(iv) 模拟实验. 20世纪60~70年代, 苏联学者从褐煤至无烟煤成煤作用模拟实验中, 生成甲烷为351 m^3/t , 同时确定各煤阶生气量从17~100 m^3/t ^[17]; 从泥炭至无烟煤生气量大于400 m^3/t ^[18]. 1980年戴金星综合国外多位学者模拟成煤作用生气量: 从植物纤维素或泥炭至无烟煤的煤气发生率为346~422 m^3/t ; 从褐煤至无烟煤的视煤气发生率为306~374 m^3/t ^[7]. 中国许多学者^[19-27]自20世纪80年代~21世纪初, 从未熟的(褐煤)腐殖煤、泥岩或III型干酪根和煤的各有机显微组分, 进行成煤作用模拟; 褐煤Ro从0.24%~0.409%, 最高模拟温度600 $^{\circ}\text{C}$, Ro从2.5%~5.1%, 获得无烟煤的煤气发生率为218~590 m^3/t , 平均为435 m^3/t ; 无烟煤的视煤气发生率为180~500 m^3/t , 平均为303 m^3/t . 由此可见, 成煤作用整个过程能形成大量煤成气.

上述成煤作用模拟实验中, 在气油兼生期也形成少量煤成油, 从中选出产油最多点与相当气量的气/油当量比, 除个别点外, 气/油当量比均大于1, 模拟实验证明了煤系成烃作用以气为主以油为辅(表1). 中国不同时代不同煤热模拟生烃曲线(图2), 也显示出生气为主、生油为辅的特征.

全球有许多处于气油兼生期的含煤盆地, 如中

表1 腐殖型褐煤和泥岩在成烃模拟中产出最多产油点和相当产气量的气油当量比^[24]Table 1 The maximum oil production and the gas/oil ratios in the hydrocarbon generation simulation experiments of humic lignite and mudstone^[24]

样品	实验温度(℃)	Ro(%)	产气量(m ³ /t)	最高产油(kg/t)	气油当量比	
					1 t油=1000 m ³ 气	1 t油=1225 m ³ 气
云南柯渡褐煤	300	1.07	92.74	33.87	2.74	2.18
褐煤	280	0.67	50.16	45.70	1.10	0.87
云南柯渡泥岩	400	1.69	363.99	35.83	10.16	8.09
云南小龙潭褐煤	400	1.59	134.91	19.92	6.77	5.40
褐煤	300	0.79	54.96	19.70	2.79	2.22
泥岩	460	1.26	401.68	37.84	10.62	8.46
沈北蒲河褐煤	400	1.59	91.53	19.58	4.67	3.72
褐煤	300	0.59	17.19	10.10	1.70	1.36
泥岩干酪根	400		124.54	0.50	249.08	198.47

图2 中国不同时代煤热模拟生烃曲线(据文献[23]修改简化)

Figure 2 Hydrocarbon generation curves of coals in different ages (after ref. [23])

国台西盆地中新统3个含煤组, R_o 在0.7%~1.4%^[28~30]; 东海盆地古近系和新近系煤系源岩 R_o 范围为0.50%~1.50%, 平均0.85%; 莺琼盆地古近系和新近系源岩 R_o 为0.80%~2.0%, 平均1.5%; 俄罗斯维柳伊盆地侏罗系和白垩系煤系源岩 R_o 为0.40%~1.00%, 平均0.75%; 卡拉库姆盆地中下侏罗统煤系源岩 R_o 为0.49%~1.70%, 平均1.25%^[20], 均发现大量煤成气田。

1.3 含煤盆地出现煤成油田的原因

在气油兼生期的含煤盆地大部分发现是煤成气田, 出现煤成油田机率是低的, 其原因为:

(i) 内因. 在320℃成煤作用模拟中均质镜质体和腐殖组成烃气/油比为1.5~2; 壳质组和藻类体气/油比一般为0.1~0.47; 惰性组则产烃很少^[20]. 一般来

说煤的有机显微组分中利于成油的壳质组含量低, 仅为1%~3%^[30]. 故腐殖煤即使在气油兼生期也是以发现煤成气田为主。

但由于某种地质因素影响, 腐殖煤壳质组比例会增加, 即在壳质组含量高(>7%)之内因作用下就可形成煤成油田. 例如: 吐哈盆地侏罗系煤系源岩 R_o 为0.34%~1.83%, 均值为0.75%, 发现主要是煤成油田. 以往认为主要是壳质组含量高, 即7.59%~25%^[30]导致形成煤成油田为主. 最近Gong等人^[31]发现煤成油中的轻烃化合物和金刚烷类化合物指示的成熟度远高于侏罗系烃源岩, 故煤成油也有下伏二叠系和石炭系腐泥型烃源岩的贡献。

印度尼西亚Barito盆地古近系和新近系3套煤系煤岩和泥岩 R_o 均值0.52%, 壳质组+腐泥组最高达

52%, 平均为13%~17%^[20,32], 所以也发现煤成油田。

吉普斯兰盆地上白垩统和始新统煤系烃源岩 R_o 从0.40%~1.20%, 均值1.00%^[20], 壳质组均值为8%~12%^[4,5], 最高达45%^[33], 所以盆地中发现主要为煤成油田, 如王鱼大油田和哈利勃特大油田。

(ii) 外因. 处于气油兼生期, 煤中有机显微组分壳质组含量不高的盆地边缘散落着个别储量不大的煤成油田, 而盆地中部则分布大量煤成气田。例如: 台西盆地东北缘山子脚煤成油田^[28], 库车坳陷东部北缘依奇克里克煤成油田, 准噶尔盆地南缘古牧地煤成油田, 卡拉库姆盆地东南缘和东北缘一些煤成油田^[34]。

造成这些“边、小、散”煤成油田主要由天然气扩散作用的外因所致。物质的扩散能力随分子量变大呈指数关系降低。对烃类来说, 实际上只有碳数在 C_1 ~ C_{10} 的烃才真正具有扩散运移作用, 一般来说碳原子数大于10的液态烃扩散性就很小了, 所以分子扩散就成为烃类气体最具特征的运移方式^[35]。扩散主要有两种: 浓度扩散(高浓度区向低浓度区扩散)和温度扩散(高温区向低温区扩散)。深部气油储层处于高浓度和高地温区, 浅部气油储层处于相对低浓度和低地温区。由上述因素控制, 故浅储层气态烃易于大量快速扩散, 而液态烃基本不受扩散影响而损失, 使液态烃比例相对不断增大, 扩散随时间增长, 可使煤成气田演变为煤成油田。例如库车坳陷东部阳霞凹陷西北缘依奇克里克煤成气田, 克孜勒努尔组储层埋深150~550 m, 该油田东南部吐孜洛克气田和西南部迪那2凝析气田储层埋深在4500 m, 3个气油田气油均来自中下侏罗统煤系。依奇克里克油田位于天山南麓, 受天山上升而储层变浅, 原来深埋的依奇克里克煤成气田, 由于储层由深变浅因扩散作用结果而演变为煤成油田。卡拉库姆盆地东北缘布哈尔和恰尔合乌阶地储层埋深600~1200 m的卡拉克泰等4个煤成油田, 也是由于储层变浅因扩散作用, 煤型凝析气田演变为煤成油田^[34]。

2 天然气鉴别理论

2.1 烷烃气碳同位素组成

天然气中蕴含科学信息多, 可见率最高是烷烃气(CH_4 , C_2H_6 , C_3H_8 和 C_4H_{10}), 如中国48个大气田1025个气样组分分析: CH_4 , C_2H_6 , C_3H_8 和 C_4H_{10} 平均

值分别为88.22%, 3.31%, 0.97%和0.49%, 即天然气中烷烃气平均组分占92.99%^[36,37]。同时烷烃气的同位素研究中, 以碳同位素研究精度最佳而可靠, 故烷烃气碳同位素组成($\delta^{13}C_{1-4}$), 成为天然气鉴别的最重要手段。

烷烃气碳同位素组成, 按其分子中碳数顺序递增, $\delta^{13}C$ 值依次递增或递减, 或出现排列混乱, 可分为3种烷烃气碳同位素系列^[38~40]。

(i) 正碳同位素系列. 烷烃气分子中碳数顺序递增 $\delta^{13}C$ 值依次递增($\delta^{13}C_1 < \delta^{13}C_2 < \delta^{13}C_3 < \delta^{13}C_4$), 它是有机成因原生烷烃气的一个重要特征, 各 $\delta^{13}C$ 值是气源鉴定的基础。中国含油气盆地中有大量正碳同位素系列的天然气^[41~54], 澳大利亚各含油气盆地^[55]、加拿大阿尔伯达盆地、西加拿大深盆^[56,57]以及美国Val Verde盆地等^[58], 均有大量正碳同位素系列的天然气。

(ii) 负碳同位素系列. 烷烃气分子中随碳数顺序递增, $\delta^{13}C$ 值依次递减($\delta^{13}C_1 > \delta^{13}C_2 > \delta^{13}C_3 > \delta^{13}C_4$), 过去认为它是无机成因烷烃气的一个标志, 但近年来发现在沉积盆地烃源岩过成熟区, 不少天然气也具有负碳同位素系列, 如中国鄂尔多斯盆地南部^[40,59,60]、四川盆地南部龙马溪组页岩气^[61~65]、美国东Arkoma盆地Fayetteville组页岩气^[66]、西加拿大盆地的Horn River组页岩气^[67]、巴西Solimões盆地^[68]以及波兰Polish盆地等^[69]。这些含油气盆地过成熟区发现负碳同位素系列天然气称为次生型负碳同位素系列, 它是由正碳同位素系列经次生改造而成^[40]。关于正碳同位素系列改造转变为次生型负碳同位素系列的成因观点多: (1) 出现在过成熟区, 天然气湿度小, 地温大于200℃。根据鄂尔多斯盆地433个气样研究, 次生型负碳同位素系列出现在 R_o 值为2.2%~2.7%, 湿度在0.46%~1.41%地区^[40]。Marcellus页岩气当湿度大时(14.7%~20.8%)为正碳同位素系列, 当湿度小时(1.49%~1.57%)则出现次生型负碳同位素系列^[70]。Vinogradov等人^[71]指出不同温度下碳同位素交换平衡作用有异, 当高于200℃时利于正碳同位素系列转变为次生型负碳同位素系列; (2) 烷烃气分子中碳数渐增扩散速度递减, 和 ^{13}C 组成气分子扩散速度递减^[40]; (3) 二次裂解^[72]; (4) 过渡金属和水介质在250~300℃环境中发生氧化还原作用, 导致乙烷和丙烷瑞利分馏^[73]。Dai等人^[40]把由正碳同位素系列次生改造为负碳同位素系列称为次生型负碳同位素系列,

而把在岩浆岩包裹体、超基性岩蛇纹岩化、现代火山活动区(美国黄石公园)、大洋中脊和陨石中一些烷烃气具有负碳同位素系列,其烷烃气明显为无机成因^[74-80]的,称为原生型负碳同位素系列。原生型负碳同位素系列是无机成因原生烷烃气的一个重要特征。原生型负碳同位素系列和次生型负碳同位素系列的鉴别:与壳源氮伴生的为次生型负碳同位素系列,与幔源氮、壳幔混合氮伴生的为原生型负碳同位素系列。壳源氮 R_a 值基本展布范围值为 0.013~0.021^[81],一般<0.05^[82],地幔氮 R_a 通常大于 5^[83],上地幔氮为 8.8 ± 2.5 ,下地幔(deep mantle)氮为 5~50^[84], R_a 值在壳源气和幔源气之间为壳幔混合氮,常出现在裂谷型盆地,如渤海湾盆地,壳源氮常出现在克拉通盆地,如鄂尔多斯盆地和四川盆地,前者 93 个气样的 R_a 平均值为 0.033^[83],后者 78 个 R_a 值为 0.002~0.050^[85]。四川盆地五峰-龙马溪组页岩气具有次生型负碳同位素系列的 R_a 值为 0.01~0.04^[62,63]。原生型负碳同位素系列,在大西洋中脊 Lost City Hydrothermal Field 3871- GT15 气样 $\delta^{13}C_1$ 值-9.9‰, $\delta^{13}C_2$ 值-13.3‰, $\delta^{13}C_3$ 值-14.2‰, $\delta^{13}C_4$ 值-14.3‰, R_a 为 8.73^[78]。土耳其 Chimaera K03 气样 $\delta^{13}C_1$ 值-12.3‰, $\delta^{13}C_2$ 值-26.5‰, $\delta^{13}C_3$ 值-26.9‰,氮为壳幔混合型,即 R_a 为 0.41^[86]。

(iii) 倒转碳同位素系列,简称碳同位素倒转。烷烃气碳同位素不符合正碳同位素系列或负碳同位素系列排列,排列发生混乱($\delta^{13}C_1 > \delta^{13}C_2 < \delta^{13}C_3 > \delta^{13}C_4$, $\delta^{13}C_1 < \delta^{13}C_2 > \delta^{13}C_3 > \delta^{13}C_4$ 等)称为碳同位素倒转,其成因有:(1)气运移过程中同位素分馏效应;(2)某一烷烃气组分被细菌氧化;(3)有机气和无机气的混合;(4)油型气和煤成气的混合;(5)同一类型成熟度不同的两个层段烃源岩生成气的混合;(6)同一层段烃源岩在不同成熟度生成气的混合^[38,39,87]。

2.2 煤成气和油型气的碳同位素对比研究

(i) 相同或相近成熟度烃源岩形成的天然气,煤成烷烃气的 $\delta^{13}C$ 值比油型烷烃气的 $\delta^{13}C$ 值重^[41,88]

这个规律可由下式表示:

$$\text{油型气 } \delta^{13}C_1 < \delta^{13}C_2 < \delta^{13}C_3 < \delta^{13}C_4$$

^ ^ ^ ^ 相同或相近成熟度。

$$\text{煤型气 } \delta^{13}C_1 < \delta^{13}C_2 < \delta^{13}C_3 < \delta^{13}C_4$$

(ii) $\delta^{13}C_1$ - R_o 关系研究。无论煤成气或油型气的 $\delta^{13}C_1$ 均有随 R_o 增大而变重(大)的规律,这是由于

^{12}C - ^{12}C 键能比 ^{13}C - ^{12}C 键能小,故烃源岩中成气母质的有机碳化合物或者干酪根,在温度低(即 R_o 低)热能小的成气阶段, ^{12}C 易从成气母质率先分离出参与形成甲烷,故 $\delta^{13}C_1$ 值较轻。随 R_o 增大即热能增大,键能较大 ^{13}C 从成气母质分离出来参与形成甲烷,故 $\delta^{13}C_1$ 值就随 R_o 增大而变重。

Stahl^[58] 首先研究 $\delta^{13}C_1$ 和 R_o 之间定量关系,建立以下关系式并编制相关图:

$$\text{煤成气关系式 } \delta^{13}C_1 \approx 14 \lg R_o - 28, \quad (1)$$

$$\text{油型气关系式 } \delta^{13}C_1 \approx 17 \lg R_o - 42. \quad (2)$$

《煤成气的开发研究》“六五”国家天然气科技攻关,戴金星等人^[89,90]和沈平等^[91]分别建立了中国 $\delta^{13}C_1$ - R_o 之间关系式(3), (4)和(5),也编制了相关图。

$$\text{煤成气关系式 } \delta^{13}C_1 \approx 14.12 \lg R_o - 34.39, \quad (3)$$

$$\text{油型气关系式 } \delta^{13}C_1 \approx 15.80 \lg R_o - 42.20, \quad (4)$$

$$\text{煤成气关系式 } \delta^{13}C_1 \approx 8.61 \lg R_o - 32.8. \quad (5)$$

(2)和(4)式及其相关图中的关系式基本一致,但(1)相关图中关系式比(3), (5)式的关系式重约 4‰。Galimov 认为:这是由于 Stahl 关系式为“瞬时”线,而戴金星等人和沈平等人为“累积”线所造成^[92]。

在戴金星等人和沈平等建立 $\delta^{13}C_1$ - R_o 关系式后 10 多年,刘文汇等人^[93]认为煤成气在 R_o 为 0.9% 前后阶段 $\delta^{13}C_1$ - R_o 关系式不同:

$$\text{煤成气关系式 } \delta^{13}C_1 \approx 48.77 \lg R_o - 34.1 \quad (R_o \leq 0.9\%),$$

$$\text{煤型气关系式 } \delta^{13}C_1 \approx 22.42 \lg R_o - 34.8 \quad (R_o > 0.9\%).$$

(iii) $\delta^{13}C_2$ 值与煤成气及油型气鉴别。从 1988~2016 年近 30 年来,我国许多学者对利用 $\delta^{13}C_2$ 值鉴别煤成气和油型气作了连续性研究^[36,41,94-98],发现不同类型气源岩生成天然气 $\delta^{13}C_2$ 值有着显著差异,一般 $\delta^{13}C_2$ 值受气源岩 R_o 的影响比 $\delta^{13}C_1$ 值小,而提出鉴别煤成气和油型气 $\delta^{13}C_2$ 不同值:煤成气的 $\delta^{13}C_2$ 值一般重于 -29‰,油型气的一般轻于 -29‰^[94,95], $\delta^{13}C_2 > -29\text{‰}$ 为煤成气^[96]; $\delta^{13}C_2 > -26\text{‰}$ 为煤成气, $\delta^{13}C_2 < -29\text{‰}$ 是油型气, $-29\text{‰} \sim -26\text{‰}$ 是两者气叠合混合气^[97], $\delta^{13}C_2 > -(10.2\delta^{13}C_1 + 1246)/29.8$ 的气为煤成气,当 $\delta^{13}C_1 > -55\text{‰}$, $\delta^{13}C_2 < -(10.2\delta^{13}C_1 + 1246)/29.8$ 的气为油型气^[98],由于其值复杂而难以记忆,同时不是仅以正碳同位素系列为基础,还把负碳同位素系列和碳同位素倒转作为 $\delta^{13}C_2$ 值也作基数,所以此 $\delta^{13}C_2$ 值作为鉴别指标值得商榷。2011 年戴金星^[36] 根据我国 600 多个油型气正碳同位素系列和中外 7 个盆地 28 个

煤成气正碳同位素系列综合研究得出:煤成气 $\delta^{13}\text{C}_2$ 值基本上重于 -28‰ ,油型气 $\delta^{13}\text{C}_2$ 值基本上轻于 -28.5‰ ,介于 -28‰ ~ -28.5‰ 为两类气共存区,且以煤成气为主.此组 $\delta^{13}\text{C}_2$ 值与上述多数学者基本一致,推荐为鉴别指标(表2).

$\delta^{13}\text{C}_2$ 值鉴别指标只能取自和用于正碳同位素系列的气中,负碳同位素系列和碳同位素倒转中的 $\delta^{13}\text{C}_2$ 值不能作为 $\delta^{13}\text{C}_2$ 值鉴别指标.

2.3 轻烃组分鉴别指标

轻烃一般是沸点小于 200℃ 的烃类化合物,包括

正构烷烃,异构烷烃,环烷烃和芳香烃. $\text{C}_1\sim\text{C}_{10}$ 正构烷烃的沸点为 $-161.5\sim 195\text{℃}$. $\text{C}_1\sim\text{C}_4$ 的烃类在常温常压下为气态,故为气态轻烃, $\text{C}_5\sim\text{C}_{10}$ 烃类在常温常压下为液态,故为液态轻烃.轻烃化合物种类随着碳数的增加而迅速增加. C_5 有4种, C_6 有8种, C_7 有17种, C_8 有45种^[99].利用轻烃来鉴别天然气,把天然气鉴别从气组分的气相扩大至液相.20世纪90年代戴金星^[100]对轻烃鉴别天然气开始综合研究,近20多年胡国艺等学者对轻烃作了深入研究^[99,101~103],建立了应用轻烃甲基环己烷指数^[104]、支链烷烃含量^[105]、苯含量、甲苯含量、甲苯/苯^[106]等指标鉴别煤成气和油型气(表2).

表2 煤成气和油型气鉴别各项指标(据文献[15]修改补充)

Table 2 Discrimination indexes of coal-derived gas and oil-derived gas (after ref. [15])

鉴别指标		天然气类型	
		油型气	煤成气
同位素	$\delta^{13}\text{C}_1(\text{‰})$	$-30>\delta^{13}\text{C}_1>-55$	$-10>\delta^{13}\text{C}_1>-43$
	$\delta^{13}\text{C}_2(\text{‰})$	<-28.5	>-28.0
	$\delta^{13}\text{C}_3(\text{‰})$	<-27	>-25.5
	$\delta^{13}\text{C}_1-Ro$ 关系	$\delta^{13}\text{C}_1\approx 15.80\text{Lg}Ro-42.21$	$\delta^{13}\text{C}_1\approx 14.13\text{Lg}Ro-34.39$
	C_{5-8} 轻烃 $\delta^{13}\text{C}(\text{‰})$	<-27	>-26
	C_{5-8} 单体烃系列 $\delta^{13}\text{C}(\text{‰})$	正构烷烃 $-31.8\sim-26.2$	正构烷烃 $-25\sim-20.6$
	与气同源的凝析油 $\delta^{13}\text{C}(\text{‰})$	轻(一般 <-29)	重(一般 >-28)
	凝析油饱和烃和芳烃 $\delta^{13}\text{C}(\text{‰})$	饱和烃 $\delta^{13}\text{C}<-27$ 芳烃 $\delta^{13}\text{C}<-27.5$	饱和烃 $\delta^{13}\text{C}>-29.5$ 芳烃 $\delta^{13}\text{C}>-27.5$
	与气同源原油 $\delta^{13}\text{C}(\text{‰})$	轻($-26>\delta^{13}\text{C}>-35$)	重($-23>\delta^{13}\text{C}>-30$)
苯和甲苯 $\delta^{13}\text{C}(\text{‰})$	$\delta^{13}\text{C}_{\text{苯}}<-24$	$\delta^{13}\text{C}_{\text{苯}}>-24$	
	$\delta^{13}\text{C}_{\text{甲苯}}<-23$	$\delta^{13}\text{C}_{\text{甲苯}}>-23$	
轻烃	甲基环己烷指数(‰)	$<50\pm 2$	$>50\pm 2$
	C_{6-7} 直连烷烃含量(‰)	>17	<17
	甲苯/苯	一般 <1	一般 >1
	苯($\mu\text{g/L}$)	148	475
	甲苯($\mu\text{g/L}$)	113	536
	凝析油 C_{4-7} 烃族组成(‰)	富含链烷烃, 贫环烷烃和芳烃, 芳烃一般 <5	贫链烷烃, 富含烷烃和芳烃, 芳烃一般 >10
	C_7 的五环烷、六环烷和 $n\text{C}_7$ 族组成	富 $n\text{C}_7$ 和五环烷	贫 $n\text{C}_7$, 富六环烷
	$n\text{-C}_7$, MCC_6 , $\text{DMCC}_5(\text{‰})$	$n\text{-C}_7>35$, $\text{MCC}_6>35$	$n\text{-C}_7<35$, $\text{MCC}_6<20$
	$n\text{-C}_6/\text{MCC}_6$	<1.8	>3.0
	支链化合物/直链化合物	>2.0	<1.8
生物标志物	Pr/Ph值	一般 <1.8	一般 >2.7
	杜松烷、桉叶油烷	没有杜松烷, 难以检测到桉叶油烷	可以检测到杜松烷和桉叶油烷
	松香烷系列和海松烷系列	贫海松烷和松香烷	成熟度不高时, 可检测到海松烷系列和松香烷系列化合物
	二倍半萜 $\text{C}_{15}/\text{C}_{16}$ 值	<1 和 >3	$1.1\sim 2.8$
	双杜松烷	无	有
	$\text{C}_{27}-\text{C}_{29}$ 甾烷	一般 C_{27} 和 C_{28} 含量丰富, C_{29} 含量少	一般 C_{29} 含量丰富, C_{27} 和 C_{28} 含量极少

2.4 生物标志化合物鉴别指标

生物标志化合物鉴别指标应用局限多, 因其仅能与与气同源的凝析油和储层沥青中获得. Pr/Ph 值是生物标志化合物作为鉴别指标最普遍最易得的指标. 应用凝析油中 Pr/Ph 值^[19,89,107], 杜松烷和桉叶油烷是高等植物精油的组分, 多见于煤系烃源岩中. 苏桥凝析气田残殖煤中检出 $4\beta(H)$ 桉叶油烷^[19]; 崖13-1气田崖城组泥岩抽提物中发现杜松烷和双杜松烷; 澳大利亚一些煤成油中检出杜松烷和桉叶油烷^[108]; 中坝气田须家河组煤系二段凝析油和砂岩沥青中及三段页岩中, 均检出 $4\beta(H)$ -降异海松烷^[109]. 二环伴半萜 C_{15}/C_{16} 值^[107] 等及以上诸生物标志化合物均可用于鉴别煤成气和油型气(表2).

2.5 鉴别图版

近40年来中国学者研编了大量天然气鉴别图, 现仅择几种实用性好、精确度高的予以简介: (1) $\delta^{13}C_1$ - $\delta^{13}C_2$ - $\delta^{13}C_3$ 有机成因烷烃气鉴别图, 1992年首制^[110], 2014局部完善(图3)^[111], 受广泛应用; (2) C_7 轻烃系列三角鉴别图版^[99,104,110]; (3) C_{5-7} 正构烷烃, 异构烷烃, 环烷烃三角鉴别图^[99,101], C_{5-7} 正构烷烃含量大于30%为油型气, 小于30%为煤成气; (4) C_8 正构烷烃、异构烷烃和环烷烃三角鉴别图^[99], 煤成气环烷烃含量一般大于30%, 油型气异构烷烃含量较高.

鉴别研究得到李德生院士^[9]好评: “各类烷烃气的鉴别”, “特别是气源对比精度, 可信度进入新高点”, 千人计划专家黎茂稳和 *Organic Geochemistry* 主

图3 $\delta^{13}C_1$ - $\delta^{13}C_2$ - $\delta^{13}C_3$ 有机成因烷烃气鉴别图版(据文献[110, 111]完善)

Figure 3 Discrimination plot of different organic gases using $\delta^{13}C_1$ - $\delta^{13}C_2$ - $\delta^{13}C_3$ (after refs. [110] and [111])

编Volkman等人^[112]评述“鉴别指标具有全球影响力”，综合指标(表2)被Zhai^[113]和陈骏^[114]院士完整引用，《油气地球化学》^[115]等10部中国“普通高等教育国家级规划教材”大量引用鉴别指标、图版和关系式，并在油气田勘探中被广泛应用。

3 煤成气、大气田形成因素和气聚集域研究的意义

1979年之前，中国石油界传统认为油气均由海相和湖泊中低等生物形成腐泥型烃源岩生成，其气称油型气，不把高等植物形成的腐殖煤系作气油源

岩和气油勘探的目标。通过天然气攻关项目发现并论证了煤系是优质烃源岩，成烃以气为主以油为辅，创立了完整的煤成气理论。煤成气理论致使中国勘探天然气理论由一元论(油型气)发展为二元论(油型气和煤成气)，开辟了天然气勘探的新领域，开发出煤成气一个新气种，扩大了天然气勘探层位和资源量，为中国天然气大突破提供了理论支持。中国煤成大型气田形成主控因素、成藏富集研究^[116-119]，确定了生气中心及周缘(生气强度大于 $20 \times 10^8 \text{ m}^3/\text{km}^2$)、晚期成藏、低气势区、古隆起等是大气田聚集区^[117]。特别生气强度大于 $20 \times 10^8 \text{ m}^3/\text{km}^2$ 定量因素研究，有的

图4 中国含油气盆地与大气田分布示意图(截至2016年底)

Figure 4 Distribution of large gas fields in China (by the end of 2016)

放矢高效地指导了大气田的发现。煤成气理论出现之前,中国没有一个煤成大气田,至2016年底,则共发现煤成大气田39个(图4),占全国大气田总数59个的66%,全国储量最大、年产气量最高的苏里格气田就是煤成气田。

首次发现中亚煤成气聚集域和亚洲东缘煤成气聚集域。煤成气聚集域是大区域、洲际性展布,受相似的天然气地质条件控制的毗邻相接盆地群,盆地群中各盆地发育气源条件基本相同、成藏条件相似、空间分布相近、地质环境相仿的若干气田组成气聚集带^[120,121]。根据聚集域内各盆地煤成气田发育分布相似性特征,中亚煤成气聚集域西部卡拉库姆盆地已发现大量煤成气田,故由彼及此预测塔里木盆地是有利勘探煤成气区域^[120~122],并被之后克拉两大气田、大北大气田和克深大气田等等发现和建成塔里木大气区所证实。以上研究为中国天然气工业快速发展提供了理论依据和支持。1978年煤成气理论之前,中国天然气总储量 $2284 \times 10^8 \text{ m}^3$ (其中煤成气 $203 \times 10^8 \text{ m}^3$),年产气 $137 \times 10^8 \text{ m}^3$ (其中煤成气 $3.43 \times 10^8 \text{ m}^3$),至2016年全国气总储量 $118951.2 \times 10^8 \text{ m}^3$ (其中煤成气 $82889.32 \times 10^8 \text{ m}^3$),年产气 $1384 \times 10^8 \text{ m}^3$ (其中煤成气 $742.91 \times 10^8 \text{ m}^3$),天然气储量、煤成气储量、天然气产量和煤成气产量分别是1978年的52倍、408倍、10倍和216.6倍,使我国

从贫气国迈向世界第6产气大国。近12年来共产煤成气 $6620.53 \times 10^8 \text{ m}^3$,相当抵减用煤 $16.76 \times 10^8 \text{ t}$,减排 CO_2 达 $28.46 \times 10^8 \text{ t}$,对改善环境起了重大作用。

4 总结和建议

中国是世界上煤炭资源量和储量最大的国家之一,并是世界近年来年产量最多的国家(2017年产煤 $35.2 \times 10^8 \text{ t}$),说明煤成气源岩蕴藏量丰富,勘探煤成气潜力巨大。据全国第四次资源评价煤成气资源量为 $29.82 \times 10^{12} \text{ m}^3$,而我国截止2016年累计探明的煤成气储量 $8.2889 \times 10^{12} \text{ m}^3$,仅为资源量的27.8%,说明今后有探明更多煤成气储量和大气田的优良条件。我国第一批国家重点科技攻关项目就把《煤成气的开发研究》列入,但从“六五”至今已有30多年,就再没有把煤成气列为国家级重大科技专项,故建议“十四五”应把煤成气列为国家科技专项,开展深层、超深层煤成气地球化学、深层煤系烃源岩分布、煤成气成藏主控因素和富集规律、以及致密砂岩煤成气田开发等专题研究,诸如在准噶尔盆地大面积侏罗系、石炭系煤系,鄂尔多斯盆地西南部油区下探明煤成气区,塔里木盆地英吉苏坳陷,渤海湾盆地大港油田连片石炭系-二叠系煤系隐伏区、东海盆地和莺琼盆地探明大气田,探明更多储量。

致谢 感谢中国石油勘探开发研究院胡国艺、朱光有、倪云燕、秦胜飞、黄士鹏、龚德瑜等博士对本文初稿提出了建设性修改意见和建议;彭威龙和韩文学博士协助图件编制和文献检索,在此深表感谢!该文的地图审图号为GS(2018)2159。

参考文献

- 1 Dai J X. Some problems in the study of petroleum geology (in Chinese). *Adv Earth Sci*, 2001, 16: 710–718 [戴金星. 油气地质学的若干问题. *地球科学进展*, 2001, 16: 710–718]
- 2 Shi X Z, Dai J X, Wang Z M, et al. A study of methane carbon isotope of coal-formed gas in FRG and its inspiration to us (in Chinese). *Nat Gas Ind*, 1985, 5: 1–9 [史训知, 戴金星, 王则民, 等. 联邦德国煤成气的甲烷碳同位素研究和对我们的启示. *天然气工业*, 1985, 5: 1–9]
- 3 Dai J X. Oil and Gas and China (in Chinese). In: *Science and China*. Jinan: Shandong Education Press, 2004. 258–285 [戴金星. 油气与中国. 见: *科学与中国*. 济南: 山东教育出版社, 2004. 258–285]
- 4 Brooks J D, Smith J W. The diagenesis of plant lipids during the formation of coal, petroleum and natural gas-I. Changes in the n-paraffin hydrocarbons. *Geochim Cosmochim Acta*, 1967, 31: 2389–2397
- 5 Brooks J D, Smith J W. The diagenesis of plant lipids during the formation of coal, petroleum and natural gas-II. Coalification and the formation of oil and gas in the Gippsland Basin. *Geochim Cosmochim Acta*, 1969, 33: 1183–1194
- 6 Dai J X. Petroleum and natural gas generation in coalification (in Chinese). *Petrol Explor Dev*, 1979, 6: 10–17 [戴金星. 成煤作用中形成的天然气和石油. *石油勘探与开发*, 1979, 6: 10–17]
- 7 Dai J X. Preliminary research on natural gas in coal series in China (in Chinese). *Acta Petrol Sin*, 1980, 1: 27–37 [戴金星. 我国煤系地层含气性的初步研究. *石油学报*, 1980, 1: 27–37]

- 8 Sun H L. 20th Century Academic Overview of Chinese Renowned Scientists: Earth Science, Geology (Vol. 2) (in Chinese). Beijing: Science Press, 2013. 53–56 [孙鸿烈. 20世纪中国知名科学家学术成就概览: 地学卷地质学分册(卷二). 北京: 科学出版社, 2013. 53–56]
- 9 Dai J X. Giant Coal-Derived Gas Fields and Their Gas Sources in China. Beijing, London, New York, Paris: Academic Press, Science Press, 2016, foreword I, II, 61–69, 73–75, 108–110, 114–116, 125–129, 181–182, 210–211
- 10 Dai J X, Qi H F, Wang S C, et al. Geochemical Features of Hydrocarbon from Coal Measures, Formation and Resource Evaluation of Coal-formed Gas Reservoir in China (in Chinese). Beijing: Petroleum Industry Press, 2001 [戴金星, 戚厚发, 王少昌, 等. 我国煤系的气油地球化学特征、煤成气藏形成条件及资源评价. 北京: 石油工业出版社, 2001]
- 11 Zhao W Z, Wang H J, Qian K. Progress of coal-formed gas geological theory and its status in natural gas industry in China (in Chinese). *Petrol Explor Dev*, 2009, 36: 280–289 [赵文智, 王红军, 钱凯. 中国煤成气理论发展及其在天然气工业发展中的地位. 石油勘探与开发, 2009, 36: 280–289]
- 12 Kasatochkin V P, Shlyatsnikov V F, Nepomniachtchi L L. Osubmikroskopicheskoy structure of coal. *Acad Sci*, 1954, 96: 547–548
- 13 Dai J X, Qi H F. Gas pores in coal measures and their significance in gas exploration. *Kexue Tongbao*, 1982, 27: 1314–1318
- 14 Wang Q J, Chen J Y. Oil and Gas Geochemistry (in Chinese). Wuhan: China University of Geosciences Press, 1988. 75–79 [王启军, 陈建渝. 油气地球化学. 武汉: 中国地质大学出版社, 1988. 75–79]
- 15 Dai J X, Ni Y Y, Huang S P, et al. Significant function of coal-derived gas study for natural gas industry development in China (in Chinese). *Nat Gas Geosci*, 2014, 25: 1–22 [戴金星, 倪云燕, 黄士鹏, 等. 煤成气研究对中国天然气工业发展的重要意义. 天然气地球科学, 2014, 25: 1–22]
- 16 Hunt J. Petroleum Geochemistry and Geology. New York: W H Freeman and Company, 1979. 109–110, 178
- 17 Koglov V P, Tokarev L V. Gas-forming volume in sedimentary strata (with reference to the Donets Basin). *Soviet Geol*, 1961, 7: 19–33
- 18 Zhabrev I. Genesis of Hydrocarbon Gases and the Formation of Deposit. Beijing: Science Press, 1977. 6–19
- 19 Fu J M, Liu D H, Sheng G Y. Coal-generated Hydrocarbon Geochemistry (in Chinese). Beijing: Science Press, 1990. 31–32, 37–76, 103–113 [傅家谟, 刘德汉, 盛国英. 煤成烃地球化学. 北京: 科学出版社, 1990. 31–32, 37–76, 103–113]
- 20 Dai J X, Zhong N N, Liu D H, et al. Geologic Bases and Major Controlling Factors of Large and Medium Humic Gas Fields in China (in Chinese). Beijing: Petroleum Industry Press, 2000. 24–76 [戴金星, 钟宁宁, 刘德汉, 等. 中国煤成大中型气田地质基础和主控因素. 北京: 石油工业出版社, 2000. 24–76]
- 21 Yang T Y, Wang H Y. Simulation experiment of thermo-coalificative natural gas genesis and its significance (in Chinese). *Petrol Explor Dev*, 1983, 6: 29–36 [杨天宇, 王涵云. 褐煤干酪根催化作用成气的模拟实验及其地质意义. 石油勘探与开发, 1983, 6: 29–36]
- 22 Fang Z K, Chen Z M, Pang X Q, et al. Characteristics of coalification modeling experiment products of Dayan brown coal (in Chinese). *J Daqing Petrol Inst*, 1984, 3: 1–9 [方祖康, 陈章明, 庞雄奇, 等. 大雁褐煤在催化模拟实验中的产物特征. 大庆石油学院学报, 1984, 3: 1–9]
- 23 Zhang W Z, Liu G X, Chen A D, et al. Laboratory Simulation of Hydrocarbon Generation of Lower Rank Coals and Macerals (in Chinese). Beijing: Petroleum Industry Press, 1987. 222–228 [张文正, 刘桂霞, 陈安定, 等. 低阶煤岩显微组分的成烃模拟实验. 北京: 石油工业出版社, 1987. 222–228]
- 24 Guan D S, Qi H F, Gan L D. Discussion on Pyrolytic-simulation Results of Gas Productivity from Coals and Mudstones of Coal Series (in Chinese). Beijing: Petroleum Industry Press, 1987. 182–193 [关德师, 戚厚发, 甘利灯. 煤和煤系泥岩产气率实验结果讨论. 北京: 石油工业出版社, 1987. 182–193]
- 25 Zhang W Z, Xu Z Q. Modeling experiment research of hydrocarbon generation from the thermal evaluation of low grade coal (in Chinese). *Nat Gas Ind*, 1986, 6: 1–7 [张文正, 徐正球. 低阶煤热演化生烃的模拟试验研究. 天然气工业, 1986, 6: 1–7]
- 26 Cheng K M, Wang T G, Zhong N N, et al. Source Rocks Geochemistry (in Chinese). Beijing: Science Press, 1995. 108–111 [程克明, 王铁冠, 钟宁宁, 等. 煤成烃地球化学. 北京: 科学出版社, 1995. 108–111]
- 27 Qin J Z. Source Rocks in China (in Chinese). Beijing: Science Press, 2005. 311–334 [秦建中. 中国烃源岩. 北京: 科学出版社, 2005. 311–334]
- 28 Dai J X. Geological outline of Taiwan oil and gas in China (in Chinese). *Petrol Explor Dev*, 1980, 7: 31–39 [戴金星. 我国台湾油气地质梗概. 石油勘探与开发, 1980, 7: 31–39]
- 29 Shen J Q, Guo Z L, Zhou C X. Organic facies and petroleum potential of the tertiary sedimentary basin in Taiwan, China (in Chinese). *Petrol Geol Taiwan*, 1994, 16: 52–57 [沈俊卿, 郭政隆, 周次雄. 台湾地区第三纪沉积盆地之有机相及油气潜力. 台湾石油地质, 1994, 16: 52–57]
- 30 Dai J X. Enhance the studies on natural gas geology and find more large gas fields in China (in Chinese). *Nat Gas Geosci*, 2003, 14: 3–14 [戴金星. 加强天然气地质研究, 勘探更多大气田. 天然气地球科学, 2003, 14: 3–14]
- 31 Gong D Y, Cao Z L, Ni Y Y, et al. Origins of Jurassic oil reserves in the Turpan-Hami Basin, northwest China: Evidence of admixture

- from source and thermal maturity. *J Petrol Sci Eng*, 2016, 146: 788–802
- 32 Panggabean H. Tertiary source rocks, coals and reservoir potential in the Asem Asem and Barito Basins, Southeastern Kalimantan, Indonesia. Doctor Dissertation. New South Wales: University of Wollongong, 1991
 - 33 Smith G C, Cook A C. Petroleum occurrence in the Gippsland Basin and its relationship to rank and organic matter type. *APPEA J*, 1984, 24: 196–216
 - 34 Dai J X, Ni Y Y, Zhou Q H, et al. Significances of studies on natural gas geology and geochemistry for natural gas industry in China (in Chinese). *Petrol Explor Dev*, 2008, 35: 513–525 [戴金星, 倪云燕, 周庆华, 等. 中国天然气地质与地球化学研究对天然气工业的重要意义. *石油勘探与开发*, 2008, 35: 513–525]
 - 35 Li M C. Petroleum Migration (Vol.4) (in Chinese). Beijing: Petroleum Industry Press, 2013. 56–58 [李明诚. 石油与天然气运移(第四版). 北京: 石油工业出版社, 2013. 56–58]
 - 36 Dai J X. Significance of the study on carbon isotopes of alkane gases (in Chinese). *Nat Gas Ind*, 2011, 31: 1–6 [戴金星. 天然气中烷烃气碳同位素研究的意义. *天然气工业*, 2011, 31: 1–6]
 - 37 Dai J X, Yu C, Huang S P, et al. Geological and geochemical characteristics of large gas fields in China. *Petrol Explor Dev*, 2014, 41: 1–13
 - 38 Dai J X. A brief discussion on the problem of the geneses of the carbon isotope series reversal in organogenic alkane gases (in Chinese). *Nat Gas Ind*, 1990, 10: 15–20 [戴金星. 概论有机烷烃气碳同位素系列倒转的成因问题. *天然气工业*, 1990, 10: 15–20]
 - 39 Dai J X, Xia X Y, Qin S F, et al. Origins of partially reversed alkane $\delta^{13}\text{C}$ values for biogenic gases in China. *Org Geochem*, 2004, 35: 405–411
 - 40 Dai J X, Ni Y Y, Huang S P, et al. Secondary origin of negative carbon isotopic series in natural gas. *J Nat Gas Geosci*, 2016, 1: 1–7
 - 41 Dai J X, Pei X G, Qi H F. Natural Gas Geology in China (Vol.1) (in Chinese). Beijing: Petroleum Industry Press, 1992. 37–43 [戴金星, 裴锡古, 戚厚发. 中国天然气地质学(卷一). 北京: 石油工业出版社, 1992. 37–43]
 - 42 Dai J X, Li J, Luo X, et al. Stable carbon isotope compositions and source rock geochemistry of the giant gas accumulations in the Ordos Basin, China. *Org Geochem*, 2005, 36: 1617–1635
 - 43 Dai J X, Zou C N, Zhang S C, et al. Discrimination of abiogenic and biogenic alkane gases. *Sci China Ser D: Earth Sci*, 2008, 51: 1737–1749
 - 44 Dai J X, Gong D Y, Ni Y Y, et al. Stable carbon isotopes of coal-derived gases sourced from the Mesozoic coal measures in China. *Org Geochem*, 2014, 74: 123–142
 - 45 Li J, Li J, Li Z S, et al. Characteristics and genetic types of the Lower Paleozoic natural gas, Ordos Basin. *Mar Petrol Geol*, 2018, 89: 106–119
 - 46 Liu Q Y, Jin Z J, Meng Q Q, et al. Genetic types of natural gas and filling patterns in Daniudi gas field, Ordos Basin, China. *J Asian Earth Sci*, 2015, 107: 1–11
 - 47 Liu Q Y, Jin Z J, Li H L, et al. Geochemistry characteristics and genetic types of natural gas in central part of the Tarim Basin, NW China. *Mar Petrol Geol*, 2018, 89: 91–105
 - 48 Ni Y Y, Zhang D J, Liao F R, et al. Stable hydrogen and carbon isotopic ratios of coal-derived gases from the Turpan-Hami Basin, NW China. *Int J Coal Geol*, 2015, 152: 144–155
 - 49 Ni Y Y, Ma Q S, Ellis G S, et al. Fundamental studies on kinetic isotope effect (KIE) of hydrogen isotope fractionation in natural gas systems. *Geochim Cosmochim Acta*, 2011, 75: 2696–2707
 - 50 Qin S F, Li F, Li W, et al. Formation mechanism of tight coal-derived-gas reservoirs with medium-low abundance in Xujiahe Formation, central Sichuan Basin, China. *Mar Petrol Geol*, 2018, 89: 144–154
 - 51 Huang S P, Feng Z Q, Gu T, et al. Multiple origins of the Paleogene natural gases and effects of secondary alteration in Liaohe Basin, northeast China: Insights from the molecular and stable isotopic compositions. *Int J Coal Geol*, 2017, 172: 134–148
 - 52 Liu C L, Liu J, Sun P, et al. Geochemical features of natural gas in the Qaidam Basin, NW China. *J Petrol Sci Eng*, 2013, 110: 85–93
 - 53 Wu X Q, Liu Q Y, Zhu J H, et al. Geochemical characteristics of tight gas and gas-source correlation in the Daniudi gas field, the Ordos Basin, China. *Mar Petrol Geol*, 2017, 79: 412–425
 - 54 Hu A P, Li J, Zhang W Z, et al. Geochemical characteristics and origin of gases from the Upper, Lower Paleozoic and the Mesozoic reservoirs in the Ordos Basin, China. *Chin Sci Bull*, 2008, 51: 183–194
 - 55 Boreham C J, Edwards D S. Abundance and carbon isotopic composition of neo-pentane in Australian natural gases. *Org Geochem*, 2008, 39: 550–566
 - 56 Fuex A N. The use of stable carbon isotopes in hydrocarbon exploration. *J Geochem Explor*, 1977, 7: 155–188
 - 57 James A T. Correlation of reservoired gases using the carbon isotopic compositions of wet gas components. *AAPG Bull*, 1990, 74: 1441–1458

- 58 Stahl W J, Carey B D. Source-rock identification by isotope analyses of natural gases from fields in the Verde and Delaware Basins, West Texas. *Chem Geol*, 1975, 16: 257–267
- 59 Liu D, Zhang W Z, Kong Q F, et al. Lower Paleozoic source rocks and natural gas origins in Ordos Basin, NW China. *Petrol Explor Dev*, 2016, 45: 540–549
- 60 Feng Z Q, Liu D, Huang S P, et al. Geochemical characteristics and genesis of natural gas in the Yan'an gas field, Ordos Basin, China. *Org Geochem*, 2016, 102: 67–76
- 61 Dai J X, Zou C N, Liao S M, et al. Geochemistry of the extremely high thermal maturity Longmaxi shale gas, southern Sichuan Basin. *Org Geochem*, 2014, 74: 3–12
- 62 Dai J X, Zou C N, Dong D D, et al. Geochemical characteristics of marine and terrestrial shale gas in China. *Mar Petrol Geol*, 2017, 79: 426–438
- 63 Dai J X, Ni Y Y, Gong D Y, et al. Geochemical characteristics of gases from the largest tight sand gas field (Sulige) and shale gas field (Fuling) in China. *Mar Petrol Geol*, 2017, 79: 426–438
- 64 Feng Z Q, Liu D, Huang S P, et al. Carbon isotopic composition of shale gas in the Silurian Longmaxi Formation of the Changning area, Sichuan Basin. *Petrol Explor Dev*, 2016, 43: 769–777
- 65 Yang R, He S, Hu Q H, et al. Geochemical characteristics and origin of natural gas from Wufeng-Longmaxi shales of the Fuling gas field, Sichuan Basin (China). *Int J Coal Geol*, 2017, 171: 1–11
- 66 Zumberge J, Ferworn K, Brown S. Isotopic reversal ('rollover') in shale gases produced from the Mississippian Barnett and Fayetteville formations. *Mar Petrol Geol*, 2012, 31: 43–52
- 67 Tilley B, Muehlenbachs K. Isotope reversals and universal stages and trends of gas maturation in sealed, self-contained petroleum systems. *Chem Geol*, 2013, 339: 194–204
- 68 Milesi V, Prinzhofer A, Guyot F, et al. Contribution of siderite-water interaction for the unconventional generation of hydrocarbon gases in the Solimões Basin, North-West Brazil. *Mar Petrol Geol*, 2016, 71: 168–182
- 69 Kotarba M J, Nagao K, Karnkowski P H. Origin of gaseous hydrocarbons, noble gases, carbon dioxide and nitrogen in Carboniferous and Permian strata of the distal part of the Polish Basin: Geological and isotopic approach. *Chem Geol*, 2014, 383: 164–179
- 70 Jenden P D, Drazan D J, Kaplan I R. Mixing of thermogenic natural gases in northern Appalachian Basin. *AAPG Bull*, 1993, 77: 980–998
- 71 Vinogradov A P, Galimov E M. Isotopism of carbon and the problem of oil origin. *Geochemistry*, 1970, 3: 275–296
- 72 Xia X Y, Chen J, Braun R, et al. Isotopic reversals with respect to maturity trends due to mixing of primary and secondary products in source rocks. *Chem Geol*, 2013, 339: 205–212
- 73 Burruss R C, Laughrey C D. Carbon and hydrogen isotopic reversals in deep basin gas: Evidence for limits to the stability of hydrocarbons. *Org Geochem*, 2010, 41: 1285–1296
- 74 Zorikin L M, Starobinets I S, Stadnik E V. *Natural Gas Geochemistry of Oil Gas Bearing Basin*. Moscow: Mineral Press, 1984
- 75 Marais D J D, Donchin J H, Nehring N L, et al. Molecular carbon isotopic evidence for the origin of geothermal hydrocarbons. *Nature*, 1981, 292: 826–828
- 76 Hosgörmez H. Origin of the natural gas seep of Çirali (Chimera), Turkey: Site of the first Olympic fire. *J Asian Earth Sci*, 2007, 30: 131–141
- 77 Proskurowski G, Lilley M D, Seewald J S, et al. Abiogenic hydrocarbon production at lost city hydrothermal field. *Science*, 2008, 319: 604–607
- 78 Yuen G, Blair N, Marais D J D, et al. Carbon isotope composition of low molecular weight hydrocarbons and monocarboxylic acids from Murchison meteorite. *Nature*, 1984, 307: 252–254
- 79 Dai J X, Yang S F, Chen H L, et al. Geochemistry and occurrence of abiogenic gas accumulations in the Chinese sedimentary basin. *Org Geochem*, 2005, 36: 1664–1688
- 80 Ni Y Y, Dai J X. Geochemical characteristics of abiogenic alkane gases. *Petrol Sci*, 2009, 6: 327–338
- 81 Poreda R J, Jenden P D, Kaplan I R, et al. Mantle helium in Sacramento Basin natural gas wells. *Geochim Cosmochim Acta*, 1986, 50: 2847–2853
- 82 Mamyrin B A, Anufriev G S, Kamenskii I L, et al. Determination of the isotopic composition of atmospheric helium. *Geochem Int*, 1970, 7: 498–505
- 83 Dai J X, Ni Y Y, Qin S F, et al. Geochemical characteristics of He and CO₂ from the Ordos (cratonic) and Bohai Bay (rift) Basins in China. *Chem Geol*, 2017, 469: 192–213
- 84 White W M. *Isotopic Geochemistry*. John Wiley and Sons Ltd, Chichester, 2015. 436–438
- 85 Ni Y Y, Dai J X, Tao S Z, et al. Helium signatures of gases from the Sichuan Basin, China. *Org Geochem*, 2014, 74: 33–43

- 86 Hosgörmmez H, Etiope G, Yalçın M N. New evidence for a mixed inorganic and organic origin of the Olympic Chimaera fire (Turkey): A large onshore seepage of abiogenic gas. *Geofluids*, 2008, 8: 263–273
- 87 Dai J X, Xia X Y, Wei Y Z, et al. Carbon isotope characteristics of natural gas in the Sichuan Basin, China (in Chinese). *Petrol Geol Exper*, 2001, 23: 115–121 [戴金星, 夏新宇, 卫延召, 等. 四川盆地天然气的碳同位素特征. *石油实验地质*, 2001, 23: 115–121]
- 88 Dai J X, Song Y, Wu C L, et al. Carbon isotope characteristics of organic alkane gases in China's petroliferous basins. *J Petrol Sci Eng*, 1992, 7: 329–338
- 89 Dai J X, Song Y, Guan D S, et al. Identification of coal-derived gas (in Chinese). In: *Study on Coal-Derived Gas Geology Symposium*. Beijing: Petroleum Industry Press, 1987. 156–170 [戴金星, 宋岩, 关德师, 等. 鉴别煤成气的指标. 见: *煤成气地质研究*. 北京: 石油工业出版社, 1987. 156–170]
- 90 Dai J X, Qi H F. The relationship between $\delta^{13}\text{C}$ and R_o of coal-derived gas from China (in Chinese). *Chin Sci Bull*, 1989, 34: 690–692 [戴金星, 戚厚发. 我国煤成烃气的 $\delta^{13}\text{C}$ - R_o 关系. *科学通报*, 1989, 34: 690–692]
- 91 Shen P, Shen Q X, Wang X B, et al. Characteristics of isotopic composition of gaseous hydrocarbons and identification of coal-derived gas (in Chinese). *Sci China Ser B*, 1987, 17: 85–94 [沈平, 申歧祥, 王先彬, 等. 气态烃同位素组成特征及煤型气判别. *中国科学 B 辑*, 1987, 17: 85–94]
- 92 Galimov E M. Isotope organic geochemistry. *Org Geochem*, 2006, 37: 1200–1262
- 93 Liu W H, Xu Y C. A two-stage model of carbon isotopic fractionation in coal-gas (in Chinese). *Geochimica*, 1999, 28: 359–366 [刘文汇, 徐永昌. 煤型气碳同位素演化二阶段分馏模式及机理. *地球化学*, 1999, 28: 359–366]
- 94 Zhang S Y, Gao J J, Jiang T R. A new method of identifying natural gas types using methane and ethane carbon isotopes (in Chinese). In: *Petroleum and Natural Gas Symposium (Vol.1)*. Beijing: Geological Publishing House, 1988. 48–58 [张士亚, 郜建军, 蒋泰然. 利用甲、乙烷碳同位素判别天然气类型的一种新方法. 见: *石油与天然气地质文集 (第一集)*. 北京: 地质出版社, 1988. 48–58]
- 95 Gang W Z, Gao G, Hao S S, et al. Carbon isotope of ethane applied in the analysis of genetic types of natural gas (in Chinese). *Petrol Geol Exper*, 1997, 19: 164–167 [刚文哲, 高岗, 郝石生, 等. 论乙烷碳同位素在天然气成因类型研究中的应用. *石油实验地质*, 1997, 19: 164–167]
- 96 Wang S Q. Geochemical characteristics of Jurassic-Sinian gas in Sichuan Basin (in Chinese). *Nat Gas Ind*, 1994, 14: 1–5 [王世谦. 四川盆地侏罗系-震旦系天然气的地球化学特征. *天然气工业*, 1994, 14: 1–5]
- 97 Song Y, Xu Y C. Origin and identification of natural gases (in Chinese). *Petrol Explor Dev*, 2005, 32: 24–29 [宋岩, 徐永昌. 天然气成因类型及其鉴别. *石油勘探与开发*, 2005, 32: 24–29]
- 98 Han Z X, Li J, Gou Y X, et al. The application of methane and ethane carbon isotopes as an identification index for gas origin study (in Chinese). *Nat Gas Geosci*, 2016, 27: 665–671 [韩中喜, 李剑, 垢艳侠, 等. 甲、乙烷碳同位素用于判别天然气成因类型的讨论. *天然气地球科学*, 2016, 27: 665–671]
- 99 Hu G Y, Li J, Xie Z Y, et al. Light Hydrocarbon Geochemistry of Natural Gas (in Chinese). Beijing: Petroleum Industry Press, 2017. 1, 18–24, 93–127 [胡国艺, 李剑, 谢增业, 等. 天然气轻烃地球化学. 北京: 石油工业出版社. 2017. 1, 18–24, 93–127]
- 100 Dai J X. Identification of coal formed gas and oil type gas by light hydrocarbons (in Chinese). *Petrol Explor Dev*, 1993, 25: 26–32 [戴金星. 利用轻烃鉴别煤成气和油型气. *石油勘探与开发*, 1993, 25: 26–32]
- 101 Hu G Y, Li J, Li J, et al. Preliminary study on the origin identification of natural gas by the parameters of light hydrocarbon. *Chin Sci Bull*, 2008, 51: 131–139
- 102 Hu G Y, Yu C, Tian X. The origin of abnormally high benzene in light hydrocarbons associated with the gas from the Kuqa depression in the Tarim Basin, China. *Org Geochem*, 2014, 74: 98–105
- 103 Hu G Y, Peng W L, Yu C. Insight into the C_8 light hydrocarbon compositional differences between coal-derived and oil-associated gases. *J Nat Gas Geosci*, 2017, 2: 157–163
- 104 Hu T L, Ge B X, Zhang Y G, et al. The development and application of fingerprint parameters for hydrocarbons absorbed by source rocks and light hydrocarbons in natural gas (in Chinese). *Petrol Geol Exper*, 1990, 12: 375–394 [胡惕麟, 戈葆雄, 张义纲, 等. 源岩吸附烃和天然气轻烃指纹参数的开发和应用. *石油实验地质*, 1990, 12: 375–394]
- 105 Qin J Z, Guo S Z, Wang D L. Geochemical characteristics of Suqiao coal-formed gas field and their contrast (in Chinese). *Nat Gas Ind*, 1991, 11: 21–26 [秦建中, 郭树之, 王东良. 苏桥煤型气田地化特征及其对比. *天然气工业*, 1991, 11: 21–26]
- 106 Chen H S. New Parameters for Recognition of Gas Originated From Coal Series: Benzene and Toluene (in Chinese). Beijing: Petroleum Industry Press, 1987. 171–181 [陈海树. 含煤岩系成因天然气识别和新指标——苯和甲苯. 北京: 石油工业出版社, 1987. 171–181]
- 107 Shen P, Xu Y C, Wang X B, et al. Geochemical Characteristics of Source Rocks and Natural Gas and the Research on Gas Generation Mechanism (in Chinese). Lanzhou: Gansu Science and Technology Press, 1991. 72–122 [沈平, 徐永昌, 王先彬, 等. 气源岩和天然气地球化学特征及成气机理研究. 兰州: 甘肃科学技术出版社, 1991. 72–122]
- 108 Wang T G. Study on Geochemical Biomarkers (in Chinese). Beijing: China University of Geosciences Press, 1990. 12–23, 42–45,

- 55–65 [王铁冠. 生物标志物地球化学研究. 北京: 中国地质大学出版社, 1990. 12–23, 42–45, 55–65]
- 109 Wang T D, Cai K P. The application of biomarkers in the study of natural gas migration and gas reservoirs source rock correlation (in Chinese). *Acta Petrol Sin*, 1990, 11: 25–31 [王廷栋, 蔡开平. 生物标志物在凝析气藏天然气运移和气源对比中的应用. 石油学报, 1990, 11: 25–31]
- 110 Dai J X. Identification of various alkane gases. *Chin Sci Bull*, 1992, 35: 1246–1257
- 111 Dai J X, Gong D Y, Ni Y Y, et al. Genetic types of the alkane gases in giant gas fields with proven reserves over $1000 \times 10^8 \text{ m}^3$ in China. *Energ Explor Exploit*, 2014, 32: 1–18
- 112 Li M W, Volkman J K, Ni Y Y. Recent advances on natural gas geochemistry in Chinese sedimentary basins. *Org Geochem*, 2014, 74: 1–2
- 113 Zhai G M. *Petroleum Geology of China*. Beijing: Petroleum Industry Press, 1997: 437–459
- 114 Chen J, Wang H N. *Geochemistry (in Chinese)*. Beijing: Science Press, 2004. 250–253 [陈骏, 王鹤年. 地球化学. 北京: 科学出版社, 2004. 250–253]
- 115 Lu S F, Zhang M. *Petroleum Geochemistry (in Chinese)*. Beijing: Petroleum Industry Press, 2008. 138–161 [卢双舫, 张敏. 油气地球化学. 北京: 石油工业出版社, 2008. 138–161]
- 116 Shi B H, Qi H F, Dai J X, et al. Strengthening the pace of natural gas exploration and trying to find large gas fields (in Chinese). In: *Symposium of Natural Gas Geology*. Beijing: Petroleum Industry Press, 1989. 1–7 [石宝珩, 戚厚发, 戴金星, 等. 加强天然气勘探步伐努力寻找大中型气田. 见: 天然气地质研究论文集. 北京: 石油工业出版社, 1989. 1–7]
- 117 Dai J X, Xia X Y, Hong F, et al. Main control factors for the formation of large gas fields in China (in Chinese). *Chin Sci Bull*, 1999, 44: 481–487 [戴金星, 夏新宇, 洪峰, 等. 中国煤成大中型气田形成的主要控制因素. 科学通报, 1999, 44: 481–487]
- 118 Dai J X, Wang T B, Song Y, et al. Formation Conditions and Distribution Laws of Large Natural Gas Fields in China (in Chinese). Beijing: Geological Publishing House, 1997. 184–237 [戴金星, 王庭斌, 宋岩, 等. 中国大中型天然气田形成条件与分布规律. 北京: 地质出版社, 1997. 184–237]
- 119 Wang T B. Coal-and Gas-(Oil) Bearing Basins in China Basin (in Chinese). Beijing: Geological Publishing House, 2014. 319–332 [王庭斌. 中国含煤-含气(内)盆地. 北京: 地质出版社, 2014. 319–332]
- 120 Dai J X, Song Y, Zhang H F. Natural Gas Accumulation Belts and Zones in China (in Chinese). Beijing: Science Press, 1997. 1–6 [戴金星, 宋岩, 张厚福. 中国天然气的聚集区带. 北京: 科学出版社, 1997. 1–6]
- 121 Dai J X, He B, Sun Y X, et al. Formation of the Central-Asia coal-formed gas accumulation domain and its source rocks. *Petrol Explor Dev*, 1995, 22: 117–124
- 122 Dai J X. The Types of Coal-Formed Gas Reservoirs in China and Prospective Area of Coal-Formed Gas (in Chinese). In: *Natural Gas Exploration*. Beijing: Petroleum Industry Press, 1986. 15–31 [戴金星. 我国煤成气藏的类型和有利的煤成气远景区. 见: 天然气勘探. 北京: 石油工业出版社, 1986. 15–31]

Summary for “煤成气及鉴别理论研究进展”

Coal-derived gas theory and its discrimination

Jinxing Dai

Research Institute of Petroleum Exploration & Development, Petro China, Beijing 100083, China

E-mail: djx@petrochina.com.cn

The formation of coal-derived gas theory experienced three stages. In 1940s, a simple coal-derived gas theory was established. It was found that coal could generate gas and form reservoir, but no attraction was paid to oil generation from coal. In 1960s, it was proposed the exinite in coal had great contribution to the generation of coal-derived oil. With large proportion of exinite, it could even form a coal-derived oil field. Thus the coal-derived oil theory came into being; however, no attention was paid to the oil/gas ratio during the hydrocarbon generation process. In 1970s, the Chinese scholars found that hydrocarbon generation from coal measure was dominated by gas generation and supplemented by oil generation. Therefore, a complete coal-derived gas theory was established. The coal-derived gas theory was supported by the following evidences. (1) Pores indicative of gas generation products and traces were found in 8 kinds of coals; (2) cellulose and lignite with low H/C ratio account for 60%–80% among the original substances of woody plant in coal, which is dominated by gas generation; (3) humic kerogen is dominated by gas-prone methyl and condensed aromatic ring; (4) pyrolytic experiments on peat and anthracite get abundant gas products (346–422) m³/t, with a small amount of light oil. Therefore, a number of coal-derived gas fields were discovered in coal-bearing basins in the world. In the past, distinguishing of natural gas type is dominated by gas composition. In this study the distinguishing index was developed into three facies, i.e., gas, liquid and solid (kerogen), which broaden the distinguishing scope and index. Combined with carbon isotopes, light hydrocarbons and biomarkers, 26 indexes were proposed to distinguish the coal-derived and oil-derived gases, and a series of plots and $\delta^{13}\text{C}$ -*Ro* relationships were compiled, which greatly improve the precision and reliability of gas distinguishing. The coal-derived gas theory opened a new natural gas exploration field, which leads to the change of guidance theory of natural gas exploration from monism (oil-derived gas) to dualism (coal-derived and oil-derived gases), providing a theoretic basis for the rapid development of the Chinese natural gas industry. In 2016, the reserves of natural gas and coal-derived gas and production of natural gas and coal-derived gas increased by times of 52 and 408, 10 and 216.6, respectively compared to that before the occurrence of coal-derived gas theory in 1978, which make China from a gas-poor country into the sixth major gas-producing country in the world.

coal-derived gas, discrimination of natural gas type, carbon isotope, light hydrocarbon, large gas field

doi: 10.1360/N972018-00303