

天然气地球科学
Natural Gas Geoscience
ISSN 1672-1926, CN 62-1177/TE

《天然气地球科学》网络首发论文

题目：渤海湾盆地辽河西部凹陷浅层次生生物气的地球化学特征及成因类型
作者：肖洪，李美俊，陈践发，黄双泉，尤兵，叶丹琦
收稿日期：2025-10-27
网络首发日期：2026-03-23
引用格式：肖洪，李美俊，陈践发，黄双泉，尤兵，叶丹琦. 渤海湾盆地辽河西部凹陷浅层次生生物气的地球化学特征及成因类型[J/OL]. 天然气地球科学.
<https://link.cnki.net/urlid/62.1177.te.20260321.1531.002>



网络首发：在编辑部工作流程中，稿件从录用到出版要经历录用定稿、排版定稿、整期汇编定稿等阶段。录用定稿指内容已经确定，且通过同行评议、主编终审同意刊用的稿件。排版定稿指录用定稿按照期刊特定版式（包括网络呈现版式）排版后的稿件，可暂不确定出版年、卷、期和页码。整期汇编定稿指出版年、卷、期、页码均已确定的印刷或数字出版的整期汇编稿件。录用定稿网络首发稿件内容必须符合《出版管理条例》和《期刊出版管理规定》的有关规定；学术研究成果具有创新性、科学性和先进性，符合编辑部对刊文的录用要求，不存在学术不端行为及其他侵权行为；稿件内容应基本符合国家有关书刊编辑、出版的技术标准，正确使用和统一规范语言文字、符号、数字、外文字母、法定计量单位及地图标注等。为确保录用定稿网络首发的严肃性，录用定稿一经发布，不得修改论文题目、作者、机构名称和学术内容，只可基于编辑规范进行少量文字的修改。

出版确认：纸质期刊编辑部通过与《中国学术期刊（光盘版）》电子杂志社有限公司签约，在《中国学术期刊（网络版）》出版传播平台上创办与纸质期刊内容一致的网络版，以单篇或整期出版形式，在印刷出版之前刊发论文的录用定稿、排版定稿、整期汇编定稿。因为《中国学术期刊（网络版）》是国家新闻出版广电总局批准的网络连续型出版物（ISSN 2096-4188，CN 11-6037/Z），所以签约期刊的网络版上网络首发论文视为正式出版。

DOI: 10.11764/j.issn.1672-1926.2025.12.003; CSTR: 32270.14.j.issn.1672-1926.2025.12.003

渤海湾盆地辽河西部凹陷浅层次生生物气的地球化学特征及成因类型

肖洪¹, 李美俊¹, 陈践发¹, 黄双泉², 尤兵¹, 叶丹琦²

(1. 油气资源与工程全国重点实验室, 中国石油大学(北京), 北京 102249; 2. 中国石油辽河油田公司勘探开发研究院, 辽宁 盘锦 124010)

摘要: 辽河拗陷是渤海湾盆地的重要含油气区, 其浅层天然气类型复杂, 早期研究主要聚焦于原生生物气和热成因气, 对次生生物气的关注甚少。该研究基于西部凹陷 26 件浅层天然气样品的组分和碳同位素分析, 揭示了原油菌解气与细菌氧化气 2 类次生生物气。高升和小洼油田天然气属于原油菌解气, 是原油在厌氧环境下经产甲烷菌降解而形成的干气, 其甲烷碳同位素值介于原生生物气与热成因气之间, 二氧化碳的碳同位素值偏重, 且往往与生物降解油藏共生。兴隆台油田天然气属于细菌氧化气, 是早期气藏经喜氧细菌选择性降解而形成的干气, 其重烃碳同位素显著偏重, 丙烷含量显著降低并富集重碳同位素, 导致 C1—C4 烃类气体含量异常和碳同位素局部倒转。此外, 该研究系统对比了原油菌解气、细菌氧化气与原生生物气在形成机制、烃类与非烃组分特征及碳同位素序列等方面的异同, 指出了原油菌解气在国内非常规天然气资源勘探领域具有重要的研究价值和勘探前景。

关键词: 浅层天然气; 原油菌解气; 细菌氧化气; 次生生物气; 辽河拗陷; 渤海湾盆地

中图分类号: TE122.1 **文献标识码:** A

¹ 收稿日期: 2025-10-27; 修回日期: 2025-12-08.

基金项目: 国家自然科学基金项目(编号: 42502119, 42202134); 中国石油大学(北京)科研基金项目(编号: 2462023YJRC010)联合资助.

第一作者: 肖洪(1990-), 男, 湖南醴陵人, 博士, 讲师, 主要从事油气地球化学研究.**E-mail:** xiaohong@cup.edu.cn.

***通信作者:** 李美俊(1972-), 男, 四川重庆人, 博士, 教授, 博士生导师, 主要从事油气地球化学及油气成藏综合研究.**E-mail:** meijunli@cup.edu.cn.

0. 引言

根据热演化程度，天然气可划分为生物气、热解气和裂解气，以及介于生物气和热解气之间的生物—热催化过渡带气^[1]或亚生物气^[1]。根据母质类型，可将天然气划分为煤型气和油型气。不同类型天然气表现出不同的气体组分、碳同位素组成以及轻烃组成特征^[2-4]。研究发现，在我国一些稠油区发现，其浅层或邻区往往广泛发育伴生的天然气藏，其不属于沉积有机质在早期未成熟阶段受微生物作用所生成的原生生物气，而是在还原条件下浅层原油受厌氧细菌（产甲烷菌）降解作用而新生的一种天然气，其与生物降解稠油的形成和空间分布密切相关^[5-7]。其与传统原生生物气和生物—热催化过渡带气的气体组分和碳同位素组成存在一定差异，表现为天然气组分干、碳同位素介于生物气与热成因气之间、形成于浅层厌氧环境（<2500m）、常以原油溶解气或带油环气顶气或油藏上方气层气的形式出现^[8-9]。目前对其命名众说纷纭，常被称之为再生型生物气^[5]、原油菌解生物气^[10]、生物降解气^[11]、稠油降解气^[12-13]、原油降解气^[9]、原油菌解气^[14-17]等，暂未形成统一的专业术语。依据该类天然气的成因机理，本文认为称其为原油菌解气更为合适，其不仅指明了该类天然气形成的物质基础或作用对象为浅层原油或油藏，而且揭示了其作用机制是厌氧细菌的降解作用。

除原油菌解气之外，次生生物气还包括浅层油气次生蚀变改造型天然气^[12]。不同于原油菌解气，其是已形成的天然气藏中烃类组分被微生物选择性降解后的产物，是在氧化环境下由喜氧细菌参与的降解作用^[3]。戴金星^[2]曾指出天然气中某些组分会被氧化细菌降解而被消耗，使其含量减少且碳同位素变重^[3, 18]。同样，考虑到该类天然气的成因机理，本文认为称其为细菌氧化气更合适^[19]，其不仅指明了物质基础或作用对象是浅层天然气藏，而且揭示了作用机制是喜氧细菌的氧

化降解作用。关于细菌氧化气的研究和报道相对于原油菌解气甚少^[3,19-20]。在国外苏联的乌克兰科谢列夫斯卡地区,浅层的生物气因遭受甲烷氧化菌的氧化降解作用,使其甲烷同位素变重,从原始—70‰增至—30‰^[20]。国内渤海湾盆地大港油田 5-73 井天然气也被证实为细菌氧化气,其表现为丙烷含量小于丁烷,且丙烷碳同位素重于丁烷,是丙烷氧化菌选择性氧化降解的结果^[3]。

实际上在我国东部各含油气盆地中,与重质油藏伴生共存的原油菌解气或细菌氧化气是普遍发育的,但以往的研究和认识局限于喜氧细菌对油藏的生物降解形成稠油的作用过程,而大大忽视了厌氧细菌对油藏的降解作用以及喜氧细菌对气藏的改造作用^[12]。研究区辽河拗陷发育多层系多套不同沉积相泥岩,分布有不同有机质类型的烃源岩,使得区内油气资源类型丰富,蕴藏着不同成因类型的天然气。除了典型的原生生物气、低熟—高熟煤型气与油型气等之外^[21-24],在东部凹陷发现了原油菌解气^[15]和细菌氧化气^[19,24-25],但早期对西部凹陷的原油菌解气和细菌氧化气的报道和研究甚少^[26]。本文研究基于对西部凹陷天然气样品组分、烃类气体与二氧化碳的碳同位素等分析,揭示研究区原油菌解气和细菌改造气的烃类气体组成、非烃气体组成及其碳同位素组成等特征,并进一步对比其与原生生物气和热成因气地球化学性质的差异性,明确研究区原油菌解气和细菌氧化气的成因机制。研究结果可为次生生物气成因与成藏研究提供理论依据,对未来天然气资源潜力评价和勘探开发具有重要意义。

1. 地质背景

辽河拗陷是渤海湾含油气盆地的重要二级构造单元,是太古界—元古界基底之上发育中—新生代陆相裂谷湖盆。整体上,辽河拗陷具有南宽北窄,呈北东—南西向展布的特征,主体由西部凹陷、东部凹陷和大民屯凹陷 3 个三级负向构造

单元，以及西部凸起、中央凸起和东部凸起 3 个三级正向构造单元组成，呈现为“三凹三凸”的构造格局[图 1 (a)]^[23]。在地层组合上，辽河拗陷自上而下发育了第四系、新近系明化镇组、馆陶组和古近系东营组、沙河街组沙一段—沙四段、中生界及太古界基底[图 1 (b)]。西部凹陷作为辽河拗陷最大的生烃凹陷，主要经历了初始伸展裂隙、裂隙深陷以及走滑裂隙 3 个阶段。受郯庐断裂带造山活动的影响，研究区内地质构造复杂，发育了一系列北东向断裂，形成东陡西缓、北高南低的箕状构造格局[图 1 (c)]^[27-29]。大量研究表明，古近系沙河街组沙三段和沙四段泥页岩是 2 套主力烃源岩层，南部清水洼陷沙三段烃源岩厚可达 1200 m^[21,30]，目前已发现的油气主要分布在东营组 (Ed)、沙一段—沙二段 (E₂S₁₊₂)、沙三段 (E₂S₃) 以及太古界基底[图 1 (c)] (Ar)^[31-32]。

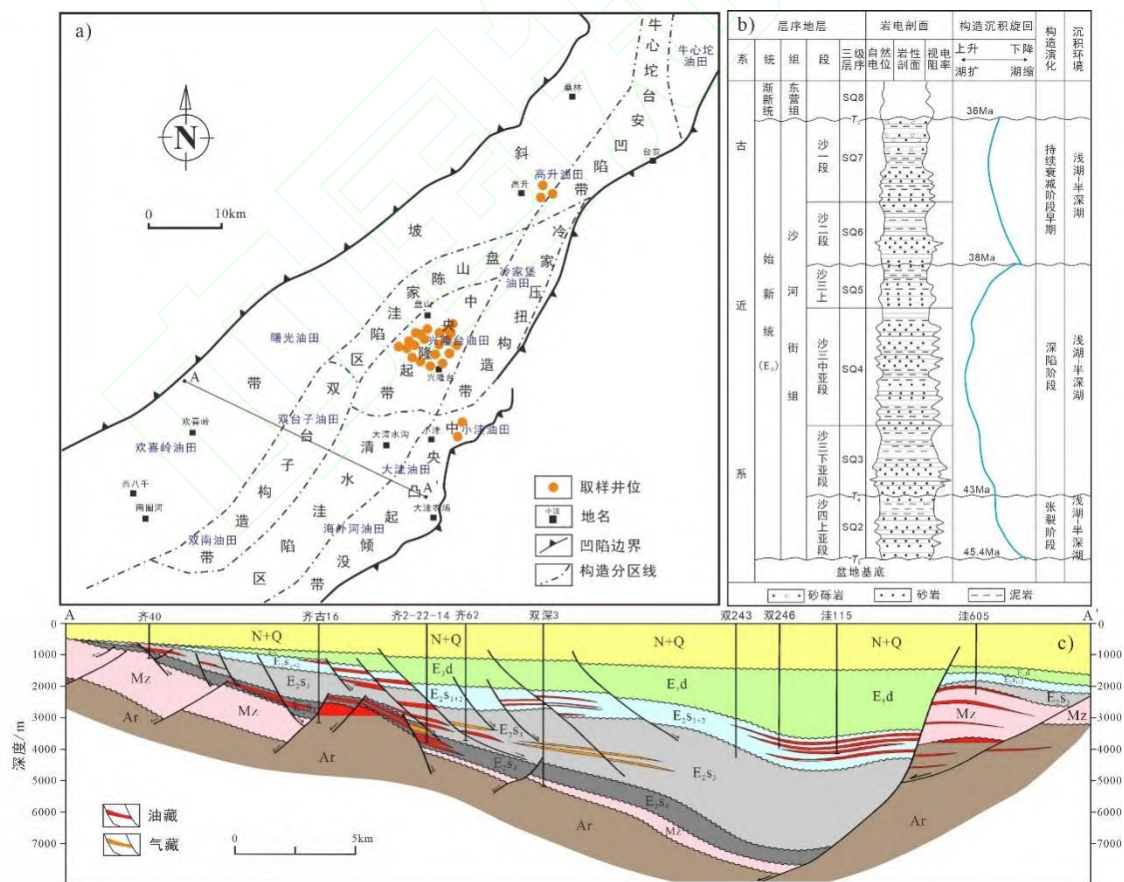


图 1 辽河拗陷西部凹陷区域构造划分 (a)、地层柱状图 (b) 和油藏剖面图 (c)^[32]

Fig.1 Structural units, sampling well (a), stratigraphic column (b) and representative reservoir profile (c) in the Western Sag of the Liaohe Depression

本文研究在辽河西部凹陷共收集了 26 件天然气样品，其取样位置如图 1 所示。总体上，本次采集的天然气样品埋深浅，均小于 1500 m，主要取自兴隆台油田的东营组储层，以及小洼油田和高升油田的沙河街组储层[图 1 (a)]。对天然气样品开展了系统的常规地球化学分析测试，包括气体组分、烃类气碳同位素、二氧化碳的碳同位素等实验测试。

2 天然气地球化学特征

2.1 天然气组分特征

辽河西部凹陷浅层天然气样品的气体组分以烃类气体占绝对优势，绝大多数样品烃类气体的含量大于 99%，均值为 98.98%，非烃气体主要为氮气 (N_2) 和二氧化碳 (CO_2)，含量极低，绝大多数小于 1.0% (表 1)。

烃类气体以甲烷为绝对主导，甲烷百分含量普遍在 84.22%~99.76%之间，大部分样品在 96%~99%之间，平均值为 97.20%，最高达 99.76%，最低为 84.22%。从干燥系数($C_1/\Sigma C_{1-5}$)来看，26 件样品均表现出极高的数值，范围为 0.962~0.999，平均值为 0.982，均属于典型的干气。 C_2 — C_5 组分含量整体较低，其中乙烷 (C_2) 含量在 0.12%~2.29%之间，平均值为 1.26%；丙烷 (C_3) 含量在 0~1.20%之间，平均值仅为 0.18%；丁烷 (C_4) 和戊烷 (C_5) 平均值分别为 0.27%和 0.08% (表 1)。总体上，重烃含量明显偏低，但 C_2 — C_3 组分随烃类分子量增加并不是严格递减，例如，兴隆台油田多数天然气样品中丁烷的百分含量超过了丙烷的百分含量，其与常规热解气随碳数增加而丰度逐渐递减的特征不一致，表明该区的天然气成因相对复杂。

非烃气体氮气 (N_2) 在天然气中占比总体较低，平均仅为 0.25%，绝大部分样品小于 0.3%，仅个别气样超过 2.0%，说明该区天然气成藏过程中氮气混入有

限，气源以烃源岩热解产气为主，而非明显受大气或其他外源氮气的影响。二氧化碳（CO₂）含量变化较大，绝大部分样品的 CO₂ 含量低于 1.0%，平均为 0.69%（表 1）。少数样品显示出 CO₂ 明显富集，如小洼油田 W60-44-44 井天然气中 CO₂ 含量为 14.54%，依据国家标准《天然气藏分类》（GB/T 26979—2011），属于高含 CO₂ 气藏，其可能与细菌活动、储层流体相互作用以及深部气体混入有关。

表 1 西部凹陷天然气组分与碳同位组成数据
Table 1 Composition and carbon isotope data of the natural gas in the Western Sag

序号	井名	区带位置	层位	气体相对百分含量%									碳同位素值‰					干燥系数
				N ₂	CO ₂	C ₁	C ₂	C ₃	C ₄	C ₅	C ₁ -C ₅	CO ₂	C ₁	C ₂	C ₃	C ₄		
1	G18	高升油田	Es3	2.22	0.24	93.50	1.30	1.20	0.80	0.40	97.20	3.2	-45.5	-34.6	-31.2	-30.4	0.96	
2	G2405	高升油田	Es3	0.36	0.24	96.19	1.02	0.96	0.66	0.32	99.15	5.5	-44.9	-34.1	-31.0	-30.2	0.97	
3	G3-4-42	高升油田	Es3	0.20	<0.01*	98.33	0.84	0.22	0.20	0.14	99.73	1.2	-45.8	-34.2	-28.8	-27.9	0.99	
4	W60-40-42	小洼油田	Es1+2	0.48	1.78	95.78	0.90	0.38	0.27	0.17	97.50	3.1	-44.2	-31.2	-22.7	/	0.98	
5	W60-44-44	小洼油田	Es1+2	/	14.54	84.22	0.58	0.19	0.16	0.10	85.25	8.9	-44.2	-31.9	-25.3	/	0.99	
6	X408	兴隆台油田	Ed	0.26	<0.01	99.52	0.18	0.02	0.03	0.00	99.75	-18.4	-51.3	-25.5	/	/	1.00	
7	X426	兴隆台油田	Ed	0.22	/	97.89	1.56	0.14	0.13	0.04	99.76	/	-52.1	-31.8	/	/	0.98	
8	X459c	兴隆台油田	Ed	0.31	<0.01	99.46	0.22	0.00	0.01	0.00	99.69	-20.8	-50.6	-27.7	/	/	1.00	
9	XQQ1	兴隆台油田	Ed	0.23	/	97.72	1.75	0.08	0.13	0.05	99.73	/	-52.4	-31.4	-19.8	-21.3	0.98	
10	XQQ8	兴隆台油田	Ed	0.21	/	97.40	1.74	0.28	0.25	0.08	99.75	/	-51.0	-30.7	-21.3	-24.0	0.98	
11	XQQ10	兴隆台油田	Ed	0.24	/	97.56	1.73	0.13	0.25	0.06	99.73	/	-51.0	-29.1	-18.2	-22.5	0.98	
12	XQQ16	兴隆台油田	Ed	0.37	<0.01	99.50	0.13	0.00	0.00	0.00	99.63	-20.3	-51.9	-34.8	/	/	1.00	
13	X9-11	兴隆台油田	Ed	0.09	0.15	97.01	2.03	0.12	0.38	0.11	99.65	/	-43.7	-26.1	-15.0	-20.4	0.97	
14	X56	兴隆台油田	Ed	0.12	/	99.76	0.12	0.00	0.00	0.00	99.88	/	-43.6	-17.4	/	/	1.00	
15	X66	兴隆台油田	Ed	0.05	0.33	96.53	2.29	0.13	0.41	0.13	99.49	/	-42.8	-26.1	-13.2	-17.4	0.97	
16	X144	兴隆台油田	Ed	0.01	<0.01	97.01	2.17	0.13	0.46	0.12	99.89	-20.4	-44.2	-26.2	-15.0	-19.8	0.97	
17	X201	兴隆台油田	Ed	0.15	0.00	97.78	1.72	0.03	0.30	0.00	99.83	/	-44.2	-26.1	-8.8	/	0.98	
18	X215	兴隆台油田	Ed	0.11	<0.01	97.37	1.85	0.12	0.38	0.10	99.82	-20.6	-43.8	-26.1	-14.8	-19.6	0.98	
19	X248c	兴隆台油田	Ed	0.15	/	98.30	1.37	0.02	0.13	0.00	99.82	/	-44.4	-25.8	-9.6	/	0.98	
20	X254c	兴隆台油田	Ed	0.12	0.16	98.64	0.74	0.02	0.31	0.01	99.72	/	-42.4	-22.1	-7.0	/	0.99	
21	X265	兴隆台油田	Ed	0.11	/	97.56	1.70	0.09	0.36	0.08	99.79	/	-43.7	-26.1	-14.6	/	0.98	
22	X281	兴隆台油田	Ed	0.09	0.34	98.42	0.75	0.04	0.30	0.03	99.54	-12.3	-43.3	-22.5	-14.5	-19.4	0.99	
23	XB3	兴隆台油田	Ed	0.11	<0.01	97.64	1.85	0.06	0.32	0.01	99.88	-21.3	-44.1	-25.9	-10.0	/	0.98	
24	XQ4	兴隆台油田	Ed	0.10	/	98.18	1.30	0.07	0.27	0.05	99.87	/	-43.2	-25.1	-13.5	/	0.98	
25	XQ11	兴隆台油田	Ed	0.10	<0.01	97.54	1.84	0.09	0.35	0.04	99.86	-21.1	-43.6	-26.0	-12.8	/	0.98	
26	XQ12	兴隆台油田	Ed	0.06	0.18	98.39	0.97	0.05	0.20	0.05	99.66	-18.3	-43.8	-25.5	-18.7	-21.0	0.99	

注：“<0.01”表示 CO₂ 含量低于仪器检出限（0.01%）；“干燥系数”为 C₁/ΣC₁₋₅；“/”表示未测或低于检出限

2.2 天然气碳同位素组成特征

天然气碳同位素组成蕴含着丰富的母质来源以及母质和产物所经历的地质、地球化学历程方面的信息,尤其作为判定天然气成因类型及其成熟度最可靠的参数,已经被广泛应用于天然气地球化学研究中。

辽河西部凹陷 26 件浅层天然气样品的碳同位素组成特征如下: 甲烷碳同位素值 ($\delta^{13}\text{C}_1$) 介于-52.4‰~-42.4‰之间, 平均值为-46.0‰, 大部分样品集中在-47‰~-43‰之间, 相较于典型的生物成因气 ($\delta^{13}\text{C}_1$ 通常小于-55‰), 甲烷碳同位素显著偏重。乙烷和丙烷的碳同位素值 ($\delta^{13}\text{C}_2$ 和 $\delta^{13}\text{C}_3$) 变化范围较大, 前者介于-34.8‰~-17.4‰之间, 平均值为-27.8‰, 后者介于-31.2‰~-7.0‰之间, 均值为-17.4‰。丁烷碳同位素值 ($\delta^{13}\text{C}_4$) 的数据较少, 但总体在-30.4‰~-17.4‰之间, 平均为-22.8‰ (表 1)。与天然气组分特征类似, 天然气碳同位素组成也并未呈现出随烃类分子量增加而碳同位素值逐渐变重的严格趋势, 多数样品表现为 $\delta^{13}\text{C}_1 < \delta^{13}\text{C}_2 < \delta^{13}\text{C}_3 > \delta^{13}\text{C}_4$, 即天然气组分碳同位素发生了倒转, 丙烷碳同位素显著变重。

二氧化碳的碳同位素值 ($\delta^{13}\text{C}_{\text{CO}_2}$) 变化范围较大, 从-21.3‰~ 8.9‰, 平均为-10.8‰。其中高升油田、小洼油田的天然气样品不仅具有二氧化碳百分含量相对较高的特征, 而且表现为重碳同位素的富集, 即 $\delta^{13}\text{C}_{\text{CO}_2}$ 值为正值; 而兴隆台油田的天然气样品不仅二氧化碳百分含量相对较低, 且 $\delta^{13}\text{C}_{\text{CO}_2}$ 值较轻, 介于-24.0‰~-17.4‰之间, 均值为-20.6‰ (表 1), 表明兴隆台油田的天然气与高升油田等天然气样品在成因上存在差异。

3. 天然气的成因类型

通常, 浅层生物气包括 3 种成因类型: 一是原生生物气, 指在成岩作用早期

原位未熟有机质被微生物降解所生成；二是原油菌解气，指油藏中原油遭受微生物降解所生成的甲烷气，其下伏往往伴生有生物降解油藏；三是细菌氧化气，指不同类型的天然气在浅层被细菌选择性氧化改造后形成，其原生气藏可以是原油伴生气、煤型气、原油裂解气等类型天然气。以上 3 种成因的天然气类型均与微生物作用密切相关。

3.1 高升与小洼油田天然气成因类型

总体上，高升地区天然气样品乙烷碳同位素值 ($\delta^{13}\text{C}_2$) 偏轻，介于 -34.6‰ ~ -34.1‰ 之间 (表 1)，属于油型气范畴。从天然气组分组成来看，其甲烷含量极高，干燥系数为 $0.96\sim 0.99$ ，属于典型干气 (表 1)。

通常，干气的成因来源主要为原生生物气、过成熟裂解气、长距离运移的天然气、早期聚集原油经产甲烷菌蚀变作用形成的次生生物气 (原油菌解气) 或早期天然气经喜氧细菌氧化降解形成的次生改造气 (细菌氧化气) 等。首先，根据高升油田天然气样品中甲烷碳同位素值为 -45.8‰ ~ -44.9‰ (表 1)，显著偏重于原生生物气 ($< -55.0\text{‰}$)^[4]，可排除原生生物气的可能。其次，甲烷的碳同位素显著轻于过成熟阶段生成的油型裂解干气 ($> -37.0\text{‰}$)^[33-34]，可排除高温裂解干气的可能。此外，辽河盆地西部凹陷面积并不大，且断裂发育复杂和横向岩性变化大，均不利于长距离运移^[19]，且运移多以断裂垂向输导为主，对组分的分馏效应不显著^[35]，可排除长距离运移成因的可能性。综合以上分析可知，高升地区干气最可能是原油经产甲烷菌蚀变作用形成的原油菌解气、或早期天然气经喜氧细菌氧化降解作用形成的细菌氧化气。

从烃类组分组成，甲烷及同系物的相对含量满足随着碳数增加而逐渐降低的规律[图 2 (a)]，且重烃碳同位素值也并未发生倒转等特征[图 2 (b)]，据此可

排除早期天然气经喜氧细菌氧化降解作用所形成次生生物气的可能^[3]，而是早期聚集的原油经产甲烷菌蚀变后生成的原油菌解气。当原油被发酵菌分解为低分子化合物时会伴生一定量的 CO₂，随后产甲烷菌利用 CO₂ 等中间产物生成甲烷，在该过程中产甲烷菌会优先利用 ¹²C 较多的 CO₂，而剩余未被利用的 CO₂ 中 ¹³C 相对富集^[13]。本次分析高升地区天然气样品中二氧化碳碳同位素组成显著偏重（1.2‰~ 5.5‰）[表 1,图 2(b)]，进一步证实其属于原油菌解气。同样，李素梅等^[35]对高升和雷家地区浅层天然气研究也揭示，其属于厌氧细菌降解古油藏成因，且生物降解作用主要发生在古油藏的油水界面附近^[36]。

从高升油田同层段（沙三段）原油饱和烃色谱图分析可知（如 G2-2-011 井和 G3-2-072 井），其饱和烃中正构烷烃受损严重（图 3），表明遭受生物降解作用的影响。综合分析可知，高升油田原油菌解气是源自埋深相对较浅的油藏，在厌氧环境下，遭受厌氧细菌（产甲烷菌）等改造作用而产生了大量的甲烷，并在上方或邻近储层聚集成藏而形成的一类次生生物气藏。

对比分析发现，小洼油田 W60-40-42 井和 W60-44-44 井天然气样品的气体组分与碳同位素组成等与高升油田样品特征一致（表 1,图 2），其也属于原油菌解气。

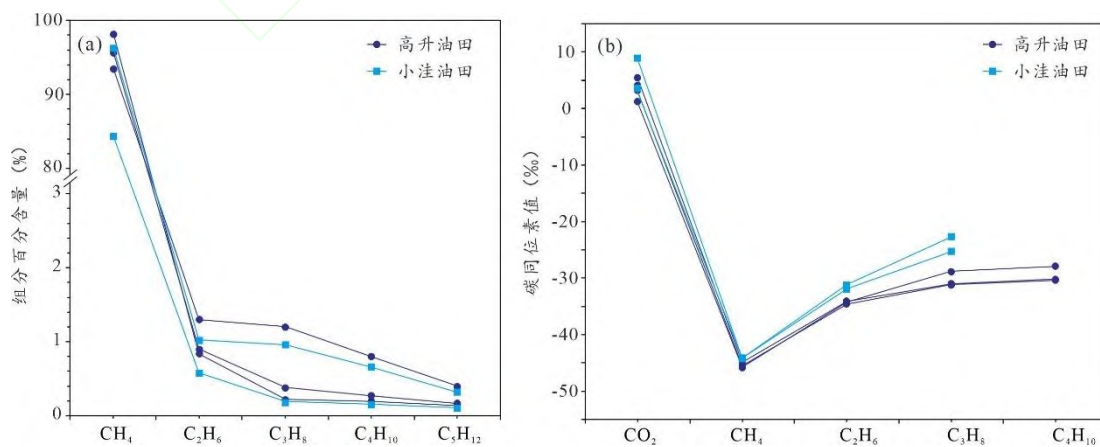


图 2 西部凹陷高升和小洼油田天然气组分(a)和碳同位素组成(b)分布特征

Fig. 2 Distribution characteristics of composition (a) and carbon isotope (b) of the natural gas from the Gaosheng

and Xiaowa oilfields of the Western Sag

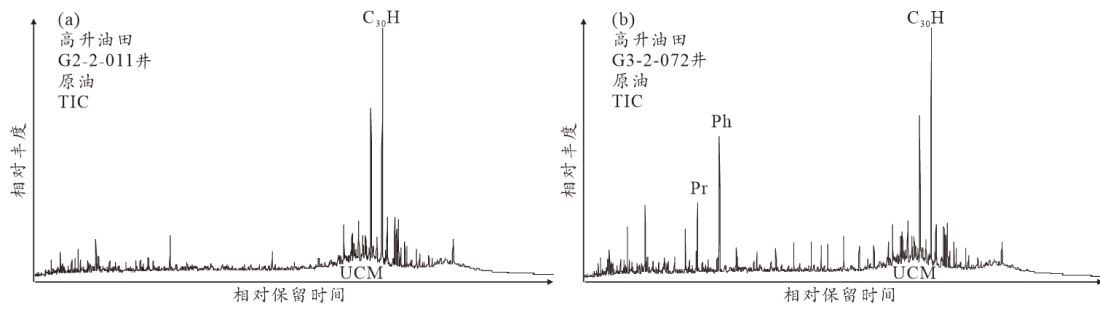


图 3 西部凹陷高升油田原油饱和烃色谱图

Fig. 3 Representative gas chromatograms of saturated hydrocarbon of the crude oils from the Gaosheng oilfield of the Western Sag

3.2 兴隆台油田天然气成因类型

本文分析的西部凹陷兴隆台油田天然气样品共 21 件，均分布于东营组，埋深浅，小于 1500m。天然气的干燥系数为 0.97~1.0，属于典型干气。

同样，关于兴隆台油田浅层东营组干气的成因：其一，根据甲烷碳同位素值范围(-52.4‰~-42.4‰)可以排除原生生物气(<-55.0‰)和过成熟裂解气(>-37.0‰~-30.0‰)的成因；其二，根据研究区地质背景可排除长距离运移的天然气的可能。因此，最可能是原油经产甲烷菌蚀变作用形成的原油菌解气、或早期天然气经喜氧细菌氧化降解作用所形成的细菌氧化气。对比分析发现，兴隆台油田天然气与高升和小洼油田的原油菌解气存在显著的差异，主要表现为乙烷、丙烷和丁烷碳同位素显著富集 ^{13}C ，明显重于高升油田的原油菌解气（表 1）。此外，兴隆台油田天然气还呈现出 C1—C4 烃类碳同位素组成局部倒转现象，即 $\delta^{13}\text{C}_1 < \delta^{13}\text{C}_2 < \delta^{13}\text{C}_3 > \delta^{13}\text{C}_4$ ，且 C1—C4 烃类组分在含量上也呈现出丙烷含量小于丁烷的特征（图 4）。戴金星^[3]指出浅层天然气中甲烷及其同系物中某些组分易遭受细菌氧化降解，从而导致该组分相对含量迅速降低，且其剩余部分的碳同位素变重，且丙烷氧化菌在浅层气藏中出现的概率较高，将导致剩余丙烷碳同位素显著偏重，且剩余丙烷的相对含量极低^[3,18]。据此可知，本文研究所分析的兴隆台

油田天然气遭受到了严重的喜氧细菌的降解改造作用，且表现出丙烷氧化菌的优势，使得丙烷被选择性优先氧化降解，与渤海湾盆地大港油田 5-73 井天然气特征和成因一致^[3]。此外，根据二氧化碳的碳同位素组成介于-21.3‰~-12.3‰之间，明显轻于高升和小洼油田的原油菌解气（1.2‰~8.9‰），也进一步表明其并非原油菌解气而是细菌氧化气。戴金星^[34]曾对准噶尔盆地浅层天然气研究也发现，其乙、丙烷碳同位素组成显著偏重（ $\delta^{13}\text{C}_2$ 值为-26‰， $\delta^{13}\text{C}_3$ 值为-26‰~-22‰），并指出其是细菌氧化降解的结果。陈践发等^[19]在辽河盆地东部凹陷桃园地区和黄金带地区，发现部分浅层天然气的乙烷和丙烷异常富集 ^{13}C ，分别介于-13.0‰~-6.6‰和-6.1‰~3.3‰之间，属于早期天然气遭受细菌氧化降解而形成。与原油菌解气的最大区别是细菌氧化气是在氧化环境下由喜氧细菌参与完成，其结果是使得残留烃组成碳同位素组成变重，如甲烷被甲烷氧化菌氧化时，轻同位素 ^{12}C 比重同位素 ^{13}C 较快的被消耗^[3, 37]。同时，微生物对储层烃类组分的改造更多的作用于重烃组分，强烈的微生物改造能使湿气组分几乎全部消失而导致气藏中的天然气为干气。

通常，可根据乙烷（>-29.0‰~-26.0‰）和丙烷（>-23.2‰）的碳同位素值判识天然气是油型气或煤型气等成因类型^[4]。但由于本文研究所分析的天然气遭受到了细菌的改造，使得乙烷等重烃碳同位素显著变重，因此乙烷和丙烷等重烃碳同位素在天然气成因类型判识方面是失效的。前人研究指出^[38-40]，微生物降解的顺序是优先降解重烃，其顺序为丙烷>正丁烷>正戊烷>异戊烷异丁烷—乙烷>甲烷，可知甲烷在地质条件下被氧化降解是相对较难的，且热力学作用下的甲烷分馏作用相对较小^[25, 41]。因此，在判断细菌氧化气的原始天然气类型时，甲烷的碳同位素组成比乙烷或丙烷更加可靠。

根据甲烷碳同位素组成,本文研究所分析的兴隆台油田的细菌氧化气可进一步划分为两小类。第一类细菌氧化气甲烷碳同位素较重,分布范围为-44.0‰~-42.0‰,其比原生生物气甲烷碳同位素值显著偏重,而比过成熟度裂解气显著偏轻,因此其原始天然气应为热解湿气。该类细菌氧化气的形成过程是:腐泥型或腐殖型有机质在成熟阶段生成的湿气,在浅层聚集成藏或先在深层成藏经后期调整到浅层(<2000 m),由于埋深浅、温度低以及地下水流体频繁活动,为喜氧细菌在古气藏的生存与发育提供了有利条件,并持续对气藏进行选择性的氧化降解,使得天然气中重烃不断被消耗,而残余重烃的碳同位素值不断变重,最终形成干气。第二类细菌氧化气甲烷碳同位素较轻,分布范围为-53.0‰~-50.0‰,介于热成因气与原生生物气的过渡区间。考虑到喜氧细菌氧化降解过程将导致气体组分的碳同位素偏重,因此原始天然气中甲烷碳同位素值轻于-53.0‰,极可能是原生生物气(<-55.0‰)。但前人研究指出^[9, 13],我国原油菌解气的甲烷碳同位素范围主要介于-65.0‰~-40.0‰之间或-75.0‰~-45.0‰之间,表明原油菌解气也符合甲烷碳同位素偏轻的特征,也可能是其原始天然气。通过对二氧化碳的碳同位素组成的进一步分析可知,其碳同位素值介于-20.8‰~-18.4‰之间(表1),表现出¹²C的富集,与厌氧细菌产甲烷过程中所伴生的二氧化碳往往显示出异常重的碳同位素不相符(表1)。综合以上分析,第二类细菌氧化气的原始天然气应以原生生物气为主。与中国云南省保山市境内怒江上猛古地段发现的气苗的甲烷碳同位素特征一致(-53.0‰),其也是原生生物气遭受细菌氧化降解后的产物^[18, 42]。

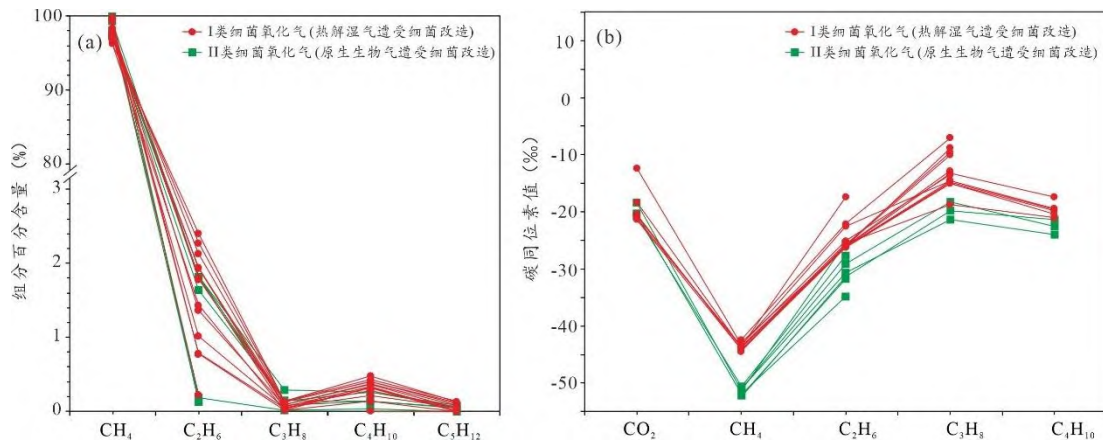


图4 西部凹陷兴隆台油田的天然气组分(a)和碳同位素组成(b)分布特征

Fig. 4 Distribution characteristics of composition (a) and carbon isotope (b) of the natural gas from the Xinglongtai oilfield of the Western Sag

3.3 西部洼陷次生生物气的判识

次生生物气是指原油或天然气成藏后,在低温—浅层条件下经历微生物再改造所生成的甲烷为主的天然气。相比源岩成烃阶段生成的原生生物气,次生生物气具有明显的成藏后再改造特征,其判识与区分对于厘清油气后期演化过程及天然气成因具有重要意义。

次生生物气的研究始于 20 世纪 50~60 年代,随着油藏中生物降解研究的深入, BERNARD 等^[42]首次提出了 $\delta^{13}\text{C}_1\text{—C}_1/(\text{C}_2+\text{C}_3)$ 判识图版,奠定了微生物气与热成因气区分的基础,但该图版并未明确次生生物气的判识依据^[43]。直到 2011 年, MILKOV 等^[43]基于大量油气藏中天然气的降解特征,首次建立了次生生物气的判识图版,包括 $\delta\text{D}_1\text{—}\delta^{13}\text{C}_1$ 、 $\delta^{13}\text{C}_1\text{—}\delta^{13}\text{C}_{\text{CO}_2}$ 、 $\delta^{13}\text{C}_{\text{CO}_2}\text{—C}_1/(\text{C}_2+\text{C}_3)$ 以及 $\delta^{13}\text{C}_1\text{—C}_1/(\text{C}_2+\text{C}_3)$ 等。近年来, MILKOV 等^[44-45]基于大规模全球天然气数据库对判识图版进行了系统修订,形成了较为完善的次生生物气识别体系,逐渐形成集烃类组分、非烃组分、稳定碳同位素和稳定氢同位素等于一体的综合判识方法^[45-46]。从 [图 5(a),图 5(b)] 可以看出,次生生物气的 $\delta^{13}\text{C}_1$ 值介于原生生物气与高熟热成因气之间,细菌氧化气的 $\delta^{13}\text{C}_2$ 值比原油菌解气的显著偏重,其主要原因是前者在

形成过程中 C₂+烃类会优先遭受微生物降解，使得其残留 C₂+烃类的碳同位素组成变重。[图 5(c),图 5(d)] 是由 Bernard 图版所改进的次生生物气判识图版，总体上次生生物气甲烷极为富集，C₁/(C₂+C₃)值大于 1000，干燥系数高，其原因是微生物作用导致重烃持续耗竭而加剧甲烷浓度程度。原油菌解气与第二类由热解湿气改造的细菌氧化气的 δ¹³C₁ 值相近，主体介于-43.0‰~-45.0‰之间，而第一类由原生生物气改造的细菌氧化气的碳同位素显著偏轻，这是由于初始甲烷碳同位素值所决定的，因为原生生物气的碳同位素值较热解湿气和原油都要轻。综上图版进一步证实，本次所分析的辽河盆地西部凹陷浅部的天然气以次生生物气为主，是原油或天然气成藏后受到微生物改造生成。

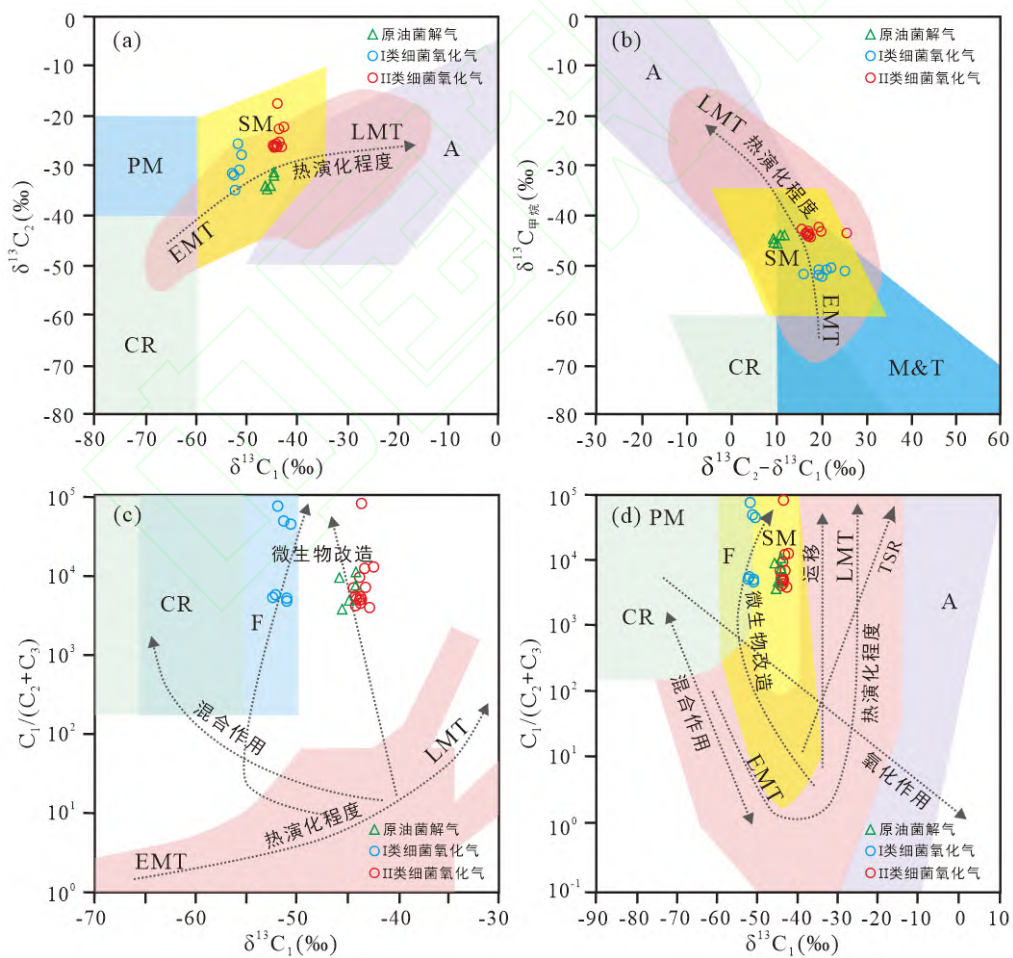


图 5 西部凹陷次生生物气综合判识图^[42-45]

Fig. 5 Genetic diagram for the secondary microbial gas from the Western Sag^[42-45]

(a) δ¹³C₁ 与 δ¹³C₂ 关系图; (b) δ¹³C₂-δ¹³C₁ 与 δ¹³C_{甲烷} 关系图; (c)和(d) δ¹³C₁ 与 C₁/(C₂+C₃) 关系图

注：SM-次生生物气；PM-原生生物气；CR-二氧化碳还原机制；F-甲基发酵机制；A-非生物成因；EMT-低成熟度；LMT-高成熟度；TSR-硫酸盐热化学还原作用

4 次生生物气的判识标志与勘探潜力

4.1 次生生物气的判识标志

原生生物气、原油菌解气、细菌氧化气 3 种生物气虽均为干气，但在气体组分和碳同位素等方面存在明显的差异（表 2）^[3-5, 12-13, 18-19]。

原生生物气是指有机质在未熟阶段经厌氧细菌群体发酵分解并合成的甲烷气。其主要特征如下（表 2）：（1）埋深很浅，多数小于 2000 m；例如柴达木盆地三湖地区第四系生物气^[47]；（2）干燥系数极大（ >0.99 ），几乎均为甲烷；（3）甲烷的碳同位素极富集 ^{12}C ，小于 -55.0% ；（4）烃类碳同位素表现为正碳同位素序列；（5）与油藏无共生关系。我国典型的原生生物气藏主要分布在柴达木盆地三湖地区，例如涩北 1、涩北 2 和台南、台吉乃尔等多个生物气田^[48]。

第 I 类次生生物气为原油菌解气，其原油被厌氧细菌降解而形成的甲烷气。其主要特征如下（表 2）：（1）埋深很浅，多数小于 2000 m；例如陆梁油气田该类气藏埋深在 1600 m 以内^[14]和本文研究辽河拗陷西部凹陷高升油田和小洼—大洼油田气藏埋深均在 1500 m 以内，油藏温度低于 80°C ，有效保障了细菌的活性；（2）其作用主体是产甲烷菌，物质基础是原油，而并非是复杂的有机质体；（3）环境体系是厌氧环境且地层水系统封闭性较好；（4）由于碳同位素分馏效应，原油发酵分解过程和 CO_2 还原成甲烷的过程均会导致 CO_2 碳同位素偏重；（5）甲烷的碳同位素介于原生生物气与热成因气之间（ $-55.0\% \sim -40.0\%$ ）；（6）烃类碳同位素表现为正碳同位素序列；（7）与生物降解油藏共生，往往以油藏的溶解气、气顶气、油环气或是油藏上方气层气形成存在^[14]。我国典型的原油菌解气藏主要分布在松辽盆地西斜坡区^[12, 49]、准噶尔盆地西北缘^[14]以及本次研究

的辽河西部凹陷高升油田和小洼大洼油田等。

第 II 类次生生物气为细菌氧化气，天然气受到氧化、水洗、喜氧细菌降解后残留下来的次生天然气。其主要特征如下（表 2）：（1）埋深很浅，多数小于 2000 m；例如辽河拗陷东部凹陷桃园地区天然气藏埋深为 1200~1400 m^[19]和本次研究的西部凹陷兴隆台油田东营组气藏埋深在 1500 m 以内，油藏温度低于 80°C，有效保障了细菌的活性；（2）其作用主体是喜氧细菌，物质基础是天然气，而并非原油和复杂的有机质体，与原油菌解气和原生生物气完全不同；（3）环境体系是氧化环境且地层水系统开放，断裂发育带是有利区带，有利于地层水循环，携带氧气与营养物质；（4）甲烷碳同位素在一定程度上取决于原始天然气碳同位素组成；（5）重烃的碳同位素显著偏重；（6）烃类碳同位素表现为局部倒转，尤其以丙烷偏重为特征，表现为 $\delta^{13}\text{C}_1 < \delta^{13}\text{C}_2 < \delta^{13}\text{C}_3 > \delta^{13}\text{C}_4$ ；（7）与油藏无共生关系。关于细菌氧化气的研究和实例相对较少，我国典型的细菌氧化气藏分布渤海湾盆地大港油田 5-73 井^[3]、辽河拗陷东部凹陷桃园地区^[19]以及本次研究的辽河拗陷西部凹陷兴隆台油田东营组。

虽前人研究指出^[5, 12]，细菌氧化气与原油菌解气都属于次生生物气，其分布都与生物降解稠油有密切的关系，几乎都是和稠油油藏共生。但作者认为，原油菌解气毫无疑问是与稠油油藏之间存在成因上的直接联系，但细菌氧化气与稠油油藏之间并无成因联系。从细菌氧化气的成因机制来看，其属于早期天然气成藏之后，在浅埋、断裂沟通、地层水活动、喜氧细菌发育等有利条件下，早期气藏遭受喜氧细菌的选择性氧化降解而形成，其并非源自原油的降解形成，因此其与油藏分布无直接关联。然而，前人之所以观察到细菌氧化气藏与稠油油藏共生的现象，作者认为是因为其研究实例中气藏和油藏均埋藏较浅，使得二者往往会同

时遭受氧化降解改造。但从根本上而言，生物降解稠油油藏不是细菌氧化气藏形成的必要条件，二者无成因上的联系。

表 2 原生与次生生物气的成因机制及地球化学特征对比

Table 2 Comparison of the genesis mechanisms and geochemical characteristics of primary and secondary biogenic gases

对比内容	原生生物气	次生生物气 I: 原油菌解气	次生生物气 II: 细菌氧化气
形成机制	有机质在未熟阶段经厌氧细菌群体发酵分解并合成的甲烷气	原油被厌氧细菌(产甲烷菌)降解而形成的甲烷气	天然气受到氧化、水洗、喜氧细菌降解后残留下来的天然气
物质基础	有机质	原油	天然气
深度温度	浅层<1000 m, 小于 80 °C	浅层<2000 m, 小于 80 °C	浅层<2000 m, 小于 80 °C
环境条件	厌氧条件	厌氧条件, 地层水系统封闭	氧化条件, 地层水系统开放
干燥系数	>0.99	>0.95	>0.95
天然气类型	干气	干气	干气
非烃组分	含部分 CO ₂ 和 N ₂	含较高 N ₂ 和 CO ₂ , 且 CO ₂ 碳同位素偏重	含少量 CO ₂ 和 N ₂
重烃特征	无或微量重烃, 含量<0.2%	少量重烃, 含量<1.0%	重烃含量低, 但重烃碳同位素显著偏重
甲烷碳同位素	δ ¹³ C ₁ : <-55.0‰	δ ¹³ C ₁ : -55.0‰~-40.0‰	取决于原始天然气甲烷碳同位素值
碳同位素序列	正碳序列: δ ¹³ C ₁ <δ ¹³ C ₂ <δ ¹³ C ₃ <δ ¹³ C ₄	正碳序列: δ ¹³ C ₁ <δ ¹³ C ₂ <δ ¹³ C ₃ <δ ¹³ C ₄	局部倒转: δ ¹³ C ₁ <δ ¹³ C ₂ <δ ¹³ C ₃ >δ ¹³ C ₄
与油藏关系	无直接关系	与生物降解油藏共生	无直接关系
地区实例	柴达木盆地三湖地区	松辽盆地西斜坡区、准噶尔盆地西北缘、辽河拗陷西部凹陷高升油田和小洼—大洼油田	大港油田 5-73 井、辽河拗陷东部凹陷桃园地区、辽河拗陷西部凹陷兴隆台油田东营组

4.2 次生生物气的勘探潜力

值得注意的是，与喜氧细菌对原油的单一破坏作用不同，厌氧细菌（产甲烷菌）对原油的降解既有破坏性的一面，又有建设性的一面，即它会使原油性质变差，又能再生成原油菌解气次生生物气藏^[12]。在我国含油气盆地中，由微生物降解原油产生的甲烷气可能有巨大勘探潜力^[9]。

在辽河拗陷生物降解原油分布面积广，仅高升油田的原油菌解气地质储量近 $40 \times 10^8 \text{ m}^3$ ，在未来天然气资源的勘探中应当重视浅层原油菌解气藏的勘探。在松辽盆地西斜坡带已发现了阿拉新气田、二站气田、平洋气田以及长垣及其南部地区等原油菌解气田^[5, 7, 10, 12, 49-50]，其总的已探明的原油菌解气地质储量超过了 $300 \times 10^8 \text{ m}^3$ ^[13]。此外，在准噶尔盆地西北缘浅层^[11, 14, 17]也聚集了大量的原油菌解气，其储量预计为 $1000 \times 10^8 \text{ m}^3$ ^[13]。

传统的观点认为甲烷气只能古菌通过乙酸发酵、CO₂还原、甲基裂解和氧甲基转化等4种方式产生,也就是说产甲烷古菌不可以直接利用复杂有机物而生成甲烷。2022年,农业农村部沼气科学研究所能源微生物创新团队在国际顶尖学术期刊 *Nature* 上发表研究成果^[51],发现一种新型产甲烷古菌可直接降解复杂有机物并生成甲烷,突破了产甲烷过程必须依赖多种微生物协同作用的传统认知。该研究成果为地下枯竭油藏或难以开发利用的稠油油藏的生物气化开采奠定了科学基础,通过产甲烷古菌作用将稠油或不可动油等转化为甲烷,进行天然气开采,这对我们国家的能源革命、能源战略和能源安全非常有价值。

稠油是全球石油资源的重要部分,其资源量是常规石油的十倍以上^[52],我国稠油资源也很丰富,在松辽、辽河、大港、胜利、南襄、江汉、柴达木、准噶尔、塔里木等地区都有发现,约 250×10^8 t, 占我国石油总资源量的 25%~30%, 累计探明稠油储量近 50×10^8 t, 预计我国稠油资源量可达 300×10^8 t^[9, 53-54]。成都沼气所对取自辽河油田的稠油开展了系统的厌氧细菌降解实验,结果测出1吨原油完全菌解可生成 $162.70 \sim 176.75$ m³ 的原油菌解气^[5]。吴井新等^[9]通过对准噶尔盆地阿拉新气田原油菌解气进行了定量计算,提出每吨原油完全菌解可产生天然气量为 600 m³, 并计算了松辽盆地阿拉新气田 252.63×10^4 t 原油被完全后菌解产生原油菌解气为 15.16×10^8 m³^[10]。据此可知,1吨稠油被产甲烷菌完全菌解可以产生约 163~600 m³ 天然气。根据我国稠油资源量可达 300×10^8 t, 若可利用新型产甲烷古菌进行完全菌解,可计算出原油菌解气的资源潜力为 $(4.9 \sim 18.0) \times 10^{12}$ m³。

5. 结论

(1) 辽河西部凹陷浅层天然气主要包括原油菌解气与细菌氧化气2类次生生物气,前者是原油在厌氧环境下经产甲烷菌降解而形成,后者则是浅层气藏经

喜氧细菌选择性氧化改造而形成。

(2) 高升和小洼油田浅层天然气属于原油菌解气，干燥系数为 0.96~0.99，为典型干气。其特征为甲烷碳同位素值 ($-45.8‰\sim-44.2‰$) 介于原生生物气与热成因气之间，二氧化碳含量较高且碳同位素明显偏重 ($1.2‰\sim 8.9‰$)，常与生物降解油藏共生。

(3) 兴隆台油田浅层天然气属于细菌氧化气，为典型的干气。其特征为 C_2+ 重烃碳同位素显著偏重，尤其是丙烷被消耗而导致其含量显著降低并富集重碳同位素，且烃类碳同位素序列出现局部倒转 ($\delta^{13}C_1 < \delta^{13}C_2 < \delta^{13}C_3 > \delta^{13}C_4$)，揭示了丙烷氧化菌的选择性降解作用。根据兴隆台油田细菌氧化气的原始天然气类型，可进一步将其划分为两小类，第 I 类为热解湿气氧化降解形成，第 II 类为原生生物气氧化降解形成。

(4) 系统总结了原生生物气、原油菌解气和细菌氧化气在形成机制、烃类与非烃组分、碳同位素序列及生物作用环境等方面的差异，厘定了三者的地质-地球化学判识标志。

参考文献 (References)

- [1] 徐永昌, 沈平, 刘文汇, 等. 一种新的天然气成因类型——生物—热催化过渡带气[J]. 中国科学(B 辑), 1990, 9: 975-980.
- XU Y C, SHEN P, LIU W H, et al. A new natural-gas genesis type — the bio-thermocatalytic transition-zone gas[J]. Science China (B): Earth Sciences, 1990, 9: 975-980.
- [2] 戴金星. 各类天然气的成因鉴别[J]. 中国海上油气, 1992, 6(1): 11-19.
- DAI J X. Identification of various genetic natural gases [J]. China Offshore Oil and Gas, 1992, 6(1): 11-19.
- [3] 戴金星. 天然气碳氢同位素特征和各类天然气鉴别[J]. 天然气地球科学, 1993, 2-3: 1-40.
- DAI J X. Hydrocarbon isotopic characteristics of natural gas and identification of vvarious natural gases [J]. Natural Gas Geoscience, 1993, 2-3: 1-40.
- [4] 宋岩, 徐永昌. 天然气成因类型及其鉴别[J]. 石油勘探与开发, 2005, 32(4): 24-29.
- SONG Y, XU Y C. Origin and identification of natural gas [J]. Petroleum Exploration and Development, 2005, 32(4): 24-29.
- [5] 李赞豪. 具有广阔勘探前景的一种新型浅层天然气—油层、煤层厌氧菌解再生生物气[J]. 石油实验地质, 1994, 16(3): 220-229.
- LI Z H. A new type of shallow natural gas with broad exploration prospect—the regenerated biogenic gas from oil reservoir and coal seams by the degradation of anaerobic bacteria [J]. Petroleum Geology and Experimental, 1994, 16(3): 220-229
- [6] 李赞豪, 李季, 向龙斌, 等. 原油的厌氧细菌降解作用及其产物特征[J]. 石油与天然气地质, 1998, 19(1): 31-36.
- LI Z H, LI J, XIANG L B, et al. Degradation of anaerobic bacteria in crude oil and it's product property [J]. Oil and Gas Geology, 1998, 19(1): 31-36.

- [7] 李永康, 冯子辉. 松辽盆地北部天然气有机地球化学特征及成因探讨 [A]. 全国第五届有机地球化学学术讨论会论文集[C]. 广州: 江苏科学技术出版社, 1994.
- LI Y K, FENG Z H. Organic geochemical characteristics and genesis of natural gas in the northern Songliao Basin [A]. Proceedings of the 5th National Conference on Organic Geochemistry [C]. Guangzhou: Jiangsu Science and Technology Press, 1994.
- [8] LARTER S R, DI PRIMIO R. Effect of biodegradation on oil and gas field PVT properties and the origin of oil rimmed gas accumulations [J]. *Organic Geochemistry*, 2005, 36: 299–310.
- [9] 王政军, 朱光有, 王政国, 等. 原油降解气的形成条件及其特征[J]. *天然气工业*, 2008, 28(11): 29–33+134–135.
- WANG Z J, ZHU G Y, WANG Z G, et al. Characteristics of oil-biodegradation gas and their discriminant index system [J]. *Natural Gas Industry*, 2008, 28(11): 29–33+134–135.
- [10] 吴井新, 刘炳勤, 王贵才. 天然气的定量计算及成因类型分析[J]. *大庆石油地质与开发*, 1996, 15(02): 1–4+75.
- WU J X, LIU B Q, WANG G C. Quantitative calculation and genetic type analysis of natural gas [J]. *Petroleum Geology and Oilfield Development in Daqing*, 1996, 15(2): 1–4+75.
- [11] 李二庭, 靳军, 王剑, 等. 准噶尔盆地沙湾凹陷周缘中、浅层天然气地球化学特征及成因[J]. *石油与天然气地质*, 2022, 43(1): 175–185.
- LI E T, JIN J, WANG J, et al. Geochemical characteristics and genesis of mid-to-shallow layer natural gas on the periphery of Shawan Sag, Junggar Basin [J]. *Oil and Gas Geology*, 2022, 43(1): 175–185.
- [12] 李先奇, 张水昌, 朱光有, 等. 中国生物成因气的类型划分与研究方向[J]. *天然气地球科学*, 2005, 16(4): 477–484.

LI X Q, ZHANG S C, ZHU G Y, et al. Types and research direction of biogenic gas in China [J]. *Natural Gas Geoscience*, 2005,16(4):477-484.

- [13] 朱光有, 张水昌, 赵文智, 等. 中国稠油区浅层天然气地球化学特征与成因机制[J]. *中国科学(D 辑:地球科学)*, 2007, 37(S2): 80-89.

ZHU G Y, ZHANG S C, ZHAO W Z, et al. Formation mechanism and geochemical characteristics of shallow natural gas in heavy oil province, China [J]. *Science China (Series D: Earth Sciences)*, 2007, 37(S2): 80-89.

- [14] 李连民, 陈世加, 王绪龙, 等. 准噶尔盆地陆梁油气田白垩系天然气的成因及其地质意义[J]. *天然气地球科学*, 2004, 15(1): 75-78.

LI L M, CHEN S J, WANG X L, et al. Cretaceous gas genesis of Luliang oil field and geological significance in Zhungaer Basin [J]. *Natural Gas Geoscience*, 2004, 15(1): 75-78.

- [15] 杨鑫, 郑建京, 王晓锋, 等. 辽河坳陷西部凹陷天然气成因类型与成藏模式[J]. *天然气地球科学*, 2011, 22(6): 1015-1020.

YANG X, ZHENG J J, WANG X F, et al. Origin of natural gas and gas filling pattern in West Sag, Liaoh Depression [J]. *Natural Gas Geoscience*, 2011, 22(6): 1015-1020.

- [16] 王卓卓, 施立志, 张永生. 松辽盆地北部大庆长垣浅层气成藏特征分析[J]. *天然气地球科学*, 2014, 25(9): 1350-1357.

WANG Z Z, SHI L Z, ZHANG Y S. Accumulation characteristics of shallow natural gas in Daqing placanticline in the northern Songliao Baisn [J]. *Natural Gas Geoscience*, 2014, 25(09): 1350-1357.

- [17] 路俊刚, 王力, 陈世加, 等. 准噶尔盆地三台油气田原油菌解气特征及成因[J]. *石油勘探与开发*, 2015, 42(4): 425-433.

LU J G, WANG L, CHEN S J. Features and origin of oil degraded gas of Santai field in Junggar Basin, NW

China [J]. *Petroleum Exploration and Development*, 2015, 42(04): 425–433.

- [18] 戴金星, 倪云燕, 李剑, 等. 塔里木盆地和准噶尔盆地烷烃气碳同位素类型及其意义[J]. *新疆石油地质*, 2008, 29(4): 403–410.

DAI J X, NI Y Y, LI J, et al. Carbon Isotope Types and Significances of Alkane Gases from Junggar Basin and Tarim Basin [J]. *Xinjiang Petroleum Geology*, 2008, 29(04): 403–410.

- [19] 陈践发, 陈振岩, 季东民, 等. 辽河盆地天然气中重烃异常富集重碳同位素的成因探讨[J]. *沉积学报*, 1998, 16(2): 5-8.

CHEN J F, CHEN Z Y, JI D M, et al. Discussion about the isotopically heavy ethane and propane in natural gases from Liaohe Basin [J]. *Acta Sedimentologica Sinica*, 1998, 16(2): 5-8.

- [20] Faber E, Stahl W J. Analytical procedure and results of an isotope geochemical surface survey in area of the British North Sea [C]// BROOKS J.. *Petroleum Geochemistry and Exploration of Europe*. Oxford: Blackwell Scientific, 1983.

- [21] 王延山, 胡英杰, 黄双泉, 等. 渤海湾盆地辽河坳陷天然气地质条件、资源潜力及勘探方向[J]. *天然气地球科学*, 2018, 29(10): 1422-1432.

WANG Y S, HU Y J, HUANG S Q, et al. Geological conditions, potential and exploration direction of natural gas in Liaohe Depression, Bohai Bay Basin [J]. *Natural Gas Geoscience*, 2018, 29(10): 1422-1432.

- [22] 杨思博, 李美俊, 王延山, 等. 断陷湖盆天然气成藏生-运-聚动态模拟—以渤海湾盆地辽河坳陷为例[J]. *天然气工业*, 2023, 43(9): 73-84.

YANG S B, LI M J, WANG Y S, et al. Generation-migration-accumulation dynamic simulation of natural gas accumulation in rift lake basins: A case study on the Liaohe Depression in the Bohai Bay Basin [J]. *Natural Gas Industry*, 2023, 43(9): 73–84.

- [23] 胡英杰, 刘兴周, 黄双泉, 等. 辽河拗陷滩海东部地区天然气地球化学特征及有机热成因-无机成因双源模式[J]. 海相油气地质, 2024, 29(1): 81-89.
- HU Y J, LIU X Z, HUANG S Q, et al. Geochemical characteristics of natural gas and dual-source pattern of thermogenic gas and inorganic gas in the eastern offshore of Liaohe Depression [J]. Marine Origin Petroleum Geology, 2024, 29(1): 81-89.
- [24] 陈星州, 郭强, 张斌, 等. 辽河拗陷东部凹陷煤系成因生物气特征及勘探突破[J]. 中国石油勘探, 2024, 29(1): 76-91.
- CHEN X Z, GUO Q, ZHANG B, et al. Characteristics and exploration breakthrough of coal measure genetic biogas in Eastern Sag of Liaohe Depression [J]. China Petroleum Exploration, 2024, 29(1): 76-91.
- [25] 李孝甫, 王晓锋, 郑建京, 等. 辽河拗陷东部凹陷低熟气地球化学特征[J]. 天然气地球科学, 2015, 26(7): 1365-1375.
- LI X F, WANG X F, ZHENG J J, et al. Geochemistry of low maturity gases from the Eastern Sag of Liaohe Depression [J]. Natural Gas Geoscience, 2015, 26(7): 1365-1375.
- [26] 高岗, 黄志龙, 刘宝鸿, 等. 辽河探区西部凹陷天然气特征与分布模式[J]. 中国石油勘探, 2011, 16(1): 41-49.
- GAO G, HUANG Z L, LIU B J, et al. Natural gas occurrence and distribution pattern of Western Sag of Liaohe exploration area [J]. China Petroleum Exploration, 2011, 16(1): 41-49.
- [27] 周旭红, 李军, 王延山, 等. 辽河拗陷陆上深层天然气勘探潜力研究[J]. 岩性油气藏, 2011, 23(3): 23-28.
- ZHOU X H, LI J, WANG Y S, et al. Study on exploration potential of deep natural gas in Liaohe Depression [J]. Lithologic Reservoirs, 2011, 23(3): 23-28.

- [28] 漆家福, 李晓光, 于福生, 等. 辽河西部凹陷新生代构造变形及“郯庐断裂带”的表现[J]. 中国科学 (D 辑: 地球科学), 2013, 43(8): 1324–1337.
- QI J F, LI X G, YU F S, et al. Cenozoic structural deformation and expression of the “Tan-Lu Fault Zone” in the West Sag of the Liaohe Depression, Bohaiwan basin province, China [J]. Science China: Earth Sciences, 2013, 43(8): 1324–1337.
- [29] 慕德梁, 孟卫工, 李成, 等. 断陷盆地陡坡带构造样式与油气聚集——以渤海湾盆地辽河坳陷西部凹陷陡坡带为例[J]. 石油与天然气地质, 2009, 30(5): 635–642.
- MU D L, MENG W G, LI C, et al. Structural style and hydrocarbon accumulation in the steep slope zone of faulted basin an example from the western sag of the Liaohe Depression the Bohai Bay Basin [J]. Oil and Gas Geology, 2009, 30(5): 635–642.
- [30] YANG S B, LI M J, XIAO H, et al. Prediction and quantification of effective gas source rocks in a lacustrine basin: Western Depression in the Liaohe Sub-basin [J]. Petroleum Science, 2024, 21(4): 2218–2239.
- [31] YANG S B, LI M J, WANG Y S, et al. Origin, migration, and characterization of gas in the Xinglongtai Area, Liaohe Subbasin (Northeast China): Insight from Geochemical Evidence and Basin Modeling [J]. Energies, 2023, 16: 6429.
- [32] 李素梅, 刘佳, 马学峰, 等. 渤海湾盆地辽河坳陷西部凹陷全油气系统特征与勘探潜力[J]. 石油与天然气地质, 2025, 46(4): 1-17.
- LI S M, LIU J, MA X F, et al. Characteristics and exploration potential of the whole petroleum system in the western Sag, Liaohe Depression, Bohai Bay Basin [J]. Oil and Gas Geology, 2025, 46(4): 1-17.
- [33] STAHL W J, CAREY JR B D. Source-rock identification by isotope analyses of natural gases from fields in the Val Verde and Delaware basins, west Texas[J]. Chemical Geology, 1975, 16(4): 257-267.
- [34] 戴金星. 各类烷烃气的鉴别[J]. 中国科学(B 辑), 1992, (2): 185-193.
- DAI J X. Identification of various types of alkane gases [J]. Science in China (Series B), 1992(2): 185-193 中

国科学(B辑), 1992, (2): 185-193.

- [35] XIA X Y, TANG T C. Isotope fractionation of methane during natural gas flow with coupled diffusion and adsorption/desorption[J]. *Geochimica Et Cosmochimica Acta*, 2012, 77: 489–503.
- [36] 李素梅, 庞雄奇, 高先志, 等. 辽河西部凹陷稠油成因机制. 中国科学 (D辑: 地球科学), 2008, 38(S1): 138–149.
- LI S M, PANG X Q, GAO X Z, et al. Genetic mechanism of heavy oil in West Liaohe Depression [J]. *Science in China (Series D: Earth Sciences)*, 2008, 38(S1): 138-149
- [37] STAHL W. Carbon isotope fractionations in natural gases[J]. *Nature*, 1974, 251, 134–135.
- [38] BOREHAM C J, HOPE J M, HARTUNG-KAGI B. Understanding source, distribution and preservation of Australian natural gas: A geochemical perspective [J]. *APPEA Journal*, 2001, 41(1): 523–547.
- [39] JAMES A T, BURNS B J. Microbial alteration of subsurface natural gas accumulations [J]. *AAPG Bulletin*, 1984, 68(8): 957–960.
- [40] HEAD I M, JONES D M, LARTER S R. Biological activity in the deep subsurface and the origin of heavy oil [J]. *Nature*, 2003, 426(6964): 344–352.
- [41] MICHAEL J W. Carbon and hydrogen isotope systematics of bacterial formation and oxidation of methane [J]. *Chemical Geology*, 1999, 161: 291–314.
- [42] 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 [J]. *Organic Geochemistry*, 2004, 35(4):405–411.
- [43] BERNARD B B, BROOKS J M, SACKETT W M. Natural gas seepage in the Gulf of Mexico [J]. *Earth and Planetary Science Letters*, 1976, 31: 48-54.
- [44] MILKOV A V. Worldwide distribution and significance of secondary microbial methane formed during

- petroleum biodegradation in conventional reservoirs [J]. *Organic Geochemistry*, 2011, 42: 184–207.
- [45] MILKOV A V, ETIOPE G. Revised genetic diagrams for natural gases based on a global dataset of >20,000 samples [J]. *Organic Geochemistry*, 2018, 125: 109–120.
- [46] MILKOV A V. New approaches to distinguish shale-sourced and coal-sourced gases in petroleum systems [J]. *Organic Geochemistry*, 2021, 158: 104271.
- [47] 李明诚, 李剑, 张凤敏, 等. 柴达木盆地三湖地区第四系生物气运聚成藏的定量研究[J]. *石油学报*, 2009, 30(6): 809-815.
- LI M C, LI J, ZHANG F M, et al. Quantitative research on biogas migration-accumulation and pool forming in the Quaternary of Sanhu area in Qaidam Basin [J]. *Acta Petrolei Sinica*, 2009, 30(6): 809-815.
- [48] 李本亮, 王明明, 冉启贵, 等. 地层水含盐度对生物气运聚成藏的作用[J]. *天然气工业*, 2003, 23(5): 16–20.
- LI B L, WANG M M, RAN Q G, et al. Effect of the salinity of formation water on biogas migration, accumulation and reservoir formation [J]. *Natural Gas Industry*, 2003, 23(5): 16-20.
- [49] 冯子辉, 廖广志, 方伟, 等. 松辽盆地北部西斜坡区稠油成因与油源关系[J]. *石油勘探与开发*, 2003, 30(4): 25-28.
- FENG Z H, LIAO G Z, FANG W, et al. Formation of heavy oil and correlation of oil source in the western slope of the northern Songliao Basin [J]. *Petroleum Exploration and Development*, 2003, 30(4): 25-28.
- [50] 汤慧, 李伟星. 西斜坡区天然气的成因及成藏主控因素[J]. *大庆石油学院学报*, 2005, 29(6): 4-6, 118-119.
- TANG H, LI W X. Main controlling factors of gas origin and gas accumulation in western slope zone [J]. *Journal of Daqing Petroleum Institute*, 2005, 29(6): 4-6, 118–119.

[51] ZHOU Z, ZHANG C J, LIU P F, et al. Non-syntrophic methanogenic hydrocarbon degradation by an archaeal species [J]. Nature, 2022, 601(7892): 257-262.

[52] 胡见义, 牛嘉玉. 中国重油和沥青砂资源[J]. 世界石油工业, 1998, 5(9): 13-19.

HU J Y, NIU J Y. Resources of heavy oil and oil sands in China [J]. World Petroleum Industry, 1998, 5(9): 13-19.

[53] 牛嘉玉, 刘尚奇, 门存贵, 等. 稠油资源地质与开发利用[M]. 北京: 科学出版社, 2002: 1-212.

SHENG J Y, LIU S Q, MEN C G, et al. Geology and development of heavy oil resources in China [M]. Beijing: Science Press, 2002: 1-212.

[54] 胡守志, 张冬梅, 唐静, 等. 稠油成因研究综述[J]. 地质科技情报, 2009, 28(2): 94-97.

HU S Z, ZHANG D M, TANG J, et al. Review of the genesis of heavy oil [J]. Geological Science and Technology Information, 2009, 28(2): 94-97.

Geochemical characteristics and genesis of shallow biogenic gas in the Western Sag, the Liaohe Depression

Xiao Hong¹, Li Meijun¹, Chen Jianfa¹, Huang Shuangquan², You Bing¹, Ye Danqi²

1. State Key Laboratory of Petroleum Resources and Prospecting, China University of Petroleum (Beijing), Beijing 102249, China; 2. Research Institute of Petroleum Exploration and Development, Liaohe Oilfield Company, PetroChina, Panjin 124010, China.

Abstract: The Liaodong Depression is an important hydrocarbon-bearing area in the Bohai Bay Basin. Various types of shallow natural gas have been discovered in the Western Sag of the Liaohe Depression, but early studies mainly focused on primary biogenic gas and thermogenic gas, with little attention paid to secondary biogenic gas. This article analyzes the composition and carbon isotopes of 26 shallow natural gas samples, and determines two types of secondary biogenic gases, namely oil-biodegradation gas and bacterial oxidation gas. The natural gas from the Gaosheng and Xiaowa oilfields belongs to oil-biodegradation gas, which is dry gas formed by the anaerobic degradation of crude oil by methanogenic archaea. Its characteristic is that CH₄ carbon isotope value is between primary biogenic gas and thermogenic gas, while CO₂ is significantly enriched in heavy carbon isotopes and often coexists with shallow biodegradable oil reservoirs. The natural gas in the Xinglongtai oilfield is classified as bacterial oxidation gas, which is dry gas formed by the degradation of early natural gas reservoirs by aerobic bacteria. Its typical features include an enrichment of heavy carbon isotopes in C₂₊ hydrocarbons, a marked depletion of propane with an obvious enrichment in heavy carbon isotopes of the residual propane, and local inversion of both the content and carbon isotopes of alkane gases. In addition, this article systematically compares oil-biodegradation gas, bacterial oxidation gas, and primary biogenic gas in terms of formation mechanisms, hydrocarbon and non-hydrocarbon compositions, and carbon isotope sequences, and points out that the oil-biodegradation gas holds significant research value and promising exploration potential in the field of unconventional natural gas resources in China.

Key words: Shallow natural gas; Oil-biodegradation gas; Bacterial oxidation gas; Secondary biogenic gas; Liaohe Depression; Bohai Bay Basin

Foundation item: Supported by the National Natural Science Foundation of China (No. 42502119 and 42202134), and the Science Foundation of China University of Petroleum,

Beijing (No. 2462023YJRC010)

