

文章编号: 1001-6112(2007)04-0426-06

渤海湾盆地济阳坳陷气源岩和 原油生物模拟实验研究

罗霞¹, 刘华², 王玉林², 李文涛², 邓宇³

(1. 中国矿业大学, 北京 100083; 2. 中国石化胜利油田地质科学研究院, 山东东营 257015;

3. 农业部沼气科学研究所, 成都 610041)

摘要:通过细菌检测实验,系统分析了渤海湾盆地济阳坳陷生物气源岩中细菌的赋存状况。实验表明,济阳坳陷浅层气源岩中产甲烷菌较为丰富,在 2 522 m 深处还有产甲烷菌存在,并且产甲烷菌赋存的源岩与源岩时代无相关关系,只要有适合生物气形成的环境条件,生化作用就可能发生。通过气源岩和原油在不同温度下的生物模拟实验,分析了济阳坳陷生物模拟气产率、组分及碳氢同位素特征,结果表明,无论是气源岩还是原油厌氧降解生成的生物气,都只生成甲烷和二氧化碳;45 ℃和 65 ℃是生物气生成的高峰期,生物气产率分布范围为每吨 TOC 产气 20~160 m³ 和每吨原油产气 10~15 m³;生物模拟实验产物的碳同位素值随温度变化差异明显,变化范围为-80.2‰~-41.5‰;生成的二氧化碳的碳同位素值变化与甲烷碳同位素值变化规律相反;生物模拟气中氢同位素的值则比实际生物气的氢同位素值轻,模拟气中氢同位素值主要分布在-300‰~-350‰,而实际生物气的氢同位素值则分布于-240‰~-270‰。

关键词:生物气;生物模拟实验;济阳坳陷;渤海湾盆地

中图分类号:TE132.2

文献标识码:A

SIMULATION EXPERIMENT OF BIOGENIC GAS FROM SOURCE ROCK AND BIODEGRADATION OF CRUDE OIL IN THE JIYANG DEPRESSION, THE BOHAI BAY BASIN

Luo Xia¹, Liu Hua², Wang Yulin², Li Wentao², Deng Yu³

(1. China University of Mining & Technology, Beijing 100083, China; 2. Research Institute of Geosciences,

Shengli Bureau of Petroleum Administration, SINOPEC, Dongying, Shandong 257000, China;

3. The Key-open Laboratory of Anaerobic Microbiology, Ministry of Agriculture, Chengdu, Sichuan 610041, China)

Abstract: Detection of the bacteria in the source rocks from different types of formation, lithology and depth in the Jiyang Depression was carried out in this paper. The result shows that the methane-forming bacteria exist in mudstone and sandstone in E₃^s, E₃^l and E₄^d formations with depth being from 1 297 to 2 522 meters, indicating that the existence of methane-forming bacteria depends on the survival environment of the bacteria and is independent of rock's formation and lithology. The characteristics of the biogenic gases from source rocks and biodegradation of crude oil are similar in simulation experiment. The products of simulation experiment are methane and carbon dioxide. Temperatures at the biogenic gas generating peak are 45 ℃ and 65 ℃. The yields of biogenic gases generated by a ton of TOC and a ton of crude oil are 20-160 m³ and 10-15 m³ respectively. Carbon isotope compositions of methane which range between -80.2‰ and -41.5‰ become lighter with simulation temperature going up, while carbon isotope compositions of carbon dioxide become heavier. Hydrogen isotope compositions of biogenic gas in simulation which mainly range between -300‰ and -350‰ are lighter than those in actual formation like the Luliang Basin in Yunnan Province which mainly range between -240‰ and -270‰.

Key words: biogenic gas; biogenic gas simulation experiment; the Jiyang depression; the Bohai Bay Basin

收稿日期: 2006-12-09; 修订日期: 2007-06-20。

作者简介: 罗霞(1970-), 女(汉族), 四川江安人, 博士后, 高级工程师, 主要从事天然气成藏研究。

渤海湾盆地第三系尤其是第三系浅凹陷中能形成丰富的生物气或生物改造气,如廊固凹陷和阳信凹陷的浅层生物气^[1~3]。济阳拗陷生物气的研究还处于初始阶段,杨显成等^[3]通过甲烷碳同位素和组分特征大致说明阳信地区的天然气可能为生物气,但未开展生物模拟实验。本文首先对济阳拗陷产甲烷菌的赋存状况进行实验分析,并针对济阳拗陷生物气源岩开展生物模拟实验,从实验角度指出生物气形成过程中组分和碳同位素的变化特征,为济阳拗陷生物气的研究与生物气的判识、生物气资源评价积累了丰富的基础资料。

1 济阳拗陷气源岩细菌菌属分析

对济阳拗陷气源岩细菌菌属分析研究主要是普查济阳拗陷气源岩中产甲烷菌生存的最低下限及分布层位,为生物模拟实验奠定基础。首先采取浅层岩石样品共40块,对其有机质丰度进行普查后,选择不同地区、不同层位、不同岩性、不同有机质丰度的19块样品进行本源细菌学4大功能菌群检测。在本实验中着重对4大菌群发酵性细菌、厌氧纤维素分解菌、硫酸盐还原菌、产甲烷细菌进行了研究。发酵性细菌培养一定时间后,用SC-3A型气相色谱仪测定试管中的氢,对厌氧纤维素分解

菌是观察试管中的滤纸条是否产生灰色半透明或黄色斑点以及滤纸是否毁解;产甲烷细菌在各自培养温度培养一月后,用气相色谱仪测定试管中有无甲烷产生,并将富集培养液或计数培养液制片,在Olympus荧光显微镜下观察产甲烷菌的形态特征;硫酸盐还原细菌将 SO_4^{2-} 还原为 H_2S , H_2S 与培养液中的 Fe^{2+} 反应生成黑色的 FeS 沉淀。

样品细菌学检测结果见表1。从表1可以看出,所有样品中都富集出了发酵性细菌,说明所研究的岩心地质样品中的有机大分子物质在所处地质环境中确定能被其本源菌缓慢分解,形成可被产甲烷菌利用来产甲烷的几类小分子有机物,从而使实际地质环境中地质样品的生化产甲烷有了必要条件。

这次19个样品中,通过近3个月的MPN(most probable number)计数富集^[4],仅有3个样品富集出了厌氧纤维素分解菌。纤维素菌检测结果偏低,可能与样品的特性有关,也可能与培养时间不够长有一定关系,一般此种菌的培养时间在半年左右。硫酸盐还原菌最基本的特征是其生命活动需要硫酸盐,并与产甲烷菌争夺电子,因而会对甲烷的产生造成影响。产甲烷菌的形成阶段是在硫酸盐还原菌作用之后。

表1 样品细菌学检测结果

Table 1 Results of bacteriology detection of the samples

| 井号 | 井深/m | 岩性 | 层位 | 有机碳,% | 发酵菌/ 个 | 硫酸盐还原 菌/个 | 纤维素菌/个 | 产甲烷菌 ¹⁾ |
|------|----------|--------|----------------|-------|----------------------|--------------|--------|--------------------|
| 阳24 | 1 500.20 | 灰绿色泥页岩 | E ₃ | 2.27 | 2.5×10 ³ | 未检出 | 未检出 | 未检出 |
| 阳23 | 2 522.00 | 黑色泥岩 | E ₃ | 7.22 | 1.4×10 ⁵ | 60 | 未检出 | + |
| 阳101 | 1 458.80 | 黑色泥岩 | E ₃ | 2.75 | 6×10 ⁴ | 90 | 未检出 | 未检出 |
| 阳30 | 1 655.20 | 泥岩 | E ₃ | 0.40 | 4.5×10 ³ | 750 | 未检出 | + |
| 阳24 | 2 307.00 | 黑色泥岩 | E ₃ | 2.62 | 1.1×10 ⁴ | 450 | 未检出 | 未检出 |
| 花7 | 1 297.00 | 泥岩 | Ed | 4.10 | 1.15×10 ⁴ | 450 | 40 | + |
| 阳23 | 1 640.30 | 泥岩 | E ₃ | 5.55 | 2.5×10 ³ | 未检出 | 未检出 | 未检出 |
| 花22 | 1 890.00 | 泥岩 | E ₃ | 2.84 | 2.5×10 ³ | 30 | 未检出 | 未检出 |
| 花22 | 2 047.00 | 泥岩 | E ₃ | 4.49 | 1.1×10 ⁴ | 450 | 未检出 | 未检出 |
| 花16 | 800.00 | 粘土岩 | Ng | 0.08 | 3×10 ³ | 950 | 10 | 未检出 |
| 高17 | 1 110.00 | 泥岩 | E ₃ | 0.16 | 2.5×10 ³ | 950 | 未检出 | 未检出 |
| 花7 | 1 320.00 | 砂岩 | E ₃ | 0.14 | 3.0×10 ⁵ | 30 | 未检出 | 未检出 |
| 阳30 | 1 869.20 | 黑色泥岩 | E ₃ | 12.98 | 2.5×10 ³ | 未检出 | 未检出 | 未检出 |
| 阳24 | 1 308.00 | 灰色泥岩 | E ₃ | 1.18 | 4.0×10 ³ | 未检出 | 未检出 | 未检出 |
| 阳24 | 1 293.44 | 灰绿色泥岩 | E ₃ | 5.07 | 4.5×10 ³ | 未检出 | 未检出 | 未检出 |
| 高17 | 1 590.00 | 泥岩 | E ₃ | 0.22 | 2.5×10 ³ | 60 | 未检出 | 未检出 |
| 花12 | 1 225.00 | 粉砂岩 | E ₃ | 0.09 | 2.5×10 ³ | 未检出 | 未检出 | 未检出 |
| 阳30 | 2 020.00 | 灰绿色泥岩 | E ₃ | 1.90 | 4.5×10 ³ | 60 | 未检出 | 未检出 |
| 阳24 | 1 742.80 | 砂岩 | E ₃ | 0.10 | 4.5×10 ³ | 未检出 | 10 | + |

1) +表示能检出,但不能计数。

在地质条件下,有机物质经过包括前面叙述的几大类菌群在内的厌氧生物链的作用,最后由产甲烷细菌最终形成甲烷。19个样品中有4个检测到了产甲烷细菌。产甲烷细菌的检出,说明济阳坳陷第三系适合产甲烷菌的生存,生化产甲烷过程客观存在并且可能仍然在进行。

应用 Olympus 荧光显微镜观察产甲烷菌的形态特征发现,几个样品中的产甲烷菌具有不同的形态(图1),这也表明济阳坳陷生化作用过程可能具有多样性的特征。在 E_s^3, E_s^1, Ed 层位泥岩和砂岩中,从 1 297 m 至 2 522 m 都检测出了产甲烷菌,说明产甲烷菌的存在不受岩性、层位的控制,也就是说,只要具有产甲烷菌生存的环境条件,生化甲烷过程就可能发生。在 2 522 m 还检测出产甲烷菌,说明产甲烷菌可以在较深的深度环境中生存。

2 生物模拟实验研究

2.1 实验流程及方案设计

在细菌学检测的基础上进行生物模拟实验。生物模拟实验样品共 6 块(包括 1 块油样),进行不同温阶、不同处理条件的生物模拟发酵实验。本次生物模拟实验设计了 4 个温阶,分别是 35, 45, 55, 65 °C。在以往的生物模拟产气实验中,生物模拟实验的温度范围多以 35, 55, 65, 75 °C 为主,还未进

行过 45 °C 的生物模拟产气试验,因为这一温度处在中温和高温之间,对中温菌来说温度偏高,而对高温菌又偏低^[3],是微生物生长的一个比较难受的温度。本次实验在温度段上弥补了过去模拟试验的一个空白,使生物模拟产气的试验温度段更加系统、完整。在对样品进行原始有机质生化分析、细菌学调查后进行模拟实验,生物气模拟实验的基质量(样品加量)为 10%,基质量与菌种量之比为 1:1.5。为了保证实验的准确性和减少实验误差,模拟产气容器采用标定体积为 160 mL 的血清瓶。实验组与对照组(CK)均设 3 个重复,置于培养箱内恒温发酵。生物模拟实验结束后,对发酵残渣进行生化分析,确定对产出甲烷贡献较大的有机质类型,应用 Aglient 6890 色谱仪对所产生物气组分含量进行分析,碳同位素值应用 Delta S 同位素分析仪进行检测,氢同位素分析应用 Delta Plus^{xl} 进行检测。

模拟实验样品的基本参数见表 2。

3 实验结果分析

3.1 生物气和厌氧生物菌解气组分特征

通过济阳坳陷岩石生物模拟和原油厌氧生物菌解模拟实验,检测产生的生物气和厌氧生物菌解气的组分,结果显示,在生物气和厌氧生物菌解气中均未检测到 C_2 以上的重烃(图2),也就是说,原

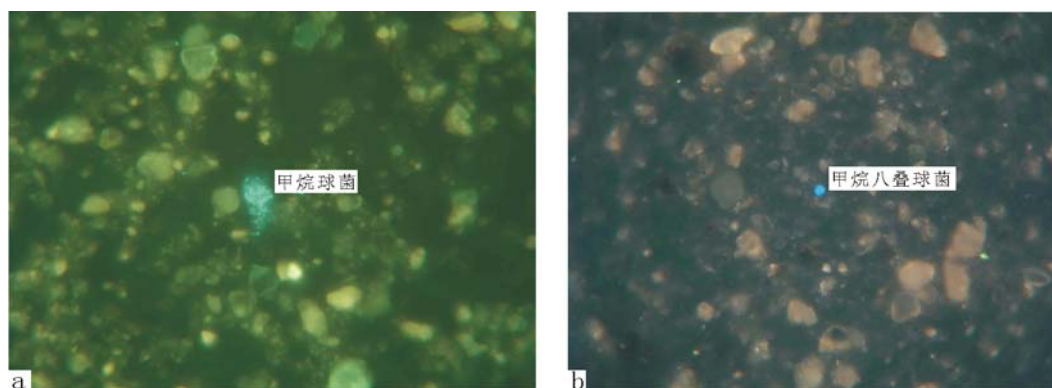


图1 产甲烷菌形态

a. 球菌,花7,1 297 m; b. 八叠球菌,阳30,1 655 m

Fig. 1 Shapes of the methane-forming bacteria

表2 渤海湾盆地济阳坳陷生物模拟实验样品基本参数

Table 2 Information of the rock samples in biogenic gas simulation experiment in the Jiyang Depression, the Bohai Bay Basin

| 井号 | 井深/m | 岩性 | 层位 | TOC, % | $T_{max}/^{\circ}C$ | $S_1/(mg \cdot g^{-1})$ | $S_2/(mg \cdot g^{-1})$ | $S_3/(mg \cdot g^{-1})$ | $(S_1 + S_2)/(mg \cdot g^{-1})$ |
|------|----------|-------|---------|--------|---------------------|-------------------------|-------------------------|-------------------------|---------------------------------|
| 阳24 | 1 293.44 | 灰绿色泥岩 | E_s^1 | 5.07 | 427 | 2.09 | 29.59 | 1.66 | 31.68 |
| 阳23 | 2 522.00 | 黑色泥岩 | E_s^3 | 7.22 | 434 | 2.07 | 30.84 | 1.35 | 32.91 |
| 阳30 | 1 655.20 | 泥岩 | E_s^3 | 0.40 | 432 | 0.09 | 0.21 | 0.93 | 0.30 |
| 阳101 | 1 458.80 | 黑色泥岩 | E_s^3 | 2.75 | 439 | 0.30 | 7.48 | 1.63 | 7.78 |
| 花7 | 1 297.00 | 泥岩 | Ed | 4.10 | 441 | 0.87 | 20.00 | 1.48 | 20.87 |

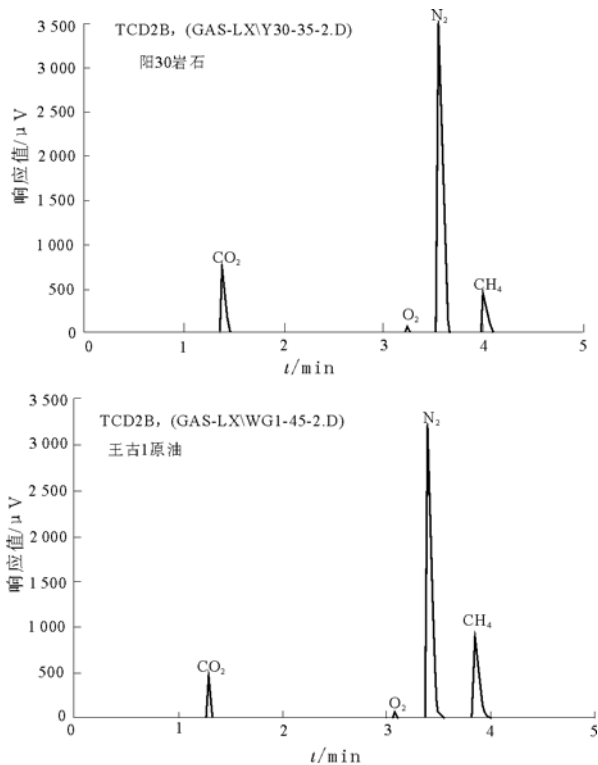


图2 渤海湾盆地济阳坳陷岩石和原油降解生成产物组份色谱

Fig. 2 Gas chromatogram of the biogenic gases from source rock and biodegradation of oil in simulation experiment in the Jiyang Depression, the Bohai Bay Basin

生物气或厌氧生物菌解气中不含重烃,重烃的出现可能是混有其它类型气体所致。生物模拟产气实验产物主要为甲烷(CH_4)和二氧化碳(CO_2),产甲烷的样品主要有阳30、阳23、阳101井岩石样品和王古1井油样,甲烷含量占总产气量的40%~80%;产二氧化碳的样品主要来自花7井和阳24井,基本无甲烷产出,二氧化碳含量占100%。原因还有待进一步研究。

生物模拟 CO_2 和 CH_4 生成规律研究显示, CO_2 和 CH_4 在有机质降解初期均有生成,且 CO_2 含量初期多,后期少, CO_2 产出量随着甲烷产出量的增加而减少(图3)。这说明在济阳坳陷微生物利用有机质的途径是:开始为乙酸发酵,生成 CO_2 和 CH_4 ,这时 CO_2 和 CH_4 的产出量近乎相等;随着生物作用的进行,微生物生成甲烷的途径变为还原 CO_2 和乙酸分解同时进行,部分 CO_2 被还原形成甲烷,使 CO_2 含量表现为初期多,后期少的特征。

3.2 生物气生成高峰期

济阳坳陷不同模拟样品在不同模拟温度下产率对比(图4)表明,生物产甲烷气与产二氧化碳气的温度不尽相同,济阳坳陷源岩生物甲烷的生成高

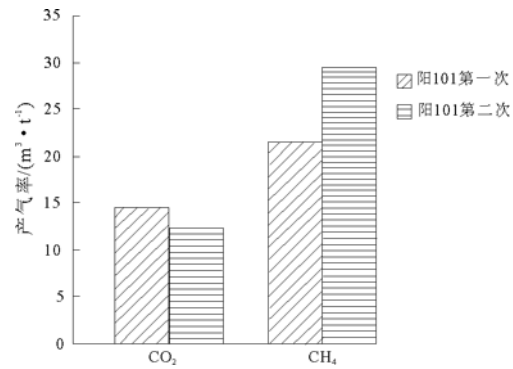


图3 渤海湾盆地济阳坳陷生物模拟二氧化碳与甲烷生成量关系

Fig. 3 Relationship between the yields of CO_2 and CH_4 in simulation experiment in the Jiyang Depression, the Bohai Bay Basin

峰是45℃和65℃,而二氧化碳气的生成高峰则基本为45℃和55℃。45℃这个被生物气研究工作者认为是生物生存的最难受的温度段却是 CH_4 生成的高峰期,这一实验结果补充了生物模拟实验阶段的空白。生物气产率分布范围为每吨TOC产气20~160 m^3 和每吨原油降解产气10~15 m^3 。

3.3 甲烷碳同位素与温度的关系

碳同位素是鉴别天然气成因的重要指标。生物气以富含 ^{12}C 为其重要特征之一,这主要是因为生物气的 $\delta^{13}\text{C}_1$ 组成受原始母质的碳同位素及同位素动力效应2个因素的制约^[5]。生物气的 $\delta^{13}\text{C}_1$ 小于-55‰^[5]。

模拟实验样品碳同位素与温度关系(图5)表明,无论是生物降解岩石(如阳30和阳101),还是生物降解原油(如王古1),随着温度的增加,甲烷碳同位素有变轻的趋势,在低温阶段(35℃)所形成的甲烷碳同位素值通常大于-55‰。碳同位素分析结果表明,35℃常压条件下,模拟样品所产甲烷的碳同位素均偏重;模拟温度上升到65℃时,模拟产气的甲烷碳同位素值均可小于-55‰。这说明产甲烷细菌富集 ^{12}C 既与原始基质的 $\delta^{13}\text{C}$ 值有关,也与基质在不同温度下的同位素分馏系数有关。钱贻伯^[5]等对柴达木盆地第四系样品进行模拟实验也得出了相似的结论。生物模拟气甲烷碳同位素值变化范围在-41.5‰~-80.2‰之间,这与国内外其它盆地生物模拟气近似^[6]。 CO_2 的碳同位素值则随着温度增加变重,在65℃时 CO_2 的同位素值最重可达2.3‰。 CO_2 的碳同位素值与甲烷碳同位素值有着负相关关系(图6),可能的原因是产甲烷菌以二氧化碳为底物,消耗掉大量二氧化碳中的 ^{12}C 而最终留下了大量的 ^{13}C ,从而使生物

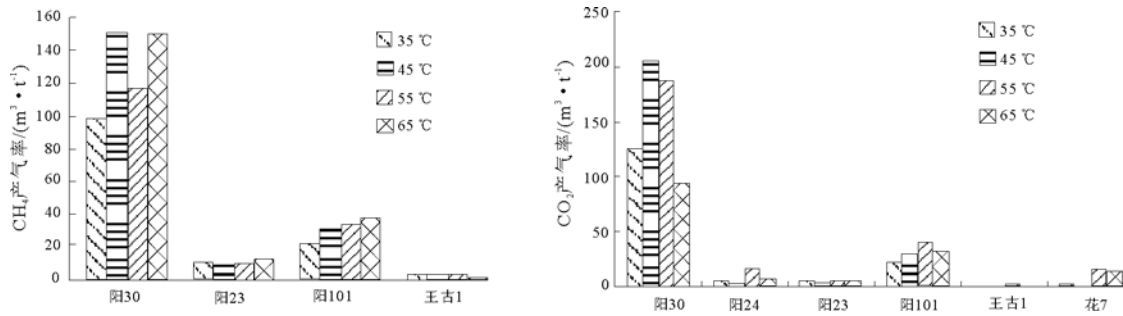


图 4 渤海湾盆地济阳坳陷不同模拟温度下生物气产率对比

Fig. 4 Contrast of the biogenic gas yields in different simulation temperatures in the Jiyang Depression, the Bohai Bay Basin

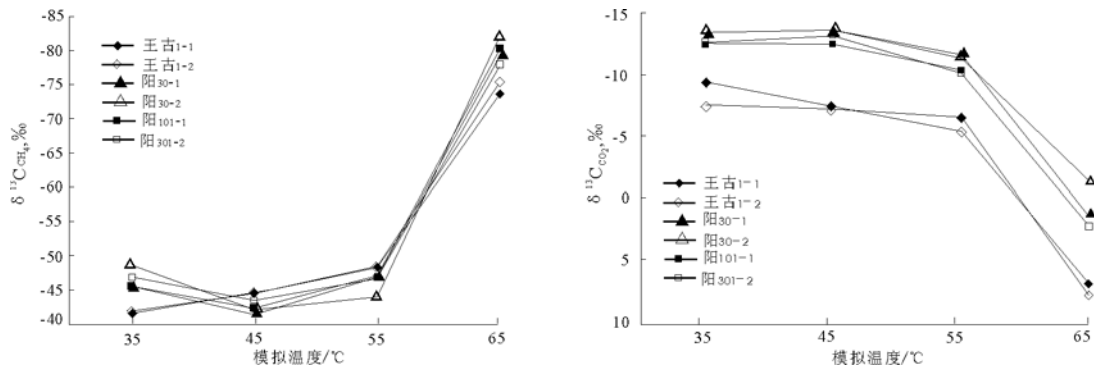


图 5 渤海湾盆地济阳坳陷生物模拟实验产物碳同位素值与温度关系

Fig. 5 Relationship between carbon isotopes of the products of biogenic gas simulation and temperature in the Jiyang Depression, the Bohai Bay Basin

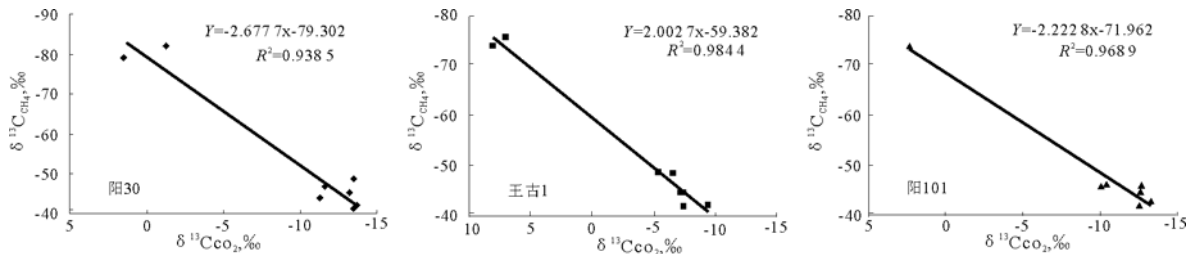


图 6 渤海湾盆地济阳坳陷生物模拟实验中二氧化碳与甲烷碳同位素相关关系

Fig. 6 Correlation chart of carbon isotopes of CH₄ and CO₂ in biogenic gas simulation in the Jiyang Depression, the Bohai Bay Basin

模拟气中二氧化碳同位素值偏重。

3.4 氢同位素特征

生物模拟甲烷气的氢同位素值较轻,基本上小于-300‰(图 7)。云南陆良盆地浅层发育生物气藏^[7],但云南陆良生物气氢同位素测试显示,气藏的氢同位素值与模拟产物的氢同位素值差异较大,气藏中氢同位素值较重,介于-240‰~-270‰之间(图 8)。这可能是由于地层中很多介质均含有氢元素,尤其是地层水的影响,使氢元素受后期环境影响较大,相应地氢同位素值也受后期环境影响较大,而模拟生物气氢同位素仍表现出较轻的特征。

3.5 模拟前后生化指标对比分析

从以上各温度段生物模拟实验结束后的各项生化指标与原样的比较(表 3)可以发现,花 7 与阳 101 样品的有机物虽然均高,但其转化降解率却较低,尤其是花 7 样品,转化率在 0.0%~7.5%之间,阳 101 样品略高达 1.2%~6.72%。此外,纤维素转化率的差异进一步反映出阳 101 样品的可生化性优于花 7 样品,前者的生物转化率达 13.83%~32.14%,而后者为 11.83%~25.72%。值得指出的是,花 7 样品虽含有较丰富的有机质,但其 CH₄ 生成量在 4 个温度段均为零,该样品中存在的抑制生物转化的因子有待进一步分析研究。

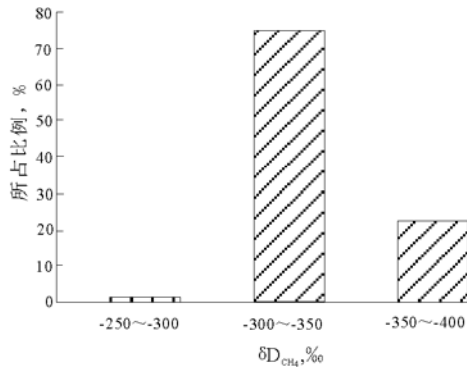


图 7 渤海湾盆地济阳坳陷生物模拟甲烷氢同位素分布

Fig. 7 Hydrogen isotope of CH₄ in biogenic gas simulation in the Jiyang Depression, the Bohai Bay Basin

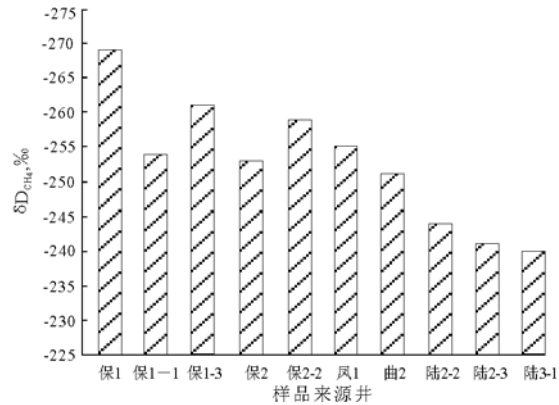


图 8 云南陆梁盆地生物气氢同位素分布

Fig. 8 Hydrogen isotope of the biogenic gas in the Luliang Basin, Yunnan Province

表 3 渤海湾盆地济阳坳陷岩石样品各温度段发酵前后有机组分对比

Table 3 Contrast of organic compositions in samples before and after fermentation under the different simulation temperatures in the Jiyang depression, the Bohai Bay Basin

| 样品名称 | 温度 / °C | 腐殖质, % | | | 有机质, % | | | 纤维素, % | | | 半纤维素, % | | |
|-------|---------|--------|-------|-------|--------|-------|------|--------|------|-------|---------|-------|-------|
| | | 发酵前 | 发酵后 | 转化率 | 发酵前 | 发酵后 | 转化率 | 发酵前 | 发酵后 | 转化率 | 发酵前 | 发酵后 | 转化率 |
| 花 7 | 35 | 15.03 | 14.84 | 1.26 | 12.73 | 12.88 | 0 | 9.788 | 7.27 | 25.72 | 0.128 | 0.100 | 21.87 |
| | 45 | 15.03 | 14.32 | 4.72 | 12.73 | 11.97 | 7.54 | 9.788 | 7.71 | 21.23 | 0.128 | 0.120 | 6.25 |
| | 55 | 15.03 | 12.93 | 14.00 | 12.73 | 12.45 | 2.19 | 9.788 | 8.63 | 11.83 | 0.128 | 0.109 | 14.84 |
| | 65 | 15.03 | 14.13 | 5.98 | 12.73 | 11.96 | 6.04 | 9.788 | 7.39 | 24.49 | 0.128 | 0.123 | 3.90 |
| 阳 101 | 35 | 10.54 | 10.45 | 0.85 | 9.96 | 9.33 | 6.32 | 7.088 | 4.81 | 32.14 | 0.054 | 0.055 | — |
| | 45 | 10.54 | 10.43 | 0.95 | 9.96 | 9.29 | 6.72 | 7.088 | 5.03 | 29.03 | 0.054 | 0.059 | — |
| | 55 | 10.54 | 10.19 | 3.33 | 9.96 | 9.79 | 1.72 | 7.088 | 5.37 | 24.23 | 0.054 | 0.060 | — |
| | 65 | 10.54 | 10.54 | 0 | 9.96 | 9.54 | 4.21 | 7.088 | 6.10 | 13.83 | 0.054 | 0.060 | — |

4 结论

1) 济阳坳陷第三系具有形成生物气的环境条件, 并且存在多种类型的产甲烷菌, 产甲烷菌的存在与层位、岩性无关, 只与生存的环境有关。

2) 济阳坳陷岩石生物模拟与原油厌氧菌解模拟产物的组分及碳同位素值特征相似, 只产生甲烷和二氧化碳。45 °C 和 65 °C 是甲烷生成的高峰期, 45 °C 平时被认为是生物产甲烷低谷期, 本实验中却是甲烷生成的高峰期, 在这一温度阶段生成甲烷的特征还需要进一步研究。碳同位素值随着温度升高而变负, 与二氧化碳的碳同位素值呈负相关关系。生物气产率分布范围为每吨 TOC 产气 20~160 m³ 和每吨原油降解产气 10~15 m³。

致谢: 中国石化集团胜利油田地质科学研究院区域室和有机地球化学室提供了研究样品, 中国科

学院兰州地球化学研究所徐永昌教授提供了云南陆梁盆地样品, 在此表示衷心的感谢!

参考文献:

- 1 降栓奇, 杨桂茹, 淡伟宁等. 廊固凹陷浅层天然气成因类型及机制[J]. 天然气工业, 2001, 21(3): 5~8
- 2 杨显成, 耿春燕, 郭 谨等. 阳信凹陷油气分布规律及勘探方向[J]. 油气地质与采收率, 2003, 10(6): 24~27
- 3 史占桢. 渤海湾盆地及其外围的生物气研究[J]. 天然气工业, 2002, 22(9): 11~16
- 4 赵一章, 邓 宇, 尹小波等. 产甲烷细菌及其研究方法[M]. 成都: 成都科技大学出版社, 1997. 22~23
- 5 戴金星. 戴金星天然气地质和地球化学论文集(卷 1)[M]. 北京: 石油工业出版社, 1998. 223~230
- 6 钱贻伯, 连莉文, 陈文正等. 生物气形成过程中 CH₄ 碳同位素变化规律的研究[J]. 石油学报, 1998, 19(1): 29~33
- 7 张 淮, 周荔青. 陆良盆地生物气藏形成分布规律[J]. 石油实验地质, 2005, 27(6): 588~593