

地质体中天然氢气成因识别方法初探

孟庆强^{1,2}

1. 页岩油气富集机理与有效开发国家重点实验室, 北京 102206;
2. 中国石化石油勘探开发研究院, 北京 102206

摘要: 氢气作为一种清洁能源, 已得到国内外越来越多的重视。近年我国加快氢能经济建设, 对氢气的生产与储存提出了较高的要求。目前氢气的主要获取方式为人工制取氢气。了解自然界中是否存在高含量氢气, 其成因如何, 是能否发现并利用天然气的前提所在, 但能否持续获得天然氢气, 目前研究较弱。对氢气成因的判别, 特别是深源成因与浅源成因主要依靠伴生稀有气体同位素组成特征进行判断, 而部分天然气难以测定稀有气体, 给氢气成因识别带来了困难。基于不同构造部位氢气及伴生气体的含量、同位素组成等分析测试结果, 分析美国堪萨斯(Kansas)盆地高含量氢气的持续时间和含量变化特征。并提出了基于甲烷—氢气含量关系与氢气同位素组成的氢气成因判别方法, 降低了氢气成因识别的难度。认为地下条件下存在氢气补充机制, 可以持续获得高含量天然氢气, 板块碰撞带周边是高含量氢气的有利分布区。可以以氢气的氢同位素组成-700‰(VSMOW)和 $\ln(\text{CH}_4/\text{H}_2)$ 值划分氢气来源: 壳源氢气的 δD 值一般大于-700‰, 而 $\ln(\text{CH}_4/\text{H}_2)$ 值小于-8; 幔源氢气的 δD 值一般小于-700‰, 而 $\ln(\text{CH}_4/\text{H}_2)$ 值大于-4; 富 CO_2 流体在地表被氧化后剩余的氢气, 其 δD 值大于-700‰, 而 $\ln(\text{CH}_4/\text{H}_2)$ 值大于-8; 深源富氢流体在地表被氧化后, 剩余氢气的 δD 值小于-700‰, 而 $\ln(\text{CH}_4/\text{H}_2)$ 值小于-4。该方法可以在不测定稀有气体组分及同位素组成的条件下, 对氢气成因进行快速分类。

关键词: 地质体; 氢气; 成因; 识别方法

中图分类号: TE122.1

文献标识码: A

Identification method for the origin of natural hydrogen gas in geological bodies

MENG Qingqiang^{1,2}

1. State Key Laboratory of Shale Oil and Gas Enrichment Mechanisms and Effective Development, Beijing 102206, China;
2. Petroleum Exploration and Production Research Institute, SINOPEC, Beijing 102206, China

Abstract: As one of the clean energies, hydrogen has attracted more and more global research interest. With the acceleration of hydrogen energy economic construction in China, higher requirements have been put forward for the production and storage of hydrogen. At present, the main way to obtain hydrogen is to produce hydrogen artificially. Whether there is a high content of hydrogen in nature and its origin are the premise for the discovery and utilization of natural hydrogen, but the related research is weak. The discrimination of hydrogen origin, especially deep and shallow source origin, depends mainly on the isotopic composition characteristics of accompanied rare gases, which is difficult to be determined in some cases, the origin of hydrogen is then difficult to be identified. Based on the analysis and analytical results of hydrogen and associated gas content and isotopic composition in different structural parts, this paper analyzes the duration and content variation characteristics of high content hydrogen in the Kansas Basin, USA. A discrimination method for hydrogen genesis based on the relationship between methane and hydrogen content and hydrogen isotopic composition has been proposed, access of hydrogen genesis identification is easier to be achieved. Based on the above research, it is believed that there is a hydrogen supplement mechanism with underground conditions, which can continuously produce high content of natural hydrogen. It is considered that it is a favorable distribution area for high content of hydrogen around the plate collision zone. The hydrogen source can be classified by the hydrogen isotopic composition of -700‰ (VSMOW) and $\ln(\text{CH}_4/\text{H}_2)$. Shell source hydrogen has a δD value generally greater than -700‰ and a $\ln(\text{CH}_4/\text{H}_2)$ value lower than -8. Mantle derived hydrogen has a δD value generally lower than -700‰ and a $\ln(\text{CH}_4/\text{H}_2)$ value greater than -4. Hydrogen remaining after CO_2 rich fluid is oxidized on the surface has

收稿日期: 2022-01-12; 修订日期: 2022-04-28。

作者简介: 孟庆强(1978—), 男, 博士, 高级工程师, 从事油气地球化学与氢能研究。E-mail: mengqq.syky@sinopec.com。

基金项目: 国家重点研发计划项目(2017YFC0603102)和国家自然科学基金项目(41872164)联合资助。

a δD value greater than -700‰ and a $\ln(\text{CH}_4/\text{H}_2)$ value greater than -8 . After the deep source hydrogen rich fluid is oxidized on the surface, the residual hydrogen has a δD value lower than -700‰ and a $\ln(\text{CH}_4/\text{H}_2)$ value under -4 . This proposed method can quickly classify the origin of hydrogen without determining the composition and isotopic composition of rare gases.

Key words: geological body; hydrogen gas; origin; identification method

氢气作为可燃气体,是未来清洁能源气体的主要类型,对节能减排意义重大。国际氢能委员会预计,若全球变暖升温幅度控制在 2℃ 以内,到 2050 年全球氢能需求潜力可达 $5.5 \times 10^8 \text{ t}$,可减少 $60 \times 10^8 \text{ t}$ 二氧化碳排放,届时氢能在交通运输领域的需求可达 $1.6 \times 10^8 \text{ t}^{[1]}$ 。欧美等发达国家和地区均把氢气作为未来主要的能源替代方案^[2]。2019 年氢气及氢能首次写入国务院政府工作报告^[3],极大地促进了我国氢气及氢能产业的发展。目前,人工制氢是获取氢气的主要方式,即通过一定的手段从工业原料中大规模制取可燃气态氢产物,包括化石燃料制氢、水分解制氢、生物技术制氢和太阳能制氢等^[4]。世界范围内,来自煤炭和石油、天然气等化石能源资源的氢气均超过 90%,而我国来自煤炭和天然气人工制氢的氢气占比分别为 62% 和 19%^[5]。如果能在自然界中发现可供经济利用的天然氢气,一方面可以降低人工制氢对化石燃料的依赖;另一方面,以高含氢的天然气藏作为天然储氢(Natural Hydrogen Storage)的天然类比物,分析其保存条件,可以为天然储氢选址提供关键参数。但是,目前关于地质体中氢气分布规律的认识不清,缺乏对不同来源氢气的有效鉴别方法。围绕上述两个问题,本文分析了氢气赋存的地质条件以及成因来源,以期寻找高含量天然氢气提供技术保障。

1 地质体中氢气的分布

传统观点认为,氢气因其极强的还原性而易于被氧化,因此在地表难以以单质形式存在。但部分学者坚持认为在自然界中存在自由态氢,即氢气^[6]。氢气在地表的分布也进一步证实了上述观点。

1.1 不同构造背景下氢气的赋存状态

沉积盆地内作为油气储层和盖层的岩层,在适当的物理化学条件下,既可以作为氢气形成的母质岩石,也可以作为保存氢气的储层和盖层。从 1930 年代开始,沉积盆地内的氢气得到了较为广泛的关注,澳大利亚 New Guinea 地区^[7]、俄罗斯 Stavropol 地区^[8]、美国^[9]、德国^[10]沉积盆地含量超过 10% 的氢气都得到了深入研究;北美 Forest City 盆地含量超过 20% 的氢气自 1990 年发现以来持续

产出^[11]。这些研究表明,沉积盆地内赋存有含量超过 10% 的高含量氢气。

在板块碰撞带,深源岩浆向地表运移,成为氢气由地球深处向上运移的载体,具备高含量氢气发育的地质条件。研究表明,碱性岩中氢气的丰度为 $3 \text{ cm}^3/\text{kg}$,而基性—超基性岩中则高达 $26.8 \text{ cm}^3/\text{kg}^{[12]}$,二者输氢能力差异极大;而 1 kg 水从地下 15 km 运移至地表,能释放出 $12\ 000 \text{ cm}^3$ 的 $\text{H}_2^{[13]}$,因此,水是极佳的输氢物质。所以,在板块碰撞带附近的基性—超基性火山岩发育地区,是高含量氢气的主要富集区,如位于构造活动带的菲律宾群岛 Zambales 地区^[14]、阿曼北部火山岩地区^[15]、新西兰温泉^[16]、瑞典 Gravberg-1 井^[17]等地区的氢气含量一般均超过 10%。

在含油气沉积盆地中,我国渤海湾盆地济阳拗陷的构造活跃区(高青—平南断裂带)和构造相对稳定区(牛庄洼陷)的天然气和井中伴生气气样的气体地球化学测试结果表明,两地天然气中氢气组分含量未见明显差异,均以 $n \times 10^{-3}$ ($1 < n < 10$) 为主,并且气体的 H_2/He 值均具有幔源氢气的特征^[18]。这表明在沉积盆地的构造活跃区与构造相对稳定区,均能发现气体地球化学性质高度相似的氢气。

理论上,深大断裂周边的氢气含量应高于远离深大断裂的区域。但由于氢气的性质活泼,易于扩散,此外,沉积盆地内存在多种形成氢气的机制,难以用某一种或者某几种指标更加合理地解释这种现象。因此,只有基于地质和气体地球化学研究,通过建立氢气成因的识别方法,才能更加精准地判断氢气的成因,从而厘清不同地质条件下氢气的来源。

1.2 氢气高含量典型地区及典型井分析

如上所述,在地表不同地质环境中均可以发现氢气,且氢气的含量变化较大,这一方面难以明确氢气的分布规律,另一方面也对能否利用地质环境中的天然氢气带来了挑战。本文拟通过解剖高含量氢气(暂定为 H_2 体积含量不低于 10%)的形成条件,探索高含量氢气的分布范围和成因,预测未来高含量氢气的勘探目标区。

北美堪萨斯(Kansas)盆地高含量氢气主要分布在以 Scott-1、Heins-1、D-2 等井为代表的 10 余

口探井中,这些井均位于 Humboldt 断裂带西侧的 Nemaha 背斜上(图 1)^[19]。由于 Humboldt 断裂带位于 Kansas 内陆地球物理异常带的东部,且切穿了 Kansas 古生代地层至前寒武系基底,因此该断层被认为是北美陆内裂谷系统的一部分。

前人对该地区井中气体组分进行了长期监测

(图 2)^[20-22],结果表明 Scott 井区氢气含量长期主要分布在 30%±5% 之间,其余的主要组分为氮气,而烷烃气体及 CO₂ 很少。

D-2 井氢气主要分布于前寒武系基底—石炭系密西西比亚系(相当于下石炭统)以及宾夕法尼亚系(相当于上石炭统)的砂岩及泥质砂岩中。

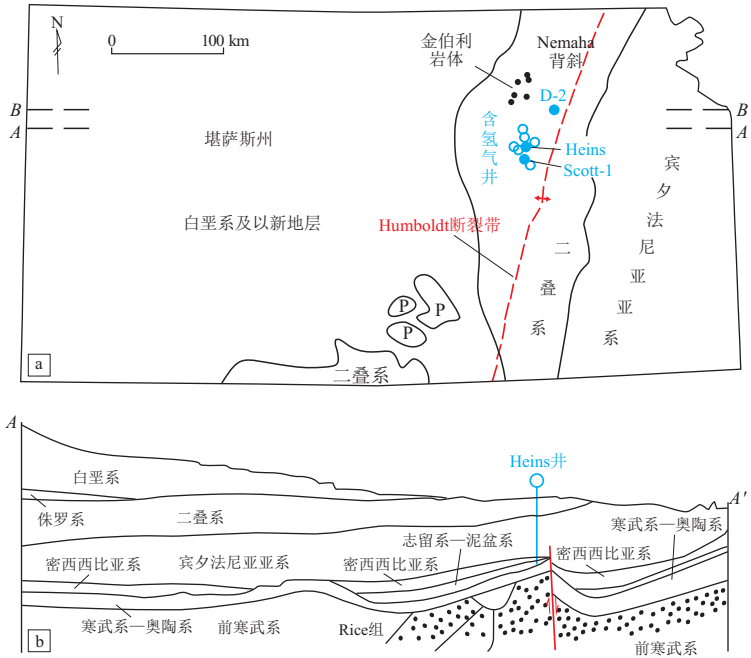


图 1 北美堪萨斯盆地富氢气井构造地质(a)及剖面图(b)

据参考文献[19]修改。

Fig.1 Tectonic (a) and section (b) sketch map for hydrogen-bearing wells in Kansas Basin, USA

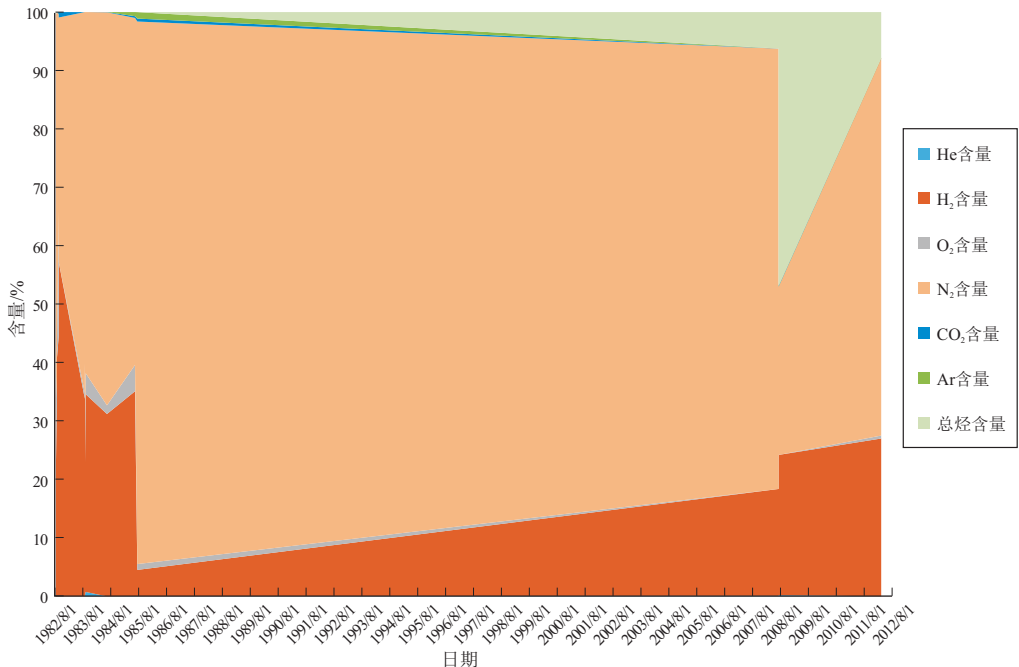


图 2 北美堪萨斯盆地 Scott 井区天然气组分检测结果

数据据参考文献[20-22],并归一化处理。

Fig.2 Change trend of natural gas composition in Scott area of Kansas Basin, USA

该井西部是由中生界—新生界形成的低山丘陵地形作为大气降水补给区,白垩纪金伯利岩侵入体在该井以西约 100 km 处(图 3)^[20]。

自 1990 年代开始,前人对 Scott 井区氢气成因开展了持续研究。早期主要认为该地区的氢气是由于地球脱气作用 (degasing) 形成的^[21]。但最新的研究认为,Scott-1 井中的氢气主要是密西西比亚系与宾夕法尼亚亚系含 Fe^{2+} 的矿物与水反应形成,并由地下水携带至有利区富集(图 3)。根据地层水与氢气的 δD 值计算得到氢气形成温度约在 25 °C,与地幔脱气作用下的高温效应明显不符。因此,碎屑岩中的含铁矿物(如橄榄石等)与水反应是该地区氢气的主要成因。由图 2 可知,在 Scott 井区氢气被发现的初期,氢气含量有下降趋势,但约 20 年之后,氢气含量逐渐增加,其主要原因可能是低温条件下 (<25 °C) 持续发生的橄榄石或者辉石与水的反应。这进一步表明,在地质条件下,氢气的形成是持续进行的,而且该实验需要的时间可能并不是地质历史尺度的,这为持续利用天然氢气提供了理论支撑。

蛇纹石化反应是自然界形成天然氢气最主要的方式,其本质是基性—超基性岩石中含 Fe^{2+} 的矿物(如橄榄石和辉石)在气液交代作用下形成各种蛇纹石的过程。大洋中脊(mid-oceanic ridge)附近常发生该类反应,这是因为大洋中脊的转换断层为基性—超基性岩石上涌提供了通道,并且具备蛇纹石化作用所需的最佳温度条件(300~400 °C),因此便于进行蛇纹石化作用^[23]。这类反应形成的氢气,最高含量可超 90%。近年来,不断有新文献^[24-26]报导橄榄石的低温蛇纹石化作用,进一步拓宽了高含量氢气形成的地质条件。

板块俯冲带洋壳残留的蛇绿岩富含橄榄石和辉石,因此,板块俯冲带是孕育高含量氢气的绝佳地点之一。对于尚未经过高压—低温环境的蛇绿岩,其橄榄石因未经过蛇纹石化作用,或者蛇纹石化程度很低,其生成氢气的能力更强。附着在板块边缘的蛇绿岩在板块俯冲过程中被挤压到上覆沉积层系中,从而使碎屑岩或碳酸盐岩层系中富含 Fe^{2+} 。盆地内的大断裂切穿这些沉积层系,为其中的橄榄石等矿物提供了不同物理化学条件,如盐度、硬度和酸碱度的地下水,有利于蛇纹石化的发生,从而产生高含量天然氢气。

2 地质体中氢气成因识别方法

天然氢气主要分为有机成因与无机成因。有机质热降解生烃过程中产生的少量氢气及生物成因的氢气,是有机成因的主要类型,主要赋存在有机成因的天然气中,易于识别;无机成因因为成因类型较多,特别是通过水岩反应形成氢气时,用于提供氢元素的主要物质可以分为幔源岩石、深源氢元素以及浅部地层水等,因此难以用单一指标进行判别。本文统计了全球主要典型地区的氢气成因,并结合最新研究进展,建立利用天然气地球化学指标识别氢气成因的方法。

2.1 不同地质体中的天然氢气地球化学特征

前人对不同地质体中的氢气地球化学特征进行了分析(表 1)^[14-17,21,27-28],并结合氢气赋存的地质环境,初步提出了氢气的成因。

受当时分析测试条件的限制,以及研究目的不同造成的分析测试目的差异的影响,前人对地质体中天然气的组分及同位素测试的种类均有较大分歧,但一般均测试了氢气和甲烷的含量。而天然氢

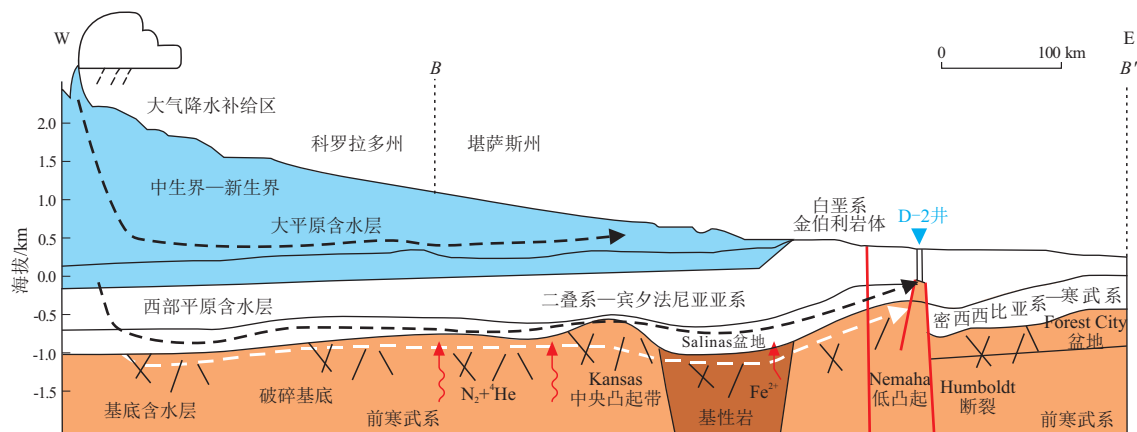


图 3 北美堪萨斯盆地富氢气藏形成过程

据参考文献[22]修改,剖面 B-B' 如图 1 所示。

Fig.3 Formation of hydrogen-enriched gas pools in Kansas Basin, USA

表 1 不同地质体中天然氢气的地球化学特征

Table 1 Geochemical characteristics of natural hydrogen in different geological bodies

取样地点	H ₂ /%	δD _{H₂} /‰	CH ₄ /%	N ₂ /%	CO ₂ /%	H ₂ S/%	数据来源
菲律宾 LEF-2 井	42.3	-581	55.3	1.5	0.01	-	文献[14]
菲律宾 LEF-3 井	42.6	-599	54.8	1.8	0.03	-	
阿曼 B'lad	22	-714	0	76	0	0	文献[15]
阿曼 Huwayl Qufays	47	-699	4.3	39	0	0	
阿曼 Bahla	82	-699	2	15	0	0	
阿曼 Nizwa	95	-697	4	1	0	0	
新西兰 Wairakei 温泉	0.51	-502	0.67	0.94	91.8	6.09	文献[16]
新西兰 Wairakei 温泉	0.58	-525	0.40	1.04	95.7	2.24	
新西兰 Wairakei 温泉	0.62	-510	0.37	0.77	95.9	2.37	
新西兰 Wairakei 温泉	0.76	-600	0.12	0.44	96.5	2.13	
新西兰 Wairakei 温泉	0.87	-524	0.80	1.58	92.4	4.26	
新西兰 Tikitere 温泉	2.78	-504	2.86	0.43	89.2	4.76	
新西兰 Tikitere 温泉	3.05	-536	3.85	0.88	87.9	4.33	
新西兰 Tikitere 温泉	3.10	-497	3.57	0.58	88.1	4.64	
新西兰 Tikitere 温泉	3.24	-528	4.10	1.38	87.1	3.95	
新西兰 Tikitere 温泉	3.68	-541	3.02	0.35	85.9	6.27	
新西兰 Tikitere 温泉	4.37	-531	2.77	0.34	83.5	8.93	
新西兰 Tikitere 温泉	4.72	-511	3.62	4.16	81.0	6.26	
新西兰 Tikitere 温泉	5.13	-530	2.66	0.36	82.3	9.56	
瑞典 Gravberg 井	1.1	-676	0.000 65	-	-	-	
瑞典 Gravberg 井	2.7	-674	0.000 06	-	-	-	
瑞典 Gravberg 井	2.8	-759	0.000 60	-	-	-	
瑞典 Gravberg 井	3.7	-678	0.000 10	-	-	-	
瑞典 Gravberg 井	5.0	-680	0.000 05	-	-	-	
瑞典 Gravberg 井	8.1	-674	0.000 04	-	-	-	
美国 Scott-1 井	33.6	-796	0.04	64.8			文献[21]
美国 Scott-1 井	39.0	-740	0.06	65.0			
美国 Heins 井	36.7	-826	0.80	67.0			
日本山崎断裂带	0.7	-590	0.000 10	-	-	-	文献[27]
日本山崎断裂带	1	-470	0.000 15	-	0.7	-	
日本山崎断裂带	1	-510	0.000 15	-	0.6	-	
日本山崎断裂带	3	-770	0.000 80	-	0.9	-	
中国眼镜泉	0.38	-740.0	0.043 6	2.62	94.50	0.16	文献[28]
中国珍珠泉	0.39	-761.0	0.032 7	1.74	94.50	0.11	
中国中井泉	0.52	-582.9	0.002 0	7.85	88.99	0.023	
中国狮子头	0.58	-778.2	0.021 8	2.62	94.19	0.11	
中国鼓鸣泉	0.69	-616.2	0.005 5	2.62	95.41	0.02	
中国大地脚北	1.17	-624.0	0.032 7	2.77	95.82	0.19	
中国西坡上	5.15	-790.8	0.001 2	1.98	88.75	0.02	
中国徐深 6 井	0.017	-708	86.204	9.438	0.394		
中国东坡上	0.02	-804	0.15	51.38	35.13	0	
中国大滚锅	0.03	-735	0.82	4.34	93.87	0	
中国芳深 1 井	0.073	-792	80.193	15.825	0.666		
中国升深 1 井	0.078	-779	92.06	4.992	0.218		
中国徐深 2 井	0.087	-772	70.817	23.121	1.006		
中国攀枝花 1	0.16	-665	0.073	5.97	92.31	0.18	本文研究
中国眼镜泉	0.22	-617	0.19	52.42	35.33	0	
中国新怀胎井	0.23	-743	0.01	12.31	85.31	0.02	
中国硫磺塘	0.26	-731	0.77	3.59	94.37	0	
中国美女池	0.78	-751	0.04	17.33	77.39	0.12	
中国鼓鸣泉	1.14	-730	0.089	82.87	2.22	0	

注:(1)气体组分以气体类型与%表示,为体积百分含量;(2)氢气同位素组成以 VSMOW 作标准物质;(3)“-”表示未测出或者原文未报道。

气与甲烷的含量关系,可以用于对氢气的来源进行初步判断。深源岩石中的含 Fe^{2+} 矿物(如橄榄石或辉石)与水反应形成氢气时,氢元素主要有水和矿物中的羟基,因此,氢元素的来源决定了氢气和甲烷之间的含量关系:若水的供应速度低于蛇纹石化速度或二者大致相当,则产生的气体以氢气为主,此时,氢气的含量可以高达 80% 以上;若地下水的供应速率较高,则水中溶解的 CO_2 可以继续参与反应,使前期形成的氢气进一步还原 CO_2 形成 CH_4 ,此时,产物为 H_2 与 CH_4 的混合气;如果地下水供应速率持续加强,反应继续进行,前期形成的氢气全部与 CO_2 反应,此时,产物以 CH_4 为主。由于反应地点地下水的供应状态与断裂系统的发育程度密切相关,因此,可以利用天然气中 H_2 与 CH_4 的含量关系,结合氢气氢同位素组成特征,对天然氢气的成因进行划分。

2.2 天然氢气成因识别方法初探

前人对于氢气成因研究时,多利用与氢气共同伴生的其他气体(如 CH_4 、 He)的组分含量与同位素组成特征等进行综合研究^[25-28],并取得了较为明显的进展。但由于部分含氢气的天然气中 He 的含量很低,难以测定其含量及同位素组成,给判定氢气成因造成了困难。

如前所述,地质体中天然气的甲烷与氢气含量及氢同位素一般均可准确测定,前人对不同地质体中氢气的同位素组成也做过系统分析^[14-29]。本文在前人研究的基础上,结合最新研究进展,提出了利用 H_2-CH_4 与氢同位素组成关系识别氢气成因的方法(图4)。

图4中,区域A的氢气主要为壳源成因,即参与水岩反应的岩石和水均来自于地壳,可能是沉积岩石中含有的放射性物质的能量分解水所致,其主要地球化学特征是氢气的氢同位素组成重于

$-700‰$ (VSMOW,下同), $\ln(CH_4/H_2)$ 的值小于 -8 。位于区域B的氢气为典型的幔源成因,即参与水岩反应的矿物主要来自于深源含 Fe^{2+} 矿物,水也来自深层地质条件,其主要地球化学特征是氢气的同位素组成轻于 $-700‰$,而 $\ln(CH_4/H_2)$ 的值大于 -4 。C区和D区均为混合区域,但二者仍有一些差别:C区是深源富 CO_2 流体中的氢气在地表被氧化之后的剩余,本身甲烷含量较少,氧化前后甲烷含量变化差别不大,但氢气受地表因素影响明显,其主要地球化学特征为氢气的同位素组成重于 $-700‰$,而 $\ln(CH_4/H_2)$ 的值大于 -8 。D区是深源富氢流体在地表被氧化后剩余的氢气,其主要特征是氢气仍保留深源特征,但部分氢气被氧化之后,造成甲烷的含量降低, $\ln(CH_4/H_2)$ 值降低,其主要地球化学特征为氢气的同位素组成轻于 $-700‰$,而 $\ln(CH_4/H_2)$ 的值小于 -4 。

3 结论与建议

(1)地质条件下存在天然氢气的补充机制,经过长时间(大于30年)的开发,氢气的含量可以保持在较高水平,这主要是通过水岩反应实现。因此,在富含 Fe^{2+} 矿物的条件下,高氢气含量可以保持较长时间。

(2)利用天然气中甲烷和氢气含量关系以及氢气氢同位素组成特征,可以在不测定稀有气体组分及同位素条件下,对氢气成因进行快速识别。

(3)壳源氢气的 δD_{H_2} 值一般大于 $-700‰$,而 $\ln(CH_4/H_2)$ 小于 -8 ;幔源氢气的 δD 值一般小于 $-700‰$,而 $\ln(CH_4/H_2)$ 大于 -4 ;富 CO_2 流体在地表被氧化后剩余的氢气,其 δD 值大于 $-700‰$,而 $\ln(CH_4/H_2)$ 大于 -8 ;深源富氢流体在地表被氧化后,剩余氢气的 δD 值小于 $-700‰$,而 $\ln(CH_4/H_2)$ 小于 -4 。

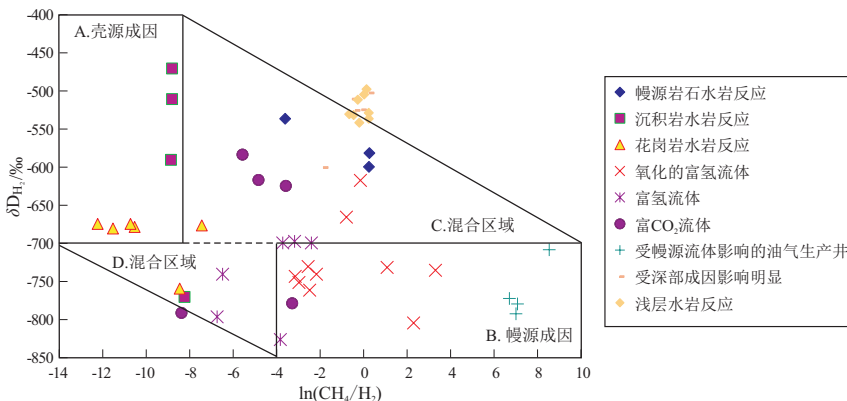


图4 基于甲烷—氢气含量关系与氢气氢同位素组成的氢气成因识别方法

Fig.4 Identification method for hydrogen genesis based on methane—hydrogen content and hydrogen isotope composition

参考文献:

- [1] Hydrogen Council. Hydrogen scaling up: a sustainable pathway for the global energy transition [EB/OL]. [2017-11-13]. http://hydrogencouncil.com/wp-content/uploads/2017/11/Hydrogen-Scaling-up_Hydrogen-Council_2017.compressed.pdf.
- [2] 凌文, 刘玮, 李育磊, 等. 中国氢能基础设施产业发展战略研究[J]. 中国工程科学, 2019, 21(3): 76-83.
LING Wen, LIU Wei, LI Yulei, et al. Development strategy of hydrogen infrastructure industry in China[J]. Strategic Study of CAE, 2019, 21(3): 76-83.
- [3] 2019年国务院政府工作报告[EB/OL]. (2019-03-05). <http://www.gov.cn/zhuanti/2019qglh/2019lhzfzgbg/index.htm>.
2019 State council government work report [EB/OL]. (2019-03-05). <http://www.gov.cn/zhuanti/2019qglh/2019lhzfzgbg/index.htm>.
- [4] 邹才能, 张福东, 郑德温, 等. 人工制氢及氢工业在我国“能源自主”中的战略地位[J]. 天然气工业, 2019, 39(1): 1-10.
ZOU Caineng, ZHANG Fudong, ZHENG Dewen, et al. Strategic role of the synthetic hydrogen production and industry in Energy Independence of China[J]. Natural Gas Industry, 2019, 39(1): 1-10.
- [5] 符冠云. 氢能在我国能源转型中的地位和作用[J]. 中国煤炭, 2019, 45(10): 15-21.
FU Guanyun. The status and role of hydrogen energy in China's energy transformation[J]. China Coal, 2019, 45(10): 15-21.
- [6] PETERSEN H C. Does natural hydrogen exist? [J]. International Journal of Hydrogen Energy, 1990, 15(1): 55.
- [7] WOOLNOUGH W G. Natural gas in Australia and New Guinea[J]. AAPG Bulletin, 1934, 18(2): 226-242.
- [8] BOHDANOWICZ C. Natural gas occurrences in Russia (U.S.S.R.) [J]. AAPG Bulletin, 1934, 18(6): 746-759.
- [9] NEWCOMBE R B. Natural gas fields of Michigan [C]// Geology of Natural Gas. Tulsa: AAPG, 1935: 787-812.
- [10] MEINCKE W. Zur herkunft des wasserstoffs in tiefenproben [J]. Zeitschrift für Angewandte Geologie, 1967, 13(7): 346-347.
- [11] NEWELL K D, DOVETON J H, MERRIAM D F, et al. H₂-rich and hydrocarbon gas recovered in a deep Precambrian well in northeastern Kansas [J]. Natural Resources Research, 2007, 16(3): 277-292.
- [12] 郭占谦. 从全球油气田分布看我国东南沿海火山岩覆盖区的含油气前景[J]. 石油实验地质, 2001, 23(2): 122-132.
GUO Zhanqian. Hydrocarbon-bearing prospects of volcanic rock covered regions in the southeastern coastal waters of China judged by the distribution of global oil and gas fields [J]. Petroleum Geology & Experiment, 2001, 23(2): 122-132.
- [13] HAWKES H E. Geothermal hydrogen [J]. Mining Engineering, 1980, 1(6): 671-675.
- [14] ABRAJANO T A, STURCHIO N C, BOHLKE J K, et al. Methane-hydrogen gas seeps, Zambales ophiolite, Philippines: deep or shallow origin? [J]. Chemical Geology, 1988, 71(1/3): 211-222.
- [15] NEAL C, STANGER G. Hydrogen generation from mantle source rocks in Oman [J]. Earth and Planetary Science Letters, 1983, 66: 315-320.
- [16] LYON G L, HULSTON J R. Carbon and hydrogen isotopic compositions of New Zealand geothermal gases [J]. Geochimica et Cosmochimica Acta, 1984, 48(6): 1161-1171.
- [17] JEFFREY A W A, KAPLAN I R. Hydrocarbons and inorganic gases in the Gravberg-1 well, Siljan Ring, Sweden [J]. Chemical Geology, 1988, 71(1/3): 237-255.
- [18] 孟庆强, 金之钧, 刘文汇, 等. 天然气中伴生氢气的资源意义及其分布[J]. 石油实验地质, 2014, 36(6): 712-717.
MENG Qingqiang, JIN Zhijun, LIU Wenhui, et al. Distribution and genesis of hydrogen gas in natural gas [J]. Petroleum Geology & Experiment, 2014, 36(6): 712-717.
- [19] COVENEY JR R M, GOEBEL E D, ZELLER E J, et al. Serpentinization and the origin of hydrogen gas in Kansas [J]. AAPG Bulletin, 1987, 71(1): 39-48.
- [20] GUÉLARD J, BEAUMONT V, ROUCHON V, et al. Natural H₂ in Kansas: deep or shallow origin? [J]. Geochemistry, Geophysics, Geosystems, 2017, 18(5): 1841-1865.
- [21] GOEBEL E, COVENEY R, ANGINO E, et al. Geology, composition, isotopes of naturally occurring H₂/N₂ rich gas from wells near Junction City, Kansas [J]. Oil and Gas Journal, 1984, 82(19): 215-222.
- [22] VACQUAND C, DEVILLE E, BEAUMONT V, et al. Reduced gas seepages in ophiolitic complexes: evidences for multiple origins of the H₂-CH₄-N₂ gas mixtures [J]. Geochimica et Cosmochimica Acta, 2018, 223: 437-461.
- [23] KLEIN F, BACH W, JÖNS N, et al. Iron partitioning and hydrogen generation during serpentinization of abyssal peridotites from 15°N on the mid-Atlantic ridge [J]. Geochimica et Cosmochimica Acta, 2009, 73(22): 6868-6893.
- [24] MAYHEW L E, ELLISON E T, MCCOLLOM T M, et al. Hydrogen generation from low-temperature water-rock reactions [J]. Nature Geoscience, 2013, 6(6): 478-484.
- [25] OKLAND I, HUANG S, THORSETH I H, et al. Formation of H₂, CH₄ and N-species during low-temperature experimental alteration of ultramafic rocks [J]. Chemical Geology, 2014, 387: 22-34.
- [26] NEUBECK A, DUC N T, BASTVIKEN D, et al. Formation of H₂ and CH₄ by weathering of olivine at temperatures between 30 and 70 °C [J]. Geochemical Transactions, 2011, 12(1): 6.
- [27] KITA I, MATSUO S, WAKITA H, et al. D/H ratios of H₂ in soil gases as an indicator of fault movements [J]. Geochemical Journal, 1980, 14(6): 317-320.
- [28] 上官志冠, 白春华, 孙明良. 腾冲热海地区现代幔源岩浆气体释放特征[J]. 中国科学(D辑: 地球科学), 2000, 30(4): 407-414.
SHANGGUAN Zhiguan, BAI Chunhua, SUN Mingliang. Mantle-derived magmatic gas releasing features at the Rehai area, Tengchong county, Yunnan Province, China [J]. Science in China (Series D: Earth Sciences), 2000, 43(2): 132-140.
- [29] 孟庆强, 金之钧, 孙冬胜, 等. 高含量氢气赋存的地质背景及勘探前景[J]. 石油实验地质, 2021, 43(2): 208-216.
MENG Qingqiang, JIN Zhijun, SUN Dongsheng, et al. Geological background and exploration prospects for the occurrence of high-content hydrogen [J]. Petroleum Geology & Experiment, 2021, 43(2): 208-216.