

doi: 10.12029/gc20160520

劳昌玲, 唐力君, 罗立强, 等. WFSD-4S 孔流体地球化学特征[J]. 中国地质, 2016, 43(5): 1721-1728.

Lao Changling, Tang Lijun, Luo Liqiang, et al. Geochemical features in Drill Hole WFSD-4S[J]. Geology in China, 2016, 43(5): 1721-1728(in Chinese with English abstract).

WFSD-4S 孔流体地球化学特征

劳昌玲^{1,2,3} 唐力君² 罗立强² 夏 瑜¹ 龚 正⁴

(1. 中国有色桂林矿产地质研究院有限公司, 广西 桂林 541004; 2. 中国地质科学院国家地质实验测试中心, 北京 10037;
3. 中国地质大学(武汉), 湖北 武汉 430074; 4. 中国地震局地球物理研究所, 北京 100081)

摘要: 本文开展汶川地震断裂带科学钻探现场流体研究, 探讨了泥浆添加剂产生的化学反应以及钻孔中岩性变化引起的流体异常特征, 并在排除这些影响因素的情况下, 讨论地震期间流体的异常。研究表明在 WFSD-4S 钻进期间发生的两次较大地震前均伴有 Rn、Ar、N₂ 和 O₂ 等气体异常现象, 其中氡的日均值均超出背景值的 2.5 倍。根据岩心观察得到 WFSD-4S 钻井地区主断层约在 1084 m, 而在断层之上 931 m 处开始出现了大量气体的高值异常, 该异常可能是由于地震孕育过程中地下气体的运移通道被打开造成气体向上迁移, 使断层气体的响应特征提前发生。

关键词: 汶川地震, 科学钻探, 流体, 地球化学

中图分类号: P634.1; P592; P542 文献标志码: A 文章编号: 1000-3657(2016)05-1721-08

Geochemical features in Drill Hole WFSD-4S

LAO Chang-ling^{1,2,3}, TANG Li-jun², LUO Li-qiang², XIA Yu¹, GONG Zheng⁴

(1. China Nonferrous Metals (Guilin) Geology and Mining Co., Ltd., Guilin 541004, Guangxi, China; 2. National Research Center for Geoanalysis, Chinese Academy of Geological Sciences, Beijing 100037, China; 3. China University of Geosciences (Wuhan), Wuhan 430074, Hubei, China; 4. Institute of Geophysics, China Earthquake Administration, Beijing 100081, China)

Abstract: This paper deals with the in-site real-time fluid analysis in the drill hole WFSD-4S. The abnormal fluid during the earthquake was discussed after excluding the influence of chemical reaction affected by mud additives and anomaly characteristics caused by lithologic changes. The research shows that two strong earthquakes were accompanied by abnormal occurrence of Rn, Ar, N₂ and O₂ in WFSD-4S. What deserves attention is the daily average concentrations of radon were over 2.5 times higher than the background value. The mud gas yielded high concentrations above Principal Slip Zone (PSZ) in 931 m, which should appear in 1084m through the lithology investigation. It is inferred that the underground gas migration channel was opened and gas migrated upward because of the earthquake preparation process, which resulted in anticipating the response characteristics of fault gases.

Key words: Wenchuan Earthquake; Scientific Drilling, Fluid; geochemical features

收稿日期: 2016-07-19; 改回日期: 2016-08-24

基金项目: 国家科技专项“汶川地震断裂带科学钻探工程”0008 课题、0003 课题第四专题和中国地震局地球物理研究所基本科研业务费专项(DQJB15B08)联合资助。

作者简介: 劳昌玲, 女, 1990 年生, 硕士生, 化学工程专业, 从事汶川科钻野外现场流体的在线监测工作; E-mail: laochangling@163.com。

通讯作者: 唐力君, 男, 1976 年生, 副研究员, 主要从事现场流体地球化学分析; E-mail: tanglijun@cags.ac.cn。

About the first author: LAO Chang-ling, female, born in 1990, master, majors in chemical engineering, engages in research on real-time fluid analysis in the Wenchuan Earthquake Scientific Drilling Project; E-mail: laochangling@163.com.

About the corresponding author: TANG Li-jun, male, born in 1976, associate researcher, mainly engages in the study of on-site fluid analysis; E-mail: tanglijun@cags.ac.cn.

Fund support: Supported by Wenchuan Earthquake Fault Scientific Drilling Project of National Science and Technology Planning Project of China (No. 0008 and No. 0003-4) and Basic Research Operating Expense of Institute of Geophysics, China Earthquake Administration (No. DQJB15B08).

地震是地壳发生强烈运动的表现形式之一,是地壳在快速释放大量能量的过程。地震到达一定强度就会引起地面晃动并使房屋倒塌和地面开裂,而且还会引发一系列的次生灾害^[1-2]。开展地震前后流体的异常现象研究对于地震的预报和预警,减少因地震引起的人员伤亡等损失具有重要的意义。流体广泛存在于地壳的不同深度,并受周围环境的影响和制约,处于动态平衡状态。在地震的孕育和发生过程中,这种动态平衡被破坏,通过地球内部固、液、气的相互作用、能量传递和物质交换,把深部信息传递到地球浅部区域,引起气体组分浓度变化^[3-5]。其中, H₂、He、CH₄、N₂、O₂、Ar、CO₂、Rn和Hg等气体在地震的监测预报中占有重要地位。例如,氦作为一种惰性气体,在断裂带、破碎带以及含有较高的天然放射性元素的地区,通常Rn的浓度会比较高。地震发生前后随着地应力的改变会监测到Rn的浓度发生异常。断裂带附近高含量的CO₂可能来源于地幔的气体排放,也可能是地震高温高压环境下碳酸盐的分解导致的。

目前对地震的预警预报以经验预报为主的初级阶段,震例总结是获得地震异常特征,认识和积累地震预测经验的最重要途径。2008年发生的汶川8.0级地震造成大量人员伤亡和财产损失,汶川地震断裂带科学钻探工程(WFSD)在汶川地震断裂带附近实施科学群钻的基础上,开展地质构造、地球物理、地球化学等多学科综合研究,为提高未来地震的监测、预报或预警能力提供重要信息^[6-8]。现场流体的实时监测是汶川科钻的重要组成部分。通过对钻探循环泥浆进行气液分析,将泥浆气体引入现场实验室进行多组分气体在线分析,可对钻探泥浆出现的气体组分变化与钻探工程、地层结构以及地震的相关性进行深入研究。汶川科钻为开展地震前后流体的异常研究提供了很好的平台。

汶川地震的发生会使得断裂面附近形成大量裂隙,导致渗透性增加。对WFSD-1进行长达2年的渗透率监测表明,该区域附近的渗透率高出正常岩层一到两个数量级^[9]。此外,地震前后重复地震形成的地震波速在通过该断层带时下降了近10%^[10]。汶川地震的主震震源区下方存在有明显低波速异常体,表明流体可能存在于龙门山断裂带内^[11]。这些证据有力地证明汶川地震中在其主滑移面附近形成了大量的裂隙,这些裂隙成为地下流体的迁移通道或储存空间。汶川地震后,大量的研究表明在破裂带区域内存在地下气体。汶川地震后大规模的土壤样品测量数据显示,土壤中H₂、He的背景值分别为0.0012%、0.0013%,而在地表位移最大处可分别达0.02794%、0.0040%^[12]。同时对映秀—北川断裂带北段青竹江江水中气体含量和C同位素测定表明CH₄、CO₂主要是生物成因,CO₂和CH₄相关性系数可达0.95,两者是同源的。该结果表明气体来源是地震引起的断层破裂导致浅部含水层气体溢出^[13]。汶川地震后,断裂附近土壤中氦浓度背景高于无断裂带地区,距地震震中越近,土壤氦浓度值越高,最大值可达到背景值的3.69倍^[14]。

1 分析方法

本研究对钻探现场循环泥浆中携带的H₂、He、CH₄、N₂、O₂、Ar、CO₂、Rn和Hg的浓度变化进行在线监测,表1列出了现场流体分析采用的主要仪器设备。

泥浆在钻井内及地面上循环,采用泥浆脱气器对泥浆进行气液分离,由大气平衡仪和室内抽气泵,转子流量计将气体引入实验室。采用冰箱对泥浆气中携带的水蒸气进行冷凝干燥后进入分析仪器进行在线检测^[15-16]。其具体流体分析流程见图1。

现场流体分析为长时间的连续在线监测,在钻

表1 现场流体分析的主要设备

Table 1 The instruments applied in real-time fluid analysis

设备名称	设备型号	备注
脱气器	自主研发组装	由电机带动转速: 1380 rpm
质谱仪	OmniStar™GSD301	测量质量数范围: 1~100
	OmniStar™GSD320	
测氦仪	RAD7	量程范围: 3.7~74000 Bq/m ³
测汞仪	RA-915AM	量程范围: 0~2000 ng/m ³

探工程实施的过程中,流体监测工作连续进行。因此,仪器的稳定性对监测数据的可靠性非常重要。在监测过程中要时刻关注仪器的状态,利用不打钻期间对分析仪器进行校正。用校正后的气体质谱仪测量0.01%的标准气体来检验仪器的准确性和稳定性。RAD7测氦仪的分析方法在国家检定机构做过校正,校准曲线的高点浓度为8780 Bq/m³,加权平均修正因子为0.99,相对不准确度为5.7%。RA-915AM测汞仪校准系统包含校准样品池校正及仪器零点检查装置两部分。该仪器每隔5 min自动进行校正,减少人为操作造成背景值过高。

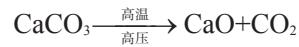
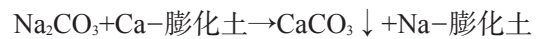
2 结果与讨论

2.1 非地震因素引起的流体异常

在流体分析过程中,由于钻探过程的复杂性和不确定性,在流体分析的异常情况中包含着许多非

地下流体引起的数据异常。其中包括泥浆黏度变化、泥浆添加剂的化学反应、钻具磨损、气体管路设计、地层岩性变化等。要想最终获得地下流体的数据,必须随时了解异常信息并进行判断,排除这些干扰因素的影响。

例如,CO₂容易受到泥浆中pH的影响。根据钻井队提供的pH范围和泥浆中pH的检测结果发现,WFSD-4S的钻探泥浆pH值基本维持在8.0左右,变化范围不大。一些泥浆添加剂会发生各种化学反应引起CO₂异常。例如,Na₂CO₃会通过离子交换和沉淀作用与钙质膨化土发生反应,生成可分解产生CO₂的CaCO₃。反应式为:



因此,当流体监测发现CO₂含量发生显著变化时,应及时了解钻探泥浆组分是否有变化。

此外,地层的岩性变化也会反映在流体监测过程中(图2)。

WFSD-4S岩性主要以砂岩和板岩为主,1026.93~1033.43 m为碳质含量较高的炭质板岩,含有块状方解石,并伴随着角砾状破碎和层状劈理,相应的第65和66回次气体监测发现了CH₄和CO₂含量明显增加。

图2为2015年4月23至24日WFSD-4S钻进的第65和66回次流体中CH₄和CO₂浓度随时间变

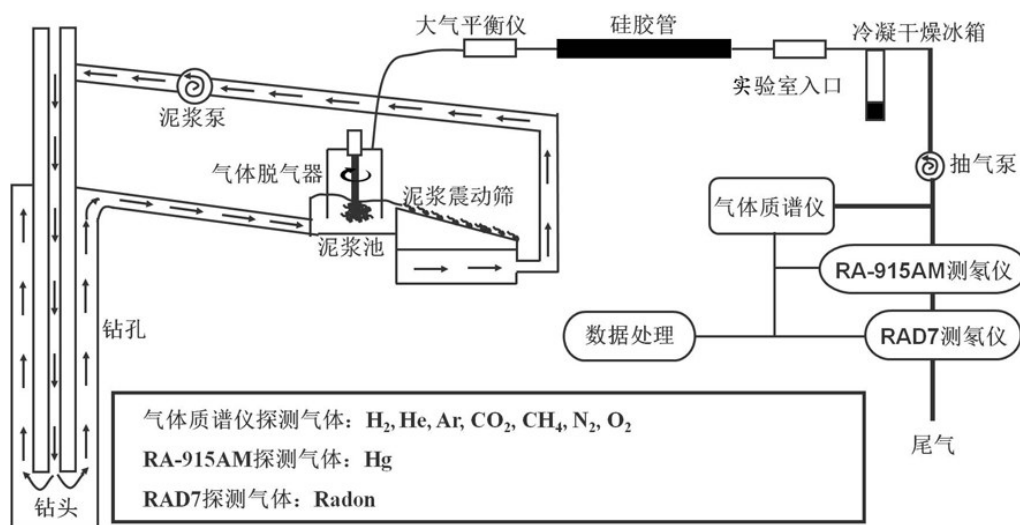


图1 流体分析流程图(据文献[17]修改)

Fig.1 The detailed chart of fluid analysis(modified after reference [17])

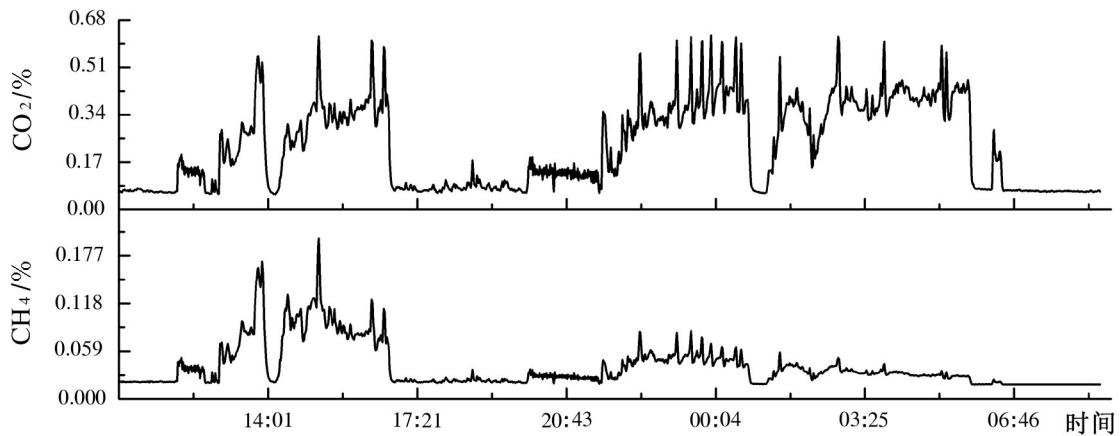


图2 碳质板岩层CH₄和CO₂的变化
Fig.2 Variations of CH₄ and CO₂ in carbonaceous slate

化的情况。65回次钻进时间为12:00~17:00,同时出现CH₄和CO₂高值异常,其中甲烷含量由0.018%增加至约0.1%,最高可达0.198%。该岩层对应深度1026.93~1029.43 m,岩性主要为:炭质变粉砂岩(炭质含量约15%),方解石呈1~2 mm细脉状,并且有8 cm的岩心呈角砾状破碎(图3)。66回次的钻进时间为22:00~05:00(次日),钻进过程中甲烷含量较高,之后逐渐下降,而CO₂浓度高达2.65%,远比空气中CO₂浓度(0.03%~0.05%)高得多。该岩层对应深度1029.43~1033.43 m,岩心中含有块状方解石,66回次的前半段岩性为炭质变粉砂岩,后半段为含炭质变粉砂岩(炭质含量约7%),随着C含量降低,甲烷浓度也相应降低。在C含量较高的岩层中到达一定的反应条件,会存在如下化学反应:



为了判断该钻进回次中CO₂和CH₄的来源,我们对H₂、O₂、CO₂和CH₄之间进行双变量相关性分析。如果在该体系中反应(3)和(4)占主导作用,即表示CO₂和CH₄以及H₂和CH₄是相互转化的关系,二者应该是呈负相关关系。但是根据统计结果发现,在含炭量高的岩层钻进时,CO₂和O₂呈明显负相关($r=-0.946$),说明该体系存在反应(1); CH₄和CO₂具有很强的相关性($r=0.993$),说明CH₄和CO₂不是相互转化关系,而是相互共存的,反应(3)几乎

不存在,可能发生了反应(2)。CH₄和H₂不相关($r=-0.132$),CH₄不是由C和H₂化合反应产生。因此推断,监测到的高浓度CH₄和CO₂很可能是地层中C和O₂以及泥浆中的H₂O发生反应产生的。部分CO₂也可能由方解石的分解产生。当然,由于在岩心中发现有角砾状破碎岩石和大量的层状劈理,不排除地层中本身携带着CH₄和CO₂气体。

2.2 随钻流体随深度变化的分布及其对地震的响应

图3为WFSD-4S井场的流体监测日均值变化情况。由于测汞仪在期间出现故障,仅有少数几天有测量数据,因此在这里没有显示Hg的日均值变化情况。

在该段时间内,分别于2015年1月14日发生了四川省乐山市金口河区的5.0级地震和4月15日发生于甘肃省定西市临洮县的4.5级地震,距离井场位置分别为336 km和356 km,震源深度分别为14 km和9 km。从流体日均值的变化情况看,这2次地震前均发生了很明显的流体异常。氦作为对地震最敏感的流体组分,在地震监测中是应用最广泛、观测时间最长的流体项目。WFSD-4S岩性主要以砂岩和板岩为主,天然放射性核素含量相对较低。因此可以推测,流体中Rn的浓度基本不受岩性变化的影响,高含量的Rn应该是由地震活动引起的地下流体的释放。在WFSD-4S井场,氦的背景值为(44.8±8.5) Bq/m³,而在两次地震期间Rn的日均值基本都达到120 Bq/m³以上。He作为惰性气体,不参与泥浆中的化学反应,因此断定是来源于地下的

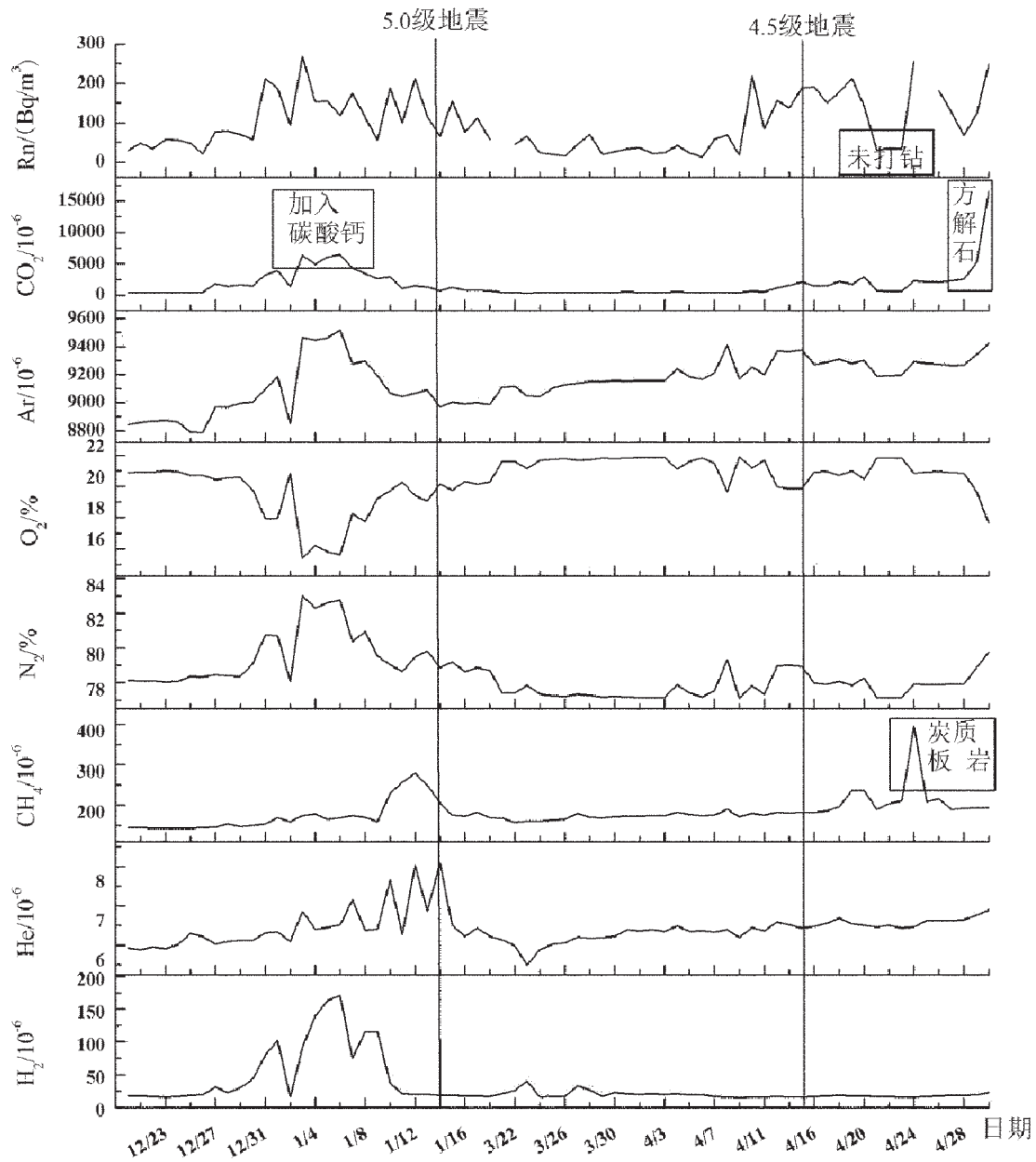


图3 WFSD-4S气体日均值变化

Fig.3 Time-variable curves of the daily average values of gases in drilling WFSD-4S

气体。地震发生前Rn和He均出现了锯齿状的波动,判断可能与地震孕育过程中弹性应变有关。在乐山5.0级地震前半个月气体开始出现异常。由于期间钻探泥浆中加入了碳酸钙,CO₂的增加与加入碳酸钙的时间一致,因此CO₂的增加可能有一部分来源于碳酸钙的分解。甘肃定西4.5级地震发生前气体浓度也出现明显的异常,异常出现于震前一星期,主要表现为Rn、Ar、N₂和O₂的波动明显。

笔者根据井队提供的钻进开始和结束时间的深度计算钻进的平均速度,以此来推测每0.5 m井深所对应的时间(表2),然后根据时间得到相应的气体浓度值。

图4为WFSD-4S 583.5~1092.5 m深度的浓度与深度之间的剖面图。这一井段有两段明显的流体入侵现象,表现为多组分气体浓度的急剧变化。656~800 m的流体急剧变化, H₂、He、CO₂和Rn含量

表2 WFSD-4S井深时间(部分)

Table 2 Part of the drilling schedule in drilling WFSD-4S

日期	开始时间	结束时间	起始深度/m	终止深度/m	钻进时间/min	进尺/m	速度/(m/min)	0.5耗时/min
2015.5.1	4:00	6:00	1074.34	1074.94	120	0.60	0.005	100
2015.5.1	12:00	15:00	1074.94	1077.04	180	2.10	0.012	43
2015.5.1	21:00	0:30	1077.04	1078.74	210	1.70	0.008	62
2015.5.2	6:00	10:00	1078.74	1080.34	240	1.60	0.007	75
2015.5.2	15:30	16:00	1080.34	1080.46	30	0.12	0.004	125

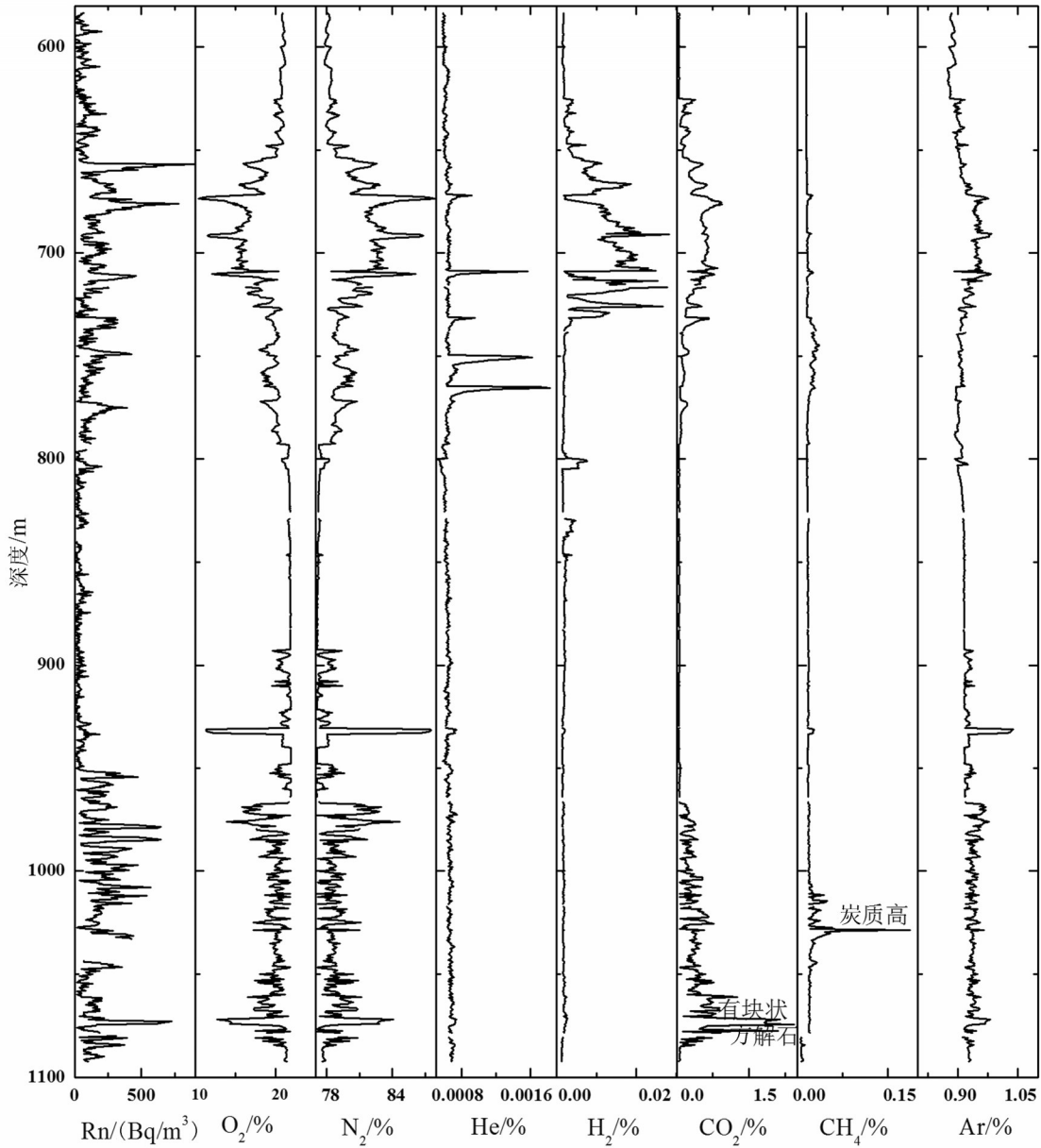


图4 WFSD-4S气体浓度-井深分布图

Fig.4 The real time drilling mud gas concentrations at different depths

急剧起伏,并且Ar和CH₄也有明显的增加,并多次出现He的高值异常。异常开始的时间对应于1月14日四川省乐山市金口河区的5.0级地震发生前的半个月。推测由于地震的作用,该深度有大量来源于地下的流体。该段深度范围内的岩性主要为砂岩和板岩,不含高放射性元素,因此笔者认为,Rn浓度的增加很可能是地层中存在的裂隙成为地下流体的运移通道,而该通道的打开很可能是跟地震的作用有关。931~1092.5 m有大量的Rn、CH₄和CO₂入侵,其中在炭质含量高的岩层(1028.5 m附近)发现CH₄含量高达0.18%,块状方解石处(1074.5 m)有大量CO₂。1084 m附近含有约35 cm的断层泥,伴随着角砾状破碎,岩心有大量的裂隙和破裂面等,是地下流体赋存的场所。推测该区域很可能为汶川地震发生的主断层。很明显,气体的含量急剧增加是在主断层以上。从时间上来讲,该段气体异常开始发生后一星期发生了4月15日甘肃省定西市临洮县的4.5级地震。因此笔者推测,在地震孕育的过程中,由于地壳应力分布的改变,地下气体的运移通道被打开造成气体向上迁移,使断层气体的响应特征提前发生。

根据井深浓度分布图我们推测,两次异常的流体是不同来源的。首先,在乐山5.0级地震期间有大量的H₂和He,而定西4.5级地震期间H₂和He含量基本稳定,两者异常特征不完全一致。如果说1084 m主断层附近的岩层是富含大量气体的,那么定西4.5级地震前的气体异常很可能是该区域气体释放的结果。因此可以说,大地震使富含地下流体的岩层响应特征提前发生。而如果认为乐山5.0级地震气体异常也是1084 m主断层附近气体的释放,那么该异常现象应该是贯穿整段地层的,而不会出现800~931 m气体含量均趋于稳定的情况。根据岩心的情况可以看出,800~931 m岩心较为完整,与推测结果相一致。因此笔者认为,由于800~931 m缺乏地下气体向上运移的通道,乐山地震的气体异常很可能是地震孕育过程中外围气体入侵的结果。

3 结 论

(1)WFSD-4S钻孔的岩性主要以砂岩和板岩为主,在碳含量较高和块状方解石的区域中,高浓度CH₄和CO₂很可能是地层中C和O₂以及泥浆中的

H₂O发生反应产生的,部分CO₂也可能由方解石的分解产生。而地层破碎的区域很可能会大量储存地下流体,造成流体分析数据出现异常。

(2)在WFSD-4S钻进期间发生的两次较大地震前后均出现了流体的异常,其中氦的背景值(44.8±8.5) Bq/m³,而在两次地震期间Rn的日均值基本都达到120 Bq/m³。2015年1月14日四川省乐山市金口河区5.0级地震发生前的半个月,H₂、He、CO₂和Rn含量急剧起伏,并且Ar和CH₄也有明显的增加。根据岩心观察推断1084 m处可能为汶川科钻的主断层,而在断层之上931 m处开始出现了大量的气体异常,该异常发生于2015年4月15日甘肃省定西市临洮县的4.5级地震前一星期,异常主要表现为Rn、Ar、N₂和O₂的波动明显。由此推断,在地震孕育的过程中,由于地壳应力分布的改变,地下气体的运移通道被打开造成气体向上迁移,使断层气体的响应特征提前发生。

参考文献(References):

- [1] 赵振东,王桂莹,赵杰.地震次生灾害及其研究现状[J].防灾减灾学报,2010,26(2):9-14.
Zhao Zhendong, Wang Guixuan, Zhao Jie. Secondary disaster of earthquake and the present research situation[J]. Journal of Disaster Prevention and Reduction, 2010, 26(2): 9-14(in Chinese with English abstract).
- [2] 殷跃平.汶川八级地震地质灾害研究[J].工程地质学报,2008,16(4):433-444.
Yin Yueping. Researches on the geo-hazards triggered by Wenchuan earthquake, Sichuan[J]. Journal of Engineering Geology, 2008, 16(4): 433-444(in Chinese with English abstract).
- [3] 唐力君,劳昌玲,范凡,等.WFSD-4孔深部流体分析和多组分地球化学特征[J].地球学报,2015,36(4):434-440.
Tang Lijun, Lao Changling, Fan Fan, et al. Fluid analysis and multi-component geochemical features in the depth of drill hole WFSD-4[J]. Acta Geoscientica Sinica, 2015, 36(4):434-440(in Chinese with English abstract).
- [4] 缪森,朱守彪.地下流体对地震孕育过程的影响研究综述[J].地球物理学进展,2012,27(3):950-959.
Miao Miao, Zhu Shoubiao. The impact of the underground fluid in the process of earthquake preparation and occurrence: a review[J]. Progress in Geophysics, 2012, 27(3):950-959(in Chinese with English abstract).
- [5] Cicerone R D, Ebel J E, Britton J. A systematic compilation of earthquake precursors[J]. Tectonophysics, 2009, 476(3/4): 371-396.

- [6] 许志琴, 李海兵, 吴忠良. 汶川地震和科学钻探[J]. 地质学报, 2008, 82(12): 1613–1622.
Xu Zhiqin, Li Haibing, Wu Zhongliang. Wenchuan Earthquake and Scientific Drilling[J]. Acta Geologica Sinica, 2008, 82(12): 1613–1622 (in Chinese with English abstract).
- [7] Tang L J, Luo L Q, Lao C L, et al. Real time fluid analysis during drilling of the Wenchuan Earthquake Fault Scientific Drilling Project and its responding features[J]. Tectonophysics, 2014, (619–620): 70–78.
- [8] Li H B, Xu Z Q, Niu Y X, et al. Structural and physical property characterization in the Wenchuan earthquake Fault Scientific Drilling project – hole 1(WFSD– 1) [J]. Tectonophysics, 2014, (619–620): 86–100.
- [9] Xue L, Li H B, Brodsky E E, et al. Continuous permeability measurements record healing inside the Wenchuan earthquake fault zone[J]. Science, 2013, 340(6140): 1555–1559.
- [10] Li Y, Xu Z, Li H. Rock Damage Structure of the South Longmen–Shan Fault in the 2008 Ms8 Wenchuan Earthquake Viewed with Fault– Zone Trapped Waves and Scientific Drilling[J]. Acta Geologica Sinica (English Edition), 2014, 88(2): 444–467.
- [11] 雷建设, 赵大鹏, 苏金蓉, 等. 龙门山断裂带地壳精细结构与汶川地震震机理[J]. 地球物理学报, 2009, 52(02): 339–345.
Lei Jianshe, Zhao Dapeng, Su Jinrong, et al. Fine seismic structure under the Longmenshan fault zone and the mechanism of the large Wenchuan earthquake[J]. Chinese Journal of Geophysics, 2009, 52(02): 339–345(in Chinese with English abstract).
- [12] Zhou X, Du J, Chen Z, et al. Geochemistry of soil gas in the seismic fault zone produced by the Wenchuan Ms 8.0 earthquake, southwestern China[J]. Geochemical Transactions, 2010, 11(5):1–10.
- [13] Zheng G, Xu S, Liang S, et al. Gas emission from the Qingzhu River after the 2008 Wenchuan earthquake[J]. Southwest China. Chemical Geology, 2013, 339: 187–193.
- [14] 谷懿, 葛良全, 王广西, 等. 汶川地震震后大成都地区断裂带活动性氡气测量分析评价[J]. 工程地质学报, 2009, 17(03): 296–300.
Gu Yi, Ge Liangquan, Wang Guangxi, et al. Analysis and evaluation of faults activities in Chengdu region with Radon concentration measurements after Wenchuan earthquake[J]. Journal of Engineering Geology, 2009, 17(03): 296–300(in Chinese with English abstract).
- [15] 唐力君, 李迎春, 王健, 等. 中国大陆科学钻探工程现场实验室采样及样品处理方法探讨[J]. 中国地质, 2006, 33(5): 1174–1179.
Tang Lijun, Li Yingchun, Wang Jian, et al. Sampling and sample treatment in the field lab of Chinese Continental Scientific Drilling Project[J]. Geology in China, 33(5): 1174–1179(in Chinese with English abstract).
- [16] 唐力君, 王健, 王晓春, 等. 汶川地震科学钻探实时流体分析仪器及应用[J]. 分析仪器, 2010, (2): 11–16.
Tang Lijun, Wang Jian, Wang Xiaochun, et al. Real–time fluid analysis instruments and their applications in Wenchuan Earthquake Scientific Drilling[J]. Analytical Instrumentation, 2010, (2): 11–16(in Chinese with English abstract).
- [17] Erzinger J, Wiersberg T, Zimmer M. Real–time mud gas logging and sampling during drilling[J]. Geofluids, 2006, 6(3): 225–233.