

文章编号: 1671-1505(2023)05-1176-23 DOI: 10.7605/gdlxb.2023.05.089

碎屑岩储集层成岩流体类型、年代学 研究方法及地质应用综述^{*}

崔 航^{1,2} 朱世发^{1,2} 高艺珊^{1,2} 董 尧^{1,2}

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 中国石油大学(北京) 地球科学学院, 北京 102249

摘要 成岩流体是控制盆地中物质演变与能量交换的重要媒介, 与盆地内岩石组成、金属成矿、油气成藏等方面密切相关, 具有重要的学术探索意义与实践应用价值。在归纳前人研究成果基础上, 结合国内外典型实例研究, 对碎屑岩储集层成岩流体类型、年代学研究方法及其地质应用展开综述, 最终总结了成岩流体年代学的存在问题与未来展望。总体来看, 碎屑岩成岩流体可划分为原生沉积水、大气水、矿物脱水、烃源岩热演化相关流体、深部热液几种主要类型; 不同类型成岩流体成分特征与主要影响的成岩阶段有所不同, 但普遍会受到包括构造活动、热流事件、沉积作用、疏导体系、埋藏过程等多种因素的控制。针对成岩流体年代学研究, 作者总结了矿物观察法、流体包裹体、碳酸盐矿物定年法(同位素稀释法、ESR测年法、激光剥蚀原位U-Pb法)、自生伊利石⁴⁰K/⁴⁰Ar与³⁹Ar/⁴⁰Ar定年法、钾长石自生加大⁴⁰K/⁴⁰Ar与³⁹Ar/⁴⁰Ar定年、富有机质沉积物Re-Os定年等分析测试的原理、主要特点、样品要求、适用成岩流体类型等, 并归纳了成岩流体年代学在确定地层沉积年龄、恢复成岩流体演化史、确定脆性构造活动时限以及判断油气充注时间等方面的地质应用潜力。

关键词 碎屑岩 储集层 成岩流体 年代学 地质应用 成岩演化

第一作者简介 崔航, 男, 1995年生, 博士研究生, 主要研究方向为储集层地质学与沉积学。E-mail: 2018211056@student.cup.edu.cn。

通讯作者简介 朱世发, 男, 1982年生, 博士, 教授, 主要从事储集层地质学与沉积学的教学与科研工作。E-mail: zhushifa_zsf@163.com。

中图分类号: P588.2 **文献标志码:** A

Review of fluid flow types, chronological methods and geological applications in siliciclastic reservoirs

CUI Hang^{1,2} ZHU Shifa^{1,2} GAO Yishan^{1,2} DONG Yao^{1,2}

1 National Key Laboratory of Petroleum Resources and Engineering, China University of Petroleum (Beijing), Beijing 102249, China

2 College of Geosciences, China University of Petroleum (Beijing), Beijing 102249, China

Abstract Fluid flow is an important medium controlling material evolution and energy exchange, and is closely related to rock composition, metal mineralization, and hydrocarbon reservoir accumulation in sedimentary basins, and therefore has high significance for exploration and practical application. By

* 国家自然科学基金项目(编号: 42272109, 41872102)资助。[Financially supported by the National Natural Science Foundation of China (Nos. 42272109, 41872102)]

收稿日期: 2022-12-15 改回日期: 2023-02-20

summarizing the previous research achievements and combining with the typical case studies, the fluid flow types, chronological methods and geological applications in siliciclastic reservoirs were reviewed. Finally, the existing problems and prospects of diagenetic fluid chronology were summarized. In general, fluid flow of clastic rocks can be classified into several main types: connate water, meteoric water, water from dehydration of minerals, fluid related to thermal evolution of source rocks, and deep hydrothermal fluid. The composition characteristics of different types of fluid flow and the main influencing diagenetic stages vary, but they are generally controlled by a variety of factors including tectonic activity, tectono-thermal events, sedimentation, transport systems, and burial history. For diagenetic fluid chronology, the authors summarized the principles, main characteristics, sample requirements, applicable diagenetic fluid types about mineral observation method, fluid inclusion, calcite mineral dating (isotopic dilution method, ESR method, LA-ICP-MS method), authigenic illite $^{40}\text{K}/^{40}\text{Ar}$ and $^{39}\text{Ar}/^{40}\text{Ar}$ dating, potassium feldspar overgrowth $^{40}\text{K}/^{40}\text{Ar}$ and $^{39}\text{Ar}/^{40}\text{Ar}$ dating, organic-rich sediment Re-Os dating and other analytical techniques. Moreover, the geological application of diagenetic fluid chronology for determining the sedimentary age of strata, recovering the evolutionary history of diagenesis, determining the precise time of brittle tectonic activity, and determining the timing of hydrocarbon charging was summarized.

Key words clastic rocks, reservoir, fluid flow, chronology, geological application, diagenetic evolution

About the first author CUI Hang, born in 1995, is a Ph.D. candidate. He is mainly engaged in reservoir geology and sedimentology. E-mail: 2018211056@student.cup.edu.cn.

About the corresponding author ZHU Shifa, born in 1982, is a Ph.D. supervisor and professor. He is mainly engaged in teaching and researches on reservoir geology and sedimentology. E-mail: zhushifa_zsf@163.com.

1 概述

中国碎屑岩储集层地质条件极其复杂,有着层系多、厚度大、埋藏深、岩石组构庞杂、成岩类型多样等特征,这为碎屑岩油气藏的勘探开发带来了很大的困难(罗静兰等,2020)。贯穿于含油气盆地碎屑岩储集层形成整个过程的成岩作用,对于优质储集层形成和发育有着关键性的控制作用,进而成为储集层演化、储集层质量控制机理以及有效储集层预测的重要研究内容(李忠等,2006)。现如今碎屑岩成岩作用研究已逐步向与流体—岩石相互作用的成岩流体系统及其时空演变机制研究方向发展(罗静兰等,2020)。作为物质与热量交换的媒介,成岩流体与岩石矿物之间会发生一系列相互作用,进而引起岩石中不同类型矿物的溶解和沉淀(Winter *et al.*, 1995)。碎屑岩储集层中成岩流体及其响应特征是一个十分复杂的动态地球化学过程,会受到构造活动、热流事件、沉积作用、输导体系、埋藏过程等多种因素控制(图1),并与含油气盆地的油气生成、运移与成藏密切相关(金之钩

等,2013)。准确判断成岩流体类型与年代,对于预测有利储集层分布、揭示盆地成岩、成藏过程有着重要意义(Bjørlykke, 1994)。因此,系统梳理碎屑岩储集层成岩流体领域的主流观点与典型研究案例,对于碎屑岩储集层成岩作用研究至关重要,并具有重要的学术探索意义与实践应用价值。

在归纳总结前人研究成果与认识基础上,首先介绍了碎屑岩储集层成岩流体的主要类型(图1),随后论述碎屑岩成岩流体年代学研究进展,重点介绍矿物观察法、流体包裹体法与多种自生矿物(方解石、伊利石、钾长石等)同位素年代学的方法技术及其地质应用,并指出成岩流体年代学研究存在的关键问题与未来发展,以期为成岩流体相关科研工作提供参考。

2 碎屑岩成岩流体类型

根据流体物理性质,地球中的流体主要分为气态流体、液态流体、超临界流体(气态、液态流体在超临界温度与压力下形成的特殊流体)与塑

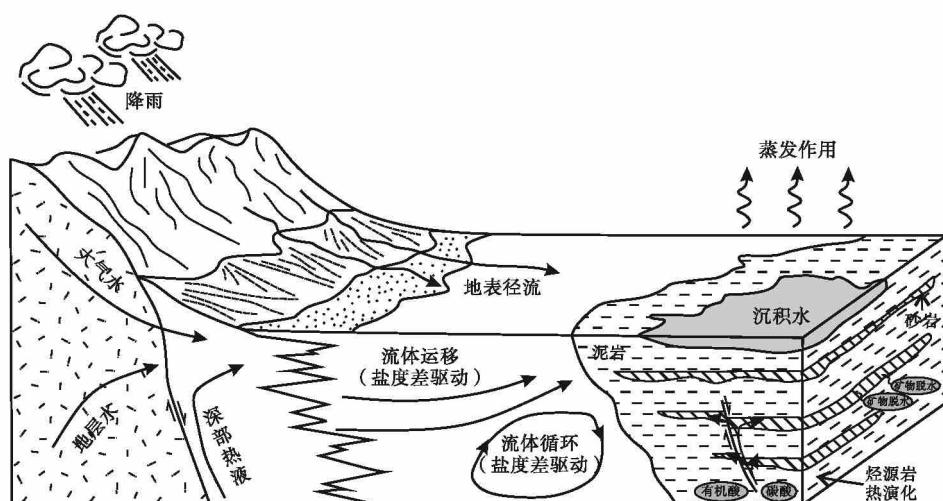


图 1 封闭盆地的水文特征与流体类型 (据 Jones and Deocampo, 2003; 有修改)

Fig. 1 Hydrologic features and fluid flow types of closed basins (modified from Jones and Deocampo, 2003)

性状态地质体 (软流圈等) 4类。碎屑岩成岩流体主要以液态流体为主，并可进一步分为水相流体与非水相 (烃类) 流体。本小节将主要针对碎屑岩成岩流体中的水相流体类型展开介绍。

2.1 原生沉积水

原生沉积水是指沉积物发生初始沉积时赋存在沉积物孔隙之间的流体，可以代表初始沉积环境 (海水、湖水等) 的水体特征 (Bjørlykke, 2015; 马奔奔, 2016)。通常原生沉积水的化学组成与蓄水盆地沉积时期的水体保持一致，成分极其复杂 (以海水为例：含有约 3.5 wt% NaCl，并包含大量的 Mg^{2+} 、 Ca^{2+} 、 K^+ 、 Sr^{2+} 、 Cl^- 、 SO_4^{2-} 、 HCO_3^- 等)。原生沉积水在碎屑岩储集层的早期成岩作用中有着

重要的影响 (图 2)，微生物参与下岩石会发生一系列的次级反应过程，导致孔隙水元素的氧化还原反应以及同位素分馏，并可在沉积物中产生新的记录，与此同时还伴随有自生矿物的生成 (董宏坤等, 2022)。由于不同沉积环境中原生沉积水化学组成存在很大不同，这势必会导致早期成岩改造的差异性，例如：Amthor 和 Okkerman (1998) 认为荷兰北部下二叠统赤底统砂岩中，白云石与硬石膏胶结物的形成与沉积期陆缘沙漠/干盐湖的沉积环境密切相关，由于蒸发环境导致原生沉积水 Ca^{2+} 、 Mg^{2+} 、 Na^+ 、 K^+ 、 SO_4^{2-} 和 Cl^- 等离子浓度较高，并造成了各种矿物的沉淀；而在海洋沉积环境中，随着一系列氧化还原反应的进行，早期成岩过程中沉积物中更倾向于形成硫化物与自生碳酸盐矿物

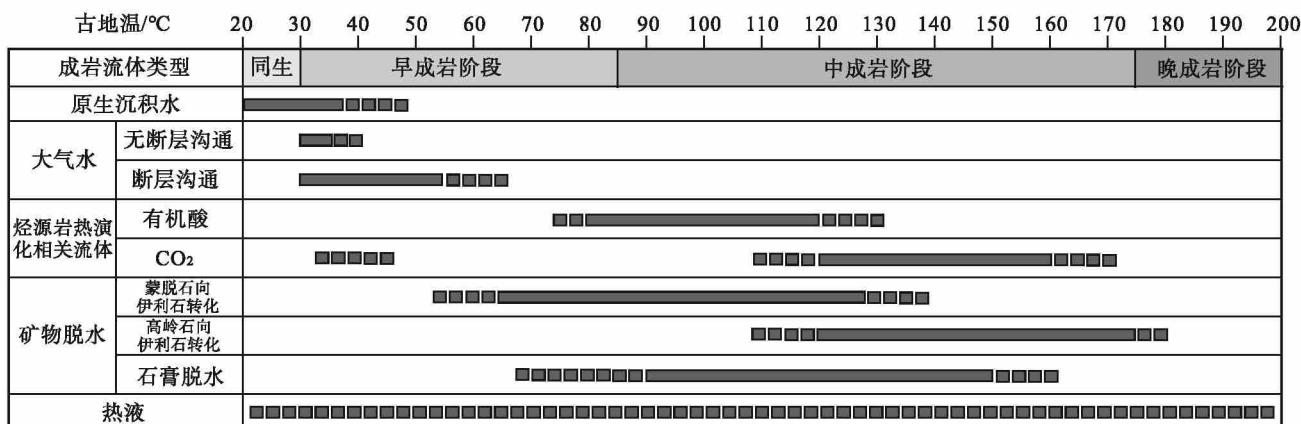


图 2 不同成岩流体类型与其主要影响成岩阶段关系

Fig. 2 Different fluid flow types and their main influencing stages on diagenetic evolution

(董宏坤等, 2022)。

随着埋藏作用的开始, 原生沉积水的化学成分就会发生显著变化(图3)。这一方面是因为大气水可以在重力与毛细管力的作用下渗透到孔隙水之中, 进而对沉积盆地产生重要影响 (Bjørlykke, 2015); 另一方面, 原生沉积水与碎屑岩中的矿物组分会发生水岩反应, 进而改变孔隙水的离子浓度, 这在不稳定碎屑组分 (如火山碎屑、斜长石等) 占比较高的岩石中尤为显著 (Murray *et al.*, 2018)。

2.2 大气水

大气水是指大气降水渗入地层后, 在重力驱动下对沉积孔隙水不断补给的流体类型, 其不仅会影响陆相地层与海陆过渡相地层, 在海相地层中同样存在大气淡水 (Morad *et al.*, 2000)。大气降水能从空气中吸收 CO_2 和 SO_2 并转化为碳酸 (H_2CO_3) 与硫酸 (H_2SO_4), 因此大气水通常呈微酸性, 当大气水进入碎屑岩储集层中, 其会沿着渗透率最高的输导层流入沉积盆地, 并首先溶解碳酸盐矿物, 随后慢慢溶解不稳定的硅铝酸盐矿物, 如长石和云母等 (França *et al.*, 2003)。这个过程对碎屑岩储集层中次生孔隙的发育有着重要作用 (操应长等, 2022)。在地层近水平且缺乏断层沟通的情况下, 大气水的影响深度范围最大可达几百米 (França *et al.*, 2003), 而在断层沟通的条件下, 大气水的

影响深度范围甚至可以达到 1000~1500 m (Yuan *et al.*, 2017)。纵向上大气水影响的矿物溶蚀强度也存在差异性, 浅埋藏条件下岩石处于相对开放的成岩系统, 溶蚀产物在流体作用下易被带出, 因此溶蚀能力较强, 但随着大气水的下潜, 相对封闭的成岩系统会限制溶蚀产物的带出进而导致溶蚀能力的下降 (马奔奔, 2016)。

虽然在大气水淋滤作用的影响下, 碎屑岩储集层能形成大量次生孔隙, 但该溶蚀作用主要发生于早成岩阶段(图2)。随着埋藏深度的加大, 大气淡水溶蚀作用会因后期成岩改造 (包括压实作用、各种类型胶结作用、有机酸溶蚀作用等) 而失去明显的识别标志。因此, 如何对大气淡水溶蚀作用进行量化评估, 以及如何有效区分有机酸与大气淡水溶蚀作用, 仍然是碎屑岩成岩作用研究领域的一个难点。

2.3 矿物脱水

矿物脱水转化过程的实质是矿物晶格的破坏或重新结晶。不同矿物的脱水转化过程主要受温度、压力、孔隙流体性质、原始矿物组成等多因素控制。碎屑岩储集层的矿物脱水转化主要发生于黏土矿物与石膏矿物之中。

随着埋藏过程与地温的增加, 蒙脱石会逐渐转变为伊利石, 该过程主要包括 2 种转换方式: 第 1 种转化方式需要 Al_2O_3 的供应来实现, 第 2 种转化

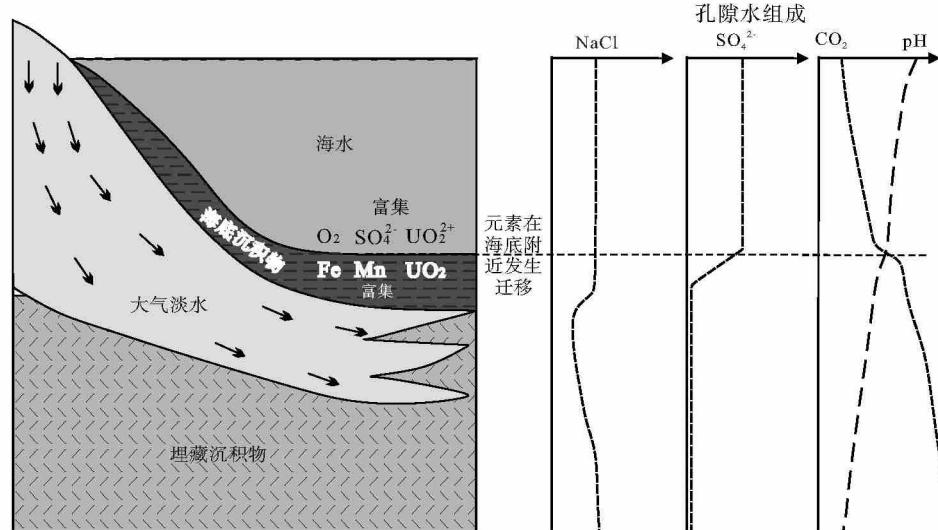
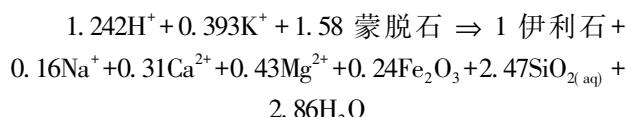
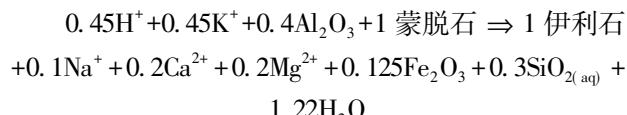


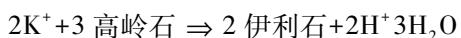
图 3 沉积盆地中海底附近沉积物孔隙水组成受成岩反应与大气淡水供应控制 (据 Bjørlykke, 2015; 有修改)

Fig. 3 Composition of porewater in sediments near seafloor is influenced by diagenetic reaction and supply of freshwater into sedimentary basins (modified from Bjørlykke, 2015)

方式则产生更多的 H_2O 与 SiO_2 (Worden and Morad, 2009) :

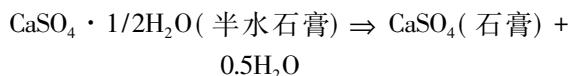
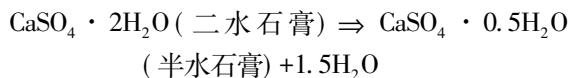


该过程无论以何种方式发生, 蒙脱石的伊利石化都是一个渐进的过程 (温度介于 50~140 °C 之间, 图 2; Chuhuan *et al.*, 2000), 起初蒙脱石与转化的伊利石是无序的, 但随着温度的升高逐渐变得有序。该反应所需的 K^+ 可从钾长石的局部溶解中获得, 同时可以释放出大量的 Mg^{2+} 、 Fe^{2+} 、 Na^+ 和 Ca^{2+} , 进而为原岩或相邻岩石中自生矿物的形成提供物质基础 (Zhu *et al.*, 2019)。除此之外, 高岭石也可能通过外部来源的 K^+ 进行伊利化反应并释放出 H_2O (Gaupp *et al.*, 1993) :



目前普遍认为, 高岭石发生伊利化的最低温度约为 120 °C (Scotchman *et al.*, 1989), 然而, 在世界各地的沉积盆地中已经描述了许多与此观点不符的实例, 并表明高岭石的伊利石化可能与构造活跃期导致的热流增加和强烈的断裂活动有关 (Lanson *et al.*, 1998)。

若沉积时期的海水或者湖水处于强烈的蒸发条件下, Ca^{2+} 与 SO_4^{2-} 的浓度达到饱和时可形成石膏胶结物 (谭先锋等, 2016), 此条件下形成的石膏胶结物通常被认为是原生成因的 (Jowett *et al.*, 1993)。当埋藏温度逐渐升高, 石膏矿物会发生脱水反应并转换为硬石膏:

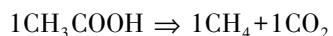


普遍认为石膏脱水反应的开始温度在 90 °C 左右, 并在 150 °C 可完成大规模的脱水反应 (Ostroff, 1964), 但也有学者认为该反应可能在 45~50 °C 即可发生 (谭先锋等, 2016)。当石膏完全转化为硬石膏时, 可释放出原石膏体积占比约为 39% 的结晶水 (Jowett *et al.*, 1993), 该脱水反应可能还会伴随着 Ca^{2+} 、 K^+ 、 Na^+ 、 SO_4^{2-} 等多种离子的

释放, 且释放出的结晶水主要偏碱性, 因此对自生碳酸盐矿物的形成、硫酸盐矿物的重新沉淀以及自生石英胶结物的溶蚀有着重要影响。

2.4 烃源岩热演化相关流体

不同类型干酪根在热催化降解过程中可产生和溶解有机酸, 通过油田水成分检测发现地质条件下有机酸主要以小分子羧酸为主, 其中乙酸和甲酸含量最高, 丙酸次之 (Surdam *et al.*, 1989)。有机酸的形成和产率主要受烃源岩类型、丰度与成熟度影响 (主要受地温控制), 其中最重要的因素为温度。在全球范围内含油气盆地的地层水中均含有一定量的烃源有机酸, 并普遍在地温介于 80~120 °C 之间时有着最高的浓度 (图 4-A); 当地温低于 80 °C 时, 尽管有机质降解过程同样能产生少量的羧酸根离子, 但细菌活动会将这些短链有机基团消耗, 使得它们保持在相对较低的水平; 而当地温高于 120 °C 时, 羧酸根会发生脱羧反应, 导致 CO_2 大量释放 (Kawamura and Kaplan, 1987) :



随着温度的升高, 该反应会不断进行, 使得地层中 CO_2 分压的逐渐增大, Franks 和 Forester (1984) 对得克萨斯州墨西哥湾 Wilcox 组不同深度的 CO_2 含量进行的统计结果印证了该结论 (图 4-B)。

烃源岩热演化产生的有机酸及其脱羧反应生成的碳酸可对碎屑岩储集层中的易溶矿物产生强烈的溶蚀作用。其中有机酸释放 H^+ 的能力是碳酸的 6~350 倍, 能够对碎屑岩储集层中的长英质和碳酸盐矿物产生强烈溶蚀, 并提供大量次生孔隙 (Kawamura and Kaplan, 1987); 有机酸对长石矿物的溶蚀已受到广泛研究, 普遍认为长石的溶蚀与有机酸类型、有机酸浓度和地层温度有关, 并且会受到长石表面阳离子络合作用影响; 而有机质热演化生成碳酸的溶蚀能力相对有限, 主要会造成碳酸盐矿物的溶解。在“富长石—碳酸盐矿物”体系中, 烃源有机酸及其脱羧反应生成的碳酸对矿物的溶蚀顺序一直是有争议的问题。近些年 Yuan 等 (2015) 对“富酸流体—长石—碳酸盐矿物”体系进行了大量研究, 并认为受有机酸影响的地层普遍处于相对封闭的成岩环境, 该环境下长石溶蚀的化学反应平衡常数要比碳酸盐矿物高 3~5 个数量级, 虽然长石溶蚀的速率相对缓慢, 但能够长期进行;

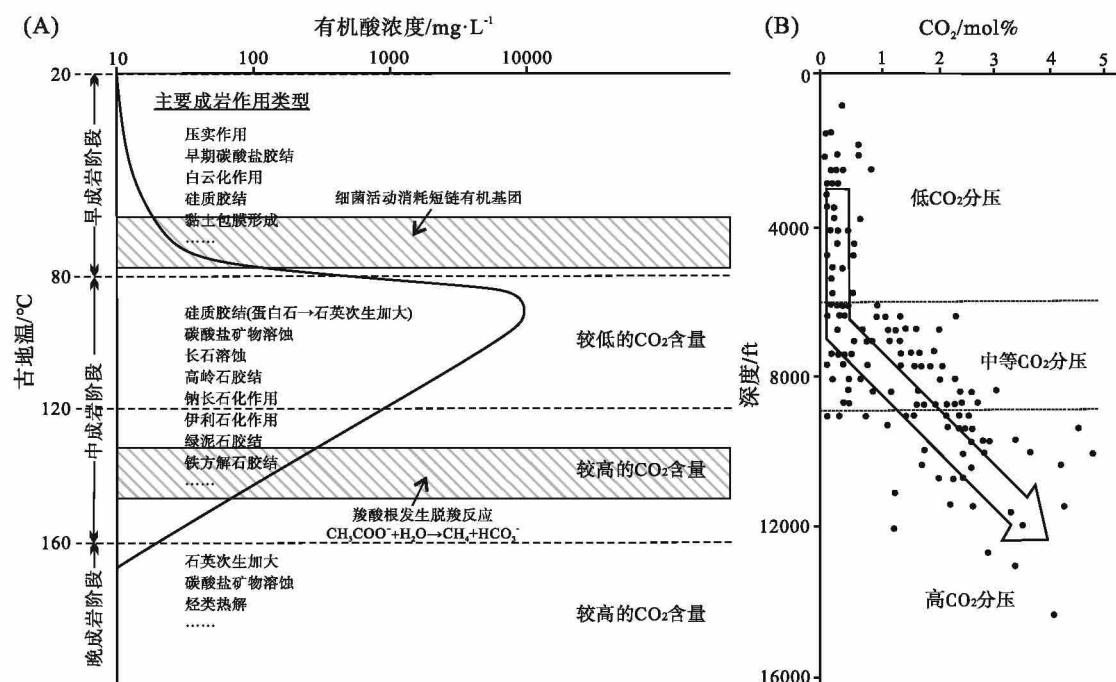


图 4 (A) 地层水中有机酸浓度—温度曲线及对应的常见成岩反应类型 (据 Surdam *et al.*, 1989; 有修改); (B) 得克萨斯州墨西哥湾沿岸 Wilcox 组气体中二氧化碳的摩尔百分比与深度散点图 (数据来自 Franks 和 Forester, 1984)

Fig. 4 (A) Commonly observed diagenetic reactions superimposed on concentration vs. temperature curve for organic acids in oil-field waters (modified from Surdam *et al.*, 1989); (B) Mole % CO₂ from gases vs. depth of the Wilcox Formation, Texas Gulf Coast
(Data is from Franks and Forester, 1984)

而长石溶蚀的结果会导致流体系统中富含 HCO₃⁻, 这反而会抑制碳酸盐矿物溶蚀作用的进行。最终导致储集层中长石普遍发生强烈溶蚀, 但碳酸盐矿物溶蚀程度偏低。

2.5 深部热液

“热液”一般指相对于围岩地层温度更高的水溶液, 而一种矿物只要在能够证明它是相比于围岩更高的温度下形成的 (5~10°C), 就可以被称为“热液矿物”, 无论其流体来源与驱动机制如何 (Machel and Lonnee, 2002), 因此热液可能发生于碎屑岩成岩演化的各个阶段(图 2)。前人将国内深部热液研究领域总结为以下 4 个方面 (曹江骏等, 2022):

1) 热流体运移机制。影响碎屑岩储集层的热流体普遍来自于盆地基底以下, 主要为深部地壳热流体与上地幔热流体, 并普遍与岩浆—火山活动有关 (朱世发等, 2020; 袁静等, 2022)。热液流体具有深部向浅部活动的特征 (Cai *et al.*, 2008), 主要以垂向对流、侧向对流及垂向侧向合对流的形式运移 (解习农等, 2009)。

2) 热流体的识别与示踪。与热液活动相关的碎屑岩储集层岩石学、矿物学与地球化学特征可为热液活动的鉴别提供大量证据。在岩石学方面, 热液流体会改变围岩的颜色与岩石结构, 使得碎屑岩发生褪色现象, 并伴随有热碎裂结构、斑马状结构与拉伸结构等 (侯中帅等, 2019)。在矿物学方面, 热流体作用会在储集层中形成一系列特征性矿物组合, 包括片钠铝石、鞍状白云石、黄铁矿、磷灰石、绿泥石、沸石等 (张月霞等, 2018; Zhu *et al.*, 2020a); 与热液活动相关的自生矿物中, 包裹体温度可能偏高, 甚至可以高于碎屑岩储集层埋藏史中的最大古地温 (袁静等, 2022); 此外, 热液流体会影响黏土矿物的演化进程, 导致伊蒙混层中伊利石占比的突增以及绿泥石与高岭石共存的现象 (袁静等, 2022)。在地球化学方面, 热流体活动上涌过程中可携带大量无机组分, 这些微量元素与岩石接触必然会发生物质交换, 导致热液矿物出现某些稀士元素与微量元素的异常 (Bau, 1996); 而且不同来源的碳酸盐矿物与硫酸盐矿物的 $\delta^{13}\text{C}$ 、 $\delta^{18}\text{O}$ 和 $\delta^{34}\text{S}$ 存在着明显差异 (侯中帅等, 2019),

例如：蒸发作用下硫酸盐化学沉淀不产生明显的同位素分馏效应，其 $\delta^{34}\text{S}$ 组成可代表沉积水的同位素组成，范围普遍介于 $10\text{‰} \sim 30\text{‰}$ 之间，但深源热液相关的 $\delta^{34}\text{S}$ 组成一般为 $-3\text{‰} \sim 3\text{‰}$ (袁波等, 2008)。

3) 热流体对储集层的影响。深部流体可富含 CO_2 与无机氯气等挥发分、各种金属离子 (Ca^{2+} 、 Mg^{2+} 等) 以及大量的热能 (Bell and Rossman, 1992; 金之钧等, 2013)，流入沉积盆地后会打破原有流体与岩石之间的物理化学平衡，从而对碎屑岩储集层产生强烈的影响 (刘全有等, 2019)。在中国，诸多学者针对不同地区 (莺歌海盆地、珠江口盆地、塔里木盆地、苏北盆地、渤海湾盆地、二连盆地等) 热液对碎屑岩储集层的影响进行过深入讨论，普遍认为热液对储集层的影响具有“两面性”。以珠江口盆地白云凹陷珠海组为例，罗静兰等 (2019) 研究认为白云凹陷高地温梯度区域会受到深部热流体影响，含 CO_2 热流体沿深大断裂与气烟囱向上运移，并可将 Fe^{2+} 、 Al^{3+} 、 Na^+ 等离子带入储集层孔隙水中，因此较高的 CO_2 分压与金属阳离子的参与，促使铁白云石、菱铁矿以及各种热液矿物形成，对储集层的孔隙空间产生了破坏；但另一方面，热液流体会使得烃源岩的排烃门限深度变浅，储集层在较浅部位即可达到较深的成岩阶段，可溶矿物更易发生溶蚀并形成次生孔隙发育带。

4) 热流体充注时间判断。前人一般通过火山活动时间与最高大地热流值时间，结合岩浆岩年龄完成间接性判断。作者将介绍利用多种热液矿物 (方解石脉、自生伊利石等) 同位素成岩流体年代学的研究方法，详细内容请见下文。

2.6 其他类型

除以上常见的成岩流体类型以外，碎屑岩储集层研究中还存在其他类型的成岩流体。例如：在柴达木马海盆地深部砂砾岩中发现了大量孔隙卤水，具有富水性强、矿化度高、结盐程度低和易开发等特点，并成为了新型的钾盐矿资源，其物质来源主要为赋存于更新统砂砾石层中的孔隙水蒸发残余，并受到相邻盐岩溶滤，进而形成了混合成因的多源性卤水 (岳鑫等, 2019)。

这里仅是对碎屑岩中几种常见的成岩流体类型

进行了介绍，但碎屑岩成岩流体类型远不止此。

3 碎屑岩成岩流体年代学研究方法

在碎屑岩成岩流体研究领域中，国内外学者在传统岩石学手段的基础上，正尝试利用流体包裹体与多种自生矿物同位素定年技术来划分流体活动期次，并完成流体活动绝对年龄的判断。笔者将对碎屑岩成岩流体年代学研究方法进行总结，重点阐述各种方法原理、适用的成岩流体类型、主要优点、限制条件等(表 1)。

3.1 矿物观察法

矿物显微观察是碎屑岩成岩作用研究的重要手段，包裹体与多种自生矿物同位素定年实验的成功在很大程度上都取决于常规岩矿工作的细致程度。在所有岩矿观察实验中，偏光显微镜是最基础、但也是最重要的。在薄片观察中要尽可能地把握所有矿物的晶体形态、粒度大小及光性特征等，识别矿物类型并分清碎屑组分与自生组分，分析并明确不同矿物之间的包裹关系、交代关系、截切关系等生长关系。若偏光显微镜无法满足上述需求，还可以利用阴极发光识别自生矿物的生长期次、利用扫描电镜附加能谱识别矿物的晶体形态与成分特征，若有必要可进一步采用电子探针进行更精准的成分确定。虽然矿物观察法无法展开准确的成岩流体年代学鉴定，但可对不同种类自生矿物形成的先后顺序进行判断，可以说常规矿物观察法是碎屑岩储集层成岩流体年代学的研究基础且是十分重要的环节。

3.2 流体包裹体法

当碎屑岩开始进入到埋藏阶段，或当沉积盆地受到深部热流体影响时，一系列成岩反应都会在成岩流体影响下随之发生，包括矿物的溶解以及长石、石英和碳酸盐等矿物的胶结作用。这些成岩流体有 3 个最基本的特征——温度、盐度和压力，而这 3 个参数均能通过流体包裹体分析获得。其中将包裹体均一温度与盆地埋藏史、热史相结合，进而厘定成岩流体年代已成为了广泛的研究手段 (Worden *et al.*, 1999)，含油气盆地中不同种类的成岩流体会在地质历史时期发生运移和聚集，并在岩石的自生矿物中保有流体包裹体记录，通过对流体包裹体的解读可以获得流体运移的温度信息，结

表1 成岩流体年代学研究方法、适用条件及主要特点

Table 1 Analytical techniques, applicable conditions and main characteristics of fluid flow chronology

流体年代学研究方法	适用成岩流体类型	主要特点	代表性文献
矿物观察法	几乎可对所有类型流体进行定性判断	样品制备简单,操作难度低; 但只能根据矿物的生长与截切关系进行定性判断	/
流体包裹体法	能够形成自生矿物的流体类型: 如深部热液、矿物脱水、大气水、有机酸等, 最优主矿物为石英, 其次为长石或碳酸盐矿物	是流体年代学最常用的方法, 一般以与烃类包裹体伴生的盐水包裹体作为测试对象; 但需要严格遵守 Roedder 三大原则, 并结合地区埋藏演化史与热史, 在构造埋藏史复杂的地区适用性较差	Worden <i>et al.</i> , 1999; Burruss, 2003
同位素稀释法	与构造—热液活动相关的单一期次流体, 研究对象多为沿断裂生长碳酸盐脉体	是最早应用于碳酸盐矿物高精度定年的方法之一, 可以增加测试样品量来提高信号的强度; 但样品处理要求极高, 测试周期长、流程复杂	Moorbath <i>et al.</i> , 1987
碳酸盐矿物定年法	与构造—热液活动相关的单一期次流体, 研究对象多为沿断裂生长碳酸盐脉体	主要应用于第四系古生物遗址化石的准确定年领域, 成岩流体方向应用较少	王鹏昊等, 2013
激光剥蚀法	可形成碳酸盐脉体或纯净基底式碳酸盐胶结物的流体类型: 如原生沉积水、深部热液、矿物脱水等	样品处理要求较低, 操作灵活度高, 具有较高的空间分辨率, 成本较低且分析速度快, 可实现微区分析; 但在标样选择、低 U 样品测试等方面仍有发展空间	Roberts and Walker, 2016; Nuriel <i>et al.</i> , 2017
伊利石定年法	与自生伊利石形成相关的流体类型, 多与构造—热液活动或早期大气水溶蚀有关	可采用 $^{40}\text{K}/^{40}\text{Ar}$ 法和 $^{39}\text{Ar}/^{40}\text{Ar}$ 法测定, 适用性广泛; 但需要将碎屑伊利石与自生伊利石进行严格分离	van der Pluijm <i>et al.</i> , 2001
钾长石定年法	与自生钾长石形成相关的流体类型, 多与构造—热液活动或早期大气水溶蚀有关	钾长石次生加大是定年的首选类型, 适合用激光原位 $^{40}\text{Ar}/^{40}\text{Ar}$ 定年法进行分析	Sherlock <i>et al.</i> , 2005
富有机质沉积物 Re-Os 定年法	受控于原生沉积水条件下形成的富有机质沉积物, 不能受到明显的风化作用	需要富有机质沉积物在埋藏阶段处于相对封闭的成岩系统中, 优先考虑新鲜的钻井岩心样品	Ravizza and Turekian, 1989

合区域埋藏演化史可以达到判断成岩流体年限的目的 (Roedder, 1979; Burruss, 2003; 王飞宇等, 2018)。该方法的精确度主要取决于 2 个方面, 即流体包裹体均一温度的可靠性与盆地埋藏史的准确性 (王飞宇等, 2018)。测温分析前首先需要对流体包裹体的岩相学特征进行分析, 因为依据包裹体岩相学基础关系可判断所得出的流体包裹体数据是否正确和可靠, 以及根据这些资料所做出的解释是否合理、可行和有意义 (卢焕章, 2014)。

包裹体岩相学观察主要目的有 2 个: 其一为鉴定包裹体的成分与相态, 其二为揭示包裹体与宿主矿物的关系, 识别继承性包裹体和成岩包裹体 (卢焕章, 2014)。含油气盆地包裹体可分为单相烃类包裹体、气液两相烃类包裹体、含气盐水包裹体、含水烃类包裹体等, 其中显微测温的对象是与烃类包裹体共生的均相捕获的盐水包裹体 (王飞宇等, 2018)。由于烃类包裹体有明显的荧光特性, 因此可使用紫外线照明 (波长约 365 nm), 将烃类包裹体与盐水包裹体区分开, 而且包裹体的荧光颜色变化可以指示其热成熟度特征 (陈红汉,

2014) (表 2); 流体包裹体中的气相可能是 H_2 、 N_2 、 Ar 、 CO_2 、 CH_4 、 N_2 、 H_2S 等, 利用包裹体均一温度测定、恢复天然气成藏记录时, 天然气包裹体应均为气相且成分以富含甲烷为主, 该过程可通过拉曼光谱的定量—半定量研究实现。对于不同种类包裹体的识别, Goldstein (2003) 总结了原生、次生和假次生流体包裹体的判断标准, Bodnar (1994) 也对包裹体成因以及不同类型流体包裹体的生长关系进行过详细的描述, 卢焕章 (2014) 以应用实例的形式阐述了区分原生和次生流体包裹体方法以及流体包裹体与主矿物之关系, 在此不再

表2 原油荧光颜色特征随 API 的变化特征

Table 2 Difference in color of fluorescence of petroleum oils according to the change in their API gravity

API / (°)	荧光颜色特征
< 15	棕色
15~25	橘黄色
25~35	黄色
35~45	白色
> 45	蓝色—亮蓝色

赘述。

尽管流体包裹体测温研究已经是一个较为成熟的领域,但在实验操作与数据处理上仍然存在很多错误的认识。流体包裹体分析要严格遵守 Roedder 三大原则,即均相体系、封闭体系与等容体系(Roedder, 1979),否则显微测温的数据可能会出现明显偏高或高度离散的现象,导致成岩流体年代分析可信度较差(王飞宇等, 2018)。因此在显微测温的过程中要尽可能做到:(1)进行详细的包裹体岩相学观察,保证测温数据均来自于与烃类包裹体共生的均相捕获的盐水包裹体;(2)以流体包裹体组合(FIA, 宿主矿物中同一个生长带同时捕获的一系列流体包裹体)为基本单位进行流体包裹体分析和解释,因为同一 FIA 中数据的变化会提醒研究人员对数据可靠性进行推断,以保障数据的准确性;(3)在有多种包裹体宿主矿物可以选择时,尽可能选在石英,其次为碳酸盐和重晶石矿物,不建议对长石胶结物包裹体进行测温,因为长石胶结物包裹体通常气泡大小不均一、形状非常不规则、密封性差,很可能带来误导性数据。

另一方面,盆地埋藏史的准确性同样至关重要。部分沉积盆地埋藏史十分复杂,后期会受到多次构造沉降—抬升的影响,使得埋藏史与热史恢复难度大大增加,而且对于盆地演化期间存在底部热流的地区,流体包裹体法恢复的流体活动时间往往得出错误结论。因此,流体包裹体法分析成岩流体年代在构造埋藏史复杂的地区是存在一定局限性的(刘恩涛等, 2019)。

在获得盐水包裹体均一温度数据后,还可以进一步利用烃类流体包裹体和盐水包裹体不混溶捕获而展开烃类流体的 PVT 热力学模拟(斯尚华等, 2017)。流体包裹体 PVT 模拟主要是利用共聚焦激光扫描显微镜等实验设备,通过获得单个油流体包裹体成分、气液比和与其共生盐水包裹体的均一化温度,按相态模拟软件(PVTsim, VTflinC、PIT 等软件)算出的压力数据(Aplin et al., 1999),从而对含油气盆地油气充注条件完成进一步的评价。

3.3 碳酸盐矿物定年法

碳酸盐矿物是存在于碎屑岩储集层中最常见的自生胶结物之一,若利用碳酸盐矿物进行成岩流体年代判断,首先要根据区域地质背景,并结合岩石学和地球化学手段确定方解石的成因,随后才能进

行年龄解释(韩志宇等, 2022)。目前常用的碳酸盐矿物定年法包括同位素稀释法、电子自旋共振测年法与激光剥蚀法。

3.3.1 同位素稀释法

同位素稀释法是建立高精度年龄序列时最常用方法之一(Smith et al., 1991)。该方法需在分析样品中加入已知量的某一标记同位素,使其与样品同位素均匀混合,提纯并测定样品放射性比度进而计算该同位素在试样中的含量(Moorbath et al., 1987)。Moorbath 等(1987)首次将同位素稀释法应用于津巴布韦南部 Mushandike 石灰岩的年龄测定,并获得了 2839 ± 33 Ma 的 Pb-Pb ($^{207}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$ vs $^{206}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$) 等时线年龄,开启了方解石 U-Pb 测年的大门。U-Pb 定年法是利用母体同位素(^{238}U 和 ^{235}U)随时间的衰变和子体同位素(^{206}Pb 和 ^{207}Pb)随时间的累积,随后对子体与母体含量进行对比来计算年龄的方法(高伊雪等, 2022),衰变方程为:

$$\begin{aligned} N(^{206}\text{Pb})_m &= N(^{206}\text{Pb})_i + N(^{238}\text{U}) (e^{\lambda_{238}t} - 1) \\ N(^{207}\text{Pb})_m &= N(^{207}\text{Pb})_i + N(^{235}\text{U}) (e^{\lambda_{235}t} - 1) \end{aligned}$$

^{204}Pb 是 Pb 同位素中唯一稳定的非放射性成因同位素,每个样品中现今 ^{204}Pb 含量与初始值保持一致,因此有:

$$\begin{aligned} (^{206}\text{Pb}/^{204}\text{Pb})_m &= (^{206}\text{Pb}/^{204}\text{Pb})_i + ^{238}\text{U}/^{204}\text{Pb} (e^{\lambda_{238}t} - 1) \\ (^{207}\text{Pb}/^{204}\text{Pb})_m &= (^{207}\text{Pb}/^{204}\text{Pb})_i + ^{235}\text{U}/^{204}\text{Pb} (e^{\lambda_{235}t} - 1) \end{aligned}$$

其中, $N(^{206}\text{Pb})_m$ 与 $N(^{207}\text{Pb})_m$ 为现今岩石中 Pb 同位素的含量, $N(^{206}\text{Pb})_i$ 与 $N(^{207}\text{Pb})_i$ 为岩石形成初期 Pb 同位素的含量, $N(^{238}\text{U})$ 与 $N(^{235}\text{U})$ 为现今岩石中 U 同位素的含量, λ_{238} 与 λ_{235} 分别为 ^{238}U 和 ^{235}U 的衰变常数, t 是矿物形成的年龄。在该理论下,实验结果能产生 3 个同位素年龄($^{238}\text{U}/^{206}\text{Pb}$ 、 $^{235}\text{U}/^{207}\text{Pb}$ 、 $^{207}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$),随后根据结果可靠性与 U-Pb 协和曲线校正,从而获得精准的方解石矿物形成的年龄约束(Hiess et al., 2012; 刘恩涛等, 2019; 高伊雪等, 2022)。

随着技术水平的提高,同位素稀释法可以通过不断增加测试样品量来提高信号的分析强度,以达到对低铀含量(10^{-9} 级别)碳酸盐岩样品的测试目的,并已在碳酸盐脉体、石笋、洞穴次生碳酸盐、生物碳酸盐等方面取得重要成果(Smith et al., 1991; Woodhead et al., 2006; 刘恩涛等, 2019)。然而,该方法的应用有几项重要前提:(1)数据的

准确性不仅依靠准确的测试技术, 同样与样品的采集与分离密切相关。虽然该方法可以通过增加样品数量来保证信号强度, 但必须保证碳酸盐矿物为同一世代, 这就要求取样前必须对样品进行详细的岩石学微观观察, 确定矿物生长轨迹, 准确判断矿物形成期次。(2) 该方法对样品处理要求极高(特别是 U 和 Pb 含量较低的样品, 很容易受到污染; Smith *et al.*, 1991), 要仔细分离矿物, 在样品破碎、挑选与清洗过程中要避免除测试碳酸盐矿物以外的一切外来样品污染。(3) 该方法要求方解石中的 U-Pb 比值要足够大, 这对样品本身就提出了较大的限制。

目前来看, 同位素稀释法 U-Pb 测年主要在国外实验室进行, 在国内进展较为缓慢, 而且在碎屑岩自生碳酸盐胶结物中尚未见报道, 其原因可能如下: (1) 该实验需要经过薄片制备、岩石学微观观察、激光烧蚀扫描、微观取样、样品清洗、质谱测量等多个流程, 单独样品的测试要长达半年之久, 而且即便国外成熟的实验室, 一周也仅能测出 5 个样品的数据(刘恩涛等, 2019; Woodhead and Petrus, 2019)。(2) 碎屑岩储集层中碳酸盐胶结物的成因机制异常复杂, 通常在多期次、多类型成岩流体作用控制下形成, 在毫米甚至微米尺度都可能存在不同期次的成岩流体产物。在此背景下, 无论是鉴别还是挑离不同流体期次的碳酸盐矿物都会存在极大的困难。(3) 碎屑岩中的自生碳酸盐矿物 U 含量往往偏低, 而增大样品量又很可能会带来样品的污染, 因此成功率可能会很低(刘恩涛等, 2019)。(4) 随着激光剥蚀、离子探针等技术的发展, 原位分析技术的出现在同位素测年领域发生了一场革命(Woodhead and Petrus, 2019), 原位碳酸盐矿物定年法有着实验简单、取样量少、成本低且效率高等诸多优势, 因此在很多研究中逐渐取代了同位素稀释法。

3.3.2 电子自旋共振(ESR) 测年法

电子自旋共振(Electron Spin Resonance, 简称 ESR) 法是基于测量样品中不成对电子的数目从而测定样品年代的一种物理方法(贾丽等, 2006)。碳酸盐矿物中碳酸钙离子(CO_3^{2-}) 基团在 γ 、 β 、 α 射线的轰击下能够发生位移, 并形成大量负二价的碳酸根离子空位, 电子被激发后会被晶格中的空位所捕获, 但每个空位仅能捕获 1 个电子(已捕

获电子的空位称为顺磁中心), 若碳酸盐矿物结晶年龄越老, 则单位质量方解石的顺磁中心个数就会越多, 因此可以根据测定样品中累积起来的顺磁中心总数(等效计量 ED) 来判断样品年龄(Schwarz and Rink, 2001; 贾丽等, 2006)。若碳酸盐矿物自形成以来未经历强烈改造作用, 则测定出的年龄即为初始结晶年龄; 若碳酸盐矿物在埋藏过程中受到了强烈的构造作用或热作用, 这会使得累积的顺磁中心浓度丧失殆尽, 此时测定的年龄即为构造活动的年龄(王鹏昊等, 2013)。

目前在国外的研究中, 该方法主要应用于第四系古生物遗址化石的准确定年领域(Arnold *et al.*, 2022), 而国内研究则更多关注方解石脉年代学测定, 用来评价与裂缝方解石生长相关的断层活动年限(王鹏昊等, 2013; Qiu *et al.*, 2018)。总体来看, 该方法在碎屑岩储集层成岩流体研究中应用得不多。

3.3.3 激光剥蚀原位 U-Pb 法

激光剥蚀技术是利用激光剥蚀系统产生激光束聚焦样品表面, 对样品进行剥蚀与气化, 随后被 N_2 、 Ar 等气体载入等离子体中电离, 再经过质谱仪中完成质量过滤, 进而完成化学元素、同位素成分分析与样品年龄的测定(Hieftje *et al.*, 1985)。激光剥蚀原位 U-Pb 法的原理与同位素稀释法基本相同, 均是利用放射性 ^{238}U 与 ^{235}U 元素衰变为稳定的 ^{207}Pb 与 ^{206}Pb 来计算矿物形成年龄的, 但相比之下, 该方法对样品处理要求较低(样品用环氧树脂固定, 再经过细致抛光与清洗即可上机测试), 操作灵活度高, 具有较高的空间分辨率, 成本较低且分析速度快, 可对样品进行微区分析且样品消耗量很小, 因此可获得自生矿物不同期次年龄分布的精细结构, 这对于了解具有复杂流体演化史矿物的形成过程及由此反映的地质演化十分重要(沈安江等, 2019)。

现如今, 基于激光剥蚀电感耦合等离子体质谱仪(LA-ICP-MS) 的 U-Pb 定年技术已成为岩矿分析的核心技术之一(Li *et al.*, 2014; Roberts and Walker, 2016), 并广泛应用于富铀矿物的年代学研究中。起初, 镓石成为了激光原位 U-Pb 定年领域中理想的矿物, 这是因为镓石具有较高的封闭温度、放射性 U 含量较高(普遍在 10×10^{-6} 以上) 且普通 Pb 含量低(李献华等, 2015), 导致该方法

的高精度年龄数据获取成功率较高, 因此锆石的 U-Pb 定年在地球演化与地球动力学研究、沉积物源研究等科学问题上有重要意义。然而, 在碳酸盐样品中应用 LA-ICP-MS 进行 U-Pb 定年存在一定的困难: 首先, 碳酸盐矿物中的 U 和 Pb 含量要明显低于锆石, 通常小于 10×10^{-6} , 因此检测信号的强度会偏低 (刘恩涛等, 2019); 其次, 碳酸盐矿物在其矿物晶格或微碳酸盐矿物颗粒边界中有较高的初始 Pb 含量, 需要通过非谐和线进行校正 (Simonet et al., 2006), 最常用的方法是在 Tera-Wasserbburg 图上通过测量的 U-Pb 数据点回归线与反向谐和线的交点确定年龄 (Yokoyama et al., 2018), 但不同期次甚至同一期次碳酸盐矿物中 U、Pb 的含量分布可能都是很不均匀的 (Roberts and Walker, 2016), 因此拟合出来的结果可能存在不理想的情况; 最后, 合适的标样是利用 LA-ICP-MS 进行 U-Pb 定年的先决条件, 目前针对锆石和独居石已经提出了多种 U-Pb 定年的天然标准样品 (Cocherie et al., 2009), 而碳酸盐矿物定年在各个实验室使用的标样种类很有限, 并且标样没有相互共享 (刘恩涛等, 2019)。

近些年, 随着实验设备精度的提高与实验技术的进步, 国内外实验室已经相继针对低 U 方解石样品进行 U-Pb 定年尝试, 并取得了成功 (Roberts and Walker, 2016; Nuriel et al., 2017; 程婷等, 2020), 普遍的方法是利用 ICP-MS 对样品进行预扫描, 快速选出可利用 $^{238}\text{U}/^{206}\text{Pb}$ 和 $^{207}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$ 构建反向等时线以及普通 Pb 足够低的合适点位, 从而实现 LA-MC-ICPMS 的有的放矢; 而针对方解石标样, 国外实验室开发出了 ASH15 (洞穴钙板, 即 flowstone) 和 WC-1 (海相方解石胶结物) 作为标样 (Roberts et al., 2017; Yokoyama et al., 2018), 而国内研究者同样也开发出了塔里木盆地北缘的纯净孔洞方解石 AHX-1a 作为标样 (程婷等, 2020)。因此, 虽然 LA-ICP-MS 的方解石 U-Pb 定年技术仍存在一点的缺陷, 但该方法将会在未来的研究中具有良好的应用前景。

3.4 自生伊利石 $^{40}\text{K}/^{40}\text{Ar}$ 与 $^{39}\text{Ar}/^{40}\text{Ar}$ 定年

$^{40}\text{K}/^{40}\text{Ar}$ 定年法主要是基于母体同位素 (^{40}K) 随时间的衰变和子体同位素 (^{40}Ar) 随时间的累积, 随后对子体与母体含量进行对比来计算年龄的

方法, 该方法几乎可被应用于所有类型的含钾矿物中 (Dalrymple and Lanphere, 1969); 而 $^{39}\text{Ar}/^{40}\text{Ar}$ 定年法为传统 $^{40}\text{K}/^{40}\text{Ar}$ 法的变体, 即通过中子辐射的方法将样品中部分 ^{39}K 转化为 ^{39}Ar , 从而进行矿物的定年 (Merrihue and Turner, 1966)。相比之下, $^{40}\text{K}/^{40}\text{Ar}$ 定年法需要将被测矿物进行严格的分离, 对于不同年代的混合矿物只能得到年龄的平均值; 而 $^{39}\text{Ar}/^{40}\text{Ar}$ 定年法的优点是可在同一台仪器上同时进行母体同位素和子体同位素的测量, 这避免了由于样品非均质性而造成的不确定性, 实现微量和微区测量 (Clauer et al., 2012), 但中子辐射过程中会使 ^{39}Ar 发生“反冲”现象, 需要采用特殊的密封技术来计算 ^{39}Ar 的反冲量 (Kligfield et al., 1986)。

从碎屑岩矿物成因来看, 伊利石可分为碎屑伊利石 (多为 2M_1 型, 形成于 $280\text{ }^{\circ}\text{C}$ 以上) 与自生伊利石 (多为 $1\text{M}/1\text{M}_d$ 型, 形成于低温系统中) 2 类, 前者为母岩风化产物, 颗粒粒径较大, 其年龄要老于地层年龄, 与碎屑岩的成岩流体作用无关 (Haines and van der Pluijm, 2008); 后者粒径偏小, 又可细分为 2 个小类: 其一为蒙脱石先转化为伊/蒙混层并最终转化为富钾伊利石, 其二为孔隙中直接沉淀形成的自生伊利石 (韩志宇等, 2022)。自生伊利石的形成往往与碎屑岩成岩演化、断层活动、热液活动等密切相关, 因此测定自生伊利石的年龄对于还原相关地质事件意义重大 (Clauer et al., 1997; Dong et al., 1997; Meunier et al., 2004)。

无论采用 $^{40}\text{K}/^{40}\text{Ar}$ 法还是 $^{39}\text{Ar}/^{40}\text{Ar}$ 法, 测定自生伊利石样品年龄的可靠性在很大程度上取决于样品的制备 (Clauer et al., 1992)。为了将碎屑伊利石与自生伊利石分离, 需要对岩石中伊利石矿物进行详细的扫描电子显微镜 (SEM) 或高分辨率透射电子显微镜 (HRTEM) 观察, 并区分不同类型伊利石的矿物特征 (Dong et al., 1997)。现有研究认为, 自生伊利石的平均粒度要远低于碎屑伊利石, 在混合伊利石分离过程中, 随着粒度变细, 自生伊利石的占比会越来越大, 因此理论上最细的粒度分离技术能够在最大程度上避免碎屑物质对自生伊利石定年的影响 (韩志宇等, 2022), 而且 Clauer 等 (1997) 研究认为, 在同一期次流体事件形成的自生伊利石中, 较小的纳米级伊利石颗粒其

停止生长更早, 因此产生的年龄更大, 能代表伊利石形成的初始年龄, 而在随时间持续生长的较粗的微米级伊利石颗粒测得年龄会偏小。目前伊利石样品的筛选往往先采用超声波震荡或冻融法, 随后采用悬浮离心法、冷冻解冻法或微孔滤膜真空抽滤法等分离出不同粒度的伊利石矿物(张有瑜和罗修泉, 2011), 再利用扫描电子显微镜(SEM)或高分辨率透射电子显微镜(HRTEM)等微观观测手段分离矿物(韩志宇等, 2022)。整个过程均不能采用研磨法, 这是因为过度研磨会将来自沉积岩、低变质岩或火山岩(如云母和长石)的碎屑颗粒与自生伊利石混合, 使得年龄测定的不确定性大大增加(Clauer *et al.*, 1992)。自生伊利石具体的分离方法以及同位素定年的表征在很多文献中已有广泛的讨论, 在此不再赘述。

3.5 钾长石加大⁴⁰K/⁴⁰Ar与³⁹Ar/⁴⁰Ar定年

前人研究认为, 自生钾长石在沉积岩形成不久到整个成岩阶段过程中均可能形成(Aleinikoff *et al.*, 1993)。由于自生钾长石往往具有较高的钾元素含量, 这使得其同样可以作为⁴⁰K/⁴⁰Ar与³⁹Ar/⁴⁰Ar沉积流体年代学研究的重要工具(Sherlock *et al.*, 2005; Mark *et al.*, 2008)。Harlavan 和 Sandler(2010)将沉积岩中的自生钾长石总结为自形晶粒、细粒胶结物、不稳定碎屑颗粒交代与钾长石次生加大共4类, 其中钾长石次生加大最为常见, 也是钾长石定年的首选类型。自生钾长石定年在国外研究中报道较多, 但在国内鲜有报道。多数研究认为, 沉积盆地中的钾长石次生加大形成时间较晚, 形成温度普遍介于100~200℃之间(Liu *et al.*, 2003; Sherlock *et al.*, 2005), 在50℃以下很少有自生钾长石的记录(Harlavan and Sandler, 2010); 而且多数研究发现自生钾长石可能与构造活动有关, 这可能突破了普遍认为的长石胶结仅来自碎屑钾长石与云母溶解再沉淀的观点。因此, 综合各种岩石学手段对自生钾长石成因与年龄进行解释, 对于相关地质过程的成岩流体研究有着重要的意义。

钾长石加大⁴⁰K/⁴⁰Ar与³⁹Ar/⁴⁰Ar定年的原理与伊利石矿物基本相同, 因此在处理样品过程中, 将碎屑钾长石与自生钾长石分离同样是获得可靠数据的前提; 但不同的是, 钾长石次生加大的宽度可达几十甚至上百微米, 这决定了其非常

适合用激光原位³⁹Ar/⁴⁰Ar定年法进行分析(Mark *et al.*, 2008)。在测试前需要对含有自生钾长石的岩石进行详细的岩石学观察, 根据矿物的截切关系确定自生钾长石的生长位置, 以便更好地进行准确定年。

3.6 富有机质沉积物 Re-Os定年

Re-Os定年主要是根据母体同位素(¹⁸⁷Re)随时间的衰变和子体同位素(¹⁸⁷Os)随时间的累积, 随后根据同位素比值(¹⁸⁷Re/¹⁸⁸Os)与(¹⁸⁷Os/¹⁸⁸Os)绘制Re-Os等时线来计算矿物形成年龄的方法。衰变方程为(Smoliar *et al.*, 1996):

$$N(\text{ }^{187}\text{Os})_m = N(\text{ }^{187}\text{Os})_i + N(\text{ }^{187}\text{Re})(e^{\lambda t} - 1)$$

由于大部分岩石存在普通Os, 因此计算年龄时衰变方程两边要同时除以原子数不变的¹⁸⁸Os:

$$(\text{ }^{187}\text{Os}/\text{ }^{188}\text{Os})_m = (\text{ }^{187}\text{Os}/\text{ }^{188}\text{Os})_i + (\text{ }^{187}\text{Re}/\text{ }^{188}\text{Os})(e^{\lambda t} - 1)$$

其中, $N(\text{ }^{187}\text{Os})_m$ 为现今岩石中Os同位素的含量, $N(\text{ }^{187}\text{Os})_i$ 为岩石形成初期Os同位素的含量, $N(\text{ }^{187}\text{Re})$ 为现今岩石中Re同位素的含量, λ 为¹⁸⁷Os的衰变常数, t 是矿物形成的年龄。

Re-Os同位素具有2种特性, 即亲铁性与亲有机性。前者使其在金属矿床的成矿年龄研究方面发挥了重要的作用, 而后者对于确定含油气系统中富有机质样品(包括富有机质沉积物、原油、沥青等)的准确地质年代至关重要。在沉积水体偏氧化的条件下, Re与Os通常以 ReO_4^- 与 HOsO_5^- 的形式存在, 有着较高的溶解度; 但在富有机质沉积物形成的还原环境中, ReO_4^- 与 HOsO_5^- 通常会被还原为难溶的组分, 并被有机质吸附沉淀(Bruland, 1983), 这使得沉积岩形成时Os同位素的比值基本与沉积水体相同。若富有机质沉积物在埋藏阶段处于相对封闭的成岩系统中(未受到强烈构造变形、火山热液等活动影响), 即可认为, Re-Os同位素等时线年龄为沉积岩的形成年龄(李超等, 2010)。此外, Re-Os定年的样品应优先考虑新鲜的钻井岩心样品, 并尽可能选择TOC含量较高的样品, 一方面是因为风化作用会使沉积岩中的Re-Os同位素发生严重损失, 另一方面, 有机质含量往往与Re-Os同位素含量呈正相关关系, 这可以保证测试结果的可靠性(Ravizza and Turekian, 1989)。

4 成岩流体年代学在碎屑岩储集层中的地质应用

碎屑岩中的自生矿物记录了成岩演化过程中流体的关键信息,因此成为了成岩流体年代学研究的关键。在碎屑岩储集层成岩流体年代学研究中,首先要利用多种岩石学(岩石薄片、扫描电镜、阴极发光、电子探针等)及地球化学手段(主微量元素、稀土元素、同位素等)判断成岩流体类型,随后以自生矿物为依托完成包裹体测温或同位素定年等实验,从而实现在地层沉积年龄确定、成岩流体演化史恢复、相关构造活动时限确定以及油气充注时间判断等方面的地质应用。

4.1 确定地层沉积年龄

沉积岩往往具有特殊的生物群与矿物组合,这对于了解古湖泊、古海洋与古气候的演化至关重要,而研究这些问题的首要前提就是进行准确的地层年代确定。Ravizza 和 Turekian (1989) 研究发现富有机质沉积物在偏还原性的环境中能够吸收沉积水(海水、湖水等)的 Re-Os 元素,这提供了一个确定沉积物准确年代的重要工具,因此 Ravizza 和 Turekian (1989) 首次尝试将 Re-Os 同位素定年应用到美国 Bakken 页岩沉积年龄的确定中,该研究对页岩全岩样品的 Re、Os 浓度和 Os 同位素进行测定,并形成完整的等时线,获得页岩沉积年龄为 354 ± 49 Ma,该年龄与 Bakken 页岩的公认形成年龄(≈ 360 Ma)相一致。随后,Creaser 等(2002)发现富有机质沉积物的熟化作用并不会引起 Re-Os 同位素体系的破坏,进一步证明了富有机质沉积物 Re-Os 定年的可行性。而 Ripley 等(2001)研究认为沉积物中的碎屑颗粒同样存在部分 Re、Os,并且会对沉积物年龄的测定产生影响,因此要用合理的手段去除碎屑颗粒中的 Re、Os。近些年,有不少研究人员对富有机质沉积物的 Re-Os 定年进行完善,针对该实验的化学流程优化及分析测试精度都提出了更高的要求,总体来看有着广泛的应用前景。

对沉积物中发育的方解石条带或结核进行 U-Pb 测年,同样可以直接确定沉积岩的形成时间,但前提是需要进行详细的岩石学观察与地球化学表征,并证明被测方解石矿物为原生成因。Israelson 等(1996)对澳大利亚上寒武统 Alum 组黑色页岩

中的方解石结核进行了研究,首先通过对黑色页岩孔隙结构、压实强度以及方解石结核碳同位素的测定,认为方解石结核形成于黑色页岩沉积后不久,随后发现这些碳酸盐结核具有非常高的铀铅比($^{238}\text{U}/^{204}\text{Pb}$ 最大可达 288 000),这为方解石 U-Pb 同位素测年提供了良好的条件;测定结果显示碳酸盐结核的年龄为 509.8 ± 5.1 Ma,这为寒武纪晚期 Alum 组沉积提供了准确的年龄参考。Wang 等(1998)对美国 Hartford 盆地晚三叠世的碎屑岩做了类似的研究,通过薄片显微观察、阴极发光、裂变径迹分析、微量元素等手段在沉积岩中识别出了 3 个世代的方解石胶结物,并认为第 1 世代的泥晶方解石条带与沉积物形成时期基本吻合,对第 1 世代纯泥晶方解石的 U-Pb 测年数据显示,等时线年龄为 211.9 ± 2.1 Ma,这个年龄与前人提出的地层年龄基本吻合,证明了碎屑沉积物中方解石条带的 U-Pb 定年可用于精确测定沉积时间。

4.2 成岩流体演化史恢复

对沉积盆地流体—岩石相互作用的理解主要基于大量的岩石学观测与地球化学手段,尽管这是一个活跃的研究领域,但解决流体运移开始时间及其持续时间的基本问题仍具有挑战性,而自生矿物的精准定年为成岩流体演化史恢复提供了一个良好的工具。Sherlock 等(2005)对瑞典北部新元古宙—早寒武世 Laisvall 组砂岩中钾长石自生加大边进行了详细的岩石学描述与原位 $^{39}\text{Ar}/^{40}\text{Ar}$ 同位素定年,该研究共识别出 2 个期次的长石自生加大边(图 5),其中较老的一期靠近碎屑长石颗粒,而较年轻的一期则靠近孔隙边缘,2 个期次的长石加大年龄分别显示为前寒武纪—寒武纪($528 \pm 10 \sim 567 \pm 8$) Ma 与晚志留世($403 \pm 6 \sim 453 \pm 8$) Ma,这 2 组数据被解释为受控于 2 个互不干涉的成岩事件,第 1 期次形成于早期砂岩埋藏成岩作用,后一期次被认为与加里东造山带逆冲作用和断层活动相关的流体事件有关。Mark 等(2008)对苏格兰西北部 Fucoid Bed 砂岩中的自生钾长石进行了类似的研究,通过扫描电镜观察、矿物组成测定、包裹体数量与均一温度,该研究同样识别出 2 个期次的自生钾长石胶结物,利用高分辨率紫外激光烧蚀技术获得的 $^{39}\text{Ar}/^{40}\text{Ar}$ 同位素龄资料表明,第 1 胶结期为奥陶纪产物,第 2 胶结期为志留纪产物,该研究对钾

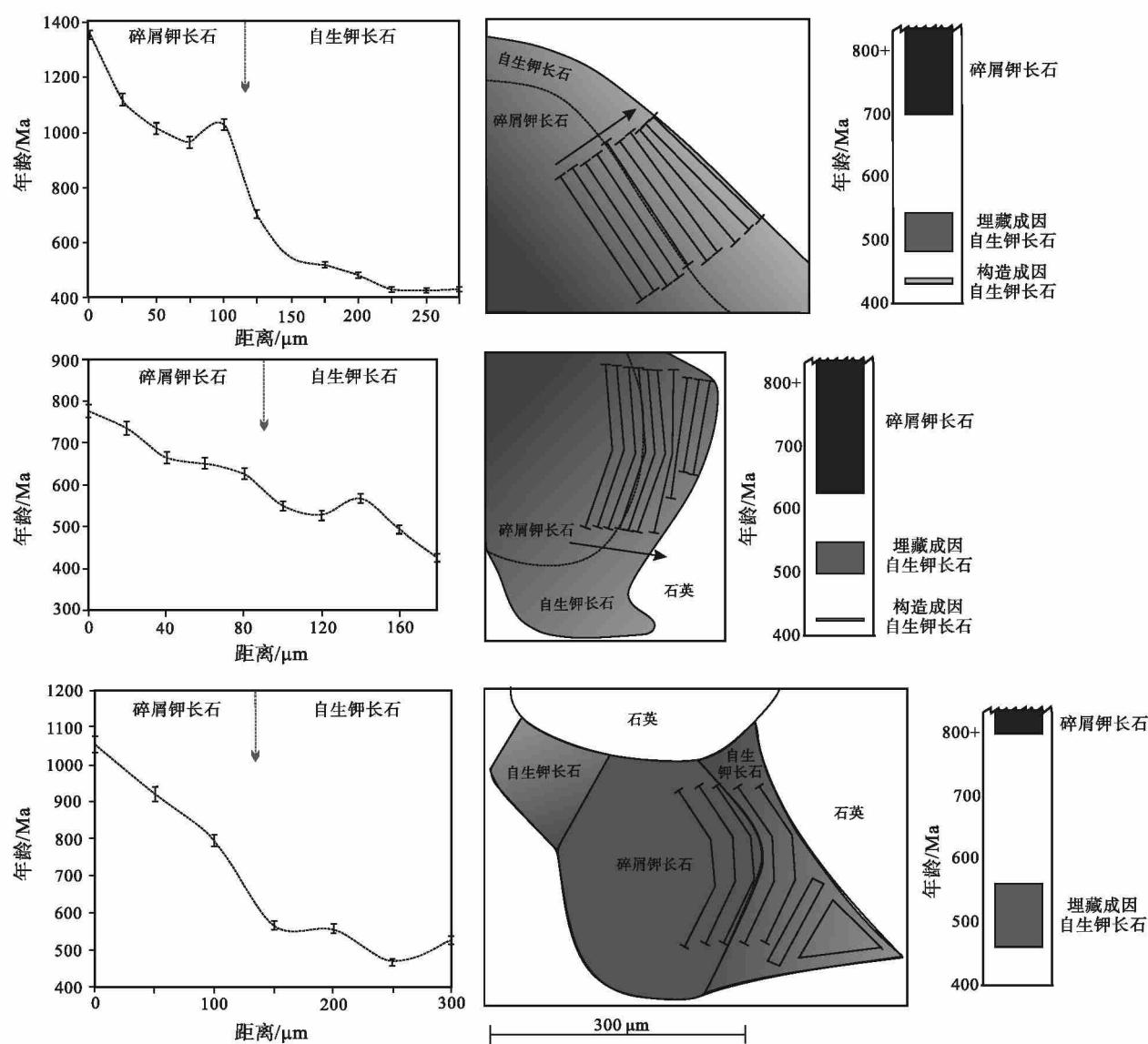


图 5 碎屑钾长石与自生钾长石样品的 $^{39}\text{Ar}/^{40}\text{Ar}$ 年龄数据与距离的关系 (据 Sherlock *et al.*, 2005; 有修改)

Fig. 5 $^{39}\text{Ar}/^{40}\text{Ar}$ age data versus distance for detrital and authigenic potassium feldspar (modified from Sherlock *et al.*, 2005)

长石 $^{39}\text{Ar}/^{40}\text{Ar}$ 定年的可靠性进行了讨论, 从微观角度建立了钾长石捕获Ar的模型, 并认为钾长石必须暴露在一系列高温环境下, 才能确保模型的有效性。

针对不同种类自生矿物成因及相关成岩流体演化史恢复, 国内同样取得了大量优秀的成果。以东营凹陷高青地区为例, Wang等(2020)针对二叠系上石盒子组石英砂岩中广泛发育的硅质胶结物进行了精细研究, 阴极发光下发现研究区硅质胶结物可划分为3期(I期: 450~670 nm, 呈淡棕色; II期: 420~480 nm, 不发光; III期: 470~650 nm, 呈深棕色发光)。薄片观察、包裹体分析与电子探针

结果发现, 第I期硅质胶结物以石英次生加大形式附着在碎屑颗粒表面, 胶结物主微量元素占比与原始颗粒较为相似, 包裹体均一温度介于70~110°C之间, Si被认为来源于石英颗粒之间的压溶作用; 第II期硅质胶结物以石英次生加大、自生晶粒石英、裂缝充填等多种形式存在, 并伴随重晶石的存在, 硅质胶结物富集Fe、Mn、Al、Ni等多种微量元素并存在明显的Eu正异常, 包裹体均一温度跨度较大, 最终该期次胶结物被认为与长石溶解、黏土矿物脱水转化和高青断裂深部热液有关; 第III期硅质胶结物生长于第II期外部, 但含量明显低于第II期胶结物, 通常与高岭石和伊利石伴生, 包裹

体均一温度介于 130~150℃ 之间, 胶结物同样富集 Fe、Al、Li、Ba 等元素, 结合地区埋藏史认为物质来源主要为热液供给。

碎屑岩储集层中的碳酸盐矿物有着成因复杂、多期次性、易受后期成岩改造等特点, 而碳酸盐矿物原位 U-Pb 同位素定年技术可成为碎屑岩储集层成岩流体演化史恢复的有效工具。然而, 该方法目前多应用于与碳酸盐储集层和金属矿床的成岩流体研究中 (沈安江等, 2019; Yang *et al.*, 2021)。虽然该方法在碎屑岩储集层的碳酸盐胶结物中未见尝试, 但从理论上说, 针对基底式胶结的自生碳酸盐矿物设计实验应当是可行的, 期待有后续研究能补充该方向的研究空白。

4.3 确定脆性构造活动时限

大多数沉积盆地所处的地壳浅部环境地温较低, 岩石应变速率往往很大, 因此脆性构造变形较为普遍。而确定脆性构造变形的绝对年龄对于理解与脆性构造变形有关的地质事件及其演化至关重要 (赵子贤和施炜, 2019)。传统脆性构造变形年限的确定往往从构造变形与沉积事件相结合方面进行定性解释, 或是采用磷灰石裂变径迹的方法进行半定量约束, 但以上方法也只能将相关构造活动限定在某一个时间段, 却无法获取确定年限, 但断层活动形成的自生矿物为判断脆性构造活动年限提供了良好的工具。目前该方法主要应用于与断层活动相关的自生伊利石矿物和方解石脉体中 (碳酸盐岩、碎屑岩储集层与岩浆岩中均可)。

van der Pluijm 等 (2001) 运用伊利石定年技术对加拿大南部 Lewis 沖断带地壳浅部断裂年限进行了判断, 在断裂中存在着碎屑伊利石与自生伊利石的混合物, 该研究利用 X 射线量化了不同粒径混合伊利石组分中碎屑伊利石和自生伊利石的比例, 并建立了模型来表征断层泥中自生伊利石和碎屑伊利石含量。在该模型中, 当碎屑伊利石为 0% 时 (即 $^{39}\text{Ar}/^{40}\text{Ar}$ 同位素定年样品为 100% 的自生伊利石), 测定纯自生伊利石年龄为 51.5 ± 3.5 Ma; 当碎屑伊利石为 100% 时, 测定纯碎屑伊利石年龄为 171.5 ± 6.2 Ma。最终该研究认为加拿大落基山脉南部 Lewis 沖断带的断层活动距今约有 52 Ma 的历史, 并意味着北美西部的应力体系在始新世发生了从收缩变为伸展的快速转变。郑勇等 (2019) 对龙门山断裂带进行了类似的研究, 该研究首先采

用沉降法与离心法对不同粒级的伊利石颗粒进行分离, 随后用 XRD 分析法对 1M_d 型自生伊利石与 2M_1 型碎屑伊利石进行区分, 结果测定 2 个样品的自生伊利石 $^{40}\text{K}/^{40}\text{Ar}$ 年龄分别为 216 ± 6 Ma 与 176 ± 6 Ma, 而碎屑伊利石的年龄分别为 402 ± 6 Ma 与 390 ± 5 Ma; 最终该研究认为自生伊利石形成于中生代晚三叠世至早侏罗世龙门山地区强烈的构造运动, 并受控于青藏高原东缘广泛的印支造山运动。

方解石脉体同样可以出现在多种岩性的断裂中, 并为限制脆性断裂的绝对时间、了解地壳变形和流体的流动提供重要依据。Roberts 和 Walker (2016) 针对北大西洋边缘法罗群岛断层方解石脉体进行了研究, 并对相关的变形运动的绝对时间及其驱动条件进行了解释, 该研究共选取了 3 个断层的 17 个方解石脉体样品, 在进行了显微镜光学观察后, 由于 U 和 Pb 在方解石脉体中分布不均一, 先采用 LA-ICP-MS 手段进行元素面扫, 选取含高 U、低 Pb 的合适区域进行点位选择, 以获得最佳的精密度和准确性。17 个样品中有来自 2 组断层的 9 个样品获得了可靠的年龄数据 (图 6), 其中第 2 组断层方解石年龄范围介于 $44.8 \pm 2.0 \sim 11.2 \pm 1.1$ Ma ($n=7$), 而第 3 组断层方解石年龄范围为 $41.7 \pm 1.9 \sim 16.3 \pm 1.2$ Ma ($n=2$)。最终该研究认为法罗群岛的断层形成持续时间为中始新世到中中新世, 该断层的形成与北大西洋海洋扩张有关。U-Pb 方解石的年龄范围表明法罗群岛断裂活动并不是在较短的地质历史时期内形成的, 而是在大陆边缘持续存在的。

4.4 判断油气充注时间

含油气盆地自生矿物的同位素定年为油气成藏年代学的定量研究提供了重要依据 (邱华宁等, 2009), 其中, 碎屑岩储集层中自生伊利石矿物成为记录油气成藏事件的理想矿物。自生伊利石的形成通常与富钾流体有关, 但当油气充注时, 烃类物质会破坏自生伊利石的形成环境, 使其生长受到限制。因此, 在含油饱和度较高的砂岩储集层中, 测定自生伊利石的绝对年龄即可判断油气充注年代。陈刚等 (2012) 对鄂尔多斯盆地东北部山西组、石盒子组以及石千峰组等不同层系的 7 块含气砂岩样品进行了自生伊利石 $^{40}\text{K}/^{40}\text{Ar}$ 定年, 在 SEM 观察下, 发现研究区自生伊利石的粒径普遍在 0.15~

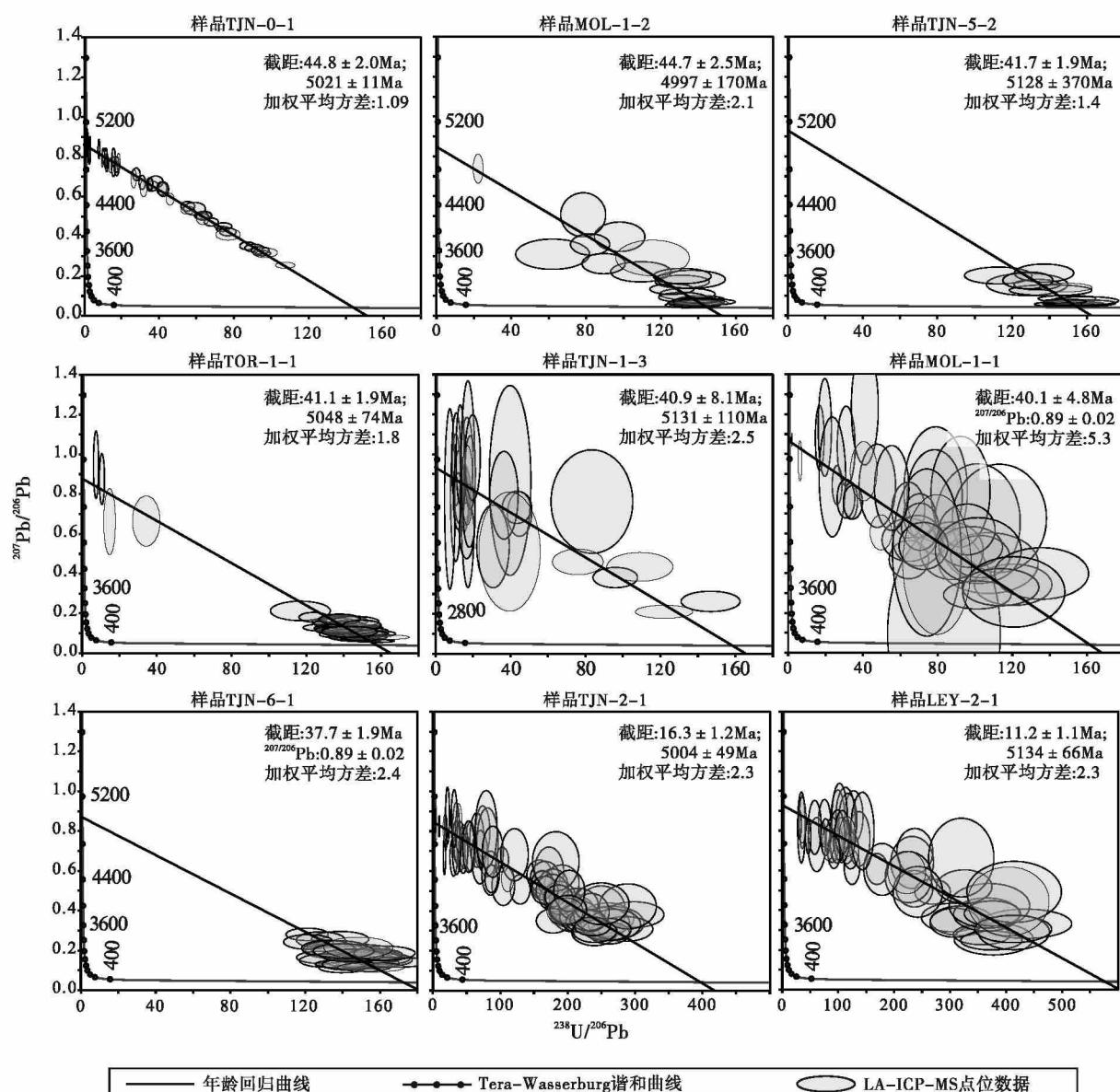


图 6 北大西洋边缘法罗群岛断层方解石脉体 9 个样品的 LA-ICP-MS U-Pb 定年结果(据 Roberts and Walker, 2016; 有修改)

Fig. 6 LA-ICP-MS U-Pb dating of 9 calcite veins from the Faroe Islands Fault in the North Atlantic margin

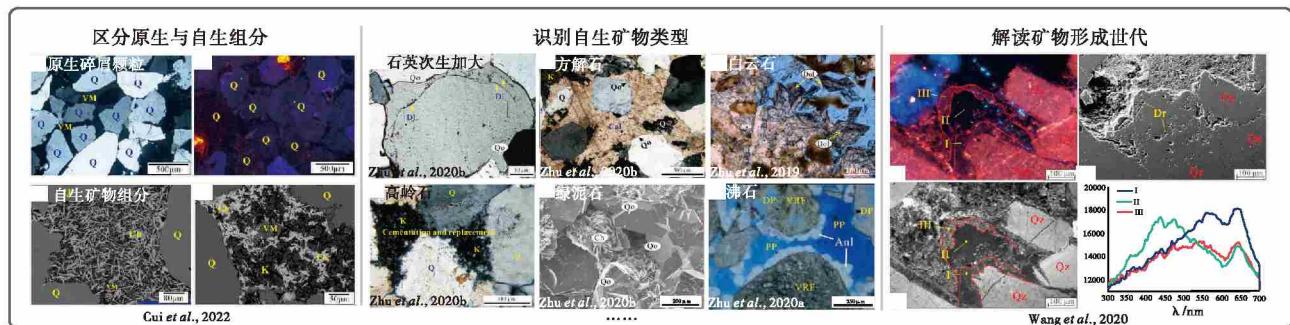
(modified from Roberts and Walker, 2016)

0.30 μm 以及 $<0.15 \mu\text{m}$ 粒级范围, 自生伊利石的含量与深度之间不存在相关关系, 说明伊利石的生长与孔隙流体化学性质和地温无关, 而是主要受控于烃类物质的抑制作用; 结果显示样品自生伊利石年龄整体介于 178~108 Ma 之间, 存在 2 个峰值年龄 (165 Ma, 130 Ma), 且空间上总体具有自南向北逐渐减小的特点。结合地区背景, 该研究认为鄂尔多斯盆地东北部二叠系油气藏存在早一中侏罗世与早白垩世 2 次主要的生—排烃事件, 而现今“次生”油气藏的特征是“原生”油气藏改造的

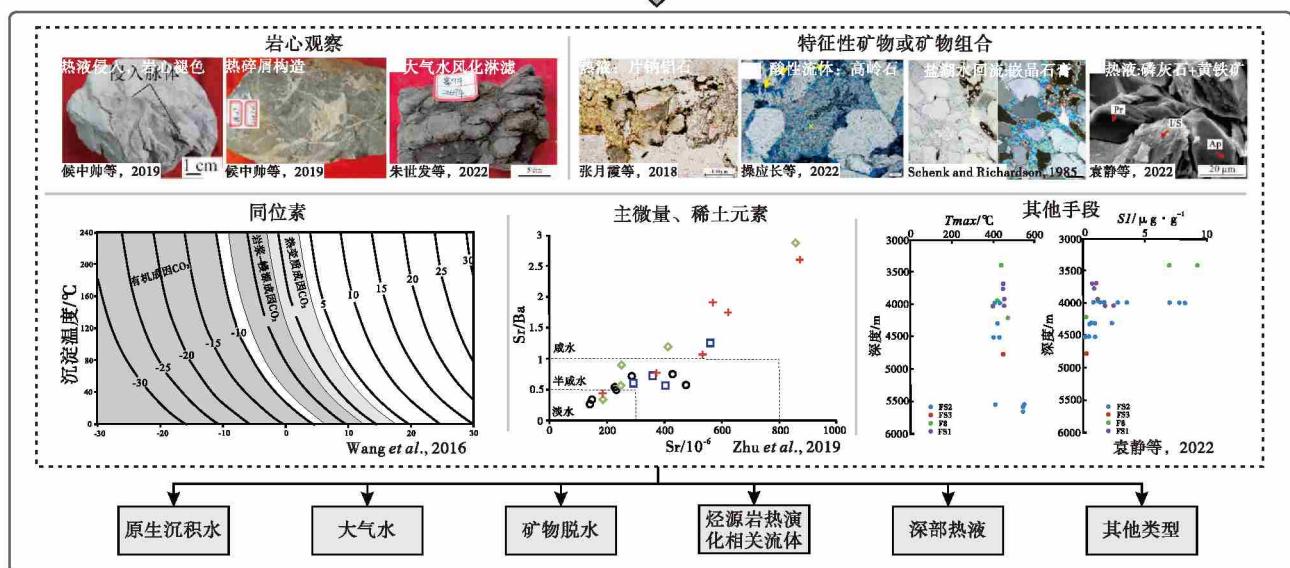
结果。

在碎屑岩储集层中, 如果方解石脉体在形成中伴随烃类充注, 即可认为方解石脉的形成时间与烃类包裹体的捕获时间一致, 因此通过方解石 U-Pb 定年技术可约束油气成藏时限。郭小文等 (2020) 以渤海湾盆地东营凹陷为例, 通过方解石激光原位技术、结合包裹体分析, 对沙河街组油气成藏年代学进行了研究。由于东营凹陷新生代构造条件较为复杂, 使得其热演化史和剥蚀厚度的恢复也可能存在较大误差, 因此仅凭借包裹体数据确定油气充注

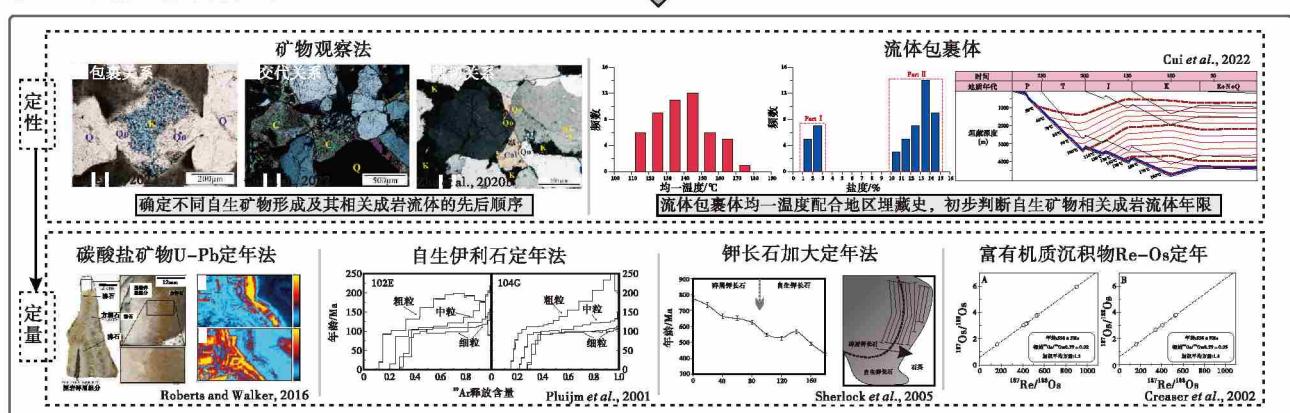
步骤1：岩石矿物学观察



步骤2：自生矿物成因与流体类型判断



步骤3：成岩流体年代学研究



步骤4：解释数据背后的地质意义

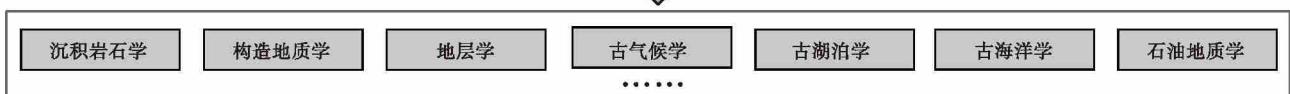


图 7 碎屑岩成岩流体年代学研究流程图

Fig. 7 Workflow of fluid flow chronology in clastic reservoirs

时间存在多解性。而作者通过阴极发光观察发现沙河街组烃源岩样品中仅发育1期次方解石脉体,方解石脉体中包裹体均为原生油包裹体,包裹体荧光颜色显示所有油包裹体均为同期产物,因此方解石脉体的形成时间油气充注时间相吻合。前人研究认为东营凹陷油气充注时间可能存在31~28 Ma以及24~20 Ma 2个时间段,通过激光剥蚀技术确定研究区样品方解石脉体形成于 23.9 ± 2.8 Ma,由此可以确定油气充注时间更倾向于24~20 Ma,即与东营组抬升剥蚀期相对应。

5 结束语

在碎屑岩储集层成岩流体研究领域,要正确认识各种先进分析技术的地位,这些技术应用的成功与否很大程度上取决于基础岩矿工作的细致程度(包括但不限于岩心观察、薄片观察、扫描电镜、阴极发光等)。因此为保证成岩流体年代学研究顺利开展,要通过显微观察区分原生组分与自生组分,尽可能地识别自生矿物类型,辨识不同自生矿物的形成期次,采取严格准确的矿物分离,切不可“本末倒置”,否则实验结果会产生严重的误导(图7)。随后,通过岩心观察、特征性矿物识别、元素分析、同位素分析等手段对碎屑岩成岩流体展开示踪,判断不同自生矿物所处成岩演化阶段及形成的流体环境,并针对不同演化阶段的自生矿物组合设计合适的成岩流体年代学研究实验。当然,成岩流体年代学研究方法同样存在很多问题亟待解决:(1)多种成岩流体示踪与年代学的判断都需要有自生矿物的存在,但对于大气淡水或有机酸等酸性流体来说,其进入碎屑岩储集层后会对硅铝酸盐与碳酸盐矿物产生强烈的溶蚀作用,但在开放性成岩系统中,溶蚀产物很可能不会保留下来,这对评价酸性流体的准确年龄带来了困难;(2)文中介绍了方解石、伊利石、钾长石加大边以及富有机质沉积物的定年方法及应用,但实际上碎屑岩储集层存在着多种类型的自生矿物(包括但不限于石英次生加大、高岭石、绿泥石、沸石类矿物、石膏等),因此未来仍需探索其他具有定年潜力的自生矿物;(3)现今的自生矿物原位技术仍有很多进步的空间,部分实验分析过程在成功率、空间分辨率、标样选择等方面仍会有很大限制,而且国内实验室数目也较为匮乏,面临着“供不应求”的情况。期

待在未来的研究中,相关学者能够精益求精,共同推动成岩流体年代学研究的发展进程。

综上所述,碎屑岩储集层成岩流体年代学研究是一项有着复杂性与挑战性的工作。微区原位元素与同位素分析技术的快速发展已使得成岩流体年代学从“宏观定性化”进入了“微观定量化”阶段,推动成岩作用研究步入了创新时代。但在未来不断改进实验设备与实验技术方法的同时,也要关注成岩作用研究与相关学科相结合的重要意义:要综合有机地球化学和岩石地球化学分析,研究有机质—无机矿物协同成岩演化序列,为碎屑岩成岩流体示踪和年代学分析提供依据;展开基于构造与沉积背景框架下的成岩物理模拟和数值模拟实验,使得模拟结果无限逼近真实流体环境,进而为地质流体示踪和年代学分析提供支撑;同时注重与微生物学(EPS诱导成岩成矿等)、火山地质学、地下水科学等学科交叉融合,为碎屑岩成岩流体研究提供新思路。

参考文献 (References)

- 曹江骏,罗静兰,范彩伟,李珊珊,吴仕玖,符勇,史肖凡,代龙,侯静娴. 2022. 深部热流体活动对储层成岩作用及孔隙演化的影响:以莺歌海盆地 LDX 区中新统黄流组为例. 地学前缘, 29(4): 412-429. [Cao J J, Luo J L, Fan C W, Li S S, Wu S J, Fu Y, Shi X F, Dai L, Hou J X. 2022. Deep thermal fluid activity and its influence on the diagenesis and pore evolution of reservoirs: a case study from the Miocene Huangliu Formation Reservoir in the LDX area, Yinggehai Basin, northern South China Sea. Earth Science Frontiers, 29(4): 412-429]
- 操应长,远光辉,王艳忠,曾念民,靳子濠,刘可禹,蕙克来,魏亦晗,孙沛沛. 2022. 典型含油气盆地深层富长石碎屑岩储层长石溶蚀接力成孔认识及其油气地质意义. 中国科学: 地球科学, 52(9): 1694-1725. [Cao Y C, Yuan G H, Wang Y Z, Zan N M, Jin Z H, Liu K Y, Xi K L, Wei Y H, Sun P P. 2022. Understanding of relay pore-forming of feldspar dissolution in deep feldspar-rich clastic reservoirs in typical oil-gas-bearing basins and its petroleum geological significance. Scientia Sinica (Terrae), 52(9): 1694-1725]
- 陈刚,徐黎明,丁超,章辉若,李书恒,胡延旭,黄得顺,李楠,李岩. 2012. 用自生伊利石定年确定鄂尔多斯盆地东北部二叠系油气成藏期次. 石油与天然气地质, 33(5): 713-719, 729. [Chen G, Xu L M, Ding C, Zhang H R, Li S H, Hu Y X, Huang D S, Li N, Li Y. 2012. Authigenic illite dating for the timing of oil-gas accumulation of the Permian Reservoirs in northeastern Ordos Basin. Oil & Gas Geology, 33(5): 713-719, 729]
- 陈红汉. 2014. 单个油包裹体显微荧光特性与热成熟度评价. 石油学

- 报, 35(3): 584-590. [Chen H H. 2014. Microspectrofluorimetric characterization and thermal maturity assessment of individual oil inclusion. *Acta Petrolei Sinica*, 35(3): 584-590]
- 程婷, Jianxin Zhao, Yuexing Feng, 潘文庆, 刘敦一. 2020. 低铀碳酸盐矿物的 LA-MC-ICPMS 微区原位 U-Pb 定年方法. 科学通报, 65(Z1): 150-154. [Cheng T, Zhao J X, Feng Y X, Pan W Q, Liu D Y. 2020. *In-situ* LA-MC-ICPMS U-Pb dating method for low-uranium carbonate minerals. *Chinese Science Bulletin*, 65(Z1): 150-154]
- 董宏坤, 万世明, 刘喜停. 2022. 海洋沉积物早期成岩作用研究进展. 沉积学报, 40(5): 1172-1187. [Dong H K, Wan S M, Liu X T. 2022. Research progress on geochemical behavior of minerals and elements in early diagenesis of marine sediments. *Acta Sedimentologica Sinica*, 40(5): 1172-1187]
- 高伊雪, 邱昆山, 于皓丞, 侯照亮, 魏瑜吉. 2022. 碳酸盐矿物激光原位 U-Pb 定年基本原理、分析方法与地学应用. 岩石矿物学杂志, 41(4): 786-803. [Gao Y X, Qiu K F, Yu H C, Hou Z L, Wei Y J. 2022. Principle, methods, and geological applications of carbonates LA-ICP-MS U-Pb geochronology. *Acta Petrologica et Mineralogica*, 41(4): 786-803]
- 郭小文, 陈家旭, 袁圣强, 何生, 赵建新. 2020. 含油气盆地激光原位解石 U-Pb 年龄对油气成藏年代的约束: 以渤海湾盆地东营凹陷为例. 石油学报, 41(3): 284-291. [Guo X W, Chen J X, Yuan S Q, He S, Zhao J X. 2020. Constraint of *in situ* calcite U-Pb dating by laser ablation on geochronology of hydrocarbon accumulation in petrolierous basins: a case study of Dongying sag in the Bohai Bay Basin. *Acta Petrolei Sinica*, 41(3): 284-291]
- 韩志宇, 王非, 师文贝. 2022. 沉积岩定年及应用: 问题与展望. 沉积学报, 40(2): 360-379. [Han Z Y, Wang F, Shi W B. 2022. Dating and application for sedimentary rocks: problems and prospects. *Acta Sedimentologica Sinica*, 40(2): 360-379]
- 侯中帅, 陈世悦, 刘惠民, 杨怀宇, 李晨, 王媛媛. 2019. 东营凹陷热液流体活动及其油气地质意义. 中国矿业大学学报, 48(5): 1090-1101. [Hou Z S, Chen S Y, Liu H M, Yang H Y, Li C, Wang Y Y. 2019. Hydrothermal fluid activity and its hydrocarbon geological significance in Dongying depression. *Journal of China University of Mining & Technology*, 48(5): 1090-1101]
- 贾丽, 鲍继飞, 尹功明, 刘静伟, 李建平. 2006. 方解石脉 ESR 定年信号和测量条件的研究. 地震地质, 28(4): 668-674. [Jia L, Bao J F, Yin G M, Liu J W, Li J P. 2006. Study on ESR signal centers and measurement conditions for dating of calcite. *Seismology and Geology*, 28(4): 668-674]
- 金之钧, 朱东亚, 孟庆强, 胡文瑄. 2013. 塔里木盆地热液流体活动及其对油气运移的影响. 岩石学报, 29(3): 1048-1058. [Jin Z J, Zhu D Y, Meng Q Q, Hu W X. 2013. Hydrothermal activites and influences on migration of oil and gas in Tarim Basin. *Acta Petrologica Sinica*, 29(3): 1048-1058]
- 李超, 屈文俊, 王登红, 陈郑辉, 杜安道. 2010. 富有机质地质样品 Re-Os 同位素体系研究进展. 岩石矿物学杂志, 29(4): 421-430. [Li C, Qu W J, Wang D H, Chen Z H, Du A D. 2010. Advances in the study of the re-Os isotopic system of organic-rich samples. *Acta Petrologica et Mineralogica*, 29(4): 421-430]
- 李献华, 柳小明, 刘勇胜, 苏犁, 孙卫东, Huang Huiqing, Yi Keewook. 2015. LA-ICPMS 钨石 U-Pb 定年的准确度: 多实验室对比分析. 中国科学: 地球科学, 45(9): 1294-1303. [Li X H, Liu X M, Liu Y S, Su L, Sun W D, Huang H Q, Keewook Y. 2015. Accuracy of LA-ICPMS zircon U-Pb age determination: an inter-laboratory comparison. *Scientia Sinica (Terra)*, 45(9): 1294-1303]
- 李忠, 陈景山, 关平. 2006. 含油气盆地成岩作用的科学问题及研究前沿. 岩石学报, 22(8): 2113-2122. [Li Z, Chen J S, Guan P. 2006. Scientific problems and frontiers of sedimentary diagenesis research in oil-gas-bearing basins. *Acta Petrologica Sinica*, 22(8): 2113-2122]
- 刘恩涛, Zhao Jian-xin, 潘松圻, 严德天, 陆江, 郝少斌, 龚银, 邹康. 2019. 盆地流体年代学研究新技术: 方解石激光原位 U-Pb 定年法. 地球科学, 44(3): 698-712. [Liu E T, Zhao J X, Pan S Q, Yan D T, Lu J, Hao S B, Gong Y, Zou K. 2019. A new technology of basin fluid geochronology: *In-situ* U-Pb dating of calcite. *Earth Science*, 44(3): 698-712]
- 刘全有, 朱东亚, 孟庆强, 刘佳宜, 吴小奇, 周冰, Qi Fu, 金之钧. 2019. 深部流体及有机-无机相互作用下油气形成的基本内涵. 中国科学: 地球科学, 49(3): 499-520. [Liu Q Y, Zhu D Y, Meng Q Q, Liu J Y, Wu X Q, Zhou B, Qi F, Jin Z J. 2019. The scientific connotation of oil and gas formations under deep fluids and organic-inorganic interaction. *Scientia Sinica (Terra)*, 49(3): 499-520]
- 卢焕章. 2014. 流体包裹体岩相学的一些问题探讨. 高校地质学报, 20(2): 177-184. [Lu H Z. 2014. Fluid inclusion petrography: a discussion. *Geological Journal of China Universities*, 20(2): 177-184]
- 罗静兰, 何敏, 庞雄, 李弛, 柳保军, 雷川, 马永坤, 庞江. 2019. 珠江口盆地南部热演化事件与高地温梯度的成岩响应及其对油气勘探的启示. 石油学报, 40(S1): 90-104. [Luo J L, He M, Pang X, Li C, Liu B J, Lei C, Ma Y K, Pang J. 2019. Diagenetic response on thermal evolution events and high geothermal gradients in the southern Pearl River Mouth Basin and its enlightenment to hydrocarbon exploration. *Acta Petrolei Sinica*, 40(S1): 90-104]
- 罗静兰, 李弛, 雷川, 曹江骏, 宋昆鹏. 2020. 碎屑岩储集层成岩作用研究进展与热点问题讨论. 古地理学报, 22(6): 1021-1040. [Luo J L, Li C, Lei C, Cao J J, Song K P. 2020. Discussion on research advances and hot issues in diagenesis of clastic-rock reservoirs. *Journal of Palaeogeography (Chinese Edition)*, 22(6): 1021-1040]
- 马奔奔. 2016. 东营凹陷民丰北带沙四段近岸水下扇沉积区成岩流体及其成岩响应. 中国石油大学(华东)博士学位论文: 3-14. [Ma B B. 2016. Fluid flow and related diagenetic responses of sub-lacustrine fan: a case study from the Eocene Sha4 interval, northern Minfeng Sag, Dongying Depression. Doctoral dissertation of China University of Petroleum (East China): 3-14]
- 邱华宁, 吴河勇, 冯子辉, 施和生, 云建兵, 王强, 赵令浩. 2009. 油气成藏 ^{40}Ar - ^{39}Ar 定年难题与可行性分析. 地球化学, 38(4): 405

- 411. [Qiu H N, Wu H Y, Feng Z H, Shi H S, Yun J B, Wang Q, Zhao L H. 2009. The puzzlement and feasibility in determining emplacement ages of oil/gas reservoirs by $^{40}\text{Ar} - ^{39}\text{Ar}$ techniques. *Geochimica*, 38(4): 405-411.]
- 沈安江,胡安平,程婷,梁峰,潘文庆,俸月星,赵建新. 2019. 激光原位U-Pb同位素定年技术及其在碳酸盐岩成岩—孔隙演化中的应用. *石油勘探与开发*, 46(6): 1062-1074. [Shen A J, Hu A P, Cheng T, Liang F, Pan W Q, Feng Y X, Zhao J X. 2019. Laser ablation *in situ* U-Pb dating and its application to diagenesis-porosity evolution of carbonate reservoirs. *Petroleum Exploration and Development*, 46(6): 1062-1074.]
- 斯尚华,陈红汉,李纯泉,李培军,陈旭. 2017. 麦盖提斜坡玛南构造带鹰山组包裹体古流体压力特征. *高校地质学报*, 23(4): 706-714. [Si S H, Chen H H, Li C Q, Li P J, Chen X. 2017. Paleo-pressure of fluid inclusion in the Yingshan formation reservoirs of the Manan structural belt, Maigaiti slope. *Geological Journal of China Universities*, 23(4): 706-714.]
- 谭先锋,蒋威,吴康军,王浩,徐田堃,陈苏军,冉天. 2016. 陆相碎屑岩中钙质胶结物沉淀机制及油气储集意义: 来自济阳坳陷孔店组和川西须家河组的对比研究. *石油实验地质*, 38(3): 293-302. [Tan X F, Jiang W, Wu K J, Wang H, Xu T K, Chen S J, Ran T. 2016. Sedimentation mechanism and petroleum significance of calcareous cements in continental clastic rocks: comparison between the Kongdian Formation in the Jiyang Depression and the Xujiahe Formation in the western Sichuan Basin. *Petroleum Geology & Experiment*, 38(3): 293-302.]
- 王飞宇,冯伟平,关晶,CHAO Jun-chi. 2018. 含油气盆地流体包裹体分析的关键问题和意义. *矿物岩石地球化学通报*, 37(3): 441-450, 561. [Wang F Y, Feng W P, Guan J, Chao J C. 2018. Key questions of the fluid inclusion analysis in petrolierous basins and their significances. *Bulletin of Mineralogy, Petrology and Geochemistry*, 37(3): 441-450, 561.]
- 王鹏昊,汤良杰,邱海峻,陈绪云,张宇航. 2013. 塔里木盆地皮羌断裂晚期活动ESR年代学证据及其地质意义. *石油与天然气地质*, 34(1): 107-111. [Wang P H, Tang L J, Qiu H J, Chen X Y, Zhang Y H. 2013. Chronology evidence of ESR dating for the late movements of the Piqiang fault in the Tarim Basin and its geological implication. *Oil & Gas Geology*, 34(1): 107-111.]
- 解习农,成建梅,孟元林. 2009. 沉积盆地流体活动及其成岩响应. *沉积学报*, 27(5): 863-871. [Xie X N, Cheng J M, Meng Y L. 2009. Basin fluid flow and associated diagenetic processes. *Acta Sedimentologica Sinica*, 27(5): 863-871.]
- 袁波,陈世锐,袁文芳,朱建伟. 2008. 济阳坳陷沙河街组锶同位素特征. *吉林大学学报(地球科学版)*, 38(4): 613-617. [Yuan B, Chen S Y, Yuan W F, Zhu J W. 2008. Characteristics of strontium and sulfur isotopes in shahejie formation of Jiyang depression. *Journal of Jilin University(Earth Science Edition)*, 38(4): 613-617.]
- 袁静,周涛,乔俊,杨贵丽,赵广昊. 2022. 深层砂砾岩中的深部热流体作用及其地质意义: 以渤海湾盆地东营凹陷民丰—盐家地区古近系沙河街组四段为例. *石油与天然气地质*, 43(4): 929-942. [Yuan J, Zhou T, Qiao J, Yang G L, Zhao G H. 2022. Deep hydrothermalism of deep coarse-grained siliciclastic rocks and its geological significance: a case study of the 4th member of the Paleogene Shahejie Formation in Minfeng-Yanjia area, Dongying Sag, Bohai Bay Basin. *Oil & Gas Geology*, 43(4): 929-942.]
- 岳鑫,刘溪溪,路亮,张晓冬,范增林,于小亮. 2019. 马海盆地深部孔隙卤水矿床水化学特征及成因. *沉积学报*, 37(3): 532-540. [Yue X, Liu X X, Lu L, Zhang X D, Fan Z L, Yu X L. 2019. Hydrochemical characteristics and origin of deep pore brine deposits in Mahai Basin. *Acta Sedimentologica Sinica*, 37(3): 532-540.]
- 赵子贤,施炜. 2019. 方解石LA-(MC-)ICP-MS U-Pb定年技术及其在脆性构造中的应用. *地球科学与环境学报*, 41(5): 505-516. [Zhao Z X, Shi W. 2019. LA-(MC-)ICP-MS U-Pb dating technique of calcite and its application in brittle structures. *Journal of Earth Sciences and Environment*, 41(5): 505-516.]
- 张有瑜,罗修泉. 2011. 油气储层自生伊利石分离提纯微孔滤膜真空抽滤装置与技术. *石油实验地质*, 33(6): 671-676. [Zhang Y Y, Luo X Q. 2011. A vacuum filtrating device and technique to separate authigenic illites from sandstone reservoirs with microporous membrane. *Petroleum Geology & Experiment*, 33(6): 671-676.]
- 张月霞,胡文瑄,姚素平,俞昊,康逊,吴海光,胡忠亚. 2018. 苏北盆地黄桥地区富CO₂流体对二叠系龙潭组砂岩储层的改造与意义. *地质通报*, 37(10): 1944-1955. [Zhang Y X, Hu W X, Yao S P, Yu H, Kang X, Wu H G, Hu Z Y. 2018. The interaction of CO₂-rich fluid with sandstone and its significance for sandstone reservoirs of Permian Longtan Formation in Huangqiao area, Subei Basin. *Geological Bulletin of China*, 37(10): 1944-1955.]
- 郑勇,李海兵,王世广,白明坤. 2019. 断层泥自生伊利石年龄分析及其在龙门山断裂带的应用. *地球学报*, 40(1): 173-185. [Zheng Y, Li H B, Wang S G, Bai M K. 2019. Authigenic illite age analysis for fault gouge and its application to the Longmen Shan fault belt. *Acta Geoscientifica Sinica*, 40(1): 173-185.]
- 朱世发,贾业,万超凡,马立驰,崔殿,孙超,景安语. 2020. 济阳坳陷富林洼陷中生界复杂岩性风化壳储集层成岩作用. *古地理学报*, 22(3): 555-569. [Zhu S F, Jia Y, Wan C F, Ma L C, Cui D, Sun C, Jing A Y. 2020. Diagenetic of the Mesozoic complex weathering crust reservoir rock in Fulin subsag, Jiyang Depression. *Journal of Palaeogeography(Chinese Edition)*, 22(3): 555-569.]
- Aleinikoff J N, Walter M, Kunk M J, Hearn P P Jr. 1993. Do ages of authigenic K-feldspar date the formation of Mississippi Valley-type Pb-Zn deposits, central and southeastern United States?: Pb isotopic evidence. *Geology*, 21(1): 73-76.
- Amthor J E, Okkerman J. 1998. Influence of early diagenesis on reservoir quality of rotliegende sandstones, northern Netherlands. *AAPG Bulletin*, 82(12): 2246-2265.
- Aplin A C, MacLeod G, Larter S R, Pedersen K S, Sorensen H, Booth T. 1999. Combined use of Confocal Laser Scanning Microscopy and PVT simulation for estimating the composition and physical properties of petroleum in fluid inclusions. *Marine and Petroleum Geology*,

- 16(2): 97–110.
- Arnold L J, Guilarde V, Duval M, Demuro M, Weij R, Reed E H. 2022. ESR and OSL dating of fossil-bearing deposits from Naracoorte Cave Complex palaeontological sites, South Australia. *Quaternary Geochronology*, 69: 101270.
- Bau M. 1996. Controls on the fractionation of isovalent trace elements in magmatic and aqueous systems: evidence from Y/Ho, Zr/Hf, and lanthanide tetrad effect. *Contributions to Mineralogy and Petrology*, 123: 323–333.
- Bell D R, Rossman G R. 1992. Water in earth's mantle: the role of nominally anhydrous minerals. *Science*, 255: 1391–1397.
- Bjørlykke K. 1994. Fluid-flow Processes and Diagenesis in Sedimentary Basins. Geological Society, London, Special Publications, 78: 127–140.
- Bjørlykke K. 2015. Petroleum Geoscience: From Sedimentary Environments to Rock Physics (Second Edition). Berlin: Springer, 279–300.
- Bodnar R J. 1994. Philosophy of fluid inclusion analysis. In: Vivo B De, Frezzotti M L (eds). *Fluid Inclusion in Mineral, Methods and Applications*. Blacksburg: Virginia Tech, 1–6.
- Bruland K W. 1983. Trace Elements in Sea-water. Chemical Oceanography. Amsterdam: Elsevier, 157–220.
- Burruss R C. 2003. Petroleum fluid inclusions, an introduction. In: *Fluid Inclusions: Analysis and Interpretation*. Mineralogical Association Canada, Short Course Series, 32: 159–174.
- Cai C F, Li K K, Li H T, Zhang B S. 2008. Evidence for cross formational hot brine flow from integrated $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$, REE and fluid inclusions of the Ordovician veins in Central Tarim, China. *Applied Geochemistry*, 23(8): 2226–2235.
- Cui H, Zhu S F, Tan M X, Tong H. 2022. Depositional and diagenetic processes in volcanic matrix-rich sandstones from the Shanxi and Shihezi formations, Ordos Basin, China: implication for volcano-sedimentary systems. *Basin Research*, 34: 1859–1893.
- Chuhan F A, Bjørlykke K, Lowrey C. 2000. The role of provenance in illitization of deeply buried reservoir sandstones from Haltenbanken and North Viking Graben, offshore Norway. *Marine and Petroleum Geology*, 17(6): 673–689.
- Clauer N, Cocker J D, Chaudhuri S. 1992. Isotopic dating of diagenetic illites in reservoir sandstones: influence of the investigator effect. *Origin, Diagenesis, and Petrophysics of Clay Minerals in Sandstones*. Tulsa: SEPM (Society for Sedimentary Geology): 5–12.
- Clauer N, Šrodoň J, Francu J, Šucha V. 1997. K-Ar dating of illite fundamental particles separated from illite-smectite. *Clay Minerals*, 32(2): 181–196.
- Clauer N, Zwingmann H, Liewig N, Wendling R. 2012. Comparative $^{40}\text{Ar}/^{39}\text{Ar}$ and K-Ar dating of illite-type clay minerals: a tentative explanation for age identities and differences. *Earth-Science Reviews*, 115(1–2): 76–96.
- Cocherie A, Fanning C M, Jezequel P, Robert M. 2009. LA-MC-ICPMS and SHRIMP U-Pb dating of complex zircons from Quaternary tephras from the French Massif Central: magma residence time and geochemical implications. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 73(4): 1095–1108.
- Creaser R A, Sannigrahi P, Chacko T, Selby D. 2002. Further evaluation of the Re-Os geochronometer in organic-rich sedimentary rocks: a test of hydrocarbon maturation effects in the Exshaw Formation, Western Canada Sedimentary Basin. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 66(9): 3441–3452.
- Dalrymple G B, Lanphere M A. 1969. Potassium-Argon Dating: Principles, Techniques and Applications to Geochronology. San Francisco: W. H. Freeman, 258.
- Dong H L, Hall C M, Halliday A N, Peacor D R, Merriman R J, Roberts B. 1997. $^{40}\text{Ar}/^{39}\text{Ar}$ illite dating of Late Caledonian (Acadian) metamorphism and cooling of K-bentonites and slates from the Welsh Basin, U.K. *Earth and Planetary Science Letters*, 150: 337–351.
- França A B, Araújo L M, Maynard J B, Potter P E. 2003. Secondary porosity formed by deep meteoric leaching: Botucatu eolianite, southern South America. *AAPG Bulletin*, 87(7): 1073–1082.
- Franks S G, Forester R W. 1984. Relationships among secondary porosity, pore-fluid chemistry and carbon dioxide, Texas Gulf Coast. In: McDonald D A, Surdam R C (eds). *Clastic Diagenesis*. AAPG Memoir 37, 63–80.
- Gaupp R, Matter A, Platt J, Ramseyer K, Walzebuck J. 1993. Diagenesis and fluid evolution of deeply buried Permian (Rotliegende) gas reservoirs, northwest Germany. *AAPG Bulletin*, 77(7): 1111–1128.
- Goldstein R H. 2003. Petrographic analysis of fluid inclusions. In: Samson I, Anderson A, Marshall D (eds). *Fluid Inclusions: Analysis and Interpretation*. Mineralogical Association of Canada, Short Course, 32: 9–53.
- Haines S H, van der Pluijm B A. 2008. Clay quantification and Ar-Ar dating of synthetic and natural gouge: application to the Miocene Sierra Mazatán detachment fault, Sonora, Mexico. *Journal of Structural Geology*, 30(4): 525–538.
- Harlavan Y, Sandler A. 2010. Steps toward dating early diagenetic K-feldspar by the $^{40}\text{Ar}-^{39}\text{Ar}$ method. *Sedimentary Geology*, 229(4): 254–267.
- Hieftje G M, Rayson G D, Olesik J W. 1985. A steady-state approach to excitation mechanisms in the ICP. *Spectrochimica Acta Part B: Atomic Spectroscopy*, 40(1–2): 167–176.
- Hiess J, Condon D J, McLean N, Noble S R. 2012. $^{238}\text{U}/^{235}\text{U}$ systematics in terrestrial uranium-bearing minerals. *Science*, 335: 1610–1614.
- Israelson C, Halliday A N, Buchardt B. 1996. U-Pb dating of calcite concretions from Cambrian black shales and the Phanerozoic time scale. *Earth and Planetary Science Letters*, 141(1): 153–159.
- Jones B F, Deocampo D M. 2003. *Geochemistry of Saline Lakes*. Treatise on Geochemistry. Amsterdam: Elsevier, 393–424.
- Jowett E C, Cathles L M, Davis B W. 1993. Predicting depths of gypsum dehydration in evaporitic sedimentary basins. *AAPG Bulletin*, 77: 402–413.
- Kawamura K, Kaplan I R. 1987. Dicarboxylic acids generated by thermal

- alteration of kerogen and humic acids. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 51(12) : 3201–3207.
- Kligfield R, Hunziker J, Dallmeyer R D, Schamel S. 1986. Dating of deformation phases using K-Ar and $^{40}\text{Ar}/^{39}\text{Ar}$ techniques: results from the northern Apennines. *Journal of Structural Geology*, 8(7) : 781–798.
- Lanson B, Beaufort D, Berger G, Baradat J, Lacharpagne J C. 1998. Late-stage diagenesis of illitic clay minerals as seen by decomposition of X-Ray diffraction patterns: contrasted behaviors of sedimentary basins with different burial histories. *Clay and Clay Minerals*, 46: 69–78.
- Li Q, Parrish R R, Horstwood M S A, McArthur J M. 2014. U-Pb dating of cements in Mesozoic ammonites. *Chemical Geology*, 376: 76–83.
- Liu J Z, Hay R L, Deino A, Kyser T K. 2003. Age and origin of authigenic K-feldspar in uppermost Precambrian rocks in the North American Midcontinent. *Geological Society of America Bulletin*, 115(4) : 422–433.
- Machel H G, Lonnee J. 2002. Hydrothermal dolomite: a product of poor definition and imagination. *Sedimentary Geology*, 152(3–4) : 163–171.
- Mark D F, Kelley S P, Lee M R, Parnell J, Sherlock S C, Brown D J. 2008. Ar-Ar dating of authigenic K-feldspar: quantitative modelling of radiogenic argon-loss through subgrain boundary networks. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 72(11) : 2695–2710.
- Meunier A, Velde B, Zalba P. 2004. Illite K-Ar dating and crystal growth processes in diagenetic environments: a critical review. *Terra Nova*, 16(5) : 296–304.
- Merrihue C, Turner G. 1966. Potassium–argon dating by activation with fast neutrons. *Journal of Geophysical Research*, 71(11) : 2852–2857.
- Moorbath S, Taylor P N, Orpen J L, Treloar P, Wilson J F. 1987. First direct radiometric dating of Archaean stromatolitic limestone. *Nature*, 326: 865–867.
- Morad S, Ketzer J M, De Ros L F. 2000. Spatial and temporal distribution of diagenetic alterations in siliciclastic rocks: implications for mass transfer in sedimentary basins. *Sedimentology*, 47(S1) : 95–120.
- Murray N A, McManus J, Palmer M R, Haley B, Manners H. 2018. Diagenesis in tephra-rich sediments from the Lesser Antilles Volcanic Arc: pore fluid constraints. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 228: 119–135.
- Nuriel P, Weinberger R, Kylander-Clark A R C, Hacker B R, Craddock J P. 2017. The onset of the Dead Sea transform based on calcite age-strain analyses. *Geology*, 45(7) : 587–590.
- Ostroff A G. 1964. Conversion of gypsum to anhydrite in aqueous salt solutions. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 28(9) : 1363–1372.
- Qiu D F, Liu Q Y, Yun J B, Jin Z J, Zhu D Y, Li T Y, Sun D S. 2018. Electron spin resonance(ESR) dating of pre-Quaternary faults in the Sichuan Basin, SW China. *Journal of Asian Earth Sciences*, 163: 142–151.
- Ravizza G, Turekian K K. 1989. Application of the $^{187}\text{Re}-^{187}\text{Os}$ system to black shale geochronometry. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 53(12) : 3257–3262.
- Ripley E M, Park Y R, Lambert D D, Frick L R. 2001. Re-Os isotopic composition and PGE contents of Proterozoic carbonaceous argillites, Virginia Formation, Northeastern Minnesota. *Organic Geochemistry*, 32(6) : 857–866.
- Roberts N M W, Walker R J. 2016. U-Pb geochronology of calcite-mineralized faults: absolute timing of rift-related fault events on the northeast Atlantic margin. *Geology*, 44(7) : 531–534.
- Roberts N M W, Rasbury E T, Parrish R R, Smith C J, Horstwood M S A, Condon D J. 2017. A calcite reference material for LA-ICP-MS U-Pb geochronology. *Geochemistry, Geophysics, Geosystems*, 18(7) : 2807–2814.
- Roedder E. 1979. Fluid inclusion evidence on the environments of sedimentary diagenesis: a review. *Aspects of Diagenesis*. Tulsa: SEPM (Society for Sedimentary Geology) : 89–107.
- Schenk C J, Richardson R W. 1985. Recognition of interstitial anhydrite dissolution: a cause of secondary porosity, San Andres limestone, New Mexico, and Upper Minnelusa Formation, Wyoming. *AAPG Bulletin*, 69: 1064–1076.
- Schwarzsch H P, Rink W J. 2001. Dating methods for sediments of caves and rockshelters with examples from the Mediterranean Region. *Geoarchaeology*, 16(4) : 355–371.
- Scotchman I C. 1989. Clay diagenesis and oil migration in Brent group sandstones of NW hutton field, UK North Sea. *Clay Minerals*, 24(2) : 339–374.
- Sherlock S C, Lucks T, Kelley S P, Barnicoat A. 2005. A high resolution record of multiple diagenetic events: ultraviolet laser microprobe Ar/Ar analysis of zoned K-feldspar overgrowths. *Earth and Planetary Science Letters*, 238(3–4) : 329–341.
- Simonetti A, Heaman L M, Chacko T, Banerjee N R. 2006. *In situ* petrographic thin section U-Pb dating of zircon, monazite, and titanite using laser ablation-MC-ICP-MS. *International Journal of Mass Spectrometry*, 253(1–2) : 87–97.
- Smith P E, Farquhar R M, Hancock R G. 1991. Direct radiometric age determination of carbonate diagenesis using U-Pb in secondary calcite. *Earth and Planetary Science Letters*, 105(4) : 474–491.
- Smoliar M I, Walker R J, Morgan J W. 1996. Re-Os ages of group IIA, III A, IVA, and IVB iron Meteorites. *Science*, 271: 1099–1102.
- Surdam R C, Crossey L J, Hagen E S, Heasler H P. 1989. Organic-inorganic interactions and sandstone diagenesis. *AAPG Bulletin*, 73(1) : 1–23.
- van der Pluijm B A, Hall C M, Vrolijk P J, Pevear D R, Covey M C. 2001. The dating of shallow faults in the Earth's crust. *Nature*, 412: 172–175.
- Wang J, Cao Y C, Liu K Y, Liu J, Xue X J, Xu Q S. 2016. Pore fluid evolution, distribution and water-rock interactions of carbonate cements in red-bed sandstone reservoirs in the Dongying Depression, China. *Marine and Petroleum Geology*, 72: 279–294.
- Wang Y Z, Fu Y H, Cao Y C, Wang S P, Song M S, Wang Y S, Wang X

- J, Yuan G H, Wang J. 2020. Sources of authigenic quartz in the Permian tight sandstones close to Gaoqing Fault, Dongying Sag, Bohai Bay Basin, China. *Marine and Petroleum Geology*, 113: 104109.
- Wang Z S, Rasbury E T, Hanson G N, Meyers W J. 1998. Using the U-Pb system of calcrites to date the time of sedimentation of clastic sedimentary rocks. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 62(16): 2823-2835.
- Winter B L, Johnson C M, Simo J A, Valley J W. 1995. Paleozoic fluid history of the Michigan Basin: evidence from dolomite geochemistry in the Middle Ordovician St. Peter sandstone. *Journal of Sedimentary Research*, 65A: 306-320.
- Woodhead J, Petrus J. 2019. Exploring the advantages and limitations of *in situ* U-Pb carbonate geochronology using speleothems. *Geochronology*, 1(1): 69-84.
- Woodhead J, Hellstrom J, Maas R, Drysdale R, Zanchetta G, Devine P, Taylor E. 2006. U-Pb geochronology of speleothems by MC-ICPMS. *Quaternary Geochronology*, 1(3): 208-221.
- Worden R H, Morad S. 2009. Clay minerals in sandstones: controls on formation, distribution and evolution. In: *Clay Mineral Cements in Sandstones*. Oxford, UK: Blackwell Publishing Ltd, 1-41.
- Worden R H, Coleman M L, Matray J M. 1999. Basin scale evolution of formation waters: a diagenetic and formation water study of the Triassic Chaunoy Formation, Paris Basin. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 63(17): 2513-2528.
- Yang P, Wu G H, Nuriel P, Nguyen A D, Chen Y Q, Yang S, Feng Y X, Ren Z L, Zhao J X. 2021. *In situ* LA-ICPMS U-Pb dating and geochemical characterization of fault-zone calcite in the central Tarim Basin, northwest China: implications for fluid circulation and fault reactivation. *Chemical Geology*, 568: 120125.
- Yokoyama T, Kimura J I, Mitsuguchi T, Danhara T, Hirata T, Sakata S, Iwano H, Maruyama S, Chang Q, Miyazaki T, Murakami H, Saito-Kokubu Y. 2018. U-Pb dating of calcite using LA-ICP-MS: instrumental setup for non-matrix-matched age dating and determination of analytical areas using elemental imaging. *Geochemical Journal*, 52(6): 531-540.
- Yuan G H, Cao Y C, Jia Z Z, Gluyas J, Yang T, Wang Y Z, Xi K L. 2015. Selective dissolution of feldspars in the presence of carbonates: the way to generate secondary pores in buried sandstones by organic CO₂. *Marine and Petroleum Geology*, 60: 105-119.
- Yuan G H, Cao Y C, Zhang Y C, Gluyas J. 2017. Diagenesis and reservoir quality of sandstones with ancient "deep" incursion of meteoric freshwater: an example in the Nanpu Sag, Bohai Bay Basin, East China. *Marine and Petroleum Geology*, 82: 444-464.
- Zhu S F, Taylor K, Chen J H, Zhu X M, Sun S Y, Jia Y. 2019. Controls on carbonate cementation in early syn-rift terrestrial siliciclastics: the Lower Cretaceous of the Bayindulan Sag in Erlian Basin, China. *Marine and Petroleum Geology*, 105: 64-80.
- Zhu S F, Cui H, Jia Y, Zhu X M, Tong H, Ma L C. 2020a. Occurrence, composition, and origin of analcime in sedimentary rocks of non-marine petrolierous basins in China. *Marine and Petroleum Geology*, 113(C): 104164.
- Zhu S F, Zhu X M, Jia Y, Cui H, Wang W Y. 2020b. Diagenetic alteration, pore-throat network, and reservoir quality of tight gas sandstone reservoirs: a case study of the upper Paleozoic sequence in the northern Tianhuan depression in the Ordos Basin, China. *AAPG Bulletin*, 104(11): 2297-2324.

(责任编辑 李新坡; 英文审校 陈吉涛)