

文章编号: 0253-2697(2014)03-407-10 DOI: 10. 7623/syxb201403001

自生伊利石 K-Ar、Ar-Ar 测年技术对比与应用前景展望 ——以苏里格气田为例

张有瑜^{1,2,3} Horst Zwingmann⁴ 刘可禹^{1,2,3,4} 罗修泉¹

(1. 中国石油勘探开发研究院 北京 100083;

2. 中国石油天然气集团公司盆地构造与油气成藏重点实验室 北京 100083; 3. 提高石油采收率国家重点实验室 北京 100083;

4. Earth Science and Resource Engineering, Commonwealth Scientific and Industrial Research Organization Bentley, Australia P. O. Box 1130)

摘要:以苏里格气田为例,对自生伊利石K-Ar法、Ar-Ar法年龄测定的技术特点、应用效果和应用前景进行了系统对比和深入研究。苏里格气田自生伊利石(I/S有序间层)发育较好,主要呈丝状,具有典型的自生成因特征,其K-Ar年龄、未真空封装Ar-Ar总气体年龄和真空封装Ar-Ar总气体年龄分别为141~145 Ma、171~237 Ma和130~152 Ma。K-Ar年龄表明主要为晚侏罗世晚期—早白垩世早期成藏,其分布规律很好地反映了成藏特征和成藏过程;未真空封装Ar-Ar总气体年龄明显偏老,不能代表自生伊利石的形成年龄,更不能反映成藏时代,“³⁹Ar核反冲丢失”现象是导致其偏老的主要原因;真空封装Ar-Ar总气体年龄与K-Ar年龄基本接近,可能反映自生伊利石的形成年龄并代表成藏时代。本次对比研究表明,对于利用自生伊利石同位素测年技术探讨砂岩油气藏成藏时代,K-Ar法测年技术简便快捷、经济成熟、稳定可靠,是第一选择并具有较好的应用前景;未真空封装Ar-Ar法测年技术很难获得理想的年龄数据和较好的应用效果,如果没有其他特殊目的,可以不予考虑;真空封装Ar-Ar法测年技术,如果运用得当,有可能获得相对较好的年龄数据和相对较好的应用效果,但技术复杂、环节多、周期长和费用高等将会严重制约其发展和应用。

关键词:苏里格气田;下石盒子组八段砂岩储层;自生伊利石;K-Ar测年;未真空封装Ar-Ar测年;真空封装Ar-Ar测年;³⁹Ar核反冲丢失;成藏年代

中图分类号:TE122.14

文献标识码:A

Perspective on the K/Ar and Ar/Ar geochronology of authigenic illites: a case study from the Sulige gas field, Ordos Basin, China

Zhang Youyu^{1,2,3} Horst Zwingmann⁴ Liu Keyu^{1,2,3,4} Luo Xiuquan¹

(1. PetroChina Research Institute of Petroleum Exploration and Development, Beijing 100083, China;

2. CNPC Key Laboratory of Basin Structure and Hydrocarbon Accumulation, Beijing 100083, China;

3. State Key Laboratory of Enhanced Oil Recovery, Beijing 100083, China; 4. Earth Science and Resource Engineering, Commonwealth Scientific and Industrial Research Organization, Bentley, P. O. Box 1130, Australia)

Abstract: This paper makes a systematic comparison of and a deep study on the technical features, application prospective and effects of the K-Ar, vacuum-encapsulated Ar-Ar, and non-encapsulated Ar-Ar dating of authigenic illites from petroleum reservoirs by taking the Sulige gas field as an example. Authigenic illite, or the ordered mixed-layer illite/smectite (I/S) is well developed in reservoirs of the Sulige gas field. It is mainly presented in filamentous form, with typical authigenic origin. The corresponding K-Ar ages, vacuum-encapsulated Ar-Ar total gas ages, and non-encapsulated Ar-Ar total gas ages are 141-145 Ma, 130-152 Ma, and 171-237 Ma, respectively. The K-Ar ages indicate that the hydrocarbon accumulations mainly occurred during the period from the late phase of the Late Jurassic to the early phase of the Early Cretaceous, reflecting the accumulation features and processes by their distributions. The non-encapsulated Ar-Ar total gas ages are older due to ³⁹Ar recoil loss, and can't represent the forming ages of authigenic illites, or the accumulation times, both of which may be represented by the vacuum-encapsulated Ar-Ar total gas ages that are basically close to the K-Ar ages. The comparative results show that the K-Ar isotopic dating of authigenic illites is most applicable to exploring the hydrocarbon accumulation time in sandstone, with the advantages of easy-operation, low-cost, celerity and reliability, and better application prospect. The non-encapsulated Ar-Ar dating method will not be adopted unless for some special purposes, due to the difficulties in obtaining desirable age data and achieving good application prospect. The vacuum-encapsulated Ar-Ar

基金项目:中国石油天然气股份有限公司科技攻关项目“油气勘探新领域、新理论、新方法、新技术”(2011A-0207)资助。

第一作者及通信作者:张有瑜,男,1955年8月生,1982年获中南大学学士学位,1988年获中国地质大学(北京)硕士学位,现为中国石油勘探开发研究院教授级高级工程师,主要从事油气储层自生伊利石K-Ar、Ar-Ar测年、He、Ar同位素质谱分析、常规K-Ar、Ar-Ar测年和含油气盆地黏土矿物研究。Email:ngms@petrochina.com.cn

dating method may yield reasonable age data if performed properly. However, the complex technical procedures, long analytical duration and high cost present a huge challenge for its development and routine application in studying petroleum reservoir chronology.

Key words: Sulige gas field; sandstone reservoirs of Member 8 of Xiashihezi Formation; authigenic illites; K-Ar dating; vacuum-encapsulated Ar-Ar dating; non-encapsulated Ar-Ar dating; ^{39}Ar recoil loss; accumulation time

自生伊利石是砂岩油气储层中的常见胶结物之一。由于其可以为油气成藏史研究提供重要的年代学数据,自生伊利石 K-Ar、Ar-Ar 特别是 K-Ar 测年技术受到了广大油气成藏史研究学者的广泛重视并已逐渐成为油气成藏史研究课题中的一项重要内容。

成岩自生伊利石,特别是油气储层中的成岩自生伊利石年代学研究目前仍然是国际上的一个前沿性课题,尚有许多认识和技术问题需要进一步深入研究。笔者首先对自生伊利石 K-Ar、Ar-Ar 测年方法进行简要介绍,然后以苏里格气藏实测年龄数据和实际应用效果为依据对有关认识和技术问题,譬如两种测年方法的技术优点和问题以及应用前景等进行深入探索和综合评述。

1 自生伊利石 K-Ar、Ar-Ar 测年技术的发展与演变

1.1 自生伊利石 K-Ar 测年技术

K-Ar 法是一种应用非常广泛的同位素地质年龄测定技术^[1]。自生伊利石 K-Ar 测年技术也属于常规 K-Ar 法年龄测定的技术范畴。

对 K-Ar 法的优点、缺点或局限性进行了系统总结(表 1),其中的“过剩氩”是指岩石矿物在形成时从环境中捕获的并封闭在其晶格中的 Ar(^{40}Ar),而不是在形成之后由放射性衰变而产生的并保存在晶格中的

放射性 ^{40}Ar ($^{40}\text{Ar}^*$)。过剩氩是引起实测年龄明显偏老的常见原因之一。

自生伊利石 K-Ar 测年技术是国外 20 世纪 80 年代中后期发展起来的一项新技术,主要用于研究北海地区油田成藏史并获得了较好的应用效果,如 Lee 等^[2]、Hamilton 等^[3]、Emery 和 Robinson 等^[4]。Hamilton 等^[5,6]对该项技术进行了系统论述。从 1998 年开始,笔者所在实验室开始对该项技术进行专项立项攻关并取得了一系列重要进展^[7-11]。此外,黄道军等^[12]、张忠民等^[13]、刘四兵等^[14]一大批学者也都对该项技术进行了探索性研究并取得了较好的应用效果。

1.2 自生伊利石 Ar-Ar 测年技术

Ar-Ar 法测年技术是 K-Ar 法测年技术的进一步发展与改进。Ar-Ar 法又称快中子活化法,需要把待测样品送到核反应堆进行快中子照射,使样品中的 ^{39}K 转变成 ^{39}Ar ,然后再利用惰性气体质谱仪,测量其放射性 ^{40}Ar 和 ^{39}Ar 比值,即 $^{40}\text{Ar}^*/^{39}\text{Ar}$,通过进一步计算便可以求出被测样品的年龄^[1,15]。

对 Ar-Ar 法,包括常规 Ar-Ar 法和激光 Ar-Ar 法的优点、缺点或局限性进行了详细总结(表 1),其中的“ ^{39}Ar 核反冲丢失”现象指的是在 ^{39}K 转变成 ^{39}Ar 的过程中, ^{39}Ar 会获得足够能量从其母原子的晶格位置上发生位移,反冲到周围环境中并发生丢失,从而使年龄偏老。

表 1 K-Ar 法、Ar-Ar 法同位素测年技术对比

Table 1 Comparison of K-Ar and Ar-Ar dating methods

项目	K-Ar 法	Ar-Ar 法	
		常规 Ar-Ar 法	激光 Ar-Ar 法
综述	应用最为广泛的同位素地质年代测定方法之一	K-Ar 法测年技术的进一步发展和改进,越来越受重视,应用越来越广泛	
优点	①适用范围广:测试对象分布广,测年时限范围宽(几千年至 1 Ma); ②简便快捷、经济实用:实验流程简单、分析周期短、测试费用低	①适用范围广:测试对象分布广,测年时限范围宽; ②样品量相对较少; ③独特的实验和数据处理技术:快中子活化技术——不用分开测 K、Ar,可以避免因样品不均匀引起的试验误差;阶段升温技术——可以获得多个甚至是十几个阶段年龄,形成年龄谱;坪年龄、等时线年龄、初始氩比值——可以提供更多的信息,有利于研究样品的受热历史和“过剩氩”问题	①适用范围进一步拓宽:测试对象进一步增加,测年时限进一步拓展,甚至可以达到人类历史记录范畴 ^[16] ; ②样品量进一步减小,达到 1 μg 级;可以进行单矿物颗粒、光薄片原位矿物或岩石年龄测定,并可以形成全自动激光 Ar-Ar 系统; ③同常规 Ar-Ar 法
缺点	①样品量相对较多;②需要分开测 K、Ar;当样品不均一时,容易产生误差;③一次性熔样,只能获得一个年龄;不利于研究样品的受热历史,当有“过剩氩”存在时,实测年龄会偏老	①技术复杂,费用较高:技术环节多,测试周期长,分析费用高; ②存在“ ^{39}Ar 核反冲丢失”现象,特别是对于细粒的低温矿物如黏土矿物,尤其是油气储层中的自生伊利石,需要采用特殊的样品包装及处理技术如石英管真空封装技术	

为了克服“ ^{39}Ar 核反冲丢失”现象,Hess 和 Lipolt^[17]提出了石英管真空封装技术,也称显微包裹技

术,即在送核反应堆进行快中子照射之前,先把已经用铝箔包好的样品放入石英管中,然后抽真空,等达到一

定的真空状态($1 \times 10^{-3} \sim 1 \times 10^{-5}$ Pa)后,在保持抽真空的状态下对石英真空管进行烧熔密封(焊封),使样品在快中子照射过程中始终保持在真空密封状态下,直至装入仪器系统中开始进行 Ar 同位素比值测定时再打开。从而使 Ar-Ar 法测年技术又有真空封装和未真空封装之分。

自生伊利石 Ar-Ar 测年技术是 Ar-Ar 法测年技术在自生伊利石年龄测定领域中的应用,Hamilton 等^[6]对该项技术进行了系统论述。由于技术复杂和存在“³⁹Ar 核反冲丢失”问题,国内外公开发表的关于砂岩油气储层自生伊利石 Ar-Ar 年代学研究成果均相对较少。Emery 和 Robinson^[4]发表了北海南部 Village 油田区二叠系赤底群风成砂岩中的自生伊利石未真空封装阶段升温 Ar-Ar 年龄谱。Clauer 等^[18]发表了德国西北部二叠系赤底群含气砂岩中的自生伊利石真空封装阶段升温 Ar-Ar 年代学研究成果。在国内,王龙樟等^[19,20]发表了鄂尔多斯盆地苏里格气田砂岩储层中的自生伊利石真空封装阶段升温 Ar-Ar 年代学研究成果,该项研究成果具有较高的科学价值,填补了国内空白,并为本次的自生伊利石测年技术对比研究提供了有利条件。张有瑜等^[11]发表了塔里木盆地哈 6 井石炭系、志留系砂岩储层中的自生伊利石未真空封装阶段升温 Ar-Ar 年代学研究成果。

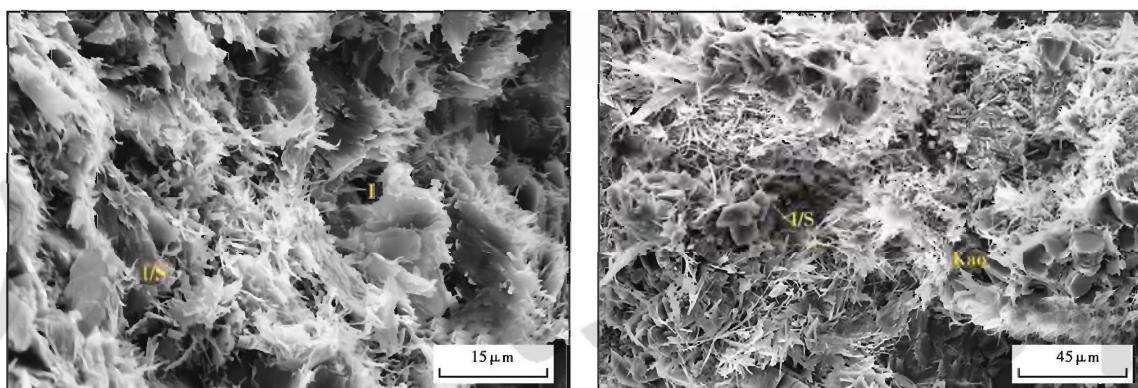
2 苏里格气田自生伊利石 K-Ar、Ar-Ar 年龄及其成藏意义

苏里格气田是中国石油天然气集团公司近期发现

的大型整装气田,位于内蒙古伊克昭盟,区域构造上属于鄂尔多斯盆地伊陕斜坡西北部。苏里格气田为一大型岩性气藏,主力气源岩为石炭系本溪组、二叠系太原组和山西组海陆交互相含煤层系,区域盖层为二叠系上石盒子组洪泛平原和滨、浅湖相泥岩。主力储层为二叠系下石盒子组八段(盒八段),主要为河道砂体中一粗粒石英砂岩,其次为岩屑砂岩,孔隙度分布范围为 4%~10%,平均孔隙度为 7.57%,主要渗透率分布范围为 0.10~3.16 mD,总体上属于低孔、低致密储层^[21]。关于苏里格气田的成藏期,天然气地球化学和流体包裹体研究结果基本一致,即主要有 2 期,分别是早侏罗世晚期—晚侏罗世晚期(190~154 Ma)和早白垩世(137~96 Ma),主要成藏期即生气高峰期为晚侏罗世—白垩纪,可能与中生代晚期的燕山期构造热事件有关^[22~24]。苏里格气藏主要为近源捕获,即就近运聚成藏,产自下伏气源层的天然气主要通过断层和裂缝向上充注进入砂体中^[21]。

2.1 苏里格气田自生伊利石矿物学特征

扫描电镜(SEM)观察表明,苏里格气田砂岩储层中自生伊利石非常发育,主要呈丝状、短丝状、片丝状,具有典型的自生成因特征(图 1),其次为绿泥石和高岭石。X 射线衍射(XRD)鉴定表明,苏里格气田砂岩储层中的黏土矿物主要为伊利石/蒙皂石(I/S)有序间层(含量为 24%~49%),间层比为 10%~30%,其次为绿泥石和高岭石,含量分别为 24%~55% 和 9%~25%,并含有少量伊利石,含量为 2%~13%(表 2,粒级小于 2 μm)。



(a) 粒表片状、丝状伊利石(I, I/S), 苏 1 井, 3 545.0 m (b) 粒表丝状伊利石(I/S)和片状高岭石(Kao), 苏 16 井, 3 356 m

图 1 苏里格气田砂岩储层自生伊利石特征扫描电镜照片

Fig. 1 SEM image of authigenic illite characteristics in sandstone reservoirs of the Sulige gas field

2.2 自生伊利石 K-Ar 年龄

表 2 给出了本次研究的 6 块砂岩样品的不同粒级组分自生伊利石的 K-Ar 年龄数据。关于自生伊利石分离提纯及其 K-Ar 年龄测定的实验方法,笔者做过

详细介绍^[7,9~11],这里不再赘述。从表 2 中可以看出,随着粒级逐渐变小,年龄逐渐减小,至 0.3 μm 以下粒级时则基本稳定。同时,从表 2 中还可以看出,随着粒级逐渐减小,I/S 有序间层含量逐渐增加,绿泥石含量

逐渐降低,伊利石和高岭石趋于消失,至 $0.3\text{ }\mu\text{m}$ 以下粒级时,则只有 I/S 有序间层和绿泥石,说明该自生伊利石样品的纯度非常高,尽管其含量范围只有 61%~78%,没有达到 100%,但不含碎屑钾长石和碎屑伊利石。绿泥石不含钾,理论上讲,绿泥石的存在对 Ar 同位素年代学体系基本上没有影响,笔者的试验结果也充分证明了这一点^[8]。所以,可以认为表 2 中较细粒级组分($0.3\sim0.15\text{ }\mu\text{m}$ 和/或小于 $0.15\text{ }\mu\text{m}$)的实测年龄基本上代表自生伊利石年龄,即主要为 141~146 Ma,其次为 157~161 Ma,主要为晚侏罗世晚期—早白垩世早期。苏里格气田砂岩储层的自生伊利石年龄

分布具有 2 个显著特点:①平面上在研究区广大区域范围内非常稳定,从苏 1 井、苏 16 井到苏 25 井,相距近 120 km,年龄都是 141 Ma[图 2(a)];②纵向上由深到浅,年龄变小,如苏 25 井,相对较深层位为 157~161 Ma,相对较浅层位则为 141~146 Ma[图 2(b)]。通过对比可以清楚发现,自生伊利石年龄很好地反映了苏里格气藏的成藏时代、成藏特征和成藏过程,即:①主要为晚侏罗世晚期—早白垩世早期(141 Ma)成藏;②区域内主要生气、成藏期基本一致(年龄数据区域内一致);③主要为近源捕获、垂向运移,即年龄数据平面上一致但纵向上自下而上(由深至浅)变小。

表 2 苏里格气田盒八段砂岩储层自生伊利石 K-Ar、未真空封装 Ar-Ar 测年分析数据

Table 2 K-Ar, non-encapsulated Ar-Ar dating results of authigenic illites from the sandstone reservoirs in Sulige gas field

样号	井号	井深/m	岩性	粒级/ μm	黏土矿物相对含量/%					I/S 间层 比/%	C/S 间层 比/%	S 层 含量/%	钾长 石	K-Ar 测年数据			未真空封装 Ar-Ar 测年数据		
					S	I/S	I	K	C					K%	年龄/Ma	坪年 龄/Ma	NTGA/Ma	年龄偏 度/%	计算核反 冲丢失/%
					A								C			D			
A1	苏 25	3 167.1	细砂岩	<2	1	35	13	24	24	3	30	50	12.0	—	2.90	230.68	295.72	28	22
				1~0.5	1	40	4	20	35	—	30	—	15.0	—	3.77	169.68	238.63	41	29
				0.5~0.3	1	50	2	8	39	—	30	—	—	—	4.40	145.82	237.17	63	39
A2	苏 25	3 172.0	细砂岩	<2	35	13	25	25	2	30	50	12.3	—	3.20	219.31	283.36	29	23	
				1~0.5	41	3	19	37	—	30	—	13.5	—	3.85	163.34	199.33	22	18	
				0.5~0.3	45	2	7	46	—	30	—	18.3	—	4.62	140.56	186.46	33	25	
A3	苏 25	3 200.8	中砂岩	<0.15	61	2	—	36	1	30	50	17.7	—	4.71	149.65	216.70	45	31	
				<2	59	1	—	39	1	30	50	—	—	—	—	—	—	—	
				1~0.5	24	2	19	55	—	10	—	3.2	—	3.83	191.17	216.94	13	12	
A4	苏 25	3 205.2	粗砂岩	0.5~0.3	32	2	7	59	—	10	—	4.9	—	5.09	165.77	225.40	36	26	
				0.3~0.15	49	1	2	48	—	10	—	7.1	—	6.53	157.21	204.17	30	23	
				<0.15	45	—	—	—	—	10	—	7.8	—	6.72	169.71	222.00	210.16	24	19
A5	苏 1	3 545.0	细砂岩	<2	61	5	20	49	—	10	—	3.9	—	3.93	173.17	211.14	22	18	
				1~0.5	47	—	—	53	—	10	—	4.7	—	4.72	164.77	173.15	5	5	
				0.5~0.3	39	—	—	—	—	10	—	6.1	—	6.14	160.59	219.10	183.35	14	12
A6	苏 16	3 356.0	细砂岩	<2	68	7	9	35	—	20	—	6.8	—	4.42	166.38	202.40	182.95	10	9
				1~0.5	60	—	—	40	—	15	—	9.0	—	5.36	143.94	176.22	22	18	
				0.3~0.15	52	—	—	32	—	15	—	10.2	—	5.81	141.34	226.11	202.90	44	30
A6	苏 16	3 356.0	细砂岩	<0.15	52	—	—	48	—	15	—	7.8	—	5.74	143.58	199.30	174.85	22	18
				<2	48	6	12	42	—	20	—	6.3	—	3.62	150.77	191.33	27	21	
				1~0.5	42	2	3	53	—	15	—	8.4	—	5.03	146.13	161.31	10	9	
A6	苏 16	3 356.0	细砂岩	0.5~0.3	56	—	—	44	—	15	—	5.9	—	5.94	140.54	170.77	22	18	
				0.3~0.15	59	—	—	41	—	10	—	—	—	—	—	—	—	—	

注:S 表示蒙皂石;I/S 表示伊利石/蒙皂石间层;I 表示伊利石;K 表示高岭石;C 表示绿泥石;C/S 表示绿泥石/蒙皂石间层;NTGA 表示未封装 Ar-Ar 总气体年龄;C = A × B/100;F = (E/D)/D × 100;G = (E/D)/E × 100;— 表示未检出;A1~A4 和 A5~A6 部分黏土矿物和钾含量数据分别引自文献[12]、[25]。

2.3 自生伊利石 Ar-Ar 年龄

表 2 给出了与 K-Ar 法年龄测定相同样品的未真空封装自生伊利石 Ar-Ar 阶段升温年龄测定结果。表 3 给出了王龙樟等^[19,20]的真空封装自生伊利石 Ar-Ar 阶段升温年龄测定结果。关于自生伊利石未真空封装和真空封装 Ar-Ar 阶段升温年龄测定的实验方法,请分别参阅文献[11]和文献[19,20]。从表 2 中可以看出,与 K-Ar 年龄相比,未真空封装 Ar-Ar 总气体年龄(NTGA)明显偏老,与 K-Ar 年龄为 141~146 Ma 对应的 NTGA,为 171~237 Ma,偏老 22%~63%,与

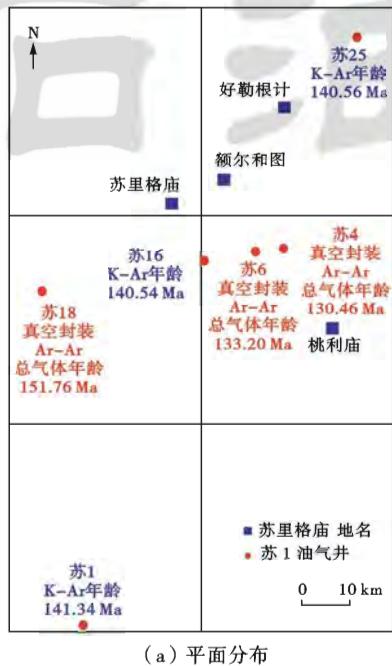
K-Ar 年龄为 157~161 Ma 对应的 NTGA,为 183~204 Ma,偏老 14%~30%。核反应堆照射过程中的“³⁹Ar 核反冲丢失”可能是导致 Ar-Ar 年龄明显偏老的主要原因,对此下面将作进一步论述。显然,由于“³⁹Ar 核反冲丢失”,使得 NTGA 可能不具有准确的地质意义,更不能反映油气注入时间和代表成藏期。另外,从表 3 中还可以看出,真空封装 Ar-Ar 总气体年龄(ET-GA)与 K-Ar 年龄较为接近,为 130~152 Ma,可能具有一定的地质意义,并大致反映油气注入时间和代表成藏期。

表3 苏里格气田盒八段砂岩储层自生伊利石真空封装Ar-Ar测年分析数据^[19,20]

Table 3 Vacuum-encapsulated Ar-Ar dating results of authigenic illites from the sandstone reservoirs in Sulige gas field

样号	井号	井深/m	岩性	粒级/ μm	黏土矿物组成	钾长石	坪年龄/Ma	ETGA/Ma	实测核反冲丢失/%
B1	苏4	3145.0		<0.5		—	169.10	130.46★	14★
B2	苏6	3313.0	中粗粒 石英 砂岩	2~1 <0.5 2~1	主要为伊利石和绿泥石, 含少量蒙脱石	—	176.60	151.88☆	14☆
B3	苏18	3556~3577		<0.5		—	172.50	133.20★	14★
						—	199.90	175.91☆	12☆
						—	189.70	151.76☆	20☆

注:ETGA表示真空封装Ar-Ar总气体年龄;★表示根据原文数据计算;☆表示根据原文年龄谱中的坪年龄和核反冲丢失程度(R)计算。



(a) 平面分布

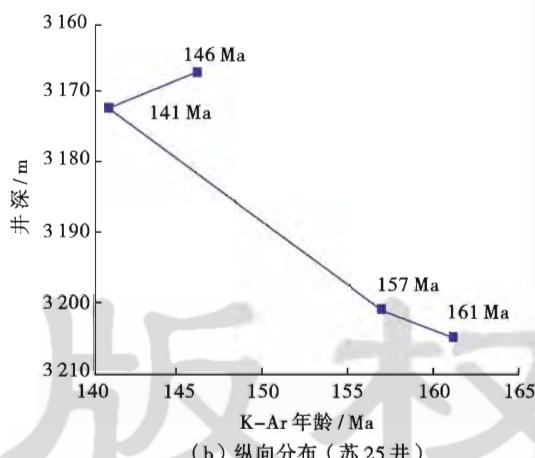


图2 苏里格气田盒八段砂岩储层自生伊利石年龄分布

Fig. 2 Age distribution of authigenic illites in the sandstone reservoirs of He-8 Member in Sulige gas field

3 自生伊利石K-Ar、Ar-Ar测年技术对比及应用前景展望

3.1 自生伊利石K-Ar测年技术

本次研究表明,自生伊利石K-Ar年龄及其分布很好地反映了苏里格气田的成藏时代和成藏特征,再

一次充分证明对于油气成藏时代及油气成藏史研究,自生伊利石K-Ar法测年技术是一种首选方法,具有广阔的应用前景,不仅技术简便成熟,而且经济快捷,数据稳定、可靠,应用效果好。

实际上,真正制约自生伊利石K-Ar测年技术推广与应用的关键因素是能否获取理想的测试样品,即纯的或基本纯的自生伊利石。显然,自生伊利石分离提纯是自生伊利石K-Ar年龄测定中的关键技术之一。从目前情况看,尽量提取较细粒级的黏土组分很可能是实现这一目的的唯一有效途径。近期以来,随着实验设备的不断更新,如高速、超高速离心机的应用。实验新技术的不断开发,如微孔滤膜真空抽滤技术。实验工艺流程的不断改进,如多种分离技术相结合、逐级分离技术等^[7,10]。自生伊利石分离提纯不仅已经成为一个常规实验分析项目,并且还会越来越容易。“九五”(1996—2000年)以来,作者所在实验室成功分析了中国主要含油气盆地主要油气藏大量砂岩样品并获取了大量的纯或基本纯的自生伊利石样品^[9,11-14]。初步研究成果证明,对于那些自生伊利石发育并达到了一定的“质”(间层比较小)和“量”(含量较多),并且自生伊利石生长作用与油气充注具有成因联系的砂岩油气藏,自生伊利石K-Ar测年技术一般都会获得较为理想的年龄数据和较好的应用效果^[2-4,9,11-14]。

对于自生伊利石K-Ar测年而言,表1中所列出的常规K-Ar法的所谓缺点或局限性可能都不是非常重要,或者说可以忽略。首先,自生伊利石不属于极其珍贵样品,通过分离提取的样品数量绝大多数完全可以满足测试需求;其次,分开测K、Ar,当样品不均一时虽然可能会引起误差,但实际上很难标定,一般不会影响K-Ar法的实际应用,对于油气成藏史研究同样不会产生较大影响;第三,对于自生伊利石年龄测定,“过剩氩”现象应该不会是主要问题,因为首先成岩环境不属于容易产生“过剩氩”的地质环境,其次自生伊利石不属于对“过剩氩”特别敏感的低钾矿物如辉石、角闪石等^[1]。

3.2 自生伊利石Ar-Ar测年技术

自生伊利石Ar-Ar测年技术的最大问题是“³⁹Ar

核反冲丢失”现象。尽管人们对“ ^{39}Ar 核反冲丢失”现象进行研究已有近 40 年的历史，并采取了许多办法如石英管真空封装技术、总气体年龄和保留年龄^[17,26-29]等，但都具有一定的局限性且应用效果尚需进一步深入探讨。特别是由于关于砂岩油气储层中的自生伊利石的 Ar-Ar 年代学研究相对较少且分析的样品数量相对有限，人们对“ ^{39}Ar 核反冲丢失”现象的认识及该项技术在油气成藏史研究中的应用远不够系统和深入，并且还存在一些不恰当的观点和做法^[30]，对此，Clauer 等进行了全面系统的详细评述^[31]。

“ ^{39}Ar 核反冲丢失”现象是黏土矿物，特别是自生伊利石 Ar-Ar 法年龄测定中不可回避的重要问题之一，是 Ar-Ar 年龄数据分析和图谱解释与应用的前提和基础，下面以苏里格气田的实测数据为依据对其进

行系统论述。

3.2.1 表观年龄和年龄谱

为了进行系统对比，本次研究对和 K-Ar 法年龄测定相同的 6 块苏里格气田砂岩样品的各个不同粒级自生伊利石均进行了未真空封装 Ar-Ar 阶段升温年龄测定，图 3 是 2 块代表性样品（样品 A2、A5）4 个连续粒级的年龄谱。从图 3 可以看出，年龄谱均为上升谱，即除了开始时的低温阶段（Ar 气刚开始释放）和结束时的高温阶段（Ar 气释放接近终了），总的的趋势是随着温度不断升高，表观年龄逐渐增大。同时，从图 3 中还可以看出，尽管都为上升谱，但不同样品之间仍具有较大差异，比较而言，样品 A2 的上升谱特征[图 3(a)—图 3(d)]远比样品 A5 的[图 3(e)—图 3(h)]明显。

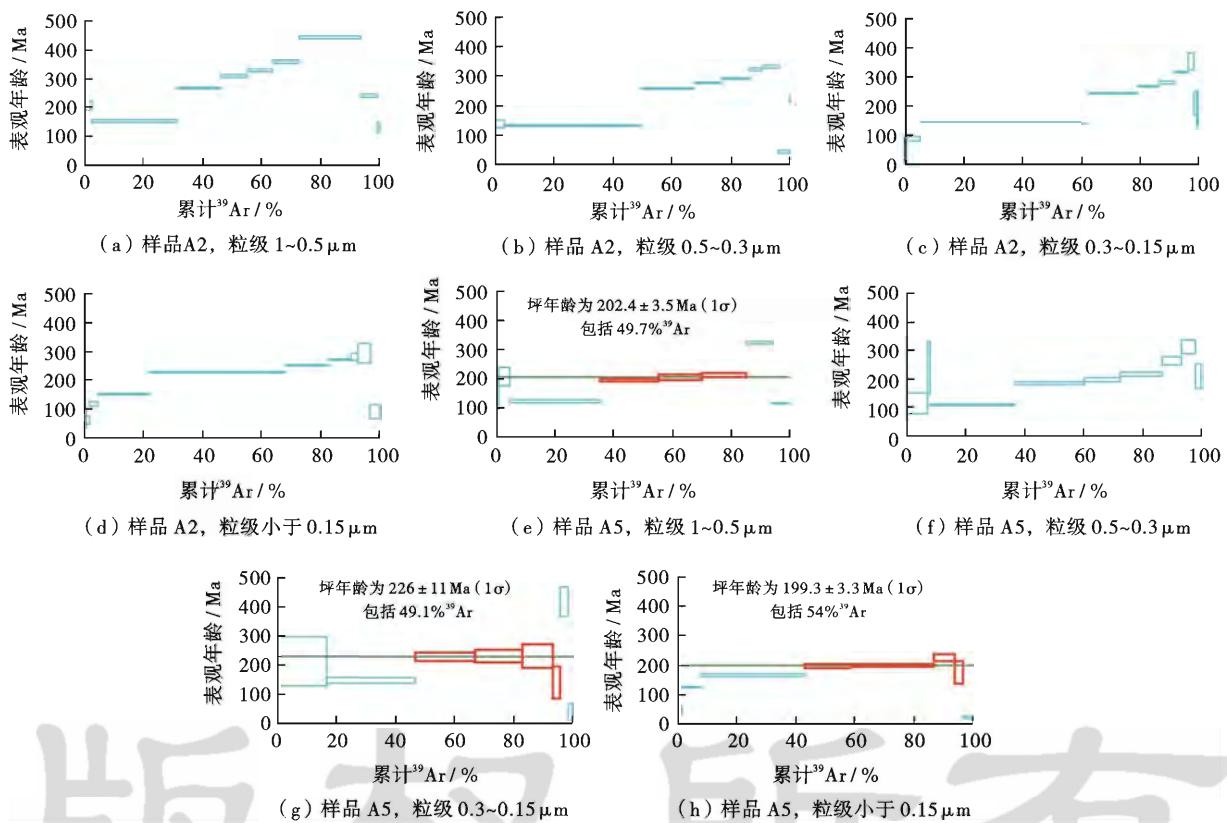


图 3 苏里格气田盒八段砂岩储层自生伊利石未真空封装 Ar-Ar 阶段升温年龄谱

Fig. 3 Ar-Ar step-heating age spectra of non-encapsulated authigenic illites from the sandstone reservoirs in Sulige gas field

年龄谱呈阶梯状连续增长实际上反映的是 $^{40}\text{Ar}^*/^{39}\text{Ar}$ 比值随温度增加逐渐增大，I/S 间层中的伊利石层和蒙皂石层分别具有不同的释 Ar 特征可能是产生这种现象的主要原因。首先 I/S 间层中的伊利石层的 Ar 释放温度比蒙皂石层高，其次蒙皂石层含 K 低并且其结构特征适合接收反冲的 ^{39}Ar 原子。在快中子照射过程中，由于具有较高的反冲能量， ^{39}Ar 反冲原子会发生均一化，从而导致蒙皂石层接收了额外的 ^{39}Ar 原

子，结果使 $^{40}\text{Ar}^*/^{39}\text{Ar}$ 比值在低温阶段相对较低，高温阶段相对较高，形成随着温度增加逐渐增大的上升年龄谱。显然，测试样品中的蒙皂石层含量是谱型特征的主要影响因素，样品 A2、A5 的谱图变化特征很好地说明了这一点。对比表 2 和图 3 可以发现，样品 A2 的蒙皂石层含量相对较高，为 12.3%~18.3%，上升特征相对较强；样品 A5 的蒙皂石层含量相对较低，为 6.8%~10.2%，上升特征相对较弱。从表 2 中可以进

一步看出,尽管蒙皂石层含量是I/S有序间层的相对含量与其间层比的乘积,但主要决定于间层比,所以对比而言,影响谱图上升特征的主要因素首先是间层比,然后才是相对含量。

由于受³⁹Ar核反冲丢失”作用的影响,年龄谱呈阶梯状连续增长,从而使表观年龄数据具有很大的不确定性。显然,任何一个温度阶段的表观年龄数据都不能代表样品也即自生伊利石的年龄,特别是低温开始阶段和高温结束阶段。本次研究表明,低温开始阶段和高温结束阶段的表观年龄数据变化范围非常大,以0.30~0.15 μm粒级为例,低温阶段:小者为24 Ma,大者为3118 Ma,高温阶段:小者为39 Ma,大者为2382 Ma,不仅或大或小、非常不稳定,并且还³⁹Ar释放百分比(可理解为权重)较小,多在1%以下,基本没有代表性,因而不具有实际意义,更不能代表样品也即自生伊利石的年龄。

3.2.2 年龄坪和坪年龄

年龄坪,指的是年龄谱中表观年龄基本一致的一段宽而平稳的年龄谱。坪年龄是构成年龄坪的所有温度阶段的表观年龄的加权平均值。年龄坪,具有严格定义,主要包括:①构成年龄坪的阶段表观年龄必须是在误差范围内一致;②构成年龄坪的年龄阶段必须是连续的且至少要在3~5个以上;③构成年龄坪的所有年龄阶段的³⁹Ar累积释放量至少要占总释放量的50%以上^[1,15]。对于造岩矿物Ar-Ar年龄测定,坪年龄具有非常重要的实用意义。当与等时线年龄在误差范围内一致,并且其⁴⁰Ar/³⁶Ar初始值接近大气氩值即295.5时,坪年龄可以解释为测试样品的结晶年龄或氩封闭年龄,说明样品的K-Ar体系自进入封闭状态后再没有受到新的热干扰,并且放射成因⁴⁰Ar与³⁹Ar在晶体中均匀分布,阶段升温期间在各温度阶段下所释放的氩气的⁴⁰Ar*/³⁹Ar比值基本恒定^[1,15]。但是,对于自生伊利石Ar-Ar年龄测定,由于存在“³⁹Ar核反冲丢失”现象,从而使坪年龄的作用大打折扣,可能不具有明确的地质意义。因为构成这种年龄坪的各个温度阶段的表观年龄都受到了“³⁹Ar核反冲丢失”的影响,由此而得出的所谓“坪年龄”实质上是受到“³⁹Ar核反冲丢失”影响以后的“坪年龄”。正如Emery和Robinson等^[4]所论述的一样,这种“坪年龄”的存在只能说明构成“年龄坪”的各个温度阶段的“³⁹Ar核反冲丢失”程度基本接近。

研究的A3、A4、A5号样品部分粒级组分具有年龄坪,其坪年龄分别为222.00 Ma、219.10 Ma、202.40 Ma、226.11 Ma和199.30 Ma[表2、图3(e)、图3(g)、图3(h)],均大于其各自的对应K-Ar年龄即169.71 Ma、

160.59 Ma、166.38 Ma、141.34 Ma和143.58 Ma。坪年龄明显偏老,是由于“³⁹Ar核反冲丢失”现象所致。显然,这种未真空封装样品的坪年龄不具有明确地质意义,更不能代表自生伊利石的形成年龄。

表3同时还给出了王龙樟等^[19,20]的真空封装样品的坪年龄,分别为169.10 Ma、172.50 Ma和189.70 Ma,分别大于本次研究的K-Ar年龄和小于本次研究的未真空封装样品的坪年龄,对其作用和意义将在下面的“总气体年龄”内容中一起讨论。

3.2.3 总气体年龄

对于自生伊利石Ar-Ar测年,总气体年龄有封装总气体年龄(ETGA)和未封装总气体年龄(NTGA)之分。ETGA是指采用真空封装时包括³⁹Ar反冲气体(反冲出来但被保存在石英管中)和保留在矿物中并通过加热释放出来的³⁹Ar气体均参与计算而得出的总平均年龄。NTGA是指未采用真空封装时保留在矿物中并通过加热释放出来的³⁹Ar气体均参与计算而得出的总平均年龄。如果不采用真空封装,³⁹Ar反冲气体就会因散失到周围环境中而跑掉,不可能再用仪器进行测量,所以NTGA一般都会大于或远大于ETGA。Hailiang Dong等^[29]的数据表明,对于成岩自生伊利石,相同样品的NTGA比其ETGA偏老15%~54%,其同时还说明,ETGA基本等同于K-Ar年龄。

表2表明,苏里格气藏自生伊利石NTGA(170.77~237.17 Ma,0.3 μm以下粒级)远比其对应样品的K-Ar年龄(140.54~160.59 Ma,0.3 μm以下粒级)老,偏老幅度为14%~63%,主要偏老22%~63%,显然不能代表自生伊利石的形成年龄,更不能反映成藏时代。与NTGA不同,ETGA(130.46~151.76 Ma,小于0.5 μm,表3)则与K-Ar年龄(140.54~160.59 Ma,0.3 μm以下粒级,表2)基本接近,说明真空封装技术的确具有一定效果,可能反映自生伊利石的形成年龄。从图2(a)可以看出,真空封装样品的采样井与K-Ar测年样品的采样井交叉分布,再加上苏里格气藏区域内主要生气、成藏期基本一致,所以可以认为这些采样井气藏的成藏期应该是大致相同的,即其自生伊利石年龄应该基本一致,也就是说表2、表3中的K-Ar年龄和ETGA是可以进行对比的。本次对比研究表明,对于自生伊利石真空封装Ar-Ar年龄数据到底应该怎样使用和怎样使用效果更好这一现实问题,可能还有待于进一步深入研究。王龙樟等认为,真空封装样品(B1—B3,表3)的年龄坪可能“基本上没有受到核反冲丢失的影响,因而坪年龄是可靠的”,并进一步认为:“代表了自生伊利石的形成年龄,推测气藏形成的最早时间不早于169 Ma”^[19,20]。通过对比可以发

现,真空封装样品的坪年龄均大于本次研究的 K-Ar 年龄,说明这些坪年龄可能还是受到了一定的“ ^{39}Ar 核反冲丢失”的影响(总丢失程度为 14%~20%,表 3)。由此看来,采用 ETGA 可能更好,因为其既考虑了核反冲丢失的影响,并且也与其定义^[29]相吻合。从表 2、表 3 和图 2(a)可以看出,与 K-Ar 年龄相比,ETGA 具有一定偏差,其实这很正常,因为这里的 ETGA 是进一步计算结果,只是大致相当或基本等同于 K-Ar 年龄,计算过程中可能会引入一定偏差。一般情况下,这种偏差不会太大,对成藏史研究不会有太大的影响,譬如对于本次研究的苏里格气藏,ETGA 同样表明主要为晚侏罗世晚期—早白垩世早期成藏。同时,这也正是为什么自生伊利石 Ar-Ar 年龄数据的解释与应用一般多以 K-Ar^[18] 或 Rb-Sr^[29] 等年龄数据作基准或参考的主要原因之一。

3.2.4 “ ^{39}Ar 核反冲丢失程度”及其控制因素

“ ^{39}Ar 核反冲丢失程度”指的是采用石英管真空封装时, ^{39}Ar 反冲气体占总 ^{39}Ar 气体(包括 ^{39}Ar 反冲气体和保留在矿物中并通过加热释放出来的 ^{39}Ar 气体)的百分比。显然,对于未真空封装样品是不能直接测量其反冲丢失程度的,原因前已述及,这里不再重复。为了便于对比,笔者提出,可以用 K-Ar 年龄作为标准或参考,利用数学计算的办法来进行定量表征,即用 NTGA 减去 K-Ar 年龄后再除以 NTGA^[11]。其物理意义是 NTGA 中的比 K-Ar 年龄大的那一部分年龄是由于因 ^{39}Ar 丢失而引起的。表 2 中的苏里格气田砂岩自生伊利石的计算 ^{39}Ar 核反冲丢失程度即是采用这种方法计算得出的,范围为 5%~39%,表明丢失现象较为明显并且变化相对较大。

谱型特征、坪年龄、总气体年龄都与 ^{39}Ar 核反冲丢失程度密切相关,是其在不同方面的具体体现。对于砂岩油气储层中的自生伊利石而言, ^{39}Ar 核反冲丢失程度主要与其颗粒大小、含量、结晶程度等密切相关。颗粒粗、含量高、结晶好,丢失程度较低,反之则较高。

从表 2 中可以看出,尽管存在一定的波动,但总体趋势是粒级越细,丢失越多,如样品 A1—A3 和 A5。样品 A4、A6 略显异常,其原因很复杂,初步推断很可能与其不同粒级的未封装总气体年龄规律性相对较差有关。

对于砂岩油气储层中的自生伊利石(I/S 有序间层),间层比大小可以间接反映结晶程度,间层比较小表示结晶程度较高,间层比较大表示结晶程度较低。同样,对于研究砂岩油气储层中的自生伊利石的 ^{39}Ar 核反冲丢失程度,蒙皂石层含量参数(计算方法见表 2)可能更为直观而有效,因为它可以综合反映被测样品

中的自生伊利石(I/S 有序间层)含量和结晶度(间层比)。研究表明,苏里格气田砂岩自生伊利石的 ^{39}Ar 核反冲丢失程度与蒙皂石层含量和间层比均呈较好的正相关关系,相关系数分别为 0.68 和 0.51,说明对于核反冲丢失具有决定性控制作用的首先是间层比,然后是相对含量,即首先是“质”(结晶程度),然后是“量”(相对含量)。应该说明的是,相关系数不是太高,原因可能主要有 4 条:①核反冲丢失数据的精确程度相对较低;②间层比数据的精度相对较低,一般只为 5%;③核反冲丢失受多种因素控制,采用单因素回归相关系数不会太高;④各个粒级的全部数据都参与计算,如果只选择相同粒级譬如 0.30~0.15 μm ,相关系数则大幅度提高,分别为 0.77 和 0.71。

对于“ ^{39}Ar 核反冲丢失”现象,人们已经研究了近 40 年,对于 ^{39}Ar 核反冲丢失程度,也有相对较多的数据发表。Hailiang Dong 等^[29] 的系统研究表明,对于晶体细小、结晶程度相对较低的低温成岩自生伊利石,丢失程度相对较高,一般为 11%~32%(真空封装);Kunk 和 Brusewitz^[32] 的研究发现,瑞典“big bentonite bed”中的 I/S 间层的 ^{39}Ar 核反冲丢失高达 55%(真空封装);Emery 和 Robinson^[4] 的北海油田二叠系砂岩储层自生伊利石的 ^{39}Ar 核反冲丢失为 29%(未真空封装,按本文方法计算);张彦等^[33] 浙江长兴地区 P-T 界线成岩 I/S 间层的 ^{39}Ar 核反冲丢失为 48%(未真空封装);张有瑜等^[11] 塔里木盆地哈 6 井石炭系—志留系砂岩油气储层中的自生伊利石的 ^{39}Ar 核反冲丢失为 36%~42%(未真空封装)。

3.2.5 石英管真空封装技术

石英管真空封装技术具有 3 个方面的积极贡献:①可以使核反冲程度明显降低;②使反冲气体得以保留并可以对其进行测量,直观地研究核反冲问题;③以此为基础还可以对阶段升温实验数据作进一步计算,进而求出“总气体年龄”等重要参数,有效地解决实际问题并提高方法的实用性。同时,也应该清楚看到,真空封装技术并没有从根本上解决核反冲问题,只是为进一步分析研究和数据处理提供了必要的前提条件。王龙樟等的真空封装研究成果^[19,20] 为本次研究提供了非常宝贵而可靠的对比资料和实验数据,这也正是笔者选择苏里格气田作为实例进行不同测年技术对比研究的主要原因之一。

3.2.6 应用前景展望

油气成藏史研究目前仍是国内外油气勘探的“热点”问题之一,利用自生伊利石年代测定技术探讨成藏时代承载着广大油气勘探工作者的美好期望。近期以来,自生伊利石年龄测定技术为成藏史研究提供了大

量的年龄数据和科学依据,发挥了重要作用,但同时也存在许多问题需要进一步深入研究。从技术上讲,自生伊利石K-Ar法测年技术简便快捷、经济成熟、稳定可靠,是第一选择;自生伊利石未真空封装Ar-Ar法测年技术,由于受“³⁹Ar核反冲丢失”影响,很难获得理想的年龄数据和较好的应用效果,如果没有其他特殊目的,可以不予考虑;自生伊利石真空封装Ar-Ar法测年技术,虽然没有从根本上解决“³⁹Ar核反冲丢失”问题,但为进一步深入研究提供了有利的前提条件,如果运用得当,便有可能获得相对较好的年龄数据和相对较好的应用效果;尽管对真空封装技术,正在进行不断的技术改进和技术革新,譬如真空预加热、真空压实和采用其他类型的中子源如氘-氘等^[34],但根据目前的发展状况并结合本次研究,作者初步认为,其应用效果可能不会比自生伊利石K-Ar法好,并且技术复杂、环节多、周期长和费用高等将会严重地制约其推广与应用。

4 结 论

(1) 苏里格二叠系盒八段砂岩气藏黏土矿物主要为I/S有序间层,其次为绿泥石,I/S有序间层呈丝状、短丝状、片丝状,具有明显的自生特征,属于自生伊利石。

(2) 苏里格二叠系盒八段砂岩气藏的自生伊利石K-Ar年龄、未真空封装Ar-Ar总气体年龄和真空封装Ar-Ar总气体年龄分别为141~146 Ma、171~237 Ma和130~152 Ma。K-Ar年龄表明主要为晚侏罗世晚期—早白垩世早期成藏,其分布规律很好地反映了成藏特征和成藏过程;与K-Ar年龄相比,未真空封装Ar-Ar总气体年龄明显偏老,不能代表自生伊利石的形成年龄,更不能反映成藏时代,“³⁹Ar核反冲丢失”现象是导致偏老的主要原因;真空封装Ar-Ar总气体年龄与K-Ar年龄基本接近,可能代表自生伊利石的形成年龄并反映成藏时代。

(3) 通过技术对比及对苏里格气田的实际研究表明,对于利用自生伊利石同位素测年技术探讨砂岩油气藏成藏时代,K-Ar法简便快捷、经济成熟、稳定可靠,是第一选择;未真空封装Ar-Ar法,由于受“³⁹Ar核反冲丢失”影响,很难获得理想的年龄数据和较好的应用效果,如果没有其他特殊目的,可以不予考虑;真空封装Ar-Ar法,虽然没有从根本上解决“³⁹Ar核反冲丢失”问题,但为进一步深入研究提供了有利的前提条件,如果运用得当,有可能获得相对较好的年龄数据和相对较好的应用效果,但技术复杂、环节多、周期长和费用高等将会严重制约其推广与应用。

参 考 文 献

- [1] 李志昌,路远发,黄圭成.放射性同位素地质学方法与进展[M].武汉:中国地质大学出版社,2004:208-244.
Li Zhichang, Lu Yuanfa, Huang Guicheng. Methods and progresses in the radioactive isotope geology [M]. Wuhan: Press of China University of Geosciences, 2004: 208-244.
- [2] Lee M, Aronson J L, Savin S M. K/Ar dating of time of gas emplacement in Rotliegendes sandstone, Netherlands [J]. AAPG Bulletin, 1985, 69(9): 1381-1385.
- [3] Hamilton P J, Giles M R, Ainsworth P. K-Ar dating of illites in Brent Group reservoirs: a regional perspective[C]// Morton A C, Haszeldine R S, Giles M R et al. Geology of the Brent Group. London: Geological Society of London, 1992: 377-400.
- [4] Emery D, Robinson A. Inorganic geochemistry: application to petroleum geology[M]. Oxford: Blackwell Scientific Publications, 1993: 101-119.
- [5] Hamilton P J, Kelly S, Fallick A E. K-Ar dating of illite in hydrocarbon reservoirs[J]. Clay Minerals, 1989, 24(2): 215-231.
- [6] Hamilton P J. A review of radiometric dating techniques for clay mineral cements in sandstones[M]// Richard H W, Sadoon M. Clay mineral cements in sandstones. Special Publication Number 34 of the International Association of Sedimentologists. Cornwall: Blackwell Publishing, 2003: 253-287.
- [7] 张有瑜,董爱正,罗修泉.油气储层自生伊利石的分离提纯及其K-Ar同位素测年技术研究[J].现代地质,2001,15(3):315-320.
Zhang Youyu, Dong Aizheng, Luo Xiuquan. Separation of authigenic illite in hydrocarbon reservoirs and its K-Ar dating techniques[J]. Geoscience, 2001, 15(3): 315-320.
- [8] 张有瑜,罗修泉,宋健.油气储层中自生伊利石K-Ar同位素年代学研究若干问题的初步探讨[J].现代地质,2002,16(4):403-407.
Zhang Youyu, Luo Xiuquan, Song Jian. Discussions on K-Ar isotopic geochronological studies of authigenic illites in hydrocarbon reservoirs[J]. Geoscience, 2002, 16(4): 403-407.
- [9] Zhang Youyu, Zwingmann H, Liu Keyu, et al. Hydrocarbon charge history of the Silurian bituminous sandstone reservoirs in the Cazhong uplift, Tarim Basin, China[J]. AAPG Bulletin, 2011, 95(3): 395-412.
- [10] 张有瑜,罗修泉.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[J].石油实验地质,2011,33(6):671-676.
Zhang Youyu, Luo Xiuquan. A vacuum filtrating device and technique to separate authigenic illites from sandstone reservoirs with microporous membrane[J]. Petroleum Geology and Experiment, 2011, 33(6): 671-676.
- [11] 张有瑜,罗修泉.塔里木盆地哈6井石炭-志留系砂岩自生伊利石K-Ar、Ar-Ar测年与成藏时代[J].石油学报,2012,33(5):748-757.
Zhang Youyu, Luo Xiuquan. K-Ar and Ar-Ar dating of authigenic illite and hydrocarbon accumulation history of Carboniferous-Silurian sandstone reservoirs in Well Ha 6, Tarim Basin[J]. Acta Petrolei Sinica, 2012, 33(5): 748-757.
- [12] 黄道军,刘新社,张清,等.自生伊利石K-Ar测年技术在鄂尔多斯盆地油气成藏时期研究中的初步应用[J].低渗透油气田,2004,9(4):37-39.
Huang Daojun, Liu Xinshe, Zhang Qing, et al. Application of K-

- Ar dating technique to determination of timing of oil/gas entrapment in Ordos Basin[J]. Low Permeability Oil & Gas Fields, 2004, 9(4): 37-39.
- [13] 张忠民, 周瑾, 邬兴威. 东海盆地西湖凹陷中央背斜带油气运移期次及成藏[J]. 石油实验地质, 2006, 28(1): 30-33.
Zhang Zhongmin, Zhou Jin, Wu Xingwei. Oil and gas migration periods and accumulation process in Central Anticlinal zone in the Xihu sag, the East China Sea Basin[J]. Petroleum Geology and Experiment, 2006, 28(1): 30-33.
- [14] 刘西兵, 沈忠民, 吕正祥, 等. 川西坳陷中段须二段天然气成藏年代探讨[J]. 成都理工大学学报: 自然科学版, 2009, 36(5): 523-530.
Liu Sibing, Shen Zhongmin, Lü Zhengxiang, et al. Research on the geochronology of forming the gas pools of Member 2 of Xujiuhe Formation in the middle West Sichuan depression, China[J]. Journal of Chengdu University of Technology: Science & Technology Edition, 2009, 36(5): 523-530.
- [15] McDougall I, Harrison T M. Geochronology and thermochronology by the $^{40}\text{Ar}/^{39}\text{Ar}$ method[M]. 2nd ed. New York, Oxford: Oxford University Press, 1999: 269.
- [16] Renne P R, Sharp W D, Denio A L, et al. $^{40}\text{Ar}/^{39}\text{Ar}$ dating into the historical realm: Calibration against Pliny the Younger[J]. Science, 1997, 277(5330): 1279-1280.
- [17] Hess J C, Lippolt H J. Kinetics of Ar isotopes during neutron irradiation: ^{39}Ar loss from minerals as a source of error in $^{40}\text{Ar}/^{39}\text{Ar}$ dating[J]. Chemical Geology: Isotope Geoscience Section, 1986, 59(4): 223-236.
- [18] Clauer N, Zwingmann H, Liewig N, et al. Comparative $^{40}\text{Ar}/^{39}\text{Ar}$ and K/Ar dating of illite-type clay minerals: A tentative explanation for age identities and differences[J]. Earth-Science Reviews, 2012, 115(1/2): 76-96.
- [19] 王龙樟, 戴樟模, 彭平安. 气藏储层自生伊利石 $^{40}\text{Ar}/^{39}\text{Ar}$ 法定年的实验研究[J]. 科学通报, 2004, 49(增刊1): 81-85.
Wang Longzhang, Dai Tongmo, Peng Ping'an. Experimental studies on $^{40}\text{Ar}/^{39}\text{Ar}$ dating of authigenic illites in gas reservoirs [J]. Chinese Science Bulletin, 2004, 49(Supplement 1): 81-85.
- [20] 王龙樟, 戴樟模, 彭平安. 自生伊利石 $^{40}\text{Ar}/^{39}\text{Ar}$ 法定年技术及气藏成藏期的确定[J]. 地球科学: 中国地质大学学报, 2005, 30(1): 78-82.
Wang Longzhang, Dai Tongmo, Peng Ping'an. $^{40}\text{Ar}/^{39}\text{Ar}$ dating of diagenetic illites and its application in timing gas emplacement in gas reservoirs[J]. Earth Science: Journal of China University of Geosciences, 2005, 30(1): 78-82.
- [21] 陈义才, 王波, 张胜, 等. 苏里格地区盒八段天然气充注成藏机理与成藏模式探讨[J]. 石油天然气学报: 江汉石油学报, 2010, 32(4): 7-11.
Chen Yicai, Wang Bo, Zhang Sheng, et al. The discussion of mechanism and pattern of hydrocarbon accumulation of gas-filling in Sulige region of the 8 Member of Xiashihezi Formation[J]. Journal of Oil and Gas Technology, J. JPI, 2010, 32(4): 7-11.
- [22] 林良彪, 薛宏斌, 侯明才, 等. 鄂尔多斯盆地苏里格气田上古生界天然气地球化学及成藏特征[J]. 沉积与特提斯地质, 2009, 29(2): 77-82.
Lin Liangbiao, Lin Hongbin, Hou Mingcai, et al. Geochemistry and accumulation of the Upper Palaeozoic natural gas in the Sulige gas field, Ordos Basin[J]. Sedimentary Geology and Tethyan Geology, 2009, 29(2): 77-82.
- [23] 刘新社, 周立发, 侯云东. 运用流体包裹体研究鄂尔多斯盆地古生界天然气成藏[J]. 石油学报, 2007, 28(6): 37-42.
Liu Xinshe, Zhou Lifan, Hou Yundong. Study of gas charging in the Upper Paleozoic of Ordos Basin using fluid inclusion[J]. Acta Petrolei Sinica, 2007, 28(6): 37-42.
- [24] 张文忠, 郭彦如, 汤达祯, 等. 苏里格气田上古生界储层流体包裹体特征及成藏期次划分[J]. 石油学报, 2009, 30(5): 685-691.
Zhang Wenzhong, Guo Yanru, Tang Dazhen, et al. Characteristics of fluid inclusions and determination of gas accumulation period in the Upper Paleozoic reservoirs of Sulige Gas Field[J]. Acta Petrolei Sinica, 2009, 30(5): 685-691.
- [25] 许怀先, 李新景. K-Ar 法年龄测定报告[R]. 北京: 中国石油勘探开发研究院实验中心, 2003.
Xu Huaxian, Li Xinjing. K-Ar dating report[R]. Beijing: Laboratory Center, PetroChina Research Institute of Petroleum Exploration and Development, 2003.
- [26] Turner G, Cadogan P H. Possible effects of ^{39}Ar recoil in $^{40}\text{Ar}/^{39}\text{Ar}$ dating[J]. Geochimica et Cosmochimica Acta, 1974, 38(Supplement 5): 1601-1615.
- [27] Foland K A, Hubacher F A, Arehart G B. $^{40}\text{Ar}-^{39}\text{Ar}$ dating of very fine-grained samples: an encapsulated vial procedure to overcome the problem of ^{39}Ar recoil loss[J]. Chemical Geology: Isotope Geoscience Section, 1992, 102(1/4): 269-276.
- [28] Onstott T C, Mueller P J, Vrolijk P J, et al. Laser $^{40}\text{Ar}/^{39}\text{Ar}$ microprobe analyses of fine-grained illite[J]. Geochimica et Cosmochimica Acta, 1997, 61(18): 3851-3861.
- [29] Dong Hailiang, Hall C M, Peacor D R, et al. Mechanisms of argon retention in clays revealed by laser $^{40}\text{Ar}-^{39}\text{Ar}$ dating[J]. Science, 1995, 267(5196): 355-359.
- [30] Yun Jianbing, Shi Hesheng, Zhu Junzhang, et al. Dating petroleum emplacement by illite $^{40}\text{Ar}-^{39}\text{Ar}$ laser stepwise heating[J]. AAPG Bulletin, 2010, 94(6): 759-771.
- [31] Clauer N, Jourdan F, Zwingmann H. Dating petroleum emplacement by illite $^{40}\text{Ar}-^{39}\text{Ar}$ laser stepwise heating: discussion[J]. AAPG Bulletin, 2011, 95(12): 2107-2111.
- [32] Kunk M J, Brusewitz A M. ^{39}Ar recoil in an I/S clay from the Ordovician "big bentonite bed" at Kinnekulle, Sweden[J]. Geological Society of America Bulletin, 1987, 19: 230.
- [33] 张彦, 陈文, 陈克龙, 等. 成岩混层(I/S)Ar-Ar 年龄谱型及 ^{39}Ar 核反冲丢失机理研究——以浙江长兴地区 P-T 界线粘土岩为例[J]. 地质论评, 2006, 52(4): 556-561.
Zhang Yan, Chen Wen, Chen Kelong, et al. Study on the Ar-Ar age spectrum of diagenetic I/S and the mechanism of ^{39}Ar recoil loss: examples from the clay minerals of P-T boundary in Changxing, Zhejiang Province[J]. Geological Review, 2006, 52(4): 556-561.
- [34] Renne P R, Knight K B, Nomade S, et al. Application of deuterium-deuteron (D-D) fusion neutrons to $^{40}\text{Ar}/^{39}\text{Ar}$ geochronology [J]. Applied Radiation and Isotopes, 2005, 62(1): 25-32.

(收稿日期 2013-12-07 改回日期 2014-03-12 责任编辑 张 怡)