

油藏 Re-Os 定年研究进展与展望*

刘俊杰^{1,2} 李杰^{1,2**} 田辉^{2,3} 许继峰⁴

LIU JunJie^{1,2}, LI Jie^{1,2**}, TIAN Hui^{2,3} and XU JiFeng⁴

1. 中国科学院广州地球化学研究所,同位素地球化学国家重点实验室,广州 510640

2. 中国科学院深地科学卓越创新中心,广州 510640

3. 中国科学院广州地球化学研究所,有机地球化学国家重点实验室,广州 510640

4. 中国地质大学(北京)地球科学与资源学院,北京 100083

1. State Key Laboratory of Isotope Geochemistry, Guangzhou Institute of Geochemistry, Chinese Academy of Sciences, Guangzhou 510640, China

2. CAS Center for Excellence in Deep Earth Science, Guangzhou 510640, China

3. State Key Laboratory of Organic Geochemistry, Guangzhou Institute of Geochemistry, Chinese Academy of Sciences, Guangzhou 510640, China

4. School of Earth Sciences and Resources, China University of Geosciences, Beijing 100083, China

2022-01-11 收稿,2022-04-07 改回.

Liu JJ, Li J, Tian H and Xu JF. 2022. Research progress and prospects for the Re-Os dating of petroleum systems. *Acta Petrologica Sinica*, 38(6):1621–1629, doi:10.18654/1000-0569/2022.06.05

Abstract The rhenium-osmium (Re-Os) radiogenic isotope system has been widely applied on the geochronology of the key timings of the petroleum systems. Here we focus on the application of Re-Os isochron age constructed with crude oil and low-maturity bitumen samples while discussing the optimization of Re-Os dating based on the understanding of the Re-Os systematics of crude oil. The commonly low Re and Os contents, limited $^{187}\text{Os}/^{188}\text{Os}$ homogenization, prolonged geological processes and the heat-related crude oil transformation processes encumber the construction of Re-Os isochron age with multiple crude oil samples. The main Re and Os bearer in crude oil is asphaltene while the Re and Os concentrations are higher in the fractions of asphaltene which are easier to precipitate. Heterogeneity in the Re-Os isotope composition may exist within the crude oil. This may be disadvantageous for multiple oil dating while opening the possibility of using the fractions of a single crude oil for Re-Os isochron dating. Continuing practical application and artificial experiments are still key for the proper application and understanding of the Re-Os systematics in petroleum systems in the future.

Key words Petroleum system; Re-Os geochronology; Re-Os systematics; Fractions of crude oil

摘要 在含油气系统关键成藏时刻的定年研究中,铼-钨(Re-Os)放射性同位素定年体系受到了广泛的重视。本文着重从原油 Re-Os 体系特征出发探讨 Re-Os 等时线年龄的构建及其优化发展方向。较低的 Re 和 Os 含量、局限的 $^{187}\text{Os}/^{188}\text{Os}$ 混合、漫长的地质过程、与高温相关的油藏改造等都不利于 Re-Os 等时线年龄的构建。原油中的 Re 和 Os 富集于沥青质组分中,且在易沉淀的沥青质中含量更高。有些原油各组分之间存在 Re-Os 同位素组成的差异,这一方面增加了多原油样品的 Re-Os 等时线定年的不确定性,另一方面也出现了利用单一原油组分进行 Re-Os 等时线定年的可能。未来研究仍需从地质实践和化学实验两方面来提升对 Re-Os 同位素体系在含油气系统中的地球化学行为的认识,进而更精准地确定油气运聚成藏与改造的时间,为油气勘探提供新依据。

关键词 含油气系统;Re-Os 定年;Re-Os 体系;原油组分

中图法分类号 P597; P618.3

* 本文受国家重点研发计划项目(2020YFA0714800)和中国科学院战略性先导科技专项 A 类(XDA14010104)联合资助。

第一作者简介:刘俊杰,男,1990 年生,博士,主要从事含油气系统 Re-Os 定年研究,E-mail: liu.junjie@gig.ac.cn

** 通讯作者:李杰,男,1977 年生,博士,研究员,主要从事元素与同位素分析技术及其应用研究,E-mail: jieli@gig.ac.cn

在传统的基于盆地构造演化史与古地温史的地质分析方法以外,以矿物、流体包裹体和干酪根、原油及沥青等有机质为实验对象的 Re-Os 与 K(Ar)-Ar、Rb-Sr、Pb-Pb、(U-Th)/He 等放射性同位素方法也可以作为含油气系统研究的精确定年手段(Ge *et al.*, 2016; Mark *et al.*, 2005; Parnell and Swainbank, 1990; Shepherd and Darbyshire, 1981; Wang *et al.*, 2014, 2016, 2021; Zhu *et al.*, 2013; 刘文汇等, 2015; 邱华宁等, 2009)。铼(Re)和钌(Os)是亲有机质元素,烃源岩通常是缺氧环境下形成的富含有机质泥岩或灰质泥岩,烃源岩及其生成的原油中也含有 Re 和 Os。烃源岩、原油和沥青中的 Re-Os 放射性同位素体系被用于含油气系统中关键时间节点定年,如烃源岩沉积、生油、油气成藏、原油的热裂解破坏和热化学硫酸盐还原反应(TSR)等,并且在油源对比和油-矿关系研究中也有一定的作用。国内学者为 Re-Os 定年方法在含油气系统中的应用做出了重要贡献,特别是在海相烃源岩有重要油气贡献的塔里木盆地(Ge *et al.*, 2020; Wu *et al.*, 2021)和焦沥青丰富的四川盆地(Ge *et al.*, 2018a, b, 2016; Shi *et al.*, 2020; Su *et al.*, 2020),并进行了广泛的、多角度的思考和评述(Qiu and Zou, 2020; Sai *et al.*, 2020; 蔡李梅等, 2008; 蔡长娥等, 2014; 陈玲等, 2012; 储著银和许继峰, 2021; 李真等, 2017; 刘文汇等, 2013; 邱振和邹才能, 2020; 赛彦明等, 2020; 沈传波等, 2011, 2019, 2020, 2015; 王华建等, 2013; 武鲁亚等, 2021; 张涛等, 2017)。此外,模拟实验也揭示了一系列含油气系统地质-地球化学过程(生油、沥青质散失以及油水接触)中 Re-Os 的元素和同位素体系特征及地球化学行为(Cumming *et al.*, 2014; DiMarzio *et al.*, 2018; Hurtig *et al.*, 2019; Liu *et al.*, 2019; Mahdaoui *et al.*, 2015, 2013; Rooney *et al.*, 2012; Wu *et al.*, 2015),促进了对 Re-Os 定年机制和应用的理解。近年来,含油气系统中的 Re-Os 研究发展迅速,涌现了一批新成果、新思想。不过,Re-Os 在含油气系统中的应用,特别是基于原油(或低成熟度沥青)的 Re-Os 定年,目前仍然有许多理论和应用上的短板。鉴于此,本文梳理了相关理论和地质应用研究,希望可以抛砖引玉,促进含油气系统中 Re-Os 研究的进一步发展和有效应用。

1 Re-Os 同位素分析技术

原油、沥青、干酪根等有机质样品的高精确度 Re-Os 测试对 Re-Os 定年尤为重要,实验流程空白和测试不确定度都会对等时线产生影响(Hurtig *et al.*, 2020),这也是 Re-Os 定年研究中最具挑战性的环节之一(Chu, 2021; Chu *et al.*, 2015; Yin *et al.*, 2017; 李超等, 2010, 2011; 李杰等, 2018)。首先,除了一些焦沥青样品外,原油和低成熟度固体沥青中的 Re 和 Os 含量都相当低,保持低且稳定的实验流程空白就显得尤其重要。其次,有机质样品在 Re-Os 测试的消解过程中几乎全部转化为水和 CO₂,在 200℃或 220℃的消解

温度下会引起容器内压强剧烈升高,常规卡洛斯管溶样方法中样品用量会受到限制,进一步加大了高精度测量的难度。使用高温高压反应釜溶样(HPA-S)可以将样品用量上限从常用卡洛斯管法的 150mg(Selby *et al.*, 2007)提高到 450mg(Georgiev *et al.*, 2016)。同时,在常用的消解溶液逆王水中加入适量双氧水也能将样品用量提高到 400mg,并提高质谱仪测试信号的强度(李超等, 2011)。

美国国家标准与技术研究所(NIST)的 RM8505 原油已被多个实验室测试并推荐作为有机质样品 Re-Os 同位素测试的标准物质(Hurtig *et al.*, 2020; Liu and Selby, 2018; Sen and Peucker-Ehrenbrink, 2014)。相较于具有一定非均质性的 RM8505 原油,Liu and Selby (2018)研制的 RM8505 沥青质粉末的 Re-Os 元素丰度和同位素组成参考值的变异系数(相对标准偏差)更低。此外,Hurtig *et al.* (2020)还给出了另外两个原油(NIST SRM 1634c 和 EnviroMAT SCP Science)的 Re-Os 同位素组成参考值。

2 从烃源岩到固体沥青:Re-Os 体系特征和演化

有机质是沉积岩中 Re 和 Os 的重要储库(Selby and Creaser, 2003; Yamashita *et al.*, 2007),而早期成岩阶段形成的黄铁矿结核的 Re 和 Os 含量比全岩低一到两个数量级(Cohen *et al.*, 1999)。不过,Re 和 Os 在富有机质岩石中的载体及富集机制并非完全一致,Re 的富集可能更受控于氧化还原条件,而 Os 的富集与有机质的关系更密切(Creaser *et al.*, 2002; Yamashita *et al.*, 2007)。Rooney *et al.* (2012)和 Cumming *et al.* (2014)对 I、II-S 和 III 类型干酪根烃源岩进行的热模拟生烃实验证明,原油可以继承烃源岩的 Re 和 Os 以及 Os 同位素组成(¹⁸⁷Os/¹⁸⁸Os)等信息,因此可以利用 Os 同位素进行油源对比(Finlay *et al.*, 2012)。通过对西加拿大沉积盆地泥盆-石炭系 Exshaw 组黑色页岩段未成熟、成熟和过成熟样品的研究,Creaser *et al.* (2002)认为成熟度不会影响 Re-Os 沉积年龄的定年。王剑等(2007)和李超等(2010)则认为,生油、运移会造成烃源岩中 Re-Os 体系的扰动。考虑到烃源岩热模拟生烃实验揭示出的原油与烃源岩在 Re-Os 体系上的差异性(特别是¹⁸⁷Re/¹⁸⁸Os),本文认为烃源岩的 Re-Os 同位素定年不仅受到早期成岩阶段 Os 同位素不均一的影响,也可能受到初次运移和排烃的影响。此外,水中 Re 和 Os 向原油转移的过程非常迅速(Hurtig *et al.*, 2019; Mahdaoui *et al.*, 2015),地层水也可能是原油中 Re 和 Os 的重要来源。

原油可以分为 SARA 四种族组分,即饱和烃(Saturates)、芳烃(Aromatics)、胶质(Resin)和沥青质(Asphaltene)。首先,原油可以通过加过量正构烷烃的方式分离为沥青质和可溶质(maltene),随后可将可溶质用柱色谱方法分离为饱和烃、芳烃和胶质。饱和烃和芳烃按照化学定义都是只含碳和

表 1 常用溶剂和沉淀剂性质

Table 1 Properties of the commonly used solvents and precipitants

性质	二氯甲烷	甲苯	正庚烷	丙酮	评述
毒性	2A 类致癌物	3 类致癌物	麻醉、刺激	麻醉中枢神经系统	致癌物分为 1、2A、2B、3、4 共五类;2A 类是“很可能人类致癌物”;3 类物质的数据不足,不能对其致癌性进行分类
沸点(°C)	39.8	110.6	98.4	56.5	二氯甲烷更容易挥发,结合其毒性,对健康的危害更大
密度(g/cm ³)	1.33	0.87	0.68	0.79	密度是离心分离沥青质沉淀的重要参数
极性	丙酮 > 二氯甲烷 > 甲苯 > 正庚烷				二氯甲烷极性大于甲苯;甲苯有芳香环

氢元素的烃类,不会含有 Re 和 Os,不过在实验室中利用柱色谱等方法分离出的饱和烃和芳烃不一定完全符合化学上的定义。沥青质、可溶质和胶质都是根据实验操作定义的族组分。研究表明,分子结构较复杂的沥青质是原油中 Re 和 Os 的主要载体,而一般情况下占原油质量百分数更高的可溶质部分却只占原油 Re 和 Os 总量的一小部分 (Selby *et al.*, 2007)。因此,对于 Re 和 Os 在原油中赋存形式的讨论应主要集中于胶质和沥青质族组分。Selby *et al.* (2007) 推测 Re 和 Os 在原油中的赋存形式可能与卟啉结构或杂原子键有关。在只消耗烃类等较简单分子而很少改造沥青质的地质过程中,如生物降解和轻烃组分散失等,原油向稠油甚至是低成熟度沥青的转化不会造成 Re-Os 同位素组成的显著改变 (Lillis and Selby, 2013)。因此,在 Re-Os 定年研究中低成熟度沥青样品等同于原油样品,也可以用于限定生油期或成藏期;同时,用 Os 同位素进行油源对比的方法在此类地质过程导致生物标志化合物指标失灵的情况下也依然可靠。而在原油热裂解形成焦沥青和干气的地质过程中,其 Re-Os 同位素体系和 Re-Os 时钟会发生重置,高成熟度沥青所构建的 Re-Os 等时线年龄一般被解释为原油热裂解的年龄 (Ge *et al.*, 2016, 2018b; Su *et al.*, 2020)。

通过大量实践经验,Zhou *et al.* (2012) 指出沥青质的沉淀一旦开始,其沉淀是随原油成分和温度、压力等条件变化渐进发生的,这说明可以依据溶解和沉淀性质将同一原油中的沥青质分成不同的等级,因此提出以沥青质可溶性分类指数 (Asphaltene Solubility Class Index, ASCI) 作为评价沥青质沉淀性质的指标。实验室中对沥青质渐进沉淀过程的模拟一般通过逐步改变二元混合溶液中沉淀剂和溶剂的比例实现,能溶解沥青质的试剂为称溶剂 (二氯甲烷或甲苯),能使沥青质沉淀的试剂称为沉淀剂 (正戊烷、正庚烷或丙酮)。先将沥青质溶于溶剂中,然后持续加入沉淀剂直至溶液中开始出现沥青质沉淀,通过离心或过滤的方式分离沉淀物与溶液后,再往溶液中加入更多沉淀剂以获取次一级沉淀物;如此往复,就可以通过逐步提高混合溶液中沉淀剂比例的方式获得渐进沉淀出来的多个沥青质次组分。Mahdaoui *et al.* (2013)、DiMarzio *et al.* (2018) 和 Liu *et al.* (2019) 先后利用该方法对沥青质细分次组分进行了 Re-Os 研究,不过选择的溶剂和沉淀剂有所不同。Mahdaoui *et al.* (2013) 和 Liu *et al.* (2019) 使用的二元溶液为正庚烷 (或正戊烷)-二氯甲烷,样

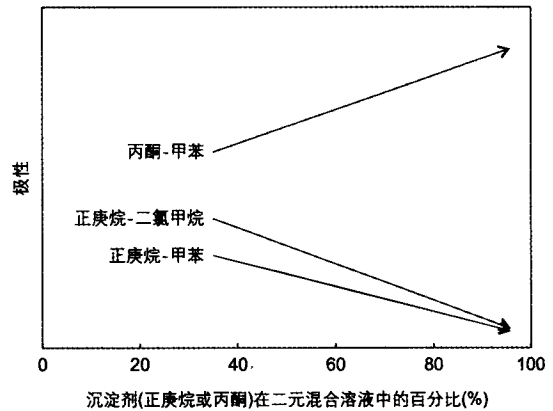


图 1 不同二元混合溶剂组合的极性变化

Fig. 1 The changes of polarity of different binary solvent mixtures

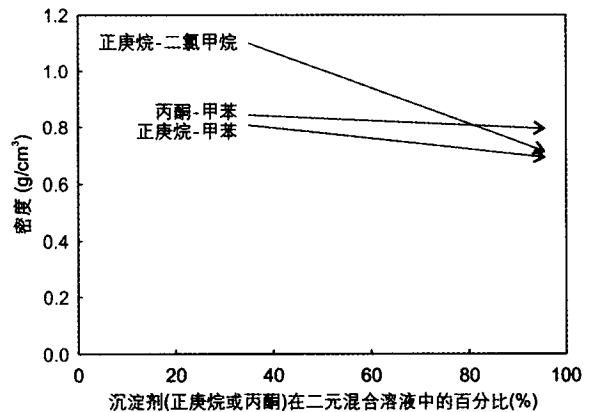


图 2 不同二元混合溶剂组合的密度变化

Fig. 2 The changes of density of different binary solvent mixtures

品为多个不同的沥青质样品。而 DiMarzio *et al.* (2018) 使用正庚烷-二氯甲烷 (H 系列) 和丙酮-甲苯 (A 系列) 两种不同的二元溶液,样品则采用同一个沥青质样品。各试剂具有不同强度的极性,甲苯有芳香环 (表 1)。随沉淀剂与溶剂比例的变化,二元混合溶液的极性 (图 1)、芳香性和密度 (图 2) 也随之变化。

对于 Re 和 Os 元素丰度,一般是先沉淀出来次组分含量

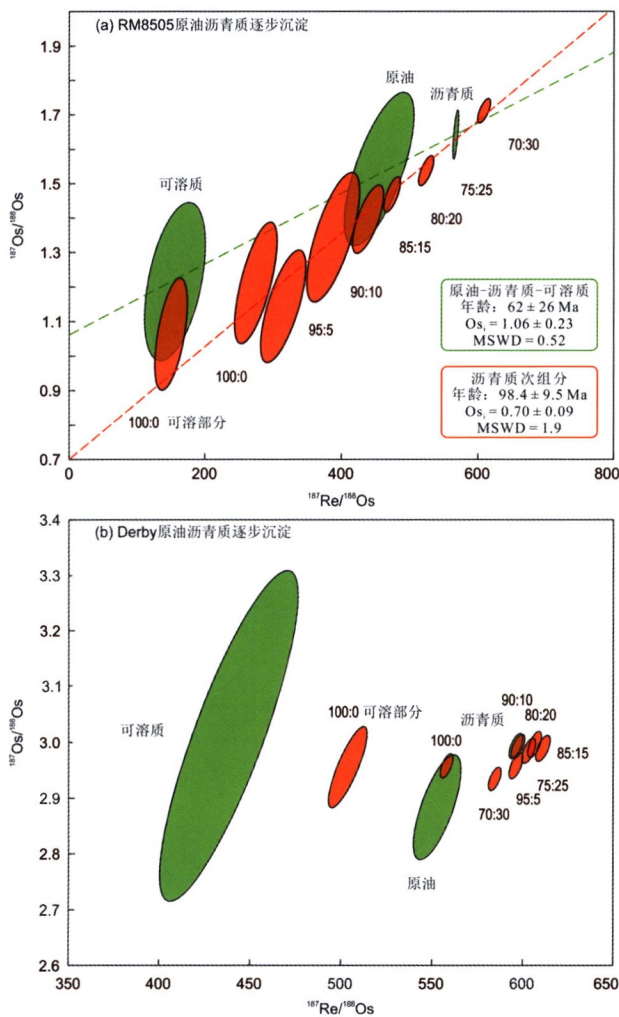


图3 原油(RM8505和Derby)的沥青质和可溶质以及沥青质的次组分的Re-Os同位素体系(据Liu *et al.*, 2019)
Fig. 3 The Re-Os isotopic systematics of the crude oil, asphaltene, maltene and fractions of asphaltenes of the RM8505 and Derby oil (after Liu *et al.*, 2019)

更高,有点类似于瑞利分馏现象;对于 $^{187}\text{Re}/^{188}\text{Os}$ 和 $^{187}\text{Os}/^{188}\text{Os}$,有些沥青质样品的次组分之间相似(如美国怀俄明州Derby油田二叠系磷矿组原油),有些样品的次组分之间则明显不同(如RM8505原油),甚至能建立较好的表现等时线(图3; DiMarzio *et al.*, 2018; Liu *et al.*, 2019; Mahdaoui *et al.*, 2013)。同一个沥青质样品的H系列和A系列次组分的Re-Os体系变化趋势也有所不同(DiMarzio *et al.*, 2018)。正庚烷-二氯甲烷混合溶液的极性在实验进程中降低, Mahdaoui *et al.* (2013)和DiMarzio *et al.* (2018)将沥青质的沉淀与极性联系起来,认为先沉淀的是极性更强的次组分,而Re和Os在原油中分布与极性有关。丙酮具有极性,丙酮-甲苯的芳香性在实验进程中降低, DiMarzio *et al.* (2018)认为该系列沥青质沉淀及Re和Os在原油中分布同时与芳香性和极性有关。

然而,溶液极性和芳香性的变化与沥青质的沉淀以及Re-Os元素丰度的变化同时发生并不一定代表它们有因果关系。在上述研究中,正庚烷-二氯甲烷混合溶液在实验进程中并没有芳香性的变化,极性在降低,丙酮-甲苯混合溶液的芳香性在降低而极性在升高,且其极性远大于正庚烷-二氯甲烷混合溶液(图1)。溶液极性升高或降低、有没有芳香性变化沥青质的渐进沉淀都能发生,除了原油/溶剂成分变化外压力和温度等热力学参数的改变也能引起沥青质沉淀(Mohammed *et al.*, 2021),这些现象说明溶液极性和芳香性的变化不是沥青质发生沉淀的必要条件。同时,极性和芳香性的变化可能也不是沥青质沉淀的充分条件。实际上,随二元溶液成分发生变化的绝不仅有极性和芳香性而已,还有密度(图2)和折射率等性质,说明引起沥青质沉淀的可能也不是极性或芳香性的变化。沥青质研究相关文献卷帙浩繁,本文根据有限的调研认为沥青质沉淀的控制因素目前仍众说纷纭,未有定论。鉴于沥青质次组分的沉淀与溶液的分离一般通过离心或过滤,沥青质沉淀产生过程中其密度、聚簇尺寸等性质应该发生了变化。现有研究表明在条件发生变化时更倾向于沉淀下来的组分的Re和Os元素丰度更高。

引起沥青质渐进散失的地质过程包括排烃过程中的分馏、运移过程中的地质色层效应、吸附和轻烃注入等。上述地质过程对原油Re-Os体系的影响取决于沥青质次组分之间的Re-Os体系的差异,但一般会导致剩余原油中Re和Os元素丰度的降低、进而可能使测试精确度降低,同时也可能导致Re-Os同位素组成发生变化、偏离原本等时线。沥青质散失对单一原油次组分Re-Os定年的影响可能是Re-Os含量降低导致的测试精度变差、次组分减少使构造等时线的样品点减少,但不一定改变等时线的斜率与等时线年龄。

3 多原油样品Re-Os等时线定年

自Selby *et al.* (2005)首次报道使用Re-Os同位素对沥青进行定年以来,原油和沥青的Re-Os定年已经在世界上多个含油气系统的研究中得到了应用。但是,使用多个原油和低成熟度沥青样品构建的Re-Os等时线年龄的地质意义有生油、运移和成藏年龄等不同解释,其根本原因在于对Re-Os时钟启动的时机和机制认识的不同。此外,研究所获得的Re-Os年龄的不确定度普遍较大,一方面可能是因为原油和低成熟度沥青的Re和Os含量普遍较低造成测试精度不高,另一方面可能是因为地质过程和Re-Os体系特征不利于精确Re-Os等时线年龄的建立(如初始Os同位素组成不均一、局限的 $^{187}\text{Re}/^{188}\text{Os}$ 范围、漫长的生油期和原油的地质改造过程等)。

原油 $^{187}\text{Os}/^{188}\text{Os}$ 在排烃前的地质过程中的均一程度可能有限。鉴于烃源岩热模拟生烃实验已证实原油和沥青可继承烃源岩的Os同位素组成特征,赛彦明等(2020)推测在盆地范围内同时生成的原油所继承到的 $^{187}\text{Os}/^{188}\text{Os}$ 是不同

的: 烃源岩从沉积到生油一般会经历一定时间间隔, 这段时间内 ^{187}Re 向 ^{187}Os 的衰变会使烃源岩的 $^{187}\text{Os}/^{188}\text{Os}$ 增长, 但在盆地不同地区 $^{187}\text{Os}/^{188}\text{Os}$ 增长值因 $^{187}\text{Re}/^{188}\text{Os}$ 不同而不同。已有 Re-Os 研究表明, 即使很小空间范围内的不同烃源岩样品其 $^{187}\text{Re}/^{188}\text{Os}$ 一般也有所不同 (Stein and Hannah, 2014)。即使整套烃源过程岩的 $^{187}\text{Os}/^{188}\text{Os}$ 在沉积时完全均一, 但是到生油时其 $^{187}\text{Os}/^{188}\text{Os}$ 也会有非均质性, 这主要与初始 $^{187}\text{Re}/^{188}\text{Os}$ 的非均质性及生油之前所经历的地质时间长短有关。生油中, 即原油各分子从干酪根分子上断裂、脱离、解吸附的过程中, 分子的位移发生在极小尺度上(分子级、纳米级、微米级); 烃源岩内的初次运移一般受制于烃源岩较低的孔隙度和渗透率; 因此, 原油混合、 $^{187}\text{Os}/^{188}\text{Os}$ 均一化和 Re-Os 时钟的重置可能主要发生在排烃后的运移、成藏过程中, 用油藏中的多个原油样品构建的 Re-Os 等时线年龄应指示此类地质过程。

原油 $^{187}\text{Os}/^{188}\text{Os}$ 在排烃后的地质过程中可能趋向于均一。虽然在生排烃、运移、成藏等过程中发生的有限原油混合可以使原油的 $^{187}\text{Os}/^{188}\text{Os}$ 趋向于均一, 但在整个含油气系统内达到原油的充分混合和 $^{187}\text{Os}/^{188}\text{Os}$ 的完全均一几乎是不可能的。原油混合时也能使 $^{187}\text{Re}/^{188}\text{Os}$ 趋向于均一, 但等时线定年又要求 $^{187}\text{Re}/^{188}\text{Os}$ 有所变化。因此, 现实中的情况可能是同一油藏内或连通性较好的油藏之间具有相对均一的 Re-Os 同位素组成, 但相互独立的油藏之间在 Re-Os 同位素组成上有差异。

生烃、排烃、运移、成藏等都是伴随构造运动、地层持续深埋等地质过程而发生的, 持续的时间可长达几个、十几个甚至几十个百万年。不同的原油(沥青)样品或者油藏可能是在不同时期带着与其他原油相同或不同的 $^{187}\text{Os}/^{188}\text{Os}$ 比值脱离同位素平衡系统并开启新的 Re-Os 时钟, 这也不利于 Re-Os 定年。从另外一个角度来看, 这也可以看作是在特定时刻 $^{187}\text{Os}/^{188}\text{Os}$ 不均一的情况。

如果地层水或盆地流体是原油 Re 和 Os 的主要来源, 则 $^{187}\text{Os}/^{188}\text{Os}$ 比值更容易达成均一, 这是因为水的流动性强, 可以将均一的 $^{187}\text{Os}/^{188}\text{Os}$ 传递给原油 (Mahdaoui *et al.*, 2015)。但如果水中的 Re 和 Os 都被其最初遇到的原油吸收了, 则也无法把均一的 $^{187}\text{Os}/^{188}\text{Os}$ 传递给整个含油气系统。

样品初始 $^{187}\text{Os}/^{188}\text{Os}$ 不均一但符合正态分布的情况适合建立 Isoplot Model 3 型等时线, 例如西加拿大沉积盆地 Duvernay 组烃源岩所生成的原油 (Liu *et al.*, 2018)。因此, 样品组合的选择要尽量代表含油气系统原油整体的初始 $^{187}\text{Os}/^{188}\text{Os}$ 分布。样品组合的代表性越好, 它们在等时线坐标系中的最佳拟合线(等时线)所确定的年龄和初始 $^{187}\text{Os}/^{188}\text{Os}$ 与真实年龄和整体原油初始 $^{187}\text{Os}/^{188}\text{Os}$ 的偏差就越小。筛选在已定年龄下具有一致初始(Os_i)的样品再做等时线一般能提高年龄精度 (Ge *et al.*, 2018b; 赛彦明等, 2020)。当然, 这些原油的 Re-Os 体系应未受沥青质散失、原油热裂解、热化学硫酸盐还原反应 (TSR) 改造等作用的影响。

由 Re-Os 等时线所确定的原油或沥青的初始 Os 同位素组成与同时代的烃源岩 Os 同位素组成的对比可以对原油和沥青的烃源岩进行示踪 (Finlay *et al.*, 2012)。然而, 鉴于前述原因, 它们应该都不是均一的值而应该都是范围。由于排烃、运移等地质过程可使原油 Os 同位素在一定程度上均一, 原油的初始 Os 同位素组成范围应该是在其烃源岩同时代的 Os 同位素组成范围之内的一个更小的范围, 油源对比应该通过这两个范围的对比实现 (Liu *et al.*, 2018)。

4 单一原油样品次组分 Re-Os 等时线定年

如前所述, 不同原油样品之间可能存在不同初始 $^{187}\text{Os}/^{188}\text{Os}$ 、不同时、不同改造过程等不利于等时线定年的因素。为避免这些弊端, Georgiev *et al.* (2016) 提出用单一原油的次组分进行 Re-Os 定年的方法, 即对同一原油样品用不同的正构烷烃分离出一系列沥青质和可溶质, 加上对原油的重复测试, 一起做等时线 (图 4)。应用该方法, Georgiev *et al.* (2016) 用一个原油的四个可溶质部分构建了一个接近烃源岩沉积年龄的 Isoplot Model 1 的 Re-Os 等时线年龄, 并解释为烃源岩沉积后在岩浆活动影响下快速生油的年龄。此外, Hurtig *et al.* (2019) 认为吸收了水中 Re 和 Os 的原油依然适合这样的定年方法。

Liu *et al.* (2019) 使用 Georgiev *et al.* (2016) 的方法处理六个取自世界范围内的不同原油样品, 却没有得到一个具有明确合理地质意义的年龄。Hurtig *et al.* (2020) 认为该现象主要与测试的不确定度有关, 而 Liu *et al.* (2019) 则认为其主要原因是从原油中分离出的沥青质系列、可溶质系列占全油

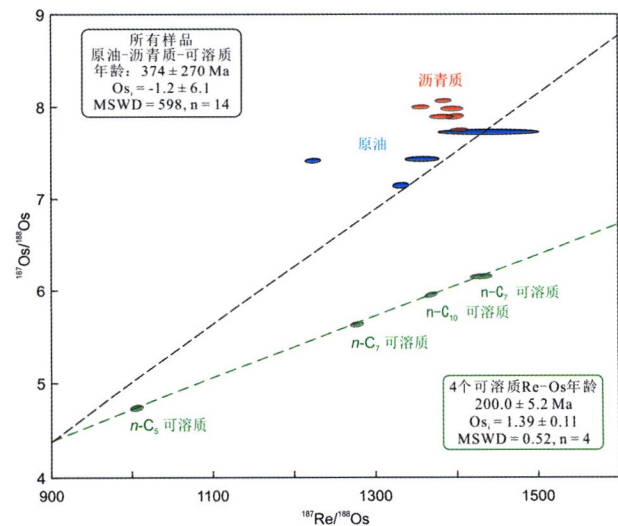


图 4 不同正构烷烃分离原油沥青质和可溶质做等时线的单一原油 Re-Os 定年 (据 Georgiev *et al.*, 2016)

Fig. 4 The single oil Re-Os dating with the asphaltene and maltenes separated by different n-alkanes (after Georgiev *et al.*, 2016)

质量的百分比没有足够大的变化,沥青质的百分数没有一直保持下降的趋势(Corbett and Petrossi, 1978; Liu *et al.*, 2019; Mitchell and Speight, 1973);在不同正构烷烃的分离作用下,决定沥青质与沥青质之间、可溶质与可溶质之间不同的仅仅是一小部分组分是属于沥青质部分还是可溶质部分,沥青质与沥青质之间、可溶质与可溶质之间大部分的成分仍然是一致的、重叠的;因此,Re-Os 同位素组成($^{187}\text{Re}/^{188}\text{Os}$ 和 $^{187}\text{Os}/^{188}\text{Os}$)自然也不会有特别大的变化,在等时线坐标系中沥青质系列与可溶质系列各自重叠,不能满足构建良好Re-Os 等时线年龄所需要的分散性。不过,可溶质的变化要大于沥青质,因为它的 Re 和 Os 含量要比沥青质低得多,更容易受到影响。

原油可能具有 Re-Os 非均质性(Lillis and Selby, 2013; Liu and Selby, 2018)。李真等(2017)将这一现象与200目玄武岩国际标准样品重复测量 Re-Os 不均一的现象作了类比,认为多次重复测试所构建的表观等时线不具有地质意义。此外,当在 Re-Os 等时线坐标系中作图时,全油、沥青质、可溶质所谓的三点线本质上是两点连线,因为全油是沥青质和可溶质的混合,它必在沥青质和可溶质的连线上。而要厘清沥青质和可溶质两点连线的“等时线”年龄有没有地质意义并明确其地质意义,还需要对单一原油次组分 Re-Os 体系特征的进一步认识和讨论。原油的成分复杂,虽然变换正构烷烃的原油族组分分离方法不是简单的两端元变比例混合的过程,但事实上样品之间物质上的重叠仍使其等时线有混合线之嫌。因此,应该更多地从机理研究出发,真正找到此类沥青质、可溶质做 Re-Os 等时线定年不能成功应用的原因。

Liu *et al.* (2019)根据一些原油沥青质和可溶质之间以及委内瑞拉 RM8505 原油沥青质次组分之间的 $^{187}\text{Re}/^{188}\text{Os}$ 和 $^{187}\text{Os}/^{188}\text{Os}$ 的差异性,认为这些原油内可能存在 Re 和 Os 的封闭体系,并认为该封闭体系可能是沥青质的聚集体(aggregate)或聚簇(cluster),沥青质次组分具备了运用 Re-Os 等时线定年的必要条件之一。RM8505 原油沥青质的次组分甚至能建立约 98Ma 的 Isoplot Model 1 Re-Os 表观等时线。不过,该年龄远大于其潜在在烃源岩(白垩系赛诺曼-土伦-康尼亚克阶 La Luna 组)的生烃高峰(渐新世-中新世,34~5Ma),也早于可能的最早生烃时代(始新世, < 56Ma; James, 2000; Summa *et al.*, 2003),反而接近于烃源岩沉积年龄(100~86Ma)。沥青质次组分能不能进行 Re-Os 定年、如何进行定年、年龄的地质意义是什么都需要进一步研究。不过,如前所述,沥青质次组分 Re-Os 等时线可能受沥青质散失的影响较小,即使样品点可能会少一点或因为 Re 和 Os 元素丰度降低而测试精度变差,但不太可能会像多原油样品那样偏离等时线。此外,单一原油次组分 Re-Os 等时线所确定的初始 Os 同位素组成能否示踪原油的烃源岩还需要进一步研究。

5 研究展望

Re-Os 定年应用的复杂性在日益增长的应用实践中逐渐显现。例如,Liu *et al.* (2019)利用 RM8505 原油沥青质的次组分构建了接近烃源岩沉积时代的表观 Re-Os 年龄,四川资阳较高成熟度沥青的 Re-Os 年龄($414 \pm 44\text{Ma}$)被认为指示生油期(Shi *et al.*, 2020)。这些现象与传统的原油和低成熟度沥青限定生油年龄、高成熟度沥青限定原油热裂解年龄的看法不同,一方面说明要根据实践调整认知,另一方面说明从烃源岩到原油再到焦沥青这一系列地质过程中 Re-Os 体系的传递和演化极其复杂,仍有待进一步深化研究,才有可能解决 Re-Os 年龄的多解性或不确定性。

Re 和 Os 在含油气系统中的元素和同位素体系特征及其地球化学行为的认识仍然不能满足定年的要求。一些重要的问题包括原油中 Re 和 Os 的主要来源(烃源岩或者盆地流体)、Re 和 Os 在原油中的赋存形式、各种地质过程(如原油的热裂解和热化学硫酸盐还原反应等)中不同有机相态之间 Re 和 Os 的传递与体系演化等。其中,烃源岩热模拟生烃实验中生成的原油和沥青中的 Re 和 Os 含量较低,可能是实验过程中的高温限制了 Re 和 Os 向原油的转移(Cumming *et al.*, 2014; Rooney *et al.*, 2012),但也不可能暗示了原油中的 Re 和 Os 主要是通过盆地流体向原油的转移而不是继承自烃源岩本身(Mahdaoui *et al.*, 2015)。对成熟烃源岩内滞留油的抽提和 Re-Os 研究可能有助于研究烃源岩原油中 Re 和 Os 的贡献,这是因为滞留油是自然生成的原油,而且没有与烃源岩外的盆地流体接触。总之,揭开 Re 和 Os 在含油气系统中的地球化学行为的研究工作还有很长的路要走。

在含油气盆地中,经济可采油气藏的形成需要烃源岩、储集层和盖层及烃源岩成熟生烃、运移通道开启和圈闭形成等一系列地质要素和过程在时间和空间上的匹配,油气成藏年代学、油源对比等是研究油气藏形成与分布规律的关键问题。虽然还存在诸多的问题和挑战,含油气盆地中 Re-Os 定年方法仍然具有广阔的应用前景。近些年,围绕油气系统中 Re-Os 性质与应用,我国已经启动了包括项国家自然科学基金面上项目和青年科学基金项目在内的十余项项目,囊括了分析方法、应用实践和理论探索等多个研究方向。可以预见,含油气盆地中 Re-Os 定年研究在中国和其他国家科研人员的推动下将进入新的阶段。

致谢 衷心感谢为本文提出宝贵修改意见的评审专家和期刊编辑。

References

- Cai CE, Qiu NS and Xu SH. 2014. Advances in Re-Os isotopic dating in geochronology of hydrocarbon accumulation. *Advances in Earth*

- Science, 29(12): 1362–1371 (in Chinese with English abstract)
- Cai LM, Chen HH, Li ZQ and Wu Y. 2008. Isotopic dating techniques and their applications to the geochronology of hydrocarbon migration and accumulation: An overview. *Sedimentary Geology and Tethyan Geology*, 28(4): 18–23 (in Chinese with English abstract)
- Chen L, Zhang W and She ZB. 2012. Methods for dating of hydrocarbon accumulation. *Xinjiang Petroleum Geology*, 33(5): 550–553 (in Chinese with English abstract)
- Chu ZY, Yan Y, Chen Z, Guo JH, Yang YH, Li CF and Zhang YB. 2015. A comprehensive method for precise determination of Re, Os, Ir, Ru, Pt, Pd concentrations and Os isotopic compositions in geological samples. *Geostandards and Geoanalytical Research*, 39(2): 151–169
- Chu ZY. 2021. Analytical methods for Os isotope ratios and Re-PGE mass fractions in geological samples. *Frontiers in Chemistry*, 8: 615839
- Chu ZY and Xu JF. 2021. Re-Os and PGE: Analytical methods and their applications in geosciences. *Advances in Earth Science*, 36(3): 245–264 (in Chinese with English abstract)
- Cohen AS, Coc AL, Bartlett JM and Hawkesworth CJ. 1999. Precise Re-Os ages of organic-rich mudrocks and the Os isotope composition of Jurassic seawater. *Earth and Planetary Science Letters*, 167(3–4): 159–173
- Corbett LW and Petrossi U. 1978. Differences in distillation and solvent separated asphalt residua. *Industrial & Engineering Chemistry Product Research and Development*, 17(4): 342–346
- Creaser RA, Sannigrahi P, Chacko T and 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(19): 3441–3452
- Cumming VM, Selby D, Lillis PG and Lewan MD. 2014. Re-Os geochronology and Os isotope fingerprinting of petroleum sourced from a Type I lacustrine kerogen: Insights from the natural Green River petroleum system in the Uinta Basin and hydrous pyrolysis experiments. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 138: 32–56
- DiMarzio JM, Georgiev SV, Stein HJ and Hannah JL. 2018. Residency of rhenium and osmium in a heavy crude oil. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 220: 180–200
- Finlay AJ, Selby D and Osborne MJ. 2012. Petroleum source rock identification of United Kingdom Atlantic Margin oil fields and the Western Canadian Oil Sands using platinum, palladium, osmium and rhenium: Implications for global petroleum systems. *Earth and Planetary Science Letters*, 313–314: 95–104
- Ge X, Shen CB, Selby D, Deng DF and Mei LF. 2016. Apatite fission-track and Re-Os geochronology of the Xuefeng uplift, China: Temporal implications for dry gas associated hydrocarbon systems. *Geology*, 44(6): 491–494
- Ge X, Shen CB, Selby D, Wang J, Ma LB, Ruan XY, Hu SZ and Mei LF. 2018a. Petroleum-generation timing and source in the northern Longmen Shan thrust belt, Southwest China: Implications for multiple oil-generation episodes and sources. *AAPG Bulletin*, 102(5): 913–938
- Ge X, Shen CB, Selby D, Wang GZ, Yang Z, Gong YJ and Xiong SF. 2018b. Neoproterozoic-Cambrian petroleum system evolution of the Micang Shan uplift, northern Sichuan Basin, China: Insights from pyrobitumen rhenium-osmium geochronology and apatite fission-track analysis. *AAPG Bulletin*, 102(8): 1429–1453
- Ge X, Shen CB, Selby D, Feely M and Zhu GY. 2020. Petroleum evolution within the Tarim Basin, northwestern China: Insights from organic geochemistry, fluid inclusions, and rhenium-osmium geochronology of the Halahatang oil field. *AAPG Bulletin*, 104(2): 329–355
- Georgiev SV, Stein HJ, Hannah JL, Galimberti R, Nali M, Yang G and Zimmerman A. 2016. Re-Os dating of maltenes and asphaltenes within single samples of crude oil. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 179: 53–75
- Hurtig NC, Georgiev SV, Stein HJ and Hannah JL. 2019. Re-Os systematics in petroleum during water-oil interaction: The effects of oil chemistry. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 247: 142–161
- Hurtig NC, Georgiev SV, Zimmerman A, Yang G, Goswami V, Hannah JL and Stein HJ. 2020. Re-Os geochronology for the NIST RM 8505 crude oil: The importance of analytical protocol and uncertainty. *Chemical Geology*, 539: 119381
- James KH. 2000. The Venezuelan hydrocarbon habitat, part 1: Tectonics, structure, palaeogeography and source rocks. *Journal of Petroleum Geology*, 23(1): 5–53
- Li C, Qu WJ, Wang DH, Chen ZH and Du AD. 2010. Advances in the study of the Re-Os isotopic system of organic-rich samples. *Acta Petrologica et Mineralogica*, 29(4): 421–430 (in Chinese with English abstract)
- Li C, Qu WJ, Wang DH, Chen ZH, Du AD and Zhang CQ. 2011. Dissolving experimental research of Re-Os isotope system for bitumen samples. *Rock and Mineral Analysis*, 30(6): 688–694 (in Chinese with English abstract)
- Li J, Zhang J and Yin L. 2018. Advances and problems of Re-Os isotope analysis of geological samples. *Bulletin of Mineralogy, Petrology and Geochemistry*, 37(2): 242–249 (in Chinese with English abstract)
- Li Z, Wang XC, Liu KY, Svetlana T, Yang XM, Ma XZ and Sun HT. 2017. Rhenium-osmium geochronology in dating petroleum systems: Progress and challenges. *Acta Petroli Sinica*, 38(3): 297–306 (in Chinese with English abstract)
- Lillis PG and Selby D. 2013. Evaluation of the rhenium-osmium geochronometer in the Phosphoria petroleum system, Bighorn Basin of Wyoming and Montana, USA. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 118: 312–330
- Liu JJ and Selby D. 2018. A matrix-matched reference material for validating petroleum Re-Os measurements. *Geostandards and Geoanalytical Research*, 42(1): 97–113
- Liu JJ, Selby D, Obermajer M and Mort A. 2018. Rhenium-osmium geochronology and oil-source correlation of the Duvernay petroleum system, Western Canada sedimentary basin: Implications for the application of the rhenium-osmium geochronometer to petroleum systems. *AAPG Bulletin*, 102(8): 1627–1657
- Liu JJ, Selby D, Zhou HG and Pujol M. 2019. Further evaluation of the Re-Os systematics of crude oil: Implications for Re-Os geochronology of petroleum systems. *Chemical Geology*, 513: 1–22
- Liu WH, Wang J, Tenger, Qin JZ, Rao D, Tao C and Lu LF. 2012. Multiple hydrocarbon generation of marine strata and its tracer technique in China. *Acta Petroli Sinica*, 33(Suppl. 1): 115–125 (in Chinese with English abstract)
- Liu WH, Wang J, Tao C, Hu G, Lu LF and Wang P. 2013. The geochronology of petroleum accumulation of China marine sequence. *Natural Gas Geoscience*, 24(2): 199–209 (in Chinese with English abstract)
- Mahdaoui F, Reisberg L, Michels R, Hauteville Y, Poirier Y and Girard JP. 2013. Effect of the progressive precipitation of petroleum asphaltenes on the Re-Os radioisotope system. *Chemical Geology*, 358: 90–100
- Mahdaoui F, Michels R, Reisberg L, Pujol M and Poirier Y. 2015. Behavior of Re and Os during contact between an aqueous solution and oil: Consequences for the application of the Re-Os geochronometer to petroleum. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 158: 1–21
- Mark DF, Parnell J, Kelley SP, Lee M, Sherlock SC and Carr A. 2005. Dating of multistage fluid flow in sandstones. *Science*, 309(5743): 2048–2051
- Mitchell DL and Speight JG. 1973. The solubility of asphaltenes in hydrocarbon solvents. *Fuel*, 52(2): 149–152
- Mohammed I, Mahmoud M, Al Shehri D, El-Husseiny A and Alade O. 2021. Asphaltene precipitation and deposition: A critical review. *Journal of Petroleum Science and Engineering*, 197: 107956
- Parnell J and Swainbank I. 1990. Pb-Pb dating of hydrocarbon migration into a bitumen-bearing ore deposit, North Wales. *Geology*, 18(10): 1028–1030

- Qiu HN, Wu HY, Feng ZH, Shi HS, Yun JB, Wang Q and Zhao LH. 2009. The puzzlemom and feasibility in determining emplacement ages of oil/gas reservoirs by ^{40}Ar - ^{39}Ar techniques. *Geochimica*, 38(4): 405–411 (in Chinese with English abstract)
- Qiu Z and Zou CN. 2020. Controlling factors on the formation and distribution of “sweet-spot areas” of marine gas shales in South China and a preliminary discussion on unconventional petroleum sedimentology. *Journal of Asian Earth Sciences*, 194: 103989
- Qiu Z and Zou CN. 2020. Unconventional petroleum sedimentology: Connotation and prospect. *Acta Sedimentologica Sinica*, 38(1): 1–29 (in Chinese with English abstract)
- Rooney AD, Selby D, Lewan MD, Lillis PG and Houzay JP. 2012. Evaluating Re-Os systematics in organic-rich sedimentary rocks in response to petroleum generation using hydrous pyrolysis experiments. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 77: 275–291
- Sai YM, Jin KY, Luo MZ, Tian H, Li J and Liu JJ. 2020. Recent progress on the research of Re-Os geochronology and Re-Os elemental and isotopic systematics in petroleum systems. *Journal of Natural Gas Geoscience*, 5(6): 355–365
- Sai YM, Tian H, Li J, Liu YS, Zhang B and Liu JJ. 2020. Recent research progresses on Re-Os geochronology and Re-Os elemental and isotopic systematics in petroleum systems. *Natural Gas Geoscience*, 31(7): 939–951 (in Chinese with English abstract)
- Selby D and Creaser RA. 2003. Re-Os geochronology of organic rich sediments: An evaluation of organic matter analysis methods. *Chemical Geology*, 200(3–4): 225–240
- Selby D, Creaser R, Dewing K and Fowler M. 2005. Evaluation of bitumen as a Re-Os geochronometer for hydrocarbon maturation and migration: A test case from the Polaris MVT deposit, Canada. *Earth and Planetary Science Letters*, 235(1–2): 1–15
- Selby D, Creaser RA and Fowler MG. 2007. Re-Os elemental and isotopic systematics in crude oils. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 71(2): 378–386
- Sen IS and Peucker-Ehrenbrink B. 2014. Determination of osmium concentrations and $^{187}\text{Os}/^{188}\text{Os}$ of crude oils and source rocks by coupling high-pressure, high-temperature digestion with sparging OsO_4 into a multicollector inductively coupled plasma mass spectrometer. *Analytical Chemistry*, 86(6): 2982–2988
- Shen CB, Selby D, Mei LF, Ruan XY, Hu SZ, Liu ZQ and Peng L. 2011. Advances in the study of Re-Os geochronology and tracing of hydrocarbon generation and accumulation. *Journal of Mineralogy and Petrology*, 31(4): 87–93 (in Chinese with English abstract)
- Shen CB, Liu ZY, Xiao F, Hu D and Du JY. 2015. Advancements of the research on Re-Os isotope system in petroleum system. *Advances in Earth Science*, 30(2): 187–195 (in Chinese with English abstract)
- Shen CB, Ge X and Bai XJ. 2019. Re-Os geochronology constraints on the Neoproterozoic-Cambrian hydrocarbon accumulation in the Sichuan Basin. *Earth Science*, 44(3): 713–726 (in Chinese with English abstract)
- Shen CB, Ge X, Mei LF and Zhu GY. 2020. Re-Os Isotopic Geochronology in Petroleum Systems. Beijing: Science Press (in Chinese)
- Shepherd TJ and Darbyshire DPF. 1981. Fluid inclusion Rb-Sr isochrons for dating mineral deposits. *Nature*, 290(5807): 578–579
- Shi CH, Cao J, Selby D, Tan XC, Luo B and Hu WX. 2020. Hydrocarbon evolution of the over-mature Sinian Dengying reservoir of the Neoproterozoic Sichuan Basin, China: Insights from Re-Os geochronology. *Marine and Petroleum Geology*, 122: 104726
- Stein H and Hannah J. 2014. Rhenium-Osmium geochronology: Sulfides, shales, oils, and mantle. In: Rink W and Thompson J (eds.). *Encyclopedia of Scientific Dating Methods*. Dordrecht: Springer, 1–25
- Su A, Chen HH, Feng YX, Zhao JX, Nguyen AD, Wang ZC and Long XP. 2020. Dating and characterizing primary gas accumulation in Precambrian dolomite reservoirs, Central Sichuan Basin, China: Insights from pyrobitumen Re-Os and dolomite U-Pb geochronology. *Precambrian Research*, 350: 105897
- Summa LL, Goodman ED, Richardson M, Norton IO and Green AR. 2003. Hydrocarbon systems of Northeastern Venezuela: Plate through molecular scale-analysis of the genesis and evolution of the Eastern Venezuela Basin. *Marine and Petroleum Geology*, 20(3–4): 323–349
- Wang CM, Deng J, Carranza EJM and Lai XR. 2014. Nature, diversity and temporal-spatial distributions of sediment-hosted Pb-Zn deposits in China. *Ore Geology Reviews*, 56: 327–351
- Wang CM, Bagas L, Lu YJ, Santosh M, Du B and McCuaig TC. 2016. Terrane boundary and spatio-temporal distribution of ore deposits in the Sanjiang Tethyan Orogen: Insights from zircon Hf-isotopic mapping. *Earth-Science Reviews*, 156: 39–65
- Wang CM, Deng J, Bagas L, He XY and Zhang J. 2021. Origin and classification of the Late Triassic Huaishuping gold deposit in the eastern part of the Qinling-Dabie Orogen, China: Implications for gold metallogeny. *Mineralium Deposita*, 56(4): 725–742
- Wang HJ, Zhang SC and Wang XM. 2013. How to achieve the precise dating of hydrocarbon accumulation. *Natural Gas Geoscience*, 24(2): 210–217 (in Chinese with English abstract)
- Wang J, Fu XG, Du AD, Wang ZJ and Chen WX. 2007. Organic geochemistry and Re-Os dating of marine oil shale in Shenglihe area, northern Tibet, China. *Marine Origin Petroleum Geology*, 12(3): 21–26 (in Chinese with English abstract)
- Wu J, Li Z and Wang XC. 2016. Comment on “Behavior of Re and Os during contact between an aqueous solution and oil: Consequences for the application of the Re-Os geochronometer to petroleum” [*Geochim. Cosmochim. Acta* 158 (2015) 1–21]. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 186: 344–347
- Wu LY, Jin ZJ, Liu KY, Chu ZY and Yang P. 2021. Evolution of a deeply-buried oil reservoir in the North Shuntuoguole Low Uplift, Tarim Basin, western China: Insights from molecular geochemistry and Re-Os geochronology. *Marine and Petroleum Geology*, 134: 105365
- Wu LY, Jin ZJ, Chu ZY and Liu KY. 2021. Re-Os isotopic dating procedures for organic-rich samples. *Petroleum Geology and Experiment*, 43: 513–523, 556 (in Chinese with English abstract)
- Yamashita Y, Takahashi Y, Haba H, Enomoto S and Shimizu H. 2007. Comparison of reductive accumulation of Re and Os in seawater-sediment systems. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 71(14): 3458–3475
- Yin L, Li J, Liu JG, Li C, Sun SL, Liang HY and Xu JF. 2017. Precise and accurate Re-Os isotope dating of organic-rich sedimentary rocks by thermal ionization mass spectrometry with an improved H_2O_2 - HNO_3 digestion procedure. *International Journal of Mass Spectrometry*, 421: 263–270
- Zhang T, Ma XZ, Wang L, Huang JX and Zhao WW. 2017. Progress of rhenium-osmium isotopes in the study of dating petroleum system. *Petroleum Geology and Engineering*, 31(4): 30–34, 123 (in Chinese with English abstract)
- Zhou HG, Passade-Boupat N and Rondon Gonzalez M. 2012. Workflow for asphaltene precipitation assessment and mitigation strategies. In: Abu Dhabi International Petroleum Conference and Exhibition. Society of Petroleum Engineers
- Zhu GY, Zhang SC, Liu KY, Yang HJ, Zhang B, Su J and Zhang YG. 2013. A well-preserved 250 million-year-old oil accumulation in the Tarim Basin, western China: Implications for hydrocarbon exploration in old and deep basins. *Marine and Petroleum Geology*, 43: 478–488

附中文参考文献

- 蔡长娥, 邱楠生, 徐少华. 2014. Re-Os 同位素测年法在油气成藏年代学的研究进展. *地球科学进展*, 29(12): 1362–1371
- 蔡李梅, 陈红汉, 李兆奇, 吴悠. 2008. 油气成藏过程中的同位素测年方法评述. *沉积与特提斯地质*, 28(4): 18–23
- 陈玲, 张微, 余振兵. 2012. 油气成藏时间的确定方法. *新疆石油地*

- 质, 33(5): 550-553
- 储著银, 许继峰. 2021. 铼-钨同位素和铂族元素分析方法及地学应用进展. 地球科学进展, 36(3): 245-264
- 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
- 李超, 屈文俊, 王登红, 陈郑辉, 杜安道, 张长青. 2011. 沥青样品铼-钨同位素分析溶解实验研究. 岩矿测试, 30(6): 688-694
- 李杰, 张晶, 尹露. 2018. 地质样品的 Re-Os 同位素分析技术及存在的问题. 矿物岩石地球化学通报, 37(2): 242-249
- 李真, 王选策, 刘可禹, Svetlana T, 杨雪梅, 马行陟, 孙海涛. 2017. 油气藏铼-钨同位素定年的进展与挑战. 石油学报, 38(3): 297-306
- 刘文汇, 王杰, 腾格尔, 秦建中, 饶丹, 陶成, 卢龙飞. 2012. 中国海相层系多元生烃及其示踪技术. 石油学报, 33(增1): 115-125
- 刘文汇, 王杰, 陶成, 胡广, 卢龙飞, 王萍. 2013. 中国海相层系油气成藏年代学. 天然气地球科学, 24(2): 199-209
- 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
- 邱振, 邹才能. 2020. 非常规油气沉积学: 内涵与展望. 沉积学报, 38(1): 1-29
- 赛彦明, 田辉, 李杰, 刘银山, 张彬, 刘俊杰. 2020. 含油气系统 Re-Os 定年及 Re-Os 元素和同位素体系研究新进展. 天然气地球科学, 31(7): 939-951
- 沈传波, Selby D, 梅廉夫, 阮小燕, 胡守志, 刘昭茜, 彭蕾. 2011. 油气成藏定年的 Re-Os 同位素方法应用研究. 矿物岩石地球化学通报, 31(4): 87-93
- 沈传波, 刘泽阳, 肖凡, 胡迪, 杜嘉祎. 2015. 石油系统 Re-Os 同位素体系封闭性研究进展. 地球科学进展, 30(2): 187-195
- 沈传波, 葛翔, 白秀娟. 2019. 四川盆地震旦-寒武系油气成藏的 Re-Os 年代学约束. 地球科学, 44(3): 713-726
- 沈传波, 葛翔, 梅廉夫, 朱光有. 2020. 含油气系统铼-钨同位素年代学. 北京: 科学出版社
- 王华建, 张水昌, 王晓梅. 2013. 如何实现油气成藏期的精确定年. 天然气地球科学, 24(2): 210-217
- 王剑, 付修根, 杜安道, 汪正江, 陈文西. 2007. 羌塘盆地胜利河海相油页岩地球化学特征及 Re-Os 定年. 海相油气地质, 12(3): 21-26
- 武鲁亚, 金之钧, 储著银, 刘可禹. 2021. 富有机质样品 Re-Os 同位素定年实验方法. 石油实验地质, 43(3): 513-523, 556
- 张涛, 马行陟, 王伦, 黄家旋, 赵卫卫. 2017. Re-Os 同位素油气成藏定年研究进展. 石油地质工程, 31(4): 30-34, 123