

热事件发育地区自生黏土矿物形成过程分析： 以北部湾盆地福山凹陷为例

刘恩涛^{1,2}, 王华², 沈能平³, ZHAO Jian-xin⁴,
FENG Yue-xing⁴, UYSAL I Tonguç⁴

1. 中国地质大学(武汉)海洋学院, 武汉 430074; 2. 中国地质大学(武汉)构造与油气资源教育部重点实验室, 武汉 430074;
3. 中国科学院地球化学研究所, 矿床地球化学国家重点实验室, 贵阳 550081; 4. Radiogenic Isotope Facility,
School of Earth Sciences, The University of Queensland, Brisbane, Qld 4072

摘要: 自生黏土矿物形成过程是个备受关注的科学问题, 查明该过程对于盆地热史分析至关重要。本次研究以北部湾盆地福山凹陷岩浆侵入体附近的沉积砂岩为研究对象, 使用离心机分离出不同粒度的自生黏土矿物, 并对其进行系统的矿物学、Rb-Sr 年代学及 ⁴⁰Ar-³⁹Ar 年代学研究。结果表明, 粗砂岩中自生黏土矿物富集且纯度很高, 是开展年代学分析的理想对象; Rb-Sr 等时线定年结果显示自生黏土矿物形成年代为 ~31 Ma, 该年龄与岩浆岩 U-Pb 年代具有非常好的耦合关系, 而 ⁴⁰Ar-³⁹Ar 定年法受到 “⁴⁰Ar 丢失” 的影响而缺乏地质意义。本次研究说明热事件发育地区自生黏土矿物的生长过程严格受控于短时间的岩浆岩侵入事件, 而非长时间的盆地埋藏过程。

关键词: 自生黏土矿物; 构造热事件; Rb-Sr 法定年; ⁴⁰Ar-³⁹Ar 法定年; 北部湾盆地

中图分类号: P588.21+2.3 文章编号: 1007-2802(2017)01-0059-08 doi: 10.3969/j.issn.1007-2802.2017.01.007

Formation of Authigenic Clay Minerals in Hydrothermal Events Developed Regions: A Case Study from the Fushan Depression, Beibuwan Basin

LIU En-tao^{1,2}, WANG Hua², SHEN Neng-ping³, ZHAO Jian-xin⁴,
FENG Yue-xing⁴, UYSAL I Tonguç⁴

1. Faculty of Marine Sciences, China University of Geosciences, Wuhan 430074, China; 2. Key Laboratory of Tectonics and Petroleum Resources, China University of Geosciences, Wuhan 430074, China; 3. State Key Laboratory of Ore Deposit Geochemistry, Institute of Geochemistry, Chinese Academy of Sciences, Guiyang 55081, China; 4. Radiogenic Isotope Facility, School of Earth Sciences, The University of Queensland, Brisbane, Qld 4072, Australia

Abstract: The formation process of authigenic clay minerals is a scientific issue that has received widespread attention, and a better understanding of this process is of great significance for thermal history analysis of basins. In this study, we conducted a systematic study of mineralogy, Rb-Sr isotopic dating and ⁴⁰Ar-³⁹Ar dating on the different size fractions of clay minerals separated from sandstones in the adjacent area of a large-scale igneous intrusion in the Fushan Depression, Beibuwan Basin. Our results suggest that authigenic clays in coarse sandstones are ideal for the dating due to enrichment of pure clay minerals. Rb-Sr isochron dating determined the formation age of authigenic clay minerals (at ~31 Ma), which matches well with the youngest zircon U-Pb ages of the igneous rocks. By contrast, ⁴⁰Ar-³⁹Ar dating provided an unreliable age because of a serious loss of ⁴⁰Ar. This study suggests that the formation process of authigenic clay minerals in hydrothermal-developed regions is mainly controlled by short-time hydrothermal event (igneous intrusion) rather than long-time step-wise burial.

Key words: authigenic clay minerals; hydrothermal events; Rb-Sr isochron dating; ⁴⁰Ar-³⁹Ar dating; Beibuwan Basin

收稿日期: 2016-11-16 收到, 2016-11-27 改回

基金项目: 中央高校基本科研业务费和专项资金资助项目(26420160184); 国家自然科学基金项目(41472084); 教育部构造与油气资源重点实验室开放基金项目(TPR-2014-16)

作者简介: 刘恩涛(1986-), 男, 副教授, 研究方向: 沉积学与盆地分析. E-mail: liuentao@cug.edu.cn.

自生黏土矿物是含油气盆地中沉积岩的重要矿物组分,对其展开研究可为盆地烃源岩成熟史、油气成藏年代和盆地成岩过程提供丰富的信息(赵杏媛和陈洪起,1988;李忠,1992;周中毅和潘长春,1992;任战利,1999;陆现彩等,2004;王明振等,2014)。虽然黏土矿物分析在盆地研究中广泛应用,但其形成过程及主控因素一直备受争议。蒙脱石的伊利石化是沉积盆地最普遍最重要的矿物转化,传统的观点认为蒙脱石伊利石化主要受盆地埋藏深度的控制(Hoffman and Hower, 1979; Kirsimäe *et al.*, 1999),进而被广泛地用作盆地的古温度计(Muffler and White, 1969; Hoffman and Hower, 1979; Jennings and Thompson, 1986)。然而,近年来越来越多的研究成果表明,蒙脱石向伊利石转化及伊利石从流体中沉淀,往往与成岩中晚期区域性的大型构造热事件带来的幕式热流体活动或热传导密切相关(Ramseyer and Boles, 1986; Clauer and Chaudhuri, 1995; Zhao *et al.*, 1996; Clauer *et al.*, 1997, 2012; 任战利, 1999; Uysal *et al.*, 2000a, 2000b, 2001)。自生黏土矿物是盆地热史分析的重要内容,深化其形成过程分析对于黏土矿物在盆地分析中的成功应用至关重要。

中国绝大多数含油气盆地都经历过多期次构造事件的改造,区域性构造热事件普遍,以往的研究多集中于自生黏土矿物的矿物学和形态学方面,而对热事件发育地区自生黏土矿物的形成过程和矿物转化机理涉及较少。其形成过程是受控于长时间的埋藏过程,还是短时间的热事件,与区域已知的热事件有何响应关系?回答这些问题,需要针对同一砂岩样品内不同粒级的自生黏土矿物展开系统的年代学和地球化学分析。北部湾盆地存在明显的古地温正异常,其均值为 66 mW/m^2 (唐晓音等,2014)。位于北部湾东部的福山凹陷和乌石凹陷流二段地层中发育大范围的岩浆侵入体(李美俊等,2006;赵迎冬等,2016),属于典型的构造热事件,存在明显的热异常(Liu *et al.*, 2016)。本次研究针对岩浆发育地区同一砂岩样品不同粒度的自生黏土矿物进行 Rb-Sr 年代学分析,试图查明热事件发育地区自生黏土矿物的形成过程,是受控于短时间的构造热事件还是长时间的盆地埋藏过程。

1 区域地质概况

北部湾盆地主体位于中国南海西北部的北部湾,是一个中新生代板内断块盆地。福山凹陷为盆

地东南缘的一个次级构造单元,是南超北断的中、新生代箕状断陷,其西北以临高断裂与临高凸起相接,南部为海南隆起,东部以徐闻断裂与云龙凸起相邻(石彦民等,2007; Liu *et al.*, 2014, 2015)(图1)。盆地内古近系地层从老到新有长流组、流沙港组和涠洲组,其中流沙港组为盆地内油气重点勘探的目的层位,该层位进一步细化为流三段、流二段、流一段3个三级层序(Liu *et al.*, 2014, 2015)。在福山凹陷的东部发育一个大型的岩浆侵入体,侵入深度约3400 m,最大厚度约170 m,分布面积达 100 km^2 (林正良,2011)。其上覆和下覆地层均为富含有机质的泥岩,埋藏深度大于3000 m,为福山凹陷最大的生油岩层系(Liu *et al.*, 2014, 2015)。

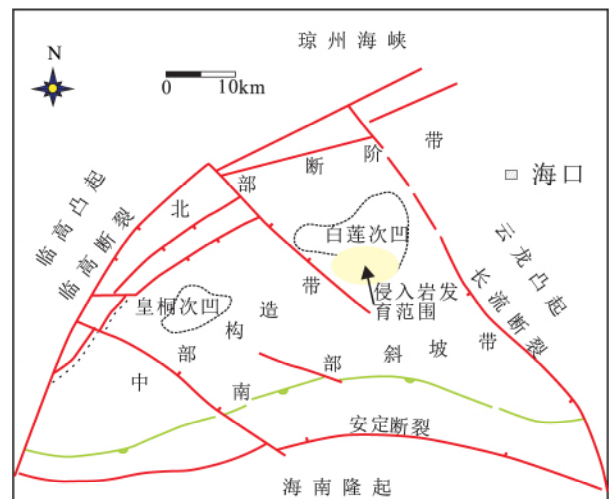


图1 北部湾盆地福山凹陷区域地质图

Fig.1 Simplified geological map of the Fushan depression, Beibuwan Basin

2 样品选取及实验方法

本次研究样品为福山凹陷岩浆侵入地区莲25井3473~3478 m之间的4块砂岩标本,其中2块为粗砂岩(L25-1、L25-2)、1块细砂岩(L25-3)和1块粉砂岩(L25-4),样品均取自岩浆侵入体下部。样品分离利用显微镜、X射线衍射(XRD)、扫描电镜(SEM)、透射电镜(TEM)、高速离心机等设备,应用电感耦合等离子体质谱(ICP-MS)和热电离质谱仪(TIMs)完成黏土矿物地球化学分析。样品的分离、测试都在昆士兰大学地球科学系完成, ^{40}Ar - ^{39}Ar 年代学分析在美国密西根大学完成。

本次研究采用“逐步缩小粒径法”完成样品分离和提取,实验流程简述如下:①首先对全岩粉末样品完成全岩XRD分析,确定全岩样品中矿物种类

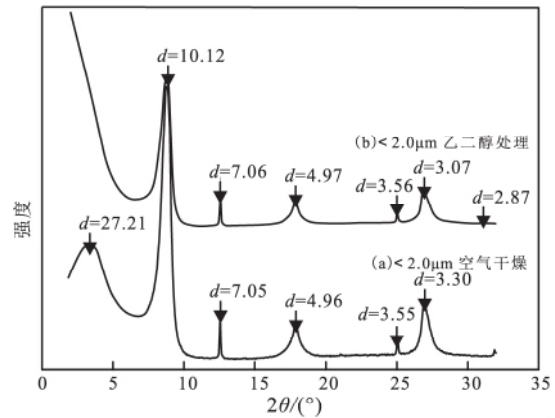
与大致含量,通过 SEM 和 TEM 观察确定自生黏土矿物的赋存状态。②根据以上矿物鉴定分析结果,筛选出自生黏土矿物含量高的样品用以黏土矿物提取。使用“循环冷冻-加热法”使砂岩样品自然分解,进而获取黏土矿物悬浮液。严格按照 Stokes 沉降定律,通过静置溶液获取上层悬浮液,或者利用恒温高速离心机获取,分离出小于 2 μm 黏土矿物悬浮液,制作玻璃定向片,完成黏土矿物 XRD 分析。③通过黏土矿物 XRD 鉴定结果判断自生黏土矿物纯度,尤其是需要排除钾长石等富钾矿物对伊利石纯度的干扰。如果样品纯度不高或存在其他含钾矿物时,提取更细颗粒的上层悬浮液,依次尝试小于 1.0 μm、0.5 μm、0.2 μm 及 0.1 μm 粒级黏土矿物的悬浮液,完成黏土矿物 XRD 鉴定,直至获得纯净的自生黏土矿物悬浮液为止。④对于满足纯度要求的样品,根据 Stokes 沉降定律,利用离心机按固定转速和时间分离出更细粒级的黏土样品。例如, L25-1 砂岩样品的自生黏土矿物粒度为 2 μm,本次研究将其悬浮液进一步细分为 1.0~2.0 μm, 0.5~1.0 μm, 0.2~0.5 μm, 0.1~0.2 μm, 小于 0.1 μm 等不同粒级的悬浮液,并在超净实验室低温(小于 60℃)蒸干。⑤选取适量样品(50 mg 左右),用 1 mol/L 醋酸常温浸泡一晚(25℃, 12 h),去除样品中可能含有的少量次生碳酸盐矿物。通过 HF-HCl-H₂O₂ 处理方法溶解样品,完成微量元素地球化学分析。⑥利用电感耦合等离子体质谱(ICP-MS)多次重复测量 Rb 和 Sr 元素含量,确定高精度 Rb/Sr 值。⑦挑选 Rb/Sr 值差异较大的样品在热电离质谱仪(TIMS)上完成 Sr 同位素分析。⑧挑选具有代表性的样品,完成 ⁴⁰Ar-³⁹Ar 年代学分析。

3 测试结果

3.1 黏土矿物鉴定结果

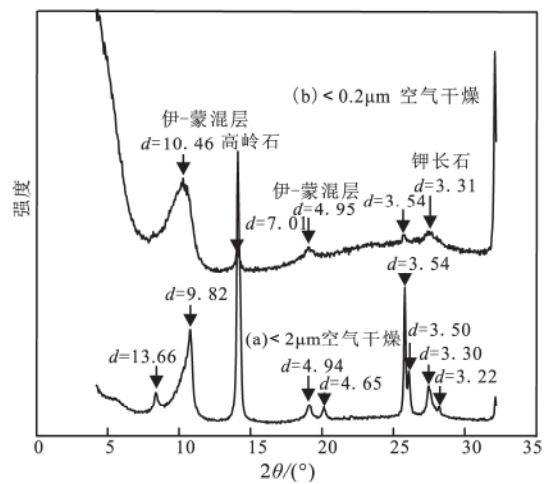
XRD 鉴定结果显示粗砂岩、细砂岩和粉砂岩中所含矿物种类基本一致,但各类矿物含量差异较大。粗砂岩中自生黏土矿物含量最高,细砂岩其次,粉砂岩最低。粗砂岩以伊-蒙混层、高岭石矿物为主,伊-蒙混层矿物富集,含量很高(图 2)。而细砂岩和粉砂岩中更富集钾长石等含钾矿物,对自生黏土矿物分离不利,伊-蒙混层矿物含量很低,即便分离出的小于 0.2 μm 粒级的悬浮液中依然含有钾长石等富钾矿物,这些样品不适合黏土矿物的提纯和定年分析(图 3)。通过自然风干样品 XRD 结果与乙二醇处理过的样品的 XRD 结果进行对比,可以

确定伊-蒙混层矿物中矿物转化程度。福山凹陷东部地区和西部地区砂岩样品经过乙二醇处理过后,黏土矿物的(001)峰(1.0 nm)和(002)峰(0.5 nm)的位置并未发生显著偏移,说明福山凹陷黏土矿物属于长有序型($R \geq 3$ 型),黏土矿物的成分主要为伊利石,伊-蒙矿物转化的程度很高(大于 85%),非常适合年代学研究(图 2)。



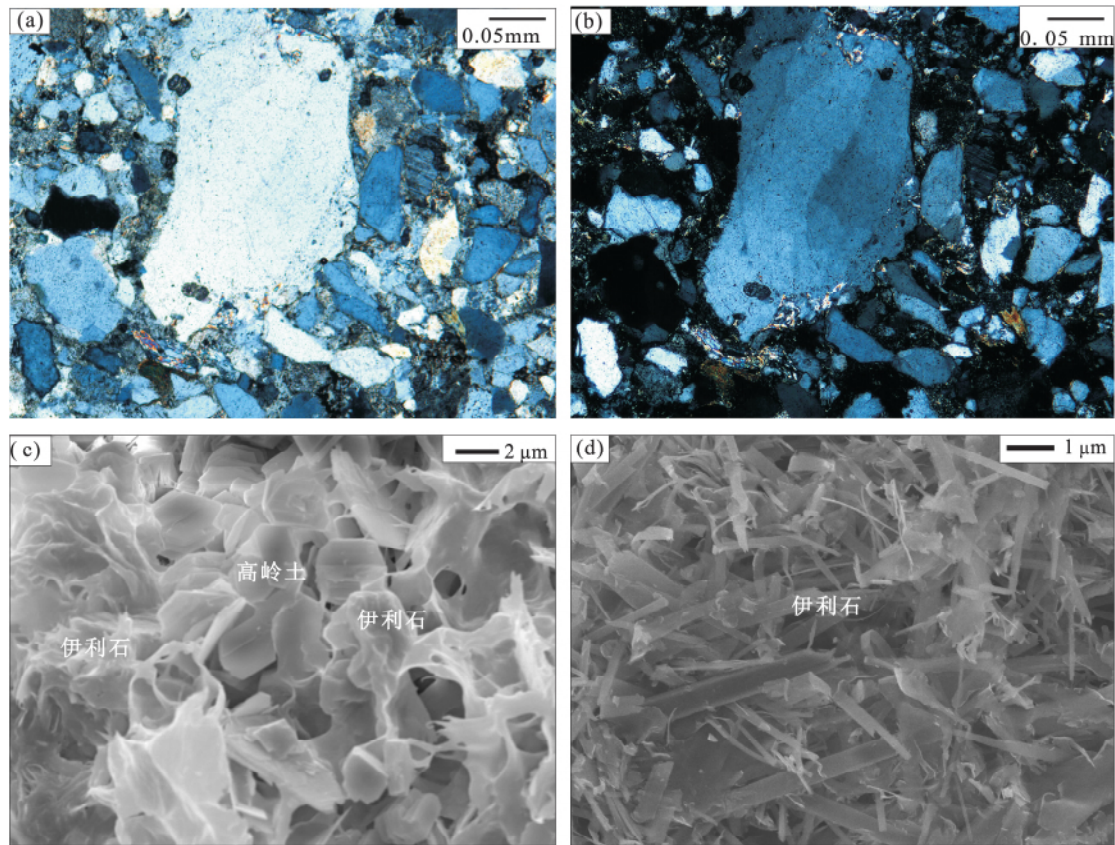
(a) 小于 2.0 μm 黏土矿物样品自然风干 XRD 结果;
(b) 小于 2.0 μm 黏土矿物样品乙二醇处理后 XRD 结果

图 2 福山凹陷粗砂岩(L25-1)中黏土矿物样品 XRD 结果
Fig.2 XRD pattern of the clay samples separated from the coarse sandstone(L25-1) from the Fushan depression



(a) 全岩样品 XRD 结果; (b) 小于 0.2 μm 黏土矿物样品自然风干 XRD 结果; (c) 小于 0.2 μm 黏土矿物样品乙二醇处理后 XRD 结果
图 3 福山凹陷粉砂岩(L25-3)中黏土矿物样品 XRD 结果
Fig.3 XRD pattern of the clay samples separated from the siltstone(L25-3) from the Fushan depression

显微镜下可见伊利石主要发育于发生溶蚀的网间孔隙中,长石的残余组分以及沿解理发育的平行网状结构,发育具有残余颗粒的外形特征,具有很好的自生形态(图 4)。除平行网状伊利石外,镜



(a) 石英颗粒边缘发育少量锯齿状的伊利石, 为成岩后期流体沉淀生成, 也可能为高岭石转换而形成; (b) 为与之对应的正交偏光照片, 照片对角线长 0.75 mm; (c) 高倍镜下见伊利石以片状和丝状形态产出, 具有典型的自生伊利石形态; (d) 在高岭石表面发育丝状和片丝状伊利石, 推测其为高岭石转化形成

图 4 福山凹陷粗砂岩(L25-1 和 L25-2) 岩石薄片和南东 M 图像

Fig.4 Thin section and SEM images of the coarse sandstones from the Fushan depression

下可见有的伊利石矿物出现杂乱的网状结构, 发育于颗粒网间孔隙, 推断为不同结构成分的黏土矿物转化所致, 主要由高岭石转化而形成。SEM 鉴定结果与上述结论类似, 伊利石主要以毛发状、片状和片丝状产出, 均有很好的自生形态, 伊利石通常位于石英颗粒的表面或缝隙中, 或生长于高岭石矿物的表面并保存了原始高岭石的结晶形态(图 4)。从伊利石与石英、高岭石等黏土矿物的空间位置上来看, 自生伊利石应主要形成于成岩晚期。

3.2 自生黏土矿物年代学分析

分析得到莲 25 井自生黏土矿物样品 Rb 浓度为 $292 \times 10^{-6} \sim 343 \times 10^{-6}$, Sr 浓度为 $13 \times 10^{-6} \sim 165 \times 10^{-6}$, Rb/Sr 值为 29.5 ~ 158, $^{87}\text{Rb}/^{86}\text{Sr}$ 值为 6.4 ~ 32.0, $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 值为 0.7179 ~ 0.7297, $^{87}\text{Rb}/^{86}\text{Sr}$ 值变化范围大(表 1)。 $^{87}\text{Rb}/^{86}\text{Sr}$ 散点图(图 5)显示数据点具有良好的线性关系, 可以细分为 A 和 B 两条 Rb-Sr 等时线, 对应的年龄分别为 30.6 ± 3.0 Ma (初始 $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr} = 0.7164 \pm 0.0006$, MSWD =

207) 31.4 ± 1.6 Ma (初始 $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr} = 0.7154 \pm 0.0004$, MSWD = 59), 明显小于流二段地层沉积年龄 (40 Ma)。

本次实验选取 0.1~0.2 μm 级的自生黏土矿物完成 ^{40}Ar - ^{39}Ar 年代学分析, 其结果(图 6)显示样品的 ^{40}Ar 发生了严重的丢失, 导致样品总气体年龄为 6.14 Ma, 因此测试并不具有实际地质意义。样品在逐级加热过程的低温阶段表现年龄为负值, 在高温阶段随着温度的升高表现年龄逐渐增大。 ^{40}Ar 的丢失, 导致样品的 $^{40}\text{Ar}/^{39}\text{Ar}$ 年龄比 Rb-Sr 年龄明显年轻很多, 因此不能代表自生黏土矿物形成的年代。

4 讨论

4.1 黏土矿物分离-提纯

自生黏土矿物测年技术在恢复盆地热事件研究中具有很好的应用前景, 但制约这一技术推广的关键因素是矿物的分选和提纯, 即获取纯净的自生黏土矿物样品(张有瑜等, 2004)。实践证明, 自生

表1 福山凹陷莲25井粗砂岩(L25-1、L25-2)自生黏土矿物⁸⁷Rb/⁸⁶Sr和⁸⁷Sr/⁸⁶Sr数据

Table 1 ⁸⁷Rb/⁸⁶Sr and ⁸⁷Sr/⁸⁶Sr data for the authigenic clay minerals separated from the coarse sandstones (L25-1, L25-2) from Well Lian 25 in the Fushan depression

样品	Rb / ×10 ⁻⁶	Rb / %	Sr / ×10 ⁻⁶	Sr / %	⁸⁷ Rb / (nm/G)	⁸⁶ Sr / (nm/G)	⁸⁷ Rb/ ⁸⁶ Sr	2σ	⁸⁷ Sr/ ⁸⁶ Sr	2σ	线
L25-2(0.2-0.5)_U	292	0.31	33.2	0.28	950	37.3	25.44	0.21	0.727504	0.000007	A
L25-1(0.2-0.5)_R	321	0.12	129	0.16	1046	145	7.206	0.029	0.719479	0.000009	A
L25-1(0.1-0.2)_R	296	0.35	135	0.22	964	152	6.353	0.053	0.719372	0.000009	A
L25-2(0.1-0.2)_R	304	0.38	93.0	0.24	988	105	9.444	0.085	0.720401	0.000009	A
L25-2(0.2-0.5)_R	333	0.28	95.6	0.18	1085	108	10.09	0.07	0.719743	0.000007	B
L25-1(1.0-2.0)_R	313	0.19	158	0.15	1018	178	5.716	0.028	0.717983	0.000009	B
L25-1(0.5-1.0)_R	327	0.05	29.5	0.21	1065	33.2	32.04	0.14	0.729669	0.000006	B
L25-2(0.5-1.0)_R	343	0.21	82.2	0.22	1116	92.5	12.06	0.07	0.720803	0.000009	B

注: 样品命名规则为: 砂岩样品名+黏土粒度+样品处理方式, R指经醋酸处理过样品, U指未经醋酸处理过样品, 例如L25-1(0.2-0.5)_R指砂岩L25-1样品中0.2~0.5 μm黏土矿物经过醋酸淋滤后的样品。

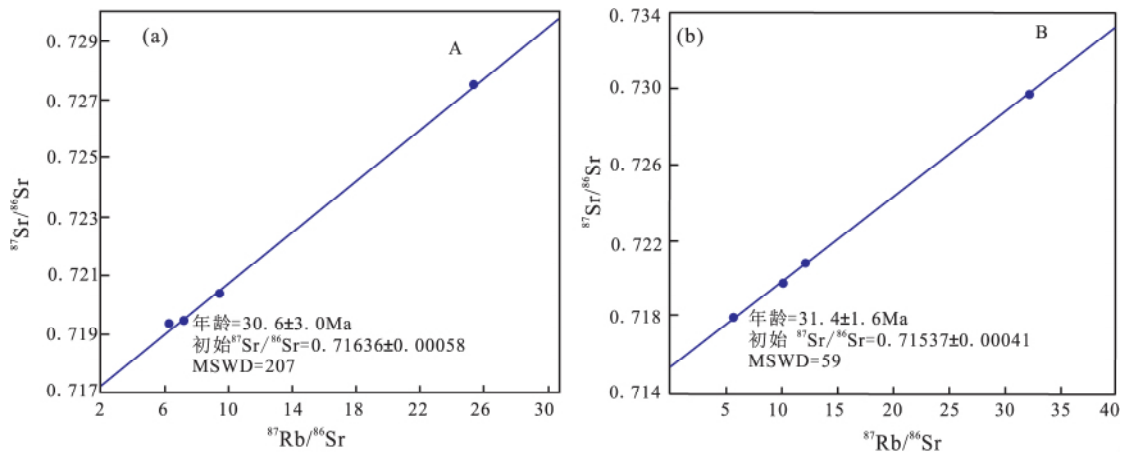


图5 福山凹陷L25井两块粗砂岩样品的黏土矿物Rb-Sr等时线年龄图

Fig.5 Rb-Sr isochrone ages of the clay samples separated from the coarse sandstones from the Fushan depression

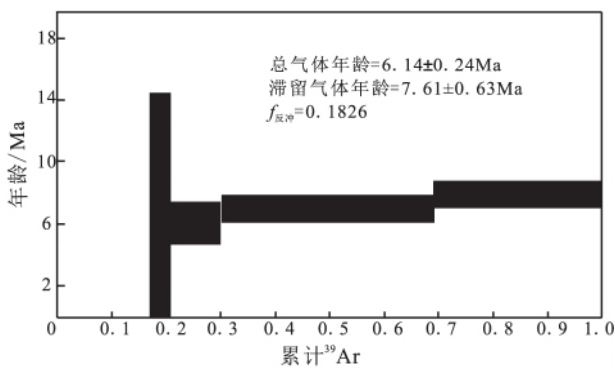


图6 福山凹陷L25井粗砂岩(L25-2)中0.1~0.2 μm级黏土矿物样品⁴⁰Ar-³⁹Ar年龄谱图

Fig.6 ⁴⁰Ar-³⁹Ar age of the clay sample (0.1~0.2 μm) separated from the coarse sandstone(L25-2) from the Fushan depression

黏土矿物的粒径普遍比陆源矿物小,提取细粒级的黏土矿物是获得纯净样品的唯一有效途径(张有瑜和罗修泉,2011)。本次研究通过对同一钻井相似

深度但不同岩性的砂岩样品开展黏土矿物的分离和提纯,发现自生黏土矿物的含量、纯度与样品的岩性密切相关,这种特征归结于中国陆相盆地储集层的非均质性。研究发现粗砂岩是自生黏土矿物年代学研究的理想样品,原因在于粗砂岩中碎屑(陆源)矿物的含量相对较低,且砂岩内部孔隙度较大,通常作为流体运移的通道和沉淀的场所,有利于自生黏土矿物的形成和富集。而粒度较细的细砂岩、粉砂岩、泥岩中陆源矿物的含量高、孔隙度低,不利于自生黏土矿物的转化及生长。

4.2 自生黏土矿物年代学分析方法

本次研究中细粒自生黏土矿物⁴⁰Ar-³⁹Ar年代学测试并没有获得成功,考虑到密西根大学⁴⁰Ar-³⁹Ar年代学实验室在有机质纯化技术上有着丰富的经验,笔者认为本次⁴⁰Ar-³⁹Ar年龄严重偏轻的原因主要在于⁴⁰Ar的丢失。⁴⁰Ar丢失的主要原因有:①后

期热事件; ②样品后期处理流程不合适; ③样品颗粒太细, 导致对放射性成因的 ^{40}Ar 保存能力较弱, 容易受到外界环境的干扰而导致 ^{40}Ar 丢失。考虑到本次研究中严格把握样品蒸干温度(低于 60°C), 实验流程科学合理, 因此推测 ^{40}Ar 丢失的主要原因在于样品颗粒太细, 对放射性成因的 ^{40}Ar 保存能力较弱, 容易受到外界环境的影响(张彦等, 2006; Haines and Van Der Pluijm, 2010; Verdel *et al.*, 2012)。而且样品颗粒越小, ^{40}Ar 保存能力越差, ^{40}Ar 的丢失量也就越大, 这与前人对该问题的看法基本一致(如张彦等, 2006)。因此, 本次研究虽然没有获得有用的地质年代学数据, 但表明 ^{40}Ar - ^{39}Ar 定年在确定细粒黏土矿物定年时存在一定的局限性, 容易受到“ ^{40}Ar 丢失”及“ ^{39}Ar 核反冲丢失”的影响, 进而导致年龄数据不可靠。

自生黏土矿物定年方法有 Rb-Sr 等时线法、K-Ar 定年及 ^{40}Ar - ^{39}Ar 定年法, 3 种方法各有所长且影响因素不同(Clauer *et al.*, 1993; Zwingmann *et al.*, 1999; Uysal *et al.*, 2001; Middleton *et al.*, 2014)。本次研究中 Rb-Sr 等时线法给出了高精度的年代学数据, 显示出该方法在自生黏土矿物定年中具有独特的优势。尤其是利用不同粒度矿物样品确定自生黏土矿物形成过程时, Rb-Sr 等时线法可以很好的规避 ^{40}Ar - ^{39}Ar 定年周期长、费用高的特点。此外, Clauer 等(2012)和张有瑜等(2014)通过系统的对比分析, 认为 ^{40}Ar - ^{39}Ar 法在测定细粒自生黏土矿物年龄时容易受到“ ^{39}Ar 核反冲丢失”和“ ^{40}Ar 丢失”的影响, 相比之下 K-Ar 定年法更稳定可靠。综上所述, 笔者认为 Rb-Sr 等时线法和 K-Ar 法更适用于自生黏土矿物定年, 通过 Rb-Sr 等时线法初步确定其形成年代, 进而选取典型样品完成 K-Ar 定年分析会起到“事半功倍”的效果。

4.3 自生黏土矿物形成过程

Rb-Sr 年代学结果显示, 同一砂岩不同粒度的自生黏土矿物样品具有非常好的线性关系, 对应的年龄分别为 $30.6 \pm 3.0 \text{ Ma}$ 和 $31.4 \pm 1.6 \text{ Ma}$, 远小于流二段地层的沉积年代(约 40 Ma)。这种良好的线性关系显示这些不同粒度的自生黏土矿物是在较短的时间内(1~2 Ma)形成的, 反映出该过程受控于短时间的构造热事件而不是长时间的埋藏过程。如果自生黏土矿物的形成过程受控于长时间的埋藏过程, 则其 $^{87}\text{Rb}/^{86}\text{Sr}$ - $^{87}\text{Rb}/^{86}\text{Sr}$ 的投点图将是杂乱的, 找不出任何线性的趋势。此外, 林正良(2011)通过流二段岩浆侵入体的锆石 U-Pb 年代学研究确定岩浆岩的侵入年代约为 33 Ma , 与自生黏土矿物

的形成年代在误差范围内一致, 充分反映出该地区自生黏土矿物的生长过程严格受控于区域性的岩浆侵入事件。结合镜下特征可以认为, 自生黏土矿物的形成过程可以细分为黏土矿物的转化(如蒙脱石向伊利石转化)及伊利石从流体中沉淀 2 种形式 2 种途径都受控于区域性的大型构造热事件带来的幕式热流体活动或热传导, 这与前人在构造活动型盆地获得的认识一致。

自生黏土矿物年代学分析是确定油气成藏最大年龄的一种快速方法, 该方法虽有一些成功案例(张有瑜等, 2001, 2004; 王龙樟等, 2005; 施和生等, 2009; Qiu *et al.*, 2011), 但油气充注时自生黏土矿物是停止生长还是快速生长存在争议。该研究结果显示在热事件发育地区, 自生黏土矿物可以在热流体的作用下快速生长。那么, 含烃流体充注从本质上讲也是一次热流体的活动, 流体注入的同时也很可能促使自生黏土矿物快速形成, 这或许是自生黏土矿物年代学能成功确定油气成藏年代的原理所在。即含烃流体的注入, 导致自生黏土矿物在短时间内生成, 进而可以通过自生黏土矿物年代学分析确定油气成藏的最大年龄。假若如传统观点而言, 自生黏土矿物的生长过程是个缓慢的过程, 流体充注后停止生长的话, 那么只有确定最小粒级的自生黏土矿物(至少小于 $0.1 \mu\text{m}$)才有可能达到目的, 这在实验中是很难实现的。而前人的研究中普遍采用小于 $0.5 \mu\text{m}$ 的黏土矿物样品作为分析对象, 所对应的地层沉积年龄普遍大于 30 Ma 。考虑到自生黏土矿物的粒度往往小于 $2 \mu\text{m}$, 假定自身黏土矿物生长是个缓慢过程, 这就意味着小于 $0.5 \mu\text{m}$ 黏土矿物的生长至少需要 7.5 Ma 才能完成, 这种研究方法显然不能达到约束油气成藏最大年龄的目的。再者, 前人研究显示, 此类方法在构造活动强烈盆地的应用效果并不理想, 这种现象用缓慢生长理论难以解释。因此, 自生黏土矿物之所以能够用来确定油气成藏年代的原因, 很可能在于含烃流体的注入导致了自生黏土矿物在短时间的快速生长, 而并非是传统观点认为的含烃流体充注后自生黏土矿物停止生长。

综上所述, 自生黏土矿物形成过程是个复杂的过程, 受到地层埋藏、热流体活动、构造热事件等因素的影响, 到目前为止依然知之甚少。此外, 自生黏土矿物的形成过程也是个重要的科学问题, 只有理清该过程中的细节行为及控制因素, 才能成功的将黏土矿物应用到盆地热史、油气成藏年代学等领域, 否则很可能得出错误的结论, 此项研究至关

重要并且任重道远。

5 结论

(1) 受储集层非均质性的影响,不同岩性的岩石样品自生黏土矿物的含量及纯度具有很大的差异性。总体而言,粗砂岩是自生黏土矿物研究的理想对象,自生黏土矿物富集且纯度很高,与砂岩内部较大的孔隙有关。

(2) 细粒自生黏土矿物颗粒很细,对放射性成因的 ^{40}Ar 保存能力较弱, ^{40}Ar - ^{39}Ar 定年中容易受到“ ^{40}Ar 丢失”的影响从而导致年龄不可靠。通过Rb-Sr等时线法初步确定自生黏土矿物形成年代,进而选取典型样品完成K-Ar定年分析是自生黏土矿物研究领域值得推荐的定年方法。

(3) 福山凹陷岩浆侵入地区同一砂岩不同粒度的自生黏土矿物样品,在Rb-Sr定年中具有非常好的线性关系,对应的年龄分别为 30.6 ± 3.0 Ma和 31.4 ± 1.6 Ma,与该套岩浆岩U-Pb年龄具有非常好的匹配关系,说明热事件发育地区自生黏土矿物的生长过程严格受控于短时间的岩浆岩侵入事件,而非长时间的埋藏过程。这也暗示着自生黏土矿物定年法之所以能够用来确定油气成藏年代的原因,很可能在于含烃流体的注入导致了自生黏土矿物在短时间的快速生长,而并非传统观点认为的含烃流体充注后自生黏土矿物停止生长。自生黏土矿物形成过程研究对于黏土矿物在盆地热史、油气成藏年代学中应用效果至关重要,值得深入研究。

致谢:感谢中石油南方勘探有限公司提供宝贵的岩心样品!

参考文献 (References):

Clauer N, Chaudhuri S, Kralik M, Bonnot-Courtois C. 1993. Effects of experimental leaching on Rb-Sr and K-Ar isotopic systems and REE contents of diagenetic illite. *Chemical Geology*, 103(1-4): 1-16

Clauer N, Chaudhuri S. 1995. *Clays in Crustal Environments: Isotope Dating and Tracing*. Heidelberg: Springer Verlag

Clauer N, Srodoń 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

Haines S H, Van Der Pluijm B A. 2010. Dating the detachment fault system of the Ruby Mountains, Nevada: Significance for the kinematics of low-angle normal faults. *Tectonics*, 29(4): TC4028.

Hoffman J, Hower J. 1979. Clay mineral assemblages as low grade metamorphic geothermometers: Application to the thrust faulted disturbed belt of Montana, U.S.A. *SEPM Special Publications*, 26: 55-79

Jennings S, Thompson G R. 1986. Diagenesis of Plio-Pleistocene sediments of the Colorado River delta, southern California. *Journal of Sedimentary Research*, 56(1): 89-98

Kirsimäe K, Jørgensen P, Kalm V, Kirsimäe K, Jørgensen P. 1999. Low-temperature diagenetic illite-smectite in lower Cambrian clays in North Estonia. *Clay Minerals*, 34(1): 151

Liu E T, Song Y X, Wang H, Liu H B, Ayoko G A, Frost R L, Xi Y F. 2016. Vibrational spectroscopic characterization of mudstones in a hydrocarbon-bearing depression, South China Sea: Implications for thermal maturity evaluation. *Spectrochimica Acta Part A: Molecular and Biomolecular Spectroscopy*, 153: 241-248

Liu E T, Wang H, Li Y, Leonard N D, Feng Y X, Pan S Q, Xia C Y. 2015. Relative role of accommodation zones in controlling stratal architectural variability and facies distribution: Insights from the Fushan Depression, South China Sea. *Marine and Petroleum Geology*, 68: 219-239

Liu E T, Wang H, Li Y, Zhou W, Leonard N D, Lin Z L, Ma Q L. 2014. Sedimentary characteristics and tectonic setting of sublacustrine fans in a half-graben rift depression, Beibuwan Basin, South China Sea. *Marine and Petroleum Geology*, 52: 9-21

Middleton A W, Uysal I T, Bryan S E, Hall C M, Golding S D. 2014. Integrating ^{40}Ar - ^{39}Ar , ^{87}Rb - ^{87}Sr and ^{147}Sm - ^{143}Nd geochronology of authigenic illite to evaluate tectonic reactivation in an intraplate setting, central Australia. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 134: 155-174

Muffler L J P, White D E. 1969. Active metamorphism of upper cenozoic sediments in the salton sea geothermal field and the salton trough, Southeastern California. *Geological Society of America Bulletin*, 80(2): 157-182

Qiu H N, Wu H Y, Yun J B, Feng Z H, Xu Y G, Mei L F, Wijbrans J R. 2011. High-precision $^{40}\text{Ar}/^{39}\text{Ar}$ age of the gas emplacement into the Songliao Basin. *Geology*, 39(5): 451-454

Ramseyer K, Boles J R. 1986. Mixed-layer illite/smectite minerals in Tertiary sandstones and shales, San Joaquin Basin, California. *Clays and Clay Minerals*, 34(2): 115-124

Uysal I T, Glikson M, Golding S D, Audsley F. 2000a. The thermal history of the Bowen Basin, Queensland, Australia: Vitrinite reflectance and clay mineralogy of Late Permian coal measures. *Tectonophysics*, 323(1-2): 105-129

Uysal I T, Golding S D, Audsley F. 2000b. Clay-minerals authigenesis in the Late Permian coal measures, Bowen Basin, Queensland, Australia. *Clays and Clay Minerals*, 48(3): 351-365

Uysal I T, Golding S D, Thiede D S. 2001. K-Ar and Rb-Sr dating of authigenic illite-smectite in Late Permian coal measures, Queensland, Australia: Implication for thermal history. *Chemical Geology*, 171(3-4): 195-211

Verdel C, Van Der Pluijm B A, Niemi N. 2012. Variation of illite/muscovite $^{40}\text{Ar}/^{39}\text{Ar}$ spectra during progressive low-grade metamorphism: An example from the US Cordillera. *Contributions to Mineralogy and Petrology*, 164(3): 521-536

- Zhao M W, Behr H J, Ahrendt H, Wemmer K, Ren Z L, Zhao Z Y. 1996. Thermal and tectonic history of the Ordos Basin, China: Evidence from apatite fission track analysis, vitrinite reflectance, and K-Ar dating. *AAPG Bulletin*, 80(7): 1110-1133
- Zwingmann H, Clauer N, Gaupp R. 1999. Structure-related geochemical (REE) and isotopic (K-Ar, Rb-Sr, $\delta^{18}\text{O}$) characteristics of clay minerals from Rotliegend sandstone reservoirs (Permian, northern Germany). *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 63(18): 2805-2823
- 李美俊, 王铁冠, 卢鸿, 吴炜强, 刘菊, 高黎惠. 2006. 北部湾盆地福山凹陷 CO_2 气成因探讨. *天然气工业*, 26(9): 25-28
- 李忠. 1992. 试论油气形成过程中黏土矿物的催化作用. *石油实验地质*, 14(1): 59-63
- 林正良. 2011. 北部湾盆地福山凹陷古近纪构造特征研究. 博士学位论文. 武汉: 中国地质大学(武汉)
- 陆现彩, 刘庆, 张林晔, 李迎辉, 周睿, 陆建军. 2004. 蒙脱石伊利石化对含油气盆地地层压力影响的定量研究. *矿物岩石地球化学通报*, 23(4): 285-291
- 任战利. 1999. 中国北方沉积盆地构造热演化史. 北京: 石油工业出版社
- 施和生, 朱俊章, 邱华宁, 舒誉, 吴建耀, 龙祖烈. 2009. 利用自生伊利石激光加热 ^{40}Ar - ^{39}Ar 定年技术探讨惠州凹陷新近系油气充注时间. *地学前缘*, 16(1): 290-295
- 石彦民, 刘菊, 张梅珠, 陈达贤, 马庆林. 2007. 海南福山凹陷油气勘探实践与认识. *华南地震*, 27(3): 57-68
- 唐晓音, 胡圣标, 张功成, 梁建设, 杨树春, 沈怀磊, 饶松, 李卫卫. 2014. 南海北部大陆边缘盆地地热特征与油气富集. *地球物理学报*, 57(2): 572-585
- 王龙樟, 戴撞谟, 彭平安. 2005. 自生伊利石法 ^{40}Ar - ^{39}Ar 定年技术及气藏成藏期的确定. *地球科学-中国地质大学学报*, 30(1): 78-82
- 王明振, 吴朝东, 王陆新, 房亚男, 李林林, 陈榕, 张晨晨. 2014. 准噶尔盆地南缘侏罗系泥岩黏土矿物组合及地球化学特征. *矿物岩石地球化学通报*, 33(4): 421-430
- 张彦, 陈文, 陈克龙, 刘新宇. 2006. 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 界线黏土岩为例. *地质论评*, 52(4): 556-561
- 张有瑜, Zwingmann H, Todd A, 刘可禹, 罗修泉. 2004. 塔里木盆地典型砂岩油气储集层自生伊利石 K-Ar 同位素测年研究与成藏年代探讨. *地学前缘*, 11(4): 637-648
- 张有瑜, Zwingmann H, 刘可禹, 罗修泉. 2014. 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. *石油学报*, 35(3): 407-416
- 张有瑜, 董爱正, 罗修泉. 2001. 油气储集层自生伊利石的分离提纯及其 K-Ar 同位素测年技术研究. *现代地质*, 15(3): 315-320
- 张有瑜, 罗修泉. 2011. 油气储集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
- 赵杏媛, 陈洪起. 1988. 我国含油盆地黏土矿物分布特征及控制因素. *石油学报*, 9(3): 28-37
- 赵迎冬, 甘华军, 时阳, 陈善斌, 王观宏. 2016. 北部湾盆地福山凹陷异常地温特征及其对油气藏的影响. *油气地质与采收率*, 23(3): 40-46
- 周中毅, 潘长春. 1992. 沉积盆地古地温测定方法及其应用. 广东: 广东科技出版社

(本文责任编辑: 刘莹; 英文审校: 高剑峰)