

https://doi.org/10.3799/dqkx.2021.071



伊利石 ^{40}Ar - ^{39}Ar 年龄的统计分析 with 成藏期

王龙樟¹, 王立云², 李季³, 肖娇静¹, 郭威¹, 沈奥¹, 徐乔¹, 王娅茹³

1. 中国地质大学海洋地质资源湖北省重点实验室, 湖北武汉 430074
2. 中国地质大学地质过程与矿产资源国家重点实验室, 湖北武汉 430074
3. 中国地质大学材料与化学学院, 湖北武汉 430078

摘要: 为了确定鄂尔多斯盆地苏里格气田的成藏年代, 通过提取砂岩储层中的黏土质填隙物, 分离分级成 <0.5 、 $0.5\sim 1.0$ 、 $1.0\sim 2.0\ \mu\text{m}$ 的分样品, 进行伊利石激光阶段加热 ^{40}Ar - ^{39}Ar 定年. 等时线年龄是自生伊利石与碎屑伊利石的混合年龄. 通过趋势分析和回归分析分别获得极小的趋势年龄和极小的回归年龄, 该年龄比较接近自生伊利石年龄. 测试结果表明, 伊利石的等时线年龄介于 $160.9\sim 232.0\ \text{Ma}$ 之间, 为自生伊利石与碎屑伊利石的混合年龄. 采用数理统计方法获得极小趋势年龄和极小回归年龄分别为 $151.7\ \text{Ma}$ 和 $152.4\ \text{Ma}$, 该年龄比较接近自生伊利石年龄, 代表了热流体活动和油气成藏时间.

关键词: ^{40}Ar - ^{39}Ar 法; 伊利石; 油气成藏时间; 等时线年龄; 统计分析; 油气地质.

中图分类号: P618.13

文章编号: 1000-2383(2022)02-479-11

收稿日期: 2021-04-11

Statistics Analysis of Illite ^{40}Ar - ^{39}Ar Ages and Petroleum Accumulation Period

Wang Longzhang¹, Wang Liyun², Li Ji³, Xiao Jiaojing¹, Guo Wei¹, Shen Ao¹, Xu Qiao¹, Wang Yaru³

1. Hubei Key Laboratory of Marine Geological Resources, China University of Geosciences, Wuhan 430074, China
2. State Key Laboratory of Geological Processes and Mineral Resources, China University of Geosciences, Wuhan 430074, China
3. Faculty of Material Sciences and Chemistry, China University of Geosciences, Wuhan 430078, China

Abstract: For determining the hydrocarbon accumulation ages of Sulige gas field in the Ordos basin, pore-filling clay materials were extracted from reservoir sandstones and separated into fractions of < 0.5 , $0.5-1.0$ and $1.0-2.0\ \mu\text{m}$, then ^{40}Ar - ^{39}Ar dating of illite was dealt with laser step-heating. The isochron age is a mixed age of authigenic illite and detrital illite. Through trend analysis and regression analysis, minimum trend age and minimum regression age are obtained, which are more close to authigenic illite ages. The result shows that the isochron ages of illite minerals range from $163.1\ \text{Ma}$ to $224.3\ \text{Ma}$, which are the mixed ages of authigenic illite and detrital illite. Based on mathematical statistics method, the minimum trend age and the minimum regression age are extrapolated to be $151.7\ \text{Ma}$ and $152.4\ \text{Ma}$, respectively, which are supposed to be more close to authigenic illite ages, representing the time of thermal fluid activity and hydrocarbon accumulation.

Key words: ^{40}Ar - ^{39}Ar method; illite; hydrocarbon accumulation process; isochron age; age spectrum; petroleum geology.

自 K-Ar 法定年用于确定油气的成藏时间以来, 无论是 K-Ar 法还是 ^{40}Ar - ^{39}Ar 法, 都取得了很大的进

基金项目: 国家自然科学基金项目 (No. 41672135).

作者简介: 王龙樟 (1965—), 男, 教授, 主要从事同位素地质、海洋地质及油气地质等方面的研究. E-mail: longz_wang@cug.edu.cn. ORCID: 0000-0003-2885-7690

引用格式: 王龙樟, 王立云, 李季, 肖娇静, 郭威, 沈奥, 徐乔, 王娅茹, 2022. 伊利石 ^{40}Ar - ^{39}Ar 年龄的统计分析 with 成藏期. 地球科学, 47(2): 479-489.

Citation: Wang Longzhang, Wang Liyun, Li Ji, Xiao Jiaojing, Guo Wei, Shen Ao, Xu Qiao, Wang Yaru, 2022. Statistics Analysis of Illite ^{40}Ar - ^{39}Ar Ages and Petroleum Accumulation Period. *Earth Science*, 47(02): 479-489.

展。其中,最重要的假设是:油气藏的形成阻断了孔隙水的迁移,造成伊利石因缺少物质来源而停止成长,因此最晚一期的伊利石年龄就是成藏年龄(Lee *et al.*, 1985; Hamilton *et al.*, 1989)。

如何确定最后一期的伊利石成了问题的关键,粒度分级是非常理想的抉择,因为最后形成的伊利石往往粒度最小(Hamilton *et al.*, 1992)。依据粒度的大小对K-Ar年龄进行回归,粒度趋向于零时的年龄代表成藏时间。但一般情况下,粒度与年龄并不成线性关系,原因在于粒度是有区间范围的,而且往往是自生与碎屑矿物的混合物,两者的比例难以确定。有证据表明最细的伊利石以自生矿物为主,可用于确定成藏期(Hamilton *et al.*, 1992; 张有瑜等, 2002)。

由于用选矿很难把碎屑伊利石彻底剔除,因此可以用XRD定量计算出自生与碎屑伊利石含量,通过比例关系,回归出零碎屑含量的年龄,即为自生伊利石年龄,再确定成藏期(Hamilton *et al.*, 1989; Pevear, 1999)。

^{40}Ar - ^{39}Ar 法不同于K-Ar法的地方是阶段升温,矿物依照活化能的大小而逐步释放Ar同位素气体,因此获得了矿物内部更多的信息。由于用量少,一次性测量所有氩的同位素,减少了非均质影响(Kelley, 2002)。Clauer *et al.* (2012)认为两种方法各有优缺点,K-Ar法更适合于成岩黏土的定年,如海绿石化、伊利石晶体成核和生长以及低温热液活动,而 ^{40}Ar - ^{39}Ar 法更适合于低温构造-热液活动和多期伊利石混合物的定年。

^{40}Ar - ^{39}Ar 法存在两大影响因素:其他元素的干扰和核照射反冲。在核照射过程中,Ca、Cl等元素产生干扰Ar同位素,这种干扰可以通过照射 CaF_2 和 K_2SO_4 等标准物质加以校正。但核反冲问题比较棘手,颗粒越细反冲越剧烈(Turner and Cadogan, 1974; Onstott *et al.*, 1994; Villa, 1997),一般采用包裹技术收集核反冲丢失气体(Wang *et al.*, 2004; 王龙樟等, 2005; Clauer *et al.*, 2012)对核反冲效应进行估算。

矿物边缘因晶格缺陷在自然界容易部分丢失放射性Ar导致年龄往往偏小。但Dong *et al.* (1995)认为这些位置也是受核反冲最大的位置,矿物内部由于反冲气体的重新植入而基本不受核反冲的影响。

如果采取了真空封装,就可以收集到核反冲丢

失的气体,总气体年龄与K-Ar年龄相当;不包括核反冲丢失的总气体年龄为保留年龄(Dong *et al.*, 1995)。如果没有采取真空封装措施,总气体年龄没有地质意义(Zhang *et al.*, 2016),获得的是保留年龄。Middleton *et al.* (2014)认为保留年龄用于伊利石的测定,总气体年龄用于伊蒙混层的测定。Fitz-Díaz *et al.* (2016)认为总气体年龄偏低,而保留年龄偏高,因此需要通过XRD获得的晶形数据加以校正,校正方法是基于晶体厚度与反冲气体所占比例的关系。

伊利石 ^{40}Ar - ^{39}Ar 法年龄的地质解释有歧义。年龄谱无论是马鞍状、阶梯状,还是平坦状年龄坪,都可能是自生与碎屑伊利石的混合年龄(Dong *et al.*, 1995; Wang *et al.*, 2018)。

对于混合问题,Kula *et al.* (2010)做了一个混合实验,将白云母和黑云母进行混合,与多云母岩石的阶段加热数据进行比较,认为这种年龄谱不具有地质意义,因为阶段加热时各种矿物囚禁的气体同时释放出来。相反, Van Laningham and Mark (2011)做的一系列实验证明这种年龄谱还是有地质意义的。他们把不同矿物不同年龄的样品按不同的比例混合,结果表明:(1)高温段和低温段分别形成年龄坪,两者间有明显的过渡带;(2)年龄值介于混合前单矿物年龄之间,而且低温段接近晶格键较弱矿物的年龄,高温段接近晶格键较强矿物的年龄。

对混合样品进行 ^{40}Ar - ^{39}Ar 法激光阶段加热分析,在低激光功率阶段产生阶梯状上升年龄谱,在高激光功率阶段产生年龄坪。Yun *et al.* (2010)认为自生伊利石结构不稳定,在低温段就已经被破坏,因此,低温段自生伊利石年龄解释为油气成藏年龄,与地质事实相符。

苏里格气田开展了大量的Ar同位素定年工作,真空包裹后的 ^{40}Ar - ^{39}Ar 法定年得到了坪年龄(Wang *et al.*, 2004; 王龙樟等, 2005),但在区域上变化很大,即使是最细颗粒的样品,也有比较大的年龄区间。因此,坪年龄中包含碎屑年龄信息,回归分析是获得区域性的成岩期的有效途径(Wang *et al.*, 2018)。K-Ar法定年获得了全区比较一致的两期年龄,并且与真空包裹后的 ^{40}Ar - ^{39}Ar 法总气体年龄相当,而与无真空包裹的 ^{40}Ar - ^{39}Ar 法总气体年龄明显不一致(张有瑜等, 2014)。比较而言,K-Ar法效率更高, ^{40}Ar - ^{39}Ar 法坪年龄的回归分析获得的成岩年龄与K-Ar法年龄的第一期相当。本文拟对无真空包

裹的⁴⁰Ar-³⁹Ar法定年开展进一步的工作,期望通过统计学的办法获得有价值的成岩和成藏年龄信息。

在自然界中,从砂岩孔隙提取出来的细粒矿物是比较复杂的,既有成岩过程中形成的自生伊利石,也有源区带来的碎屑伊利石,既有黏土矿物,也有非黏土矿物,因此这种细粒矿物基本上是混合矿物。本文拟通过多个样品、多个粒度分样的年龄谱进行年龄分析和统计分析,试图解释这种混合矿物的年龄谱图,从中获取自生矿物年龄,并确定成藏期。

1 地质背景

鄂尔多斯盆地位于华北地台西缘,是重要的大型含油气盆地。自古生代以来,鄂尔多斯盆地的沉积演化可大致分为3个演化阶段(杨华等,2015):

(1)早古生代海相阶段。寒武纪—奥陶纪发育碳酸盐岩台地,该地区普遍水浅且远离陆源碎屑。晚奥陶世,加里东造山运动,鄂尔多斯地区整体抬升,形成长时间的沉积间断和风化剥蚀,造成泥盆系—下石炭统的普遍缺失。

(2)晚古生代—中生代早期海陆交互阶段。晚古生代短暂的海侵之后,形成上石炭统—下二叠统的海陆交互相煤系地层。早二叠世晚期海水普遍退出鄂尔多斯地区,形成中二叠统—中三叠统的河流—湖泊相的内陆相地层,仅中二叠统偶尔夹有海相薄层(图1)。

(3)中生代中晚期典型的内陆拗陷和断陷盆地。鄂尔多斯地区发育大型的内陆湖泊,是重要的含煤和含油气盆地。之后的燕山运动造成鄂尔多斯地区的再次抬升和向西掀斜,新生代被黄土覆盖并在四周形成断陷盆地。

鄂尔多斯盆地上古生界天然气藏的形成和保存受控于该地区的构造演化,直到形成致密气藏:自早古生代末期的构造抬升到晚古生代的缓慢沉降,形成了有利于煤系烃源岩富集和滨岸带砂岩储层发育的平缓地理条件;印支期的快速沉降促进了压实作用和硅质胶结作用,形成致密砂岩储层;早燕山期的强烈构造运动,并伴有构造热事件的持续作用,促进天然气的生成和运移聚集,形成致密气藏;晚燕山期以来的构造抬升,促成低压气藏的形成(杨华等,2015)。

苏里格气田位于鄂尔多斯盆地伊陕斜坡西北部,是一个大型的岩性气藏。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的含煤岩系;主力储层为二叠系下石盒子组八段的河道砂体中—粗粒石英砂岩,其次为岩屑砂岩,属于低孔低渗致密储层;区域性盖层为二叠系上石盒子组洪泛平原和滨—浅湖相泥岩(杨华等,2012)。

2 采样及实验流程

2.1 样品

样品采自鄂尔多斯盆地苏里格气田的S4、S6、S18这3口井,S4井在S6井东侧约5 800 m,S18井在S6井西侧约46 km(图1)。样品全部采自中二叠统下石盒子组砂岩,砂岩形成于辫状河流体系的河道沉积及越岸沉积(李文厚等,2002;陈全红,2007;Liu *et al.*, 2020;徐文等,2020)。根据所属层位的砂岩等厚度图及岩性柱状图的沉积相分析,S4与S6井属于同一分流河道的水道沉积,中粗粒砂岩;S18属于另一分流河道的越岸沉积,细粒砂岩。

2.2 样品制备

5个砂岩样品用地质锤破碎成2 cm大小后,放入塑料烧杯,加入蒸馏水后,进行冷冻—解冻循环,直到砂质颗粒完全松散。然后,进行超声松散,自由沉降,分离出 $<2\ \mu\text{m}$ 的黏土矿物。去除钙质、铁质和有机质,通过半透膜除去电解质。进行离心分离,利用速度变化,分离出 $1.0\sim 2.0\ \mu\text{m}$ 、 $0.5\sim 1.0\ \mu\text{m}$ 、 $<0.5\ \mu\text{m}$ 这3个粒级的黏土矿物分样,5个样品经黏土矿物的分离和分级,获得了15个分样。

2.3 样品成分

经过XRD检测,黏土矿物主要由伊利石(I)、伊蒙混层(I/S)、绿泥石(CH)和高岭石(K)等矿物组成,蒙脱石(S)全部出现在伊蒙混层中,没有蒙脱石的单矿物,非黏土矿物成分一般低于检测限(图2)。伊利石和伊蒙混层(I+I/S)的总含量介于36%~77%之间,其中伊蒙混层约占16%~44%左右,而且伊利石晶层占比约70%~90%,蒙脱石总含量不足7%。无论是伊蒙混层还是(I+I/S)总量, $<0.5\ \mu\text{m}$ 粒级的含量明显高于其他粒级的含量,而且结晶粒度普遍偏小。

绿泥石+高岭石(CH+K)的总含量与(I+I/S)总量互为消长关系,粗粒级($1.0\sim 2.0\ \mu\text{m}$ 、 $0.5\sim 1.0\ \mu\text{m}$)的分样(CH+K)含量较高,高出细颗粒分样($<0.5\ \mu\text{m}$)约10%~30%(图2),说明绿泥石和高岭石颗粒普遍比伊利石及伊蒙混层粗大。高岭石仅出现在S18井样品的粗颗粒($1\sim 2\ \mu\text{m}$ 、 $0.5\sim 1.0$

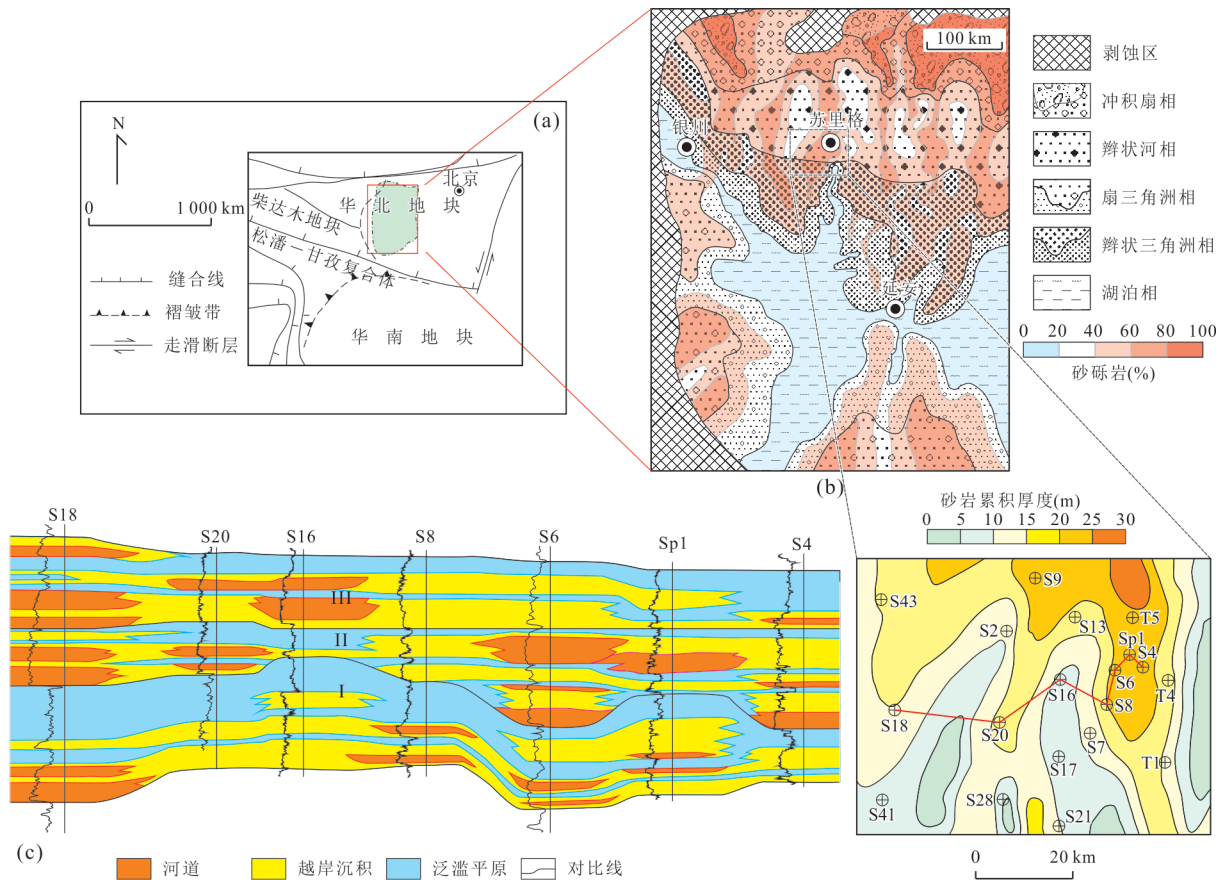


图1 鄂尔多斯盆地和苏里格气田中二叠统下石盒子组储集层特征

Fig. 1 Reservoir characteristics of Lower Shihezi Formation of the Middle Permian in the Ordos basin and Sulige gas field
 a. 鄂尔多斯盆地大地构造背景 (Yang *et al.*, 2005); b. 鄂尔多斯盆地中二叠统下石盒子组沉积相平面图及含砂率图 (据陈全红, 2007 修改); c. 过采样井剖面图及苏里格气田局部砂体厚度图 (位置见 b 图蓝虚线方框); 据刘锐娥 (2004)、杨华等 (2006) 修改

μm) 中, 推测该井的沉积环境不同于东部两井 (S4 和 S6 井) 所致, 前者为越岸沉积, 成岩转化偏低, 残留高岭石; 后者属于水道沉积, 成岩转化高, 黏土矿物较彻底地转化为伊利石、绿泥石和伊蒙混层。

从矿物组合上看, 研究区进入黏土矿物的第二脱水阶段, 成岩期属于中成岩晚期。

2.4 同位素测试

样品置于反应堆最大中子通量部位辐照, 所得 J 值变化小, 介于 $8.584 \times 10^{-3} \sim 8.649 \times 10^{-3}$ 之间。Ar 同位素测试采用中国地质大学 (武汉) 全自动 $^{40}\text{Ar}/^{39}\text{Ar}$ 实验室的 Argus VI 型质谱仪, 该仪器精度高, 性能稳定 (邱华宁等, 2015, 2019; 周波等, 2020), 测试过程采用 CO_2 激光器进行阶段加热分析, 标样 ZBH-2506 黑云母年龄 $132.7 \pm 0.7 \text{ Ma}$, 计算程序是 ArArCALC (Version 2.52) (Koppers, 2002), 误差采用 2σ , 实验过程详见 Bai *et al.* (2018)。

3 测试结果

5 个样品, 每个样品分离出 3 个粒级, 共 15 个分样。每个分样都获得一组 $^{40}\text{Ar}/^{39}\text{Ar}$ 同位素年龄。一般低温段 $^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$ 的值偏小 (图 3 中的黄色区域), 说明在低温段有放射性 Ar 丢失现象。这种丢失与矿物表面缺陷有关, 发生在自然界和核照射过程 (Dong *et al.*, 1995)。

由于伊利石含量比较高, 最低的也有 18.5%, 最高可达 66.7%, 非常有利于 Ar 同位素分析。考虑到低温段受到核反冲的严重干扰, 因此在计算等时线年龄的时候, 低温段的数据未计算在内; 而高温段也有个别数据严重偏离等时线, 说明不是同期的矿物或者包裹体, 因此也不予计算。经计算, 所有分样都有等时线年龄 (表 1), 而且相关系数都非常高, 其中 13 个分样 $R^2 > 0.98$, 仅有 2 个分样 R^2 在 0.90~0.98 之间 (图 4)。

每个样品有 3 个分样, 其等时线年龄在一定的

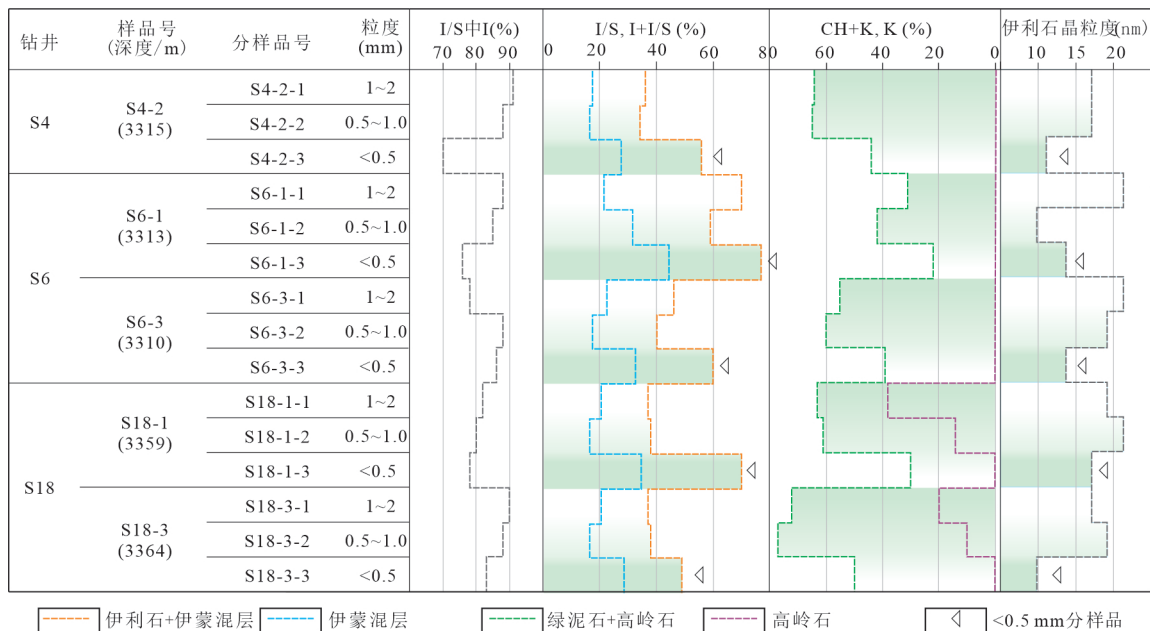


图 2 样品的黏土矿物含量及伊利石结晶粒度统计

Fig. 2 Statistics of clay mineral content and illite crystal sizes of samples

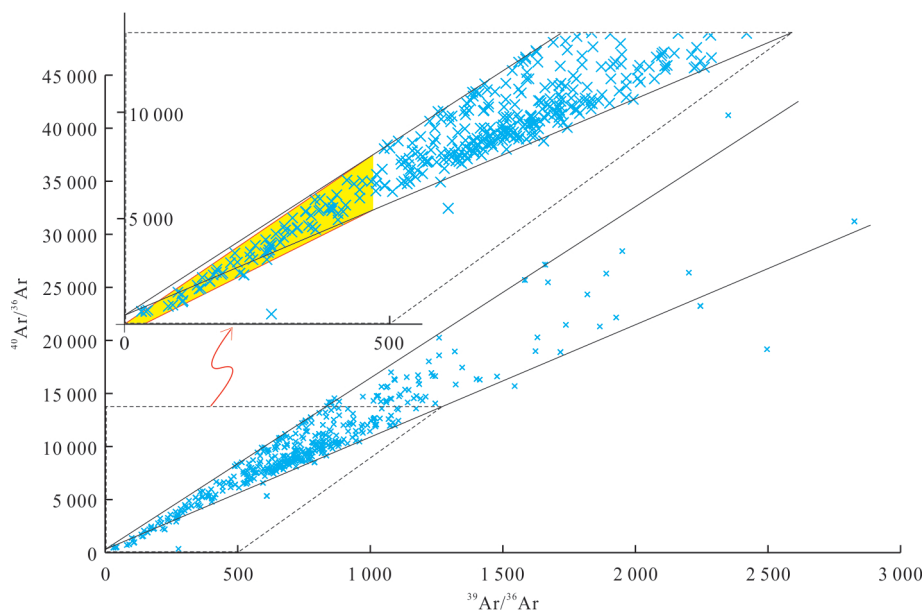


图 3 $^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$ - $^{39}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$ 交会图

Fig. 3 Cross plot of $^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$ - $^{39}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$

表 1 等时线年龄统计表 (Ma)

Table 1 Statistics of isochron ages(Ma)

样品	1~2 μm	0.5~1.0 μm	<0.5 μm
S4-2	161.3	166.7	160.9
S6-1	165.1	172.5	169.8
S6-3	191.4	176.7	182.9
S18-1	229.4	216.5	193.0
S18-2	232.0	229.7	218.7

范围内变化,但总的趋势是 $S4-2 < S6-1 < S6-3 < S18-1 < S18-2$ 。把所有数据自东向西排列,等时线年龄总体上向东逐渐减小,用指数方程回归(图 5 中的红色曲线),再把最大值和最小值也用指数方程表示,得到向东收敛的 3 条曲线,并相交于 151.7 Ma,即为等时线年龄预测的最小值(图 5)。

若按相同粒度不同样品进行回归分析,权重的获取方法采用前期坪年龄回归分析的获取方法

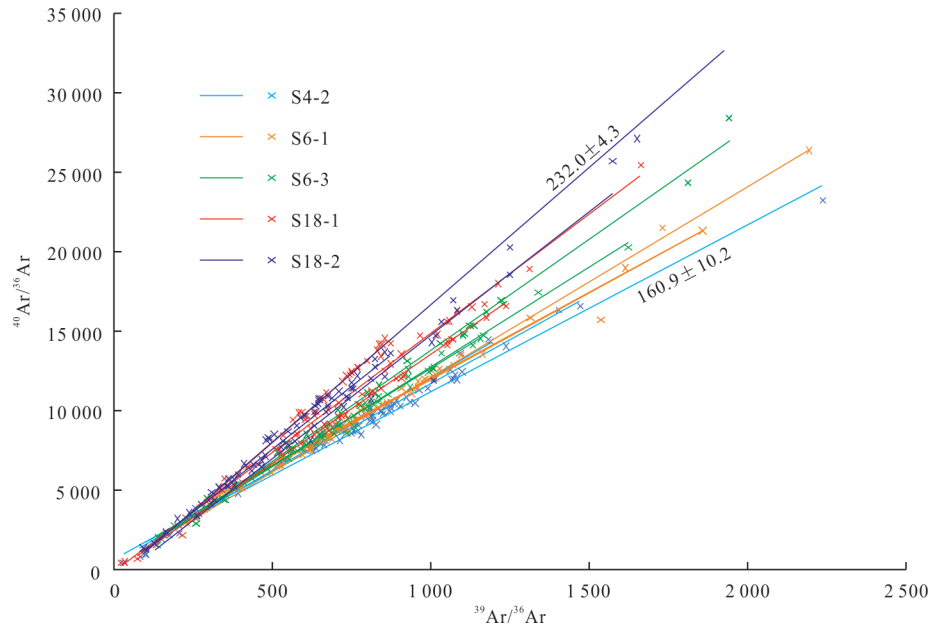


图 4 样品的等时线综合图

Fig. 4 Synthetic isochron diagram of the samples

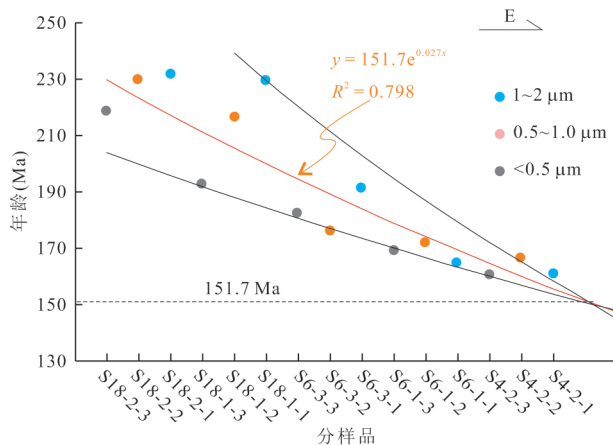


图 5 等时线年龄趋势分析

Fig. 5 Trend analysis of isochron ages

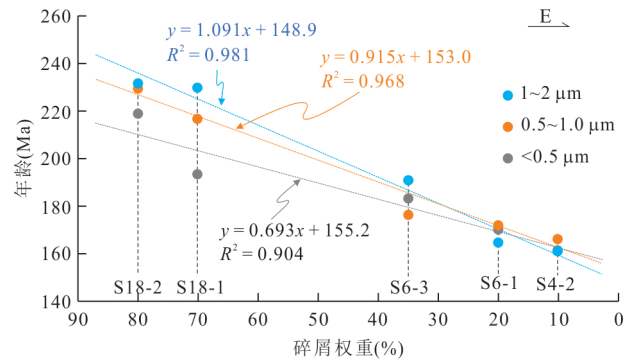


图 6 等时线年龄的回归分析

Fig. 6 Analysis of isochron ages

(Wang *et al.*, 2018),主要考虑所有样品的回归系数尽可能达到最大,并普遍有一期自生伊利石(根据地质背景分析,有一期显著的区域性热流体活动).在这两个条件的约束下,得到了回归分析的最优解.纵轴的截距是零碎屑年龄,3条回归曲线的截距分别为 148.9 Ma、153.0 Ma、155.2 Ma(图 6),平均值为 152.4 Ma.

4 讨论

4.1 年龄谱分析

以 S4-2-1 样品为例,年龄谱的特征一般包括以下几个部分(图 7):(1)最开始视年龄很小,可能与

颗粒边缘放射性成因 ^{40}Ar 丢失有关;(2)很快就上升,并在低温段出现一个小的“驼峰”状高值区,与核反冲造成的 ^{39}Ar 丢失有关,显示过剩 ^{40}Ar 特征;(3)相对平稳的视年龄,上下波动 10 Ma 到 33 Ma 不等,局部有年龄坪,个别样品有周期性,多数没有,呈现混合矿物特征;(4)在高温段,部分样品的视年龄异常升高,可能与碎屑矿物有关,而有些样品则异常降低,可能与新生矿物有关.

早期的测试阶段较少,温度跨度大,年龄谱显示一定的年龄坪(如张有瑜等,2014;Wang *et al.*, 2018),而本次测试阶段多,视年龄在一定范围内波动(图 5).波状起伏的年龄谱说明了在升温过程中碎屑矿物与自生伊利石释气比例的变化状态.

年龄谱的进一步解释,还要从分离、分级以及

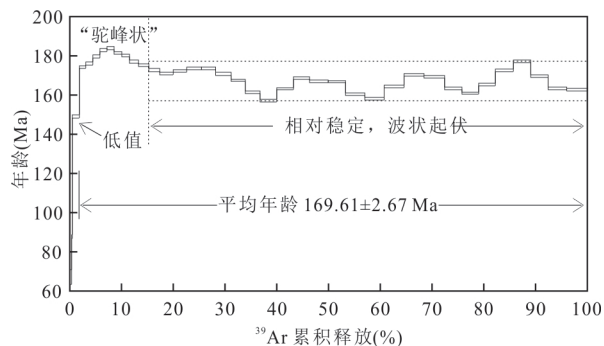


图 7 样品 S4-2-1 的年龄谱特征

Fig. 7 Age spectrum characteristics of sample S4-2-1

阶段加热各环节进行分析:

首先,在分离和分级过程中,粒度代表的是峰值,还有更多的粒度.通过激光粒度分析发现,由于黏土矿物极其细小,各个粒度并不能截然分开,所有样品都有比较细和比较粗的颗粒,粒度接近正态分布.不同的粒度组成说明样品是自生与碎屑伊利石多期混合,很难通过离心截然分离.

其次,从矿物结构上看,自生伊利石从丝状逐渐结晶并向片状演化,片状的自生伊利石与片状碎屑伊利石在结构上没有太大差别,因此在加热过程中,自生伊利石与碎屑伊利石的年龄谱有很高的重叠度,是混合年龄.有研究表明,即使细小颗粒(比如 $<5\ \mu\text{m}$)也至少包含两期的非自生伊利石 (Gorokhov *et al.*, 2019),因此,混合年龄更适合于年龄谱的解释.

4.2 混合物相

通过 XRD 检测,未出现蒙脱石单矿物,含钾矿物主要是伊利石和伊蒙混层矿物.详细比较所有分样品的 1 nm 伊利石峰(图 8),发现有如下 3 个显著特征:

(1)所有样品几乎都可以看到伊利石峰(图 8 中 10.1 的位置),多数分样品存在多个峰,伊利石峰在最高角度的位置,也有样品只有伊利石一个峰;

(2)伊利石峰两侧是不对称的,伊利石峰向低角度倾斜十分明显,说明伊利石与伊蒙混层矿物共存,这个位置的峰可以称为(I+I/S)峰;

(3)在每个样品中,随着粒度的减小(样品尾号从 1 到 3),(I+I/S)峰逐渐降低,低角度的峰(伊蒙混层)逐渐增强(也有的增多),说明伊蒙混层的占比在细颗粒中逐渐增高.

因此,伊利石和伊蒙混层矿物两种含钾混合物相共存是普遍现象,伊利石以多期的形式赋存在样

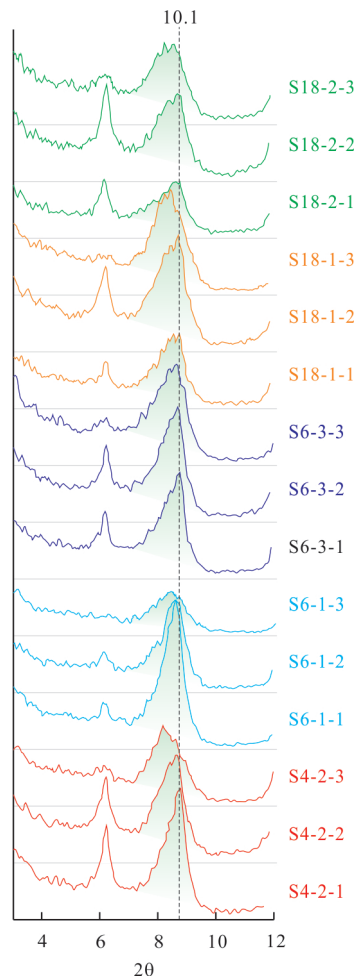


图 8 混合物相的 X 射线衍射图谱

Fig. 8 X-ray diffraction patterns of the mixtures

品中, $^{40}\text{Ar}/^{39}\text{Ar}$ 定年得到的是混合物相的年龄,无论是平均年龄(保留年龄)、等时线年龄还是总气体年龄,都是混合物相的年龄,数理统计分析是解析共同存在期次的一种手段,这个期次最有可能是受到区域热扰动的成岩时间,也是最容易驱动油气成藏的时间.

4.3 成藏时间

趋势分析:等时线年龄的总回归代表混合样品综合年龄的变化趋势(图 5 橙色线),极大值的回归代表碎屑端元的变化趋势,极小值的回归代表自生伊利石端元的变化趋势,极大值向极小值靠拢代表碎屑矿物减少和自生伊利石增多的趋势.3 条趋势线向东收敛为一点而且是极小值,比较接近自生伊利石年龄,因此通过趋势分析获得的自生伊利石集中形成时间大概是 151.7 Ma.

回归分析:回归分析的目的是获得碎屑矿物零含量的年龄(Hüpers *et al.*, 2019,同时获得碎屑年

龄),不同粒度的回归都可以获得相同零碎屑含量的年龄,3条回归曲线理论上应该存在相同的截距,相交于一点.但是,回归分析的碎屑权重(图6)可能与实际情况不完全吻合,取三线截距平均值,代表零碎屑含量的平均年龄 152.4 Ma.

前期研究也得到了一些年龄数据,比较如下:

(1)真空封装后的坪年龄 169.1~217.1 Ma (Wang *et al.*, 2004, 2018),未真空封装的情况下总气体年龄为 170.8~295.2 Ma(张有瑜等,2014),与本文的等时线年龄 160.9~232.0 Ma相近,显然都不是纯的自生伊利石年龄,是混合年龄.

(2)对坪年龄进行回归分析,获得的回归年龄是 163.3 ± 1.6 Ma(Wang *et al.*, 2018);而K-Ar法的最小粒度年龄主要为 141~146 Ma,其次为 157~161 Ma(张有瑜等,2014).本文趋势分析和回归分析得到的极小值年龄是 151.7~152.4 Ma,三者也比较接近.

(3)根据天然气地球化学和流体包裹体的研究,苏里格气藏的成藏期主要有2期,即侏罗纪(190~154 Ma)和早白垩世(137~96 Ma)(刘新社等,2007;张文忠等,2009;王少飞等,2021),本文的年龄更接近第一期期末.

综上所述,本文的自生伊利石形成高峰期主要在侏罗纪,是该地区两期主要成藏期中的第一期.在鄂尔多斯北部,燕山期构造热事件异常活跃,不但促进了油气成藏,也是多种矿床的集中爆发期(赵孟为等,1996;李志丹等,2019).

不同的Ar同位素方法,综合解释的结果略有差别:真空封样的坪年龄回归得到的年龄在区间的上限,K-Ar法最小粒度年龄得到了区间的上下限,本文的等时线趋势和回归年龄在区间的中间.这种差别是不同方法所致,最终结果在统计误差范围内.本文确定的成藏期大概是 151.7~152.4 Ma.由于伊利石矿物的复杂性,上限 163.3 Ma(Wang *et al.*, 2018),下限 141~146 Ma(张有瑜等,2014),是合理的区间.

5 结论

鄂尔多斯盆地北部气藏采集的5个样品中,通过分离和分级,获得 <0.5 、 $0.5\sim 1.0$ 和 $1.0\sim 2.0$ μm 这3个粒级的15个分样.通过XRD分析,每个样品都是由黏土矿物组成,其中 <0.5 μm 粒级的样品伊利石含量最高.对15个分样进行 $^{40}\text{Ar}/^{39}\text{Ar}$ 法等时线

年龄分析,获得如下认识:

(1)视年龄谱上的年龄主体部分是自生与碎屑伊利石的综合年龄,由于样品中的伊利石存在多期性,导致年龄谱在一定范围内的波动;

(2)样品的等时线年龄自西向东逐渐减小,年龄变化范围也逐步缩小,进行等时线年龄的趋势分析和回归分析后,获得的极小年龄分别为 151.7 Ma 和 152.4 Ma,该年龄为自生伊利石集中形成时间;

(3)结合流体包裹体和前期的K-Ar法、坪年龄回归分析,认为苏里格的成藏时间大概在 151.7~152.4 Ma期间,上限 163.3 Ma,下限 141~146 Ma.

致谢:感谢中国地质大学(武汉)全自动 $^{40}\text{Ar}/^{39}\text{Ar}$ 年代学实验室白秀娟博士完成样品分析测试,感谢评审专家提出的极具建设性的修改意见和建议.

References

- Bai, X. J., Qiu, H. N., Liu, W. G., et al., 2018. Automatic $^{40}\text{Ar}/^{39}\text{Ar}$ Dating Techniques Using Multicollector AR-GUS VI Noble Gas Mass Spectrometer with Self-Made Peripheral Apparatus. *Journal of Earth Science*, 29(2): 408–415. <https://doi.org/10.1007/s12583-017-0948-9>
- Chen, Q. H., 2007. Research on Sedimentary Systems and Hydrocarbon Enrichment of the Upper Paleozoic of the Ordos Basin(Dissertation). Northwest University, Xi'an (in Chinese with English abstract).
- 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: 76–96. <https://doi.org/10.1016/j.earscirev.2012.07.003>
- Dong, H. L., Hall, C. M., Peacor, D. R., et al., 1995. Mechanisms of Argon Retention in Clays Revealed by Laser $^{40}\text{Ar}/^{39}\text{Ar}$ Dating. *Science*, 267 (5196): 355–359. <https://doi.org/10.1126/science.267.5196.355>
- Fitz-Díaz, E., Hall, C. M., van der Pluijm, B. A., 2016. XRD-Based $^{40}\text{Ar}/^{39}\text{Ar}$ Age Correction for Fine-Grained Illite, with Application to Folded Carbonates in the Monterrey Salient (Northern Mexico). *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 181: 201–216. <https://doi.org/10.1016/j.gca.2016.02.004>
- Gorokhov, I.M., Zaitseva, T.S., Kuznetsov, A.B., et al., 2019. Isotope Systematics and Age of Authigenic Minerals in Shales of the Upper Riphean Inzer Formation, South Urals. *Stratigraphy and Geological Correlation*, 27(2): 133–158. <https://doi.org/10.1134/S0869593819020035>
- Hamilton, P. J., Giles, M. R., Ainsworth, P., 1992. K-Ar

- Dating of Illites in Brent Group Reservoir: a Regional Perspective. In: Morton, A. C., Hazeldine, R. S., Giles, M. R., eds., *Geology of the Brent Group*. London, Special Publication of Geological Society, 61. 377–400. <https://doi.org/10.1144/gsl.sp.1992.061.01.19>
- Hamilton, P. J., Kelly, S., Fallick, A. E., 1989. K-Ar Dating of Illite in Hydrocarbon Reservoirs. *Clay Minerals*, 24: 215–231. <https://doi.org/10.1180/claymin.1989.024.2.08>
- Hüpers, A., Grathoff, G., Warr, L. N., et al., 2019. Spatio-temporal Characterization of Smectite-to-Illite Diagenesis in the Nankai Trough Accretionary Prism Revealed by Samples from 3 km below Seafloor. *Geochemistry, Geophysics, Geosystems*, 20: 933–951. <https://doi.org/10.1029/2018GC008015>
- Kelley, S., 2002. K-Ar and Ar-Ar Dating. *Reviews in Mineralogy and Geochemistry*, 47(1): 785–818. <https://doi.org/10.2138/rmg.2002.47.17>
- Koppers, A. A. P., 2002. ArArCALC - Software for $^{40}\text{Ar}/^{39}\text{Ar}$ Age Calculations. *Computers and Geosciences*, 28(5): 605–619. [https://doi.org/10.1016/S0098-3004\(01\)00095-4](https://doi.org/10.1016/S0098-3004(01)00095-4)
- Kula, J., Spell, T.L., Zanetti, K.A., 2010. $^{40}\text{Ar}/^{39}\text{Ar}$ Analyses of Artificially Mixed Micaceous and the Treatment of Complex Age Spectra from Samples with Multiple Mica Populations. *Chemical Geology*, 275(1–2): 67–77. <https://doi.org/10.1016/j.chemgeo.2010.04.015>
- Lee, M., Aronson, J. L., Savin, S. M., 1985. K/Ar Dating of Time of Gas Emplacement in Rotliegendes Sandstone, Netherlands. *AAPG Bulletin*, 69(9): 1381–1385. <https://doi.org/10.1306/ad462c68-16f7-11d7-8645000102c1865d>
- Li, W. H., Wei, H. H., Zhao, H., et al., 2002. Prediction of Oil-Bearing Facies Belts and Reservoir Characteristics of Permian System in Suligemiao Region. *Journal of North West University (Natural Science Edition)*, (4): 335–340(in Chinese with English abstract).
- Li, Z. D., Li, X. G., Cui, Y. R., et al., 2019. Yanshanian Mineralization of Zhaojinggou Nb - Ta Deposit, Inner Mongolia: Evidences from the Monazite and Zircon LA-MC-ICP-MS U-Pb and Biotite ^{40}Ar - ^{39}Ar Geochronology. *Earth Science*, 44(1): 234–247(in Chinese with English abstract).
- Liu, R. E., 2004. Forming Mechanism and Dominated Factors of the Reservoir of the Clastic Rock of the Upper Paleozoic in Northern Ordos Basin(Dissertation). Northwest University, Xi'an (in Chinese with English abstract).
- Liu, X. S., Zhou, L. F., Hou, Y. D., 2007. Study of Gas Charging in the Upper Paleozoic of Ordos Basin using Fluid Inclusion. *Acta Petrolei Sinica*, 28(6): 37–42(in Chinese with English abstract).
- Liu, X., Ding, X. Q., Hersi, O. S., et al., 2020. Sedimentary Facies and Reservoir Characteristics of the Western Sulige Field Permian He 8 Tight Sandstones, Ordos Basin, China. *Geological Journal*, 55: 7818–7836. <https://doi.org/10.1002/gj.3911>
- Middleton, A. W., Uysal, I. T., Bryan, S. E., et al., 2014. Integrating ^{40}Ar - ^{39}Ar , ^{87}Rb - ^{87}Sr and ^{147}Sm - ^{143}Nd Geochronology of Authigenic Illite to Evaluate Tectonic Re-activation in an Intraplate Setting, Central Australia. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 134: 155–174. <https://doi.org/10.1016/j.gca.2014.02.048>
- Onstott T.C., Miller M., and Ewing R. C., 1994. Recoil Refinements: Implications for the $^{40}\text{Ar}/^{39}\text{Ar}$ Dating Technique. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 59: 1821–1834. [https://doi.org/10.1016/0016-7037\(95\)00085-E](https://doi.org/10.1016/0016-7037(95)00085-E)
- Pevear, D. R., 1999. Illite and Hydrocarbon Exploration. *Proceedings from the National Academy of Sciences, USA*, 96(7): 3440–3446. <https://doi.org/10.1073/pnas.96.7.3440>
- Qiu, H. N., Bai, X. J., 2019. Fluid Inclusion $^{40}\text{Ar}/^{39}\text{Ar}$ Dating Technique and Its Applications. *Earth Science*, 44(3): 685–697. (in Chinese with English abstract).
- Qiu, H. N., Bai, X. J., Liu, W. G., et al., 2015. Automatic $^{40}\text{Ar}/^{39}\text{Ar}$ Dating Technique Using Multicollector Argus VI MS with Home-made Apparatus. *Geochimica*, 44(5): 477–484. (in Chinese with English abstract).
- Turner, G., and Cadogan, P.H., 1974. Possible Effects of ^{39}Ar Recoil in ^{40}Ar - ^{39}Ar Dating, in Proceedings, Lunar and Planetary Science Conference, 5th. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, (S5): 1601–1615.
- Van Laningham, S., Mark, D. F., 2011. Step Heating of $^{40}\text{Ar}/^{39}\text{Ar}$ Standard Mineral Mixtures: Investigation of a Fine-Grained Bulk Sediment Provenance Tool. *Geochimica et Cosmochimica Acta* 75: 2324–2335. <https://doi.org/10.1016/j.gca.2011.01.038>
- Villa I. M., 1997. Direct Determination of ^{39}Ar Recoil Distance. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 61(3): 689–691. [https://doi.org/10.1016/S0016-7037\(97\)00002-1](https://doi.org/10.1016/S0016-7037(97)00002-1)
- Wang, L. Z., Dai, T. M., Peng, P. A., 2004. Experiment of the $^{40}\text{Ar}/^{39}\text{Ar}$ Dating of Diagenetic Illite in Gas Reservoirs. *Chinese Science Bulletin*, 49(S1): 89–93. <https://doi.org/10.1007/bf02890459>
- Wang, L. Z., Dai, T. M., Peng, P. A., 2005. $^{40}\text{Ar}/^{39}\text{Ar}$ Dating of Diagenetic Illites and Its Application in Timing Gas Emplacement in Gas Reservoirs. *Earth Science*, 30(1): 78–82 (in Chinese with English abstract).

- Wang, L. Z., Wang L. Y., Peng, P. A., et al., 2018. A Thermal Event in the Ordos Basin: Insights from Illite ^{40}Ar - ^{39}Ar Dating with Regression Analysis. *Journal of Earth Science*, 29(3): 629–638. <https://doi.org/10.1007/s12583-017-0903-7>
- Wang, S. F., Chen, M. N., Zhao, J. Z., 2021. Fluid Inclusion Characteristics and Paleo-Pressure Recovery of the He-8 Member in the Sulige Gas Field, Ordos Basin, China. *Journal of Chengdu University of Technology (Science & Technology Edition)*, 48(1): 94–99+120 (in Chinese with English abstract).
- Xu, W., Duan, Z. Q., Zhao, Z. J., 2020. Quantitative Characterization of Paleochannel Sandbody Evolution in Dense Well Net Area of He 8th Layer of Su 6 Block in the Sulige Gasfield, Ordos Basin. *China Science Paper*, 15(1): 50–59 (in Chinese with English abstract).
- Yang, H., Fu, J. H., Liu, X. S., 2012. Formation Conditions and Exploration Technology of Large-Scale Tight Sandstone Gas Reservoir in Sulige. *Acta Petrolei Sinica*, 33(S1): 27–36(in Chinese with English abstract).
- Yang, H., Liu, X. S., Yan, X. X., 2015. The Relationship between Tectonic - Sedimentary Evolution and Tight Sandstone Gas Reservoir since the Late Paleozoic in Ordos Basin. *Earth Science Frontiers*, 22(3): 174–183(in Chinese with English abstract).
- Yang, H., Xi, S. L., Wei, X. S., et al., 2006. Analysis on Gas Exploration Potential in Sulige Area of the Ordos Basin. *Natural Gas Industry*, (12): 45–48+195(in Chinese with English abstract).
- Yang, Y. T., Li, W., Ma, L., 2005. Tectonic and Stratigraphic Controls of Hydrocarbon Systems in the Ordos Basin: A Multicycle Cratonic Basin in Central China. *AAPG Bulletin*, 89(2): 255–269. <https://doi.org/10.1306/10070404027>
- Yun, J. B., Shi, H. S., Zhu, J. Z., et al., 2010. Dating Petroleum Emplacement by Illite $^{40}\text{Ar}/^{39}\text{Ar}$ Laser Stepwise Heating. *AAPG Bulletin*, 94: 759–771. <https://doi.org/10.1306/10210909102>
- Zhang, W. Z., Guo, Y. R., Tang, D. Z., et al., 2009. Characteristics of Fluid Inclusions and Determination of Gas Accumulation Period in the Upper Paleozoic Reservoirs of Sulige Gas Field. *Acta Petrolei Sinica*, 30(5): 685–691(in Chinese with English abstract).
- Zhang, Y. Y., Liu, K. Y., Luo, X. Q., 2016. Evaluation of $^{40}\text{Ar}/^{39}\text{Ar}$ Geochronology of Authigenic Illites in Determining Hydrocarbon Charge Timing: A Case Study from the Silurian Bituminous Sandstone Reservoirs, Tarim Basin, China. *Acta Geologica Sinica (English Edition)*, 90(2): 684–703. <https://doi.org/10.1111/1755-6724.12698>
- Zhang, Y. Y., Luo, X. Q., Song, J., 2002. Discussions on K-Ar Isotopic Geochronological Studies of Authigenic Illites in Hydrocarbon Reservoirs. *Geoscience*, (4): 403–407(in Chinese with English abstract).
- Zhang, Y. Y., Zwingmann, H., Liu, K. Y., et al., 2014. Perspective on the K/Ar and Ar/Ar Geochronology of Authigenic Illites: A Case Study from the Sulige Gas Field, Ordos Basin, China. *Acta Petrolei Sinica*, 35(3): 407–416(in Chinese with English abstract).
- Zhao, M. W., Ahrendt, H., Wemmer, K., et al., 1996. Silurian-Devonian and Jurassic Thermal Events in the Ordos Basin, China: Evidence from K-Ar Dating on Illites. *Acta Geologica Sinica*, (2): 186–194(in Chinese with English abstract).
- Zhou, B., Dong, Y. P., Yang, Z., et al., 2020. Laser Fusion ^{40}Ar - ^{39}Ar Dating Method Using Multi-Collector Noble Gas Mass Spectrometer Argus VI and Its Geological Application. *Earth Science*, 45(3): 804–814(in Chinese with English abstract).

附中文参考文献

- 陈全红, 2007. 鄂尔多斯盆地上古生界沉积体系及油气富集规律研究(博士学位论文). 西安: 西北大学.
- 李文厚, 魏红红, 赵虹, 等, 2002. 苏里格庙地区二叠系储层特征及有利相带预测. 西北大学学报(自然科学版), (4): 335–340.
- 李志丹, 李效广, 崔玉荣, 等, 2019. 内蒙古赵井沟锯钮矿床燕山期成矿: 来自 LA-MC-ICP-MS 独居石、锆石 U-Pb 和黑云母 ^{40}Ar - ^{39}Ar 年龄的证据. 地球科学, 44(1): 234–247.
- 刘锐娥, 2004. 鄂尔多斯盆地北部上古生界碎屑岩储层形成机理及主控因素研究(博士学位论文). 西安: 西北大学.
- 刘新社, 周立发, 侯云东, 2007. 运用流体包裹体研究鄂尔多斯盆地上古生界天然气成藏. 石油学报, 28(6): 37–42.
- 邱华宁, 白秀娟, 2019. 流体包裹体 $^{40}\text{Ar}/^{39}\text{Ar}$ 定年技术与应用. 地球科学, 44(3): 685–697.
- 邱华宁, 白秀娟, 刘文贵, 等, 2015. 自动化 $^{40}\text{Ar}/^{39}\text{Ar}$ 定年设备研制. 地球化学, 44(5): 477–484.
- 王龙樟, 戴植谟, 彭平安, 2005. 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. 地球科学, 30(1): 78–82.
- 王少飞, 陈梦娜, 赵靖舟, 等, 2021. 苏里格气区盒 8 段流体包裹体特征及古压力恢复. 成都理工大学学报(自然科学版), 48(1): 94–99+120.
- 徐文, 段志强, 赵忠军, 等, 2020. 鄂尔多斯盆地苏里格气田苏 6 区块盒 8 段密集井网区古河道砂体定量表征. 中

- 国科技论文, 15(1): 50—59.
- 杨华, 付金华, 刘新社, 等, 2012. 苏里格大型致密砂岩气藏形成条件及勘探技术. 石油学报, 33(S1): 27—36.
- 杨华, 刘新社, 闫小雄, 2015. 鄂尔多斯盆地晚古生代以来构造—沉积演化与致密砂岩气成藏. 地学前缘, 22(3): 174—183.
- 杨华, 席胜利, 魏新善, 等, 2006. 苏里格地区天然气勘探潜力分析. 天然气工业, (12): 45—48+195.
- 张文忠, 郭彦如, 汤达祯, 等, 2009. 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. 石油学报, 30(5): 685—691.
- 张有瑜, Zwingmann, H., 刘可禹, 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, 罗修泉, 宋健, 2002. 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. 现代地质, (4): 403—407.
- 赵孟为, Ahrendt, H., Wemmer, K., 等, 1996. 鄂尔多斯盆地志留—泥盆纪和侏罗纪热事件——伊利石 K-Ar 年龄证据. 地质学报, (2): 186—194.
- 周波, 董云鹏, 杨钊, 等, 2020. 基于多接收稀有气体质谱 Argus VI 的激光 ⁴⁰Ar-³⁹Ar 测年方法及其地质应用. 地球科学, 45(3): 804—814.