

龚革联,李盛华,孙卫东等. 石英热释光——沉积盆地热史研究中另一种潜在的古温标. 地球物理学报, 2010, **53**(1):138~146, DOI:10.3969/j.issn.0001-5733.2010.01.015

Gong G L, Li S H, Sun W D, et al. Quartz thermoluminescence—another potential paleothermometer for sedimentary basin thermal history study. *Chinese J. Geophys.* (in Chinese), 2010, **53**(1):138~146, DOI:10.3969/j.issn.0001-5733.2010.01.015

## 石英热释光——沉积盆地热史研究中 另一种潜在的古温标

龚革联<sup>1</sup>, 李盛华<sup>2</sup>, 孙卫东<sup>1</sup>, 郭 锋<sup>1</sup>, 夏 斌<sup>1</sup>, 吕宝凤<sup>1</sup>

<sup>1</sup> 中国科学院广州地球化学研究所, 广州 510640

<sup>2</sup> 香港大学地球科学系, 香港

**摘 要** 具有良好重现性的石英热释光信号除了用于近地表的考古及地质事件定年以外, 还能反映一定地质时间范围内的环境温度变化规律. 本文利用砂岩中石英矿物的热释光信号, 采用传统热释光分析和等温热释光方法, 以东营凹陷中央背斜带钻孔岩芯为例, 探讨对沉积盆地热体制信息的指示意义. 研究表明: (1) 钻孔中不同埋深位置的石英矿物, 其自然热释光发光曲线有规律变化, 与所对应的环境地层温度以及热释光发光动力学相符, 即随着沉积地层埋深增加, 埋藏温度上升与埋藏时间加大, 其热释光发光曲线整体向高温方向移动, 而发光强度明显减小; (2) 石英热释光多片增加分析方法以及等温热释光分析方法所获得的表征年龄彼此印证, 通过表征年龄的换算, 定性或半定量获得描述沉积盆地热演化史的环境古温度变化的一个等效参数——表征温度, 该表征温度能够表征沉积盆地一定地层范围内, 一段埋藏历史的古温度变化历史. 石英热释光信号是沉积盆地热史分析中一种潜在的古温标, 对于石英热释光表征年龄与表征温度地质意义的诠释, 仍需要更多的研究事例加以佐证.

**关键词** 石英, 热释光, 盆地, 热体制, 表征年龄

DOI:10.3969/j.issn.0001-5733.2010.01.015

中图分类号 P314

收稿日期 2009-06-04, 2009-12-10 收修定稿

### Quartz thermoluminescence—another potential paleothermometer for sedimentary basin thermal history study

GONG Ge-Lian<sup>1</sup>, LI Sheng-Hua<sup>2</sup>, SUN Wei-Dong<sup>1</sup>, GUO Feng<sup>1</sup>, XIA Bin<sup>1</sup>, LÜ Bao-Feng<sup>1</sup>

<sup>1</sup> Guangzhou Institute of Geochemistry, Chinese Academy of Sciences, Guangzhou 510640, China

<sup>2</sup> Department of Earth Sciences, The University of Hong Kong, Hong Kong, China

**Abstract** Good reproducibility of quartz thermal stimulated luminescence phenomenon offers the possibility of dating geological events in subsurface and exploring environmental temperature history as well. As sandstones in basins generally experience one certain pattern of thermal history due to effects of temporal and spatial dependent temperature field, the quartz minerals extracted from these sandstones were evaluated to explore the thermal regime structure information by thermoluminescence analyzing technique. The mean quantitative temperature field information in terms of equivalence for certain burial depths in petroleum basin was investigated using both quartz thermoluminescence apparent age method and laboratory isothermal thermoluminescence simulation measurements. It is recognized that: (1) the variations of both

**基金项目** 国家自然科学基金项目(40872110), 国家自然科学基金重点项目(40534019)和国家重点基础研究发展规划项目(2009CB219401)联合资助.

**作者简介** 龚革联, 男, 1967年生, 博士, 副研究员, 从事低温热年代学研究. E-mail: ggl@gig.ac.cn

thermoluminescence glow-curve pattern and intensity of certain natural thermoluminescence peaks correlate well with environmental temperature field in corresponding burial depths where the quartz was extracted from. The quartz natural thermoluminescence glow-curves peaks shifting to high temperature and the thermoluminescence intensity reduction result from the increase of both environmental temperature and burial time for quartz due to deepening burial depth; (2) both the additive dose thermoluminescence (TL) and isothermal TL (SA-ITL) techniques were used for quartz mineral TL dating and the resultant apparent ages agree well with each other, and thus one parameter called equivalent temperature was tentatively presented and deducted from apparent TL ages of quartz minerals to evaluate the basin's thermal regime structure information. Quartz thermoluminescence signal can be recognized as one potential paleothermometer if the well correlation of calculated equivalent temperature of buried quartz mineral with other paleothermometers can be supported by more future independent geological evidences.

**Keywords** Quartz, Thermoluminescence, Basin, Thermal regime structure, Apparent age

## 1 引言

盆地热体制信息的获取对于研究盆地热历史以及油气资源的成藏规律无疑具有理论和实际意义<sup>[1]</sup>。油气盆地的演化历史决定了其盆地热体制信息依时间-空间而变化的特征,盆地地层中的矿物,如,磷灰石、锆石、榍石、钾长石、伊利石和蒙脱石及干酪根等,无疑记录了这种信息的时空变化规律。热年代学研究提供了揭示这种变化规律的可能,如,磷灰石和锆石的裂变径迹、U-Th/He、钾长石的氩/氩等定年<sup>[2]</sup>。

固体热释光现象反映的是绝缘晶体内电子和空穴的产生与复合过程,而该过程与产生电荷的辐射场以及引起电荷复合的温度场直接关联<sup>[3]</sup>。在已知辐射场的前提下,采用传统的矿物热释光分析方法,就可能了解处在一定辐射场环境下地质体中矿物所经历的温度场时空变化信息。已有研究表明,石英矿物良好的热释光特征有可能被用于揭示其受热历史的变化信息<sup>[4,5]</sup>。本文以研究程度相对较高的东营凹陷中的盆地钻孔沉积砂岩为研究对象,尝试利用砂岩中石英矿物的热释光信号,定性或者半定量地研究沉积盆地的热构造演化历史。研究认为,石英热释光信号换算成的古温标可以半定量反映出所研究盆地的热体制演化信息。

## 2 石英热释光古温标原理

与电子自旋共振(ESR)、裂变径迹(FT)和宇宙核素分析方法一样,矿物的热释光信号也是一种重

要的热计时器<sup>[6]</sup>。热年代学理论中基于扩散理论的封闭温度概念<sup>[7]</sup>,在热释光古温标理论中,是通过矿物晶体内陷阱电子数的寿命  $\tau$ (s) 与环境温度  $T$ (K) 关联(对于一阶动力学),即

$$\tau = s^{-1} e^{E/kT}, \quad (1)$$

其中  $s$  表示单位时间内陷阱电子在温度场下逃脱陷阱束缚几率的指数前因子,即所谓频率因子( $s^{-1}$ );  $E$  表示陷阱电子逃脱陷阱束缚所需要的激活能量,即所谓的陷阱深度(eV);  $k$  为玻耳兹曼常数  $1.380658 \times 10^{-23}$  (J/K);  $T$  表示环境温度(K)。

方程(1)说明对于给定的频率因子  $s$  以及陷阱深度  $E$ ,陷阱电子的寿命是环境温度  $T$  的函数。本文中石英矿物热释光 375 °C 和 425 °C 峰所对应的陷阱参数  $s$ 、 $E$  决定了各自陷阱电子的寿命随环境温度的变化趋势。采用 Origin 软件模拟显示这种函数关系(图 1)。

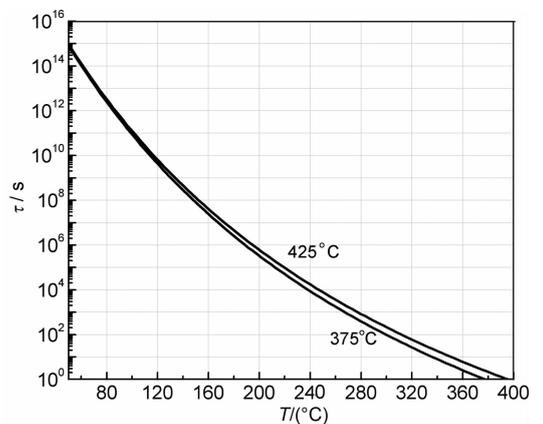


图 1 石英热释光 375 °C 和 425 °C 峰所对应陷阱电子寿命  $\tau$  随环境温度  $T$  的变化关系

Fig. 1 The mean life of trapped electrons in quartz TL changes with temperature  $T$

盆地沉积地层中放射性元素铀、钍和钾等通过放射性衰变,使得其中的石英矿物晶体缺陷(也就是陷阱)中充填一定数量的电子和相应的空穴,而与此同时环境温度场将使得陷阱电子热激活而逃脱电子陷阱,并进而与空穴复合而可能发光(即热释光),这种热激活过程遵循 Arrhenius 定律. 因此,沉积盆地埋藏环境中的石英矿物晶体品格中,其陷阱电子数是矿物周围的辐射场和温度场共同作用后的结果. 通过热释光分析,我们将获得吸收等效剂量来度量石英晶体陷阱电子数的变化,因为石英晶体所吸收的环境辐射剂量与环境辐射剂量率满足方程<sup>[8,9]</sup>:

$$D_e = D_r \tau (1 - e^{-t/\tau}), \quad (2)$$

其中,  $D_e$  是样品的等效吸收剂量,  $D_r$  是环境辐射场剂量率,  $\tau$  是电子陷阱的平均寿命. 陷阱的寿命与环境温度满足方程(1),从而我们间接得到了吸收剂量、剂量率与环境温度的定量关系.  $D_r$  在考虑的地质时间内通常被认为是常量,因此,  $D_e/D_r$  就是热释光年龄  $A$ . 由于热释光年龄  $A$  与陷阱电子寿命  $\tau$  关联,而  $\tau$  又依赖于环境温度  $T$ ,因此  $A$  是表征年龄. 该热释光表征年龄的地质意义将取决于石英矿物所处环境温度的差异. 例如,对于环境温度  $T$  低于  $40^\circ\text{C}$  (常见于地表环境),图 1 计算表明石英矿物的热释光  $375^\circ\text{C}$  峰所对应的电子陷阱寿命  $\tau \sim 10^{15}$  s (约三千万年)<sup>[10,11]</sup>,如果自然辐照时间  $t < 100$  万年,则  $t \ll \tau$  使得方程(2)近似成表征年龄  $A = t$ . 因此,处于低于  $40^\circ\text{C}$  环境温度下的石英矿物,其热释光  $375^\circ\text{C}$  峰所对应的表征年龄  $A$  可以直接反映该晶体处在此温度环境下,并且相应较年轻的辐照历史时间  $t$ . 这一特性,对于地表过程或者事件来说,石英热释光  $375^\circ\text{C}$  峰的表征年龄  $A$  就可以指示末次导致该热释光峰复位(即时钟归零)事件的地质年龄(例如,曝光年龄和加热退火年龄). 但是,如果石英矿物所处的环境温度大幅度提高,比如达到  $150^\circ\text{C}$  时,图 1 表明该陷阱寿命  $\tau \sim 10^8$  s (约 3 年),此时石英晶体内陷阱中电子数变化受到辐射场的补充以及环境热激活因素导致的逃脱两种作用所制约,造成的结果是陷阱中的电子数是两种作用(充填作用和逃脱作用)达到一种动态平衡的结果. 对于沉积盆地某埋藏地质历史时间段  $t$  (常常是百万年数量级),并且环境温度高于某个阈值时,常满足  $t \gg \tau$ ,将使得方程(2)的表征年龄近似成  $A = \tau$ ,此时表征年龄  $A$  数量上大约为矿物晶体中陷阱电子的寿命  $\tau$ .

$$A = \tau = s^{-1} e^{E/kT}, \quad (3)$$

或

$$T = E/[k \ln(sA)]. \quad (4)$$

这样通过热释光分析,我们将获得石英矿物热释光  $375^\circ\text{C}$  峰对应的表征年龄,间接得到对应热释光  $375^\circ\text{C}$  峰的寿命  $\tau$ ,并进而得到该晶体所处环境温度  $T$  的信息. 依据图 1,本研究中石英热释光  $425^\circ\text{C}$  峰具有相似性质.

### 3 样品采集与试验方法

样品选自渤海湾济阳拗陷东营凹陷中央背斜带上 J1502、L11、DF5(图 2)三个钻孔岩芯中砂岩及与其埋深邻近的泥岩,样品选取的地层、岩性、埋深等情况列表 1 所示.

表 1 样品选取的地层、岩性以及铀、钍和钾含量列表

Table 1 Sample positions and results of chemical analyses and dose rate calculation

样品编号	岩性	地层	埋深 (m)	剂量率测试结果 (宇宙射线贡献 $0.09 \text{ mGy/a}$ )			
				$\text{K}_2\text{O}$ (%)	U ( $10^{-6}$ )	Th ( $10^{-6}$ )	剂量率 ( $\text{mGy/a}$ )
J1502-12	砂岩	沙二	2003	3.28	1.88	9.87	2.67
J1502-24	砂岩	段	2190	1.97	1.05	4.48	1.53
L11-3	砂岩	沙三	2755	1.98	1.05	4.51	1.54
L11-31	砂岩	段	2923	2.00	1.24	6.128	1.66
DF5-2	泥岩	沙四	3056	0.87	2.73	5.59	1.19
DF5-8	泥岩	段	3100	0.58	1.69	3.072	0.75

采用汽油(或者二氯甲烷)、铬酸、双氧水、稀盐酸和重液相互结合的方法,去掉样品中含油成分和有机质成分,并将粗粒石英(粒径在  $74 \sim 150 \mu\text{m}$  之间)分选出来<sup>[12~14]</sup>,低温烘干后用硅油将石英颗粒粘附在经过  $500^\circ\text{C}$  以上高温退火,直径为  $10 \text{ mm}$ ,厚度  $0.8 \text{ mm}$  左右的圆形铝片上,每个样品如此备好 30 片的待测样品片 (aliquots),每片的样品重量为  $30 \text{ mg}$  左右,其中 3 片用于测试石英矿物的自然热释光信号,并获得每个样品的自然信号发光曲线<sup>[15]</sup>,12 片采用单片法-等温热释光方法 (SAR-ITL)<sup>[16]</sup> 获得每个样品中石英矿物等效剂量,其余 15 片采用增加剂量法获得相应样品的等效剂量. 样品中放射性元素铀、钍和钾含量采用质谱的微量元素分析方法获得(其中,宇宙射线的贡献考虑埋深超过  $2000 \text{ m}$  的地层,取地表值一半),并按照列表换算成剂量率<sup>[17]</sup>;而样品的含水估算,都被设定为  $60\%$ . 样品片的自然热释光发光曲线以及增加剂量法在中国科学院广州地球化学研究所的 ELSEC7185

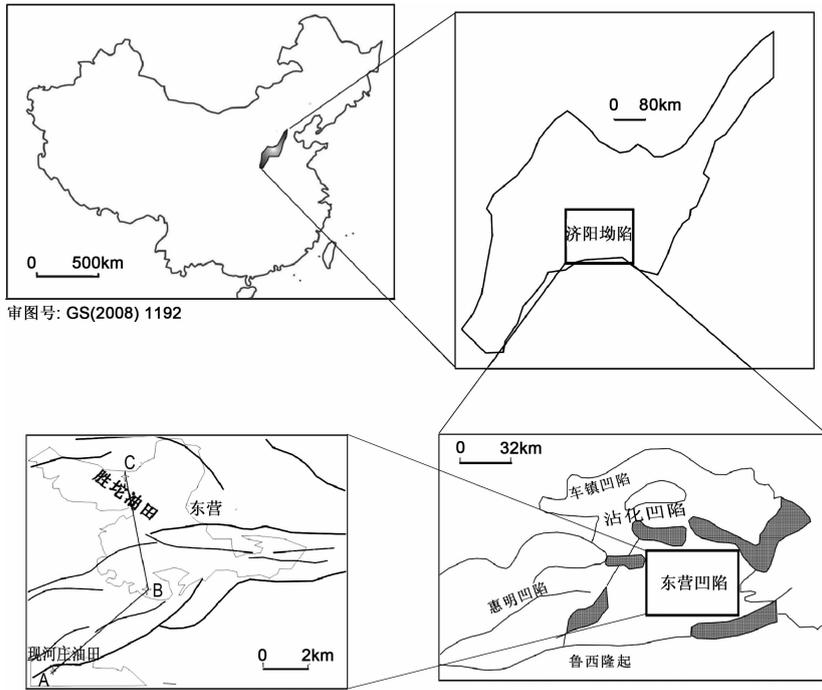


图2 东营凹陷钻孔 A=L11, B=DF5, C=J1502 中砂岩、粉砂岩和泥岩采样深度位置

Fig. 2 Geological map of Dongying Sag and locations of sandstones, siltstones and mudstones selected from cores A=L11, B=DF5, and C=J1502

型热释光仪器上测试完成, 测试条件是低真空、氮气保护以及保持恒定的  $20\text{ }^{\circ}\text{C/s}$  的升温速率. 单片等温热释光方法(SAR-ITL)测试(测试流程见表 2, 其中升温速率恒定为  $2\text{ }^{\circ}\text{C/s}$ )在香港大学地球科学系的 Riso 15D/A 型仪器完成, BETA 源剂量率  $0.084\text{ Gy/s}$ . 样品剂量率的测试采用微量元素 ICP-MS 质谱分析方法, 在中国科学院同位素年代学和地球化学重点实验室测试完成.

## 4 热释光测试与定年结果

### 4.1 石英矿物的自然热释光发光信号

处于一定环境温度下接受自然辐射的石英矿物, 其自然热释光发光曲线各个特征发光峰的峰温以及峰值相对变化大小, 是样品埋藏地质时间、环境温度和環境辐射场的综合作用结果<sup>[15,18]</sup>. 为此, 将图 2 样品中石英以及地表石英的自然热释光发光曲线归纳成图 3 所示. 图 3 显示出济阳拗陷东营凹陷中央背斜带地表以及钻孔岩芯样品砂岩、泥岩中石英矿物颗粒的自然热释光发光曲线.

图 3 直接对比了不同地层的泥岩、砂岩中石英矿物颗粒的自然热释光发光曲线. 石英矿物颗粒的自然发光特征显示某些发光峰随地层的埋深, 其峰温和峰值有规律地变化. 自然热释光发光的这一规

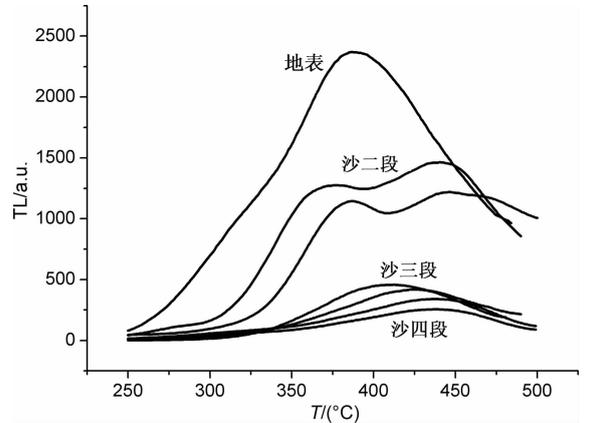


图3 不同地层位置泥岩、砂岩中提取的石英矿物的自然热释光发光曲线, ELSEC7185 仪器记录, 升温速率  $20\text{ }^{\circ}\text{C/s}$   
Fig. 3 Natural TL light emission glow curves of coarse quartz minerals from sandstone in different formation recorded by ELSEC7185, heating rate is  $20\text{ }^{\circ}\text{C/s}$

律性变化暗示某些石英自然热释光峰值信号的变化与地层埋藏历史有关, 可能反映矿物经历的热历史. 因此, 下文试图研究其中两个常见的石英矿物热释光峰如何定量样品的古温度历史(即  $375\text{ }^{\circ}\text{C}$  和  $425\text{ }^{\circ}\text{C}$  热释光峰, 虽然升温速率以及设备加热接触的原因导致两个热释光峰偏离假定的位置).

### 4.2 石英矿物 $375\text{ }^{\circ}\text{C}$ 热释光 SAR-ITL 定年

东营凹陷盆地钻井资料以及揭示岩芯段  $2000\sim 3000\text{ m}$  之间, 现今地温在约  $90\sim 120\text{ }^{\circ}\text{C}$  之间<sup>[19]</sup>. 显

然在这一温度范围内,石英矿物的热释光峰 375 °C 和 425 °C 所对应的电子陷阱的寿命  $\tau \ll 10^{12}$  s (即大约 3 万年),因此,油气盆地中央背斜带岩芯段 2000~3000 m 所处相应地层中石英矿物的埋藏时间  $t$  满足  $t \gg \tau$  的条件,方程(2)和(3)说明此处石英的热释光表征年龄直接关联于环境温度信息.由于表征年龄反映了石英晶体内部电子陷阱中电子数在一段地质历史时间内的综合效应,因此,所反映的环境温度信息应该是相对应的地质埋藏时间内的平均温度变化信息,而不应该是地质时间点的温度信息.

利用重液方法从砂岩、泥岩中分选出石英颗粒.并考虑到钻孔岩芯标本系二十多年前所钻取,采用 Murray 等于 2000 年<sup>[16]</sup>提出的,但是稍加改进的 SAR-ITL 实验流程(表 2).由此获得表 1 所示钻孔样品中石英 375 °C 热释光峰的等效剂量,并依据各自的年剂量率,计算出表征年龄(表 3).

表 2 375 °C 热释光单片法 SAR 试验步骤

Table 2 Isothermal TL SAR procedures for 375 °C TL peak

实验步骤	测量
①加入剂量 $D_i$ (自然信号对应加入剂量 0, $i = 0$ )	
②预热 340 °C,然后 5 s OSL @ 330 °C	
③加热到 330 °C,并保持 1000 s	$L_i$
④加入测试剂量 $D_{test}$	
⑤预热 340 °C,然后 5 s OSL @ 330 °C	
⑥加热到 330 °C,并保持 1000 s	$T_i$
⑦重复步骤①~⑥,完成 5 个剂量点测试循环,包括零剂量和一个重复剂量点.	
按照单片法(SAR)计算出等效剂量	

表 3 375 °C 热释光峰等效剂量 ITL 法结果

Table 3 Equivalent doses calculation for ITL-SAR of 375 °C TL peak

样品编号	岩性	深度 (m)	ITL375 °C 石英等效剂量(Gy)	ITL375 °C 表征年龄(ka)
J1502-12	砂岩	2003	347.634±26.9	130.2±6.8
J1502-24	砂岩	2190	36.4±2.5	23.79±1.9
L11-3	砂岩	2755	31.57±2.5	20.5±1.5
L11-31	砂岩	2923	22.2±1.0	13.37±1.1
DF5-2	泥岩	3056	10.1±0.5	8.49±1.0
DF5-8	泥岩	3100	6.7±0.4	8.93±1.0

#### 4.3 石英矿物 425 °C 热释光增加法定年

从图 2 可知样品中石英的热释光信号有 425 °C 峰值的贡献,为了分析出 425 °C 热释光信号的等效剂量值,采用多片增加剂量法获得如表 4 所示的等效剂量和表征年龄.

表 4 425 °C 热释光峰等效剂量增加法结果

Table 4 Equivalent doses calculation for additional dose of 425 °C TL peak

样品编号	岩性	深度 (m)	TL425 °C 等效剂量(Gy)	TL425 °C 表征年龄(ka)
J1502-12	砂岩	2003	80.4±2.6	30.11±1.6
J1502-24	砂岩	2190	38.7±1.3	25.29±1.3
L11-3	砂岩	2755	83.4±3.1	54.16±2.8
L11-31	砂岩	2923	31.4±0.5	18.92±1.1
DF5-2	泥岩	3056	18.1±0.5	15.21±1.0
DF5-8	泥岩	3100	12.7±0.4	16.93±1.0

为了获得热史信息,需要测试并计算出热释光峰 375 °C 和 425 °C 两个陷阱参数值  $E$  和  $s$ .按照 Rasheedy<sup>[20]</sup>和 Chen<sup>[21]</sup>的方法分别获得各自的参数(表 5).

表 5 电子陷阱参数测试

Table 5 Measurements for trap parameters

热释光峰	$E$ (eV)	$s$ (s <sup>-1</sup> )
375 °C	1.87	$5 \times 10^{14}$
425 °C	1.83	$1 \times 10^{13}$

依据方程(1)以及前文对于表征年龄与表征温度关系的论述,计算获得各个埋藏深度石英矿物经历热历史的表征参数——表征温度(表 6).

表 6 表征温度计算结果

Table 6 Equivalent temperature (ET) calculation

样品编号	岩性	深度 (m)	ITL375 °C 表征温度(K)	TL425 °C 表征温度(K)
J1502-12	砂岩	2003	367.9±2.9	379.9±1.8
J1502-24	砂岩	2190	378.9±2.1	381.1±2.8
L11-3	砂岩	2755	379.9±1.9	375.9±2.0
L11-31	砂岩	2923	382.8±2.1	383.1±3.5
DF5-2	泥岩	3056	385.8±2.8	384.6±2.3
DF5-8	泥岩	3100	385.4±2.9	383.9±2.4

## 5 讨论

### 5.1 发光曲线与样品埋藏历史

盆地钻孔深度一定范围内,沉积岩芯中石英矿物的自然热释光信号发光曲线结果显示出规律性变化,这种变化规律与石英矿物热释光发光动力学相符.埋藏地层温度差异决定了其岩石中石英矿物热释光发光曲线的差异,即随着地层埋藏愈深,石英天然热释光发光峰向高温方向移动,同时发光峰强度

递减. 石英天然热释光发光曲线的这种规律性变化, 暗示沉积盆地的地层埋藏史(或者温度变化历史)能够通过热释光信号得到一定程度的反映. 图 3 显示了不同埋深的泥岩、砂岩中的石英热释光发光曲线和发光强度差异.

在沉积盆地沉降过程中, 既有沉降过程导致的埋藏升温阶段, 也有去顶剥蚀过程的冷却阶段. 现今处于各个地层的沉积岩, 在地质埋藏历史初期, 必然经历地表下较低环境温度以及浅部沉积和埋深过程, 对于石英矿物晶体来说, 这一段埋藏地质历史足够让晶体内所有电子陷阱饱和, 随后的沉降升温过程, 将导致晶体内浅势电子陷阱(即较低的激活能量  $E$ )逐步排空所捕获的电子, 这种由于环境温度的上升变化而排空陷阱电子过程将伴随着整个沉积埋藏史, 并逐步影响具有更高激活能量  $E$  的陷阱中所捕获的电子数, 与此同时, 环境辐射场对于陷阱的电子充填过程一直伴随盆地的整个演化过程. 因此, 石英矿物晶体内激活能量  $E$  不同的电子陷阱中的电子数浓度就经历并记录了这样一种随温度和埋藏时间变化的地质过程, 这样常规的热释光分析方法所获得的热释光发光曲线就可以反映地层埋藏史(或者温度变化历史)信息.

## 5.2 表征年龄与温度变化历史

如前所述, 依赖于陷阱参数和环境温度范围大小, 同一个电子陷阱中的电子在环境温度越高(或者埋深越深)情况下, 寿命愈短, 但是, 由于辐射场的充填过程, 使得陷阱电子数浓度维持一个动态平衡, 因此, 实验室热激活该电子陷阱, 将获得等效剂量以及对应的表征年龄. 在环境温度高于浅地表情况下, 尽管石英晶体的陷阱电子寿命将缩短, 但是陷阱中的电子数是环境温度场引起的热逸出作用与辐射场充填作用所达到的平衡结果, 这一平衡态能够间接反映出引起陷阱电子寿命缩短的环境温度变化信息. 比如, 本次石英矿物中  $375\text{ }^{\circ}\text{C}$  和  $425\text{ }^{\circ}\text{C}$  热释光峰所对应的陷阱电子数在埋深温度约  $120\text{ }^{\circ}\text{C}$  时, 寿命  $\approx 10^{10}\text{ s}$  ( $\approx 0.3\text{ ka}$ ) (参看图 1), 因此, 对于环境温度超过  $120\text{ }^{\circ}\text{C}$ , 该石英矿物的  $375\text{ }^{\circ}\text{C}$  热释光峰不具备年龄超过  $0.3\text{ ka}$  的计时功能. 但是, 当考虑到此温度环境下的陷阱电子数浓度是埋藏时期内环境温度场与辐射场共同作用后, 并达到平衡态的结果时, 此时石英矿物的  $375\text{ }^{\circ}\text{C}$  热释光峰却可以从计时计转变成一种古温标, 即可以反映古环境温度的变化. 由于沉积类石英矿物通常具有多个不同峰温的热释光信号<sup>[22]</sup>, 因此, 石英矿物热释光的不同发光峰具有记

录不同温度范围 and 不同时间段温度变化历史的功能. 图 4 给出了本次研究中钻孔岩芯石英矿物中的两个热释光峰  $375\text{ }^{\circ}\text{C}$  和  $425\text{ }^{\circ}\text{C}$  峰的表征年龄随样品埋深的关系.

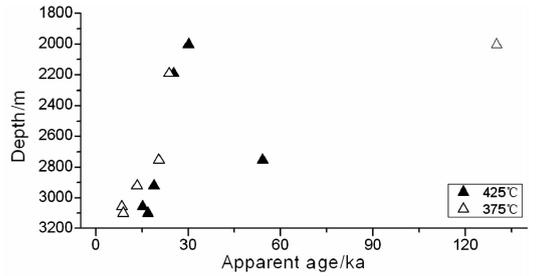


图 4 石英热释光表征年龄与埋深关系

Fig. 4 The relationship between apparent ages and burial depth for quartz TL

图 4 表明: (1) 从三个钻孔 J1502、L11 和 DF5 各自岩芯段所取上、下两个不同埋深位置的石英矿物, 其  $375\text{ }^{\circ}\text{C}$  峰热释光表征年龄随着样品埋藏深度的增加而减小的趋势明显, 反映相应钻孔处上、下两个地层位置的古温度变化历史的差异; (2) 东营凹陷中央背斜带上三个相距不远钻孔位置岩芯段拼合成的剖面, 其  $375\text{ }^{\circ}\text{C}$  峰热释光表征年龄整体随埋深呈现单调减小的趋势, 反映出研究地区——济阳拗陷这一持续沉降型盆地热体制演化呈现规律性变化的一面; (3) 图 4 中钻孔 L11 样品 L11-3 的  $425\text{ }^{\circ}\text{C}$  热释光峰表征年龄显示出一定异常, 原因可能来自两个方面: 其一, 如前所述, 石英热释光表征年龄数据系反映一段埋藏历史以来的环境温度差异的平均指标, 钻孔 L11 样品 L11-3 埋深  $2923\text{ m}$  处地层埋藏史上的隆升、剥蚀历史可能导致数个旋回的冷却过程, 这种冷却过程显然会降低地层温度背景值, 从而导致其中的石英  $425\text{ }^{\circ}\text{C}$  热释光峰表征年龄偏大. 因此, 认为相应地层可能的一段或者数段时间的冷却过程是石英  $425\text{ }^{\circ}\text{C}$  热释光峰表征年龄偏高的原因; 其二, 钻孔 L11 样品 L11-3 石英矿物的  $375\text{ }^{\circ}\text{C}$  热释光峰表征年龄也初步显现相同的趋势, 只是没有  $425\text{ }^{\circ}\text{C}$  热释光峰偏高明显, 不同热释光峰信号具有记录不同古温度变化历史的特点, 这可能是导致两个热释光峰表征年龄差异性的原因. 虽然, 没有测试地表与更深地层中砂岩中石英热释光, 但是, 已有研究表明, 处于浅地表砂岩中的石英热释光表征年龄随着浅部的埋深呈现增加趋势, 直至砂岩埋深至一定深度以下, 才开始保持减小的规律. 而当砂岩埋深超过一定深度时, 其中的石英矿物已经没有常规热释光测量装置可检测到的热释光信号了, 可以认为

热释光信号已经完全退火,也就是表征年龄为零.因此,对于持续性沉积埋藏地质作用的情况(比如,本次研究地区济阳拗陷的凹陷带或者隆起带地区),从地表到钻孔砂岩中完整的石英热释光表征年龄随深度的关系应该是从初始地表的表征年龄增加,直至一定深度之后,表征年龄开始减少,一直到零为止,即表征年龄与埋深的变化关系可能呈现出图 5 所示的理想曲线变化形状.

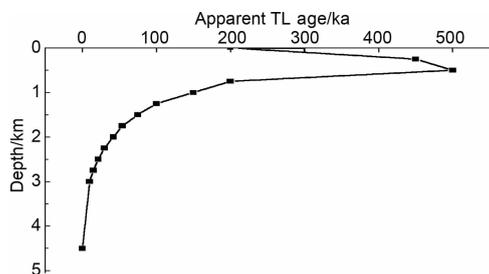


图 5 理想埋藏作用下砂岩中石英热释光表征年龄与埋藏深度关系

Fig. 5 Theoretical relationship between TL apparent age and burial depth for quartz

经历复杂埋藏演化历史的盆地地层砂岩中石英矿物必然不会呈现出这种理想的热释光表征年龄-埋藏深度变化关系.

### 5.3 表征温度与古地温

在一定的地质埋藏条件下( $t \gg \tau$ ),方程(2)和方程(3)说明陷阱电子数浓度在平衡态下的表征年龄与环境温度存在简单对应关系,为此,表征温度被定义为沉积盆地在一定埋藏史内温度变化历史的平均等效参数.依据这个定义以及方程(2)、方程(3)以及石英晶体 375 °C 和 425 °C 热释光峰对应电子陷阱参数(表 5),可以计算获得各个钻孔不同埋深处石英热释光峰所记录的表征温度参数值(表 6).图 6 示出了由三个钻孔不同岩芯段中石英 375 °C 和 425 °C

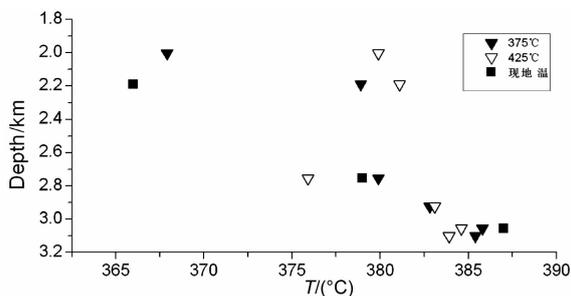


图 6 石英热释光表征温度与埋深以及现今地温关系,详见于正文

Fig. 6 The relationship between quartz TL equivalent temperature and burial depth, and the burial temperature

热释光峰计算得出的表征温度数据与相应钻孔地点盆地地层的现今温度信息对比<sup>[19,23]</sup>.

图 5 表征年龄差异、图 6 表征温度差异、钻孔现今地温资料与相应地层位置数据的对比表明:

(1) 石英矿物热释光 375 °C 和 425 °C 峰的表征年龄和表征温度均一致反映了盆地相关地层的热体制差异,并且与现今地温资料反映出的温度场差异大体接近,说明石英的热释光信号能够定量地反映出盆地地层的热体制差异性质;

(2) 钻孔 L11 样品 L11-3 的石英热释光 425 °C 峰所对应的表征温度,比现今地温低 4 °C 左右,再次印证了相关地层(沙三段)的平均热场效应偏低的事实,反映 L11 钻孔所处沙三段始新世以来可能遭受过隆升,或者回返剥蚀、冷却的地质过程.从郭随平等<sup>[24,25]</sup>研究结果看,他们样品 8 和样品 10 的磷灰石裂变径迹年龄和长度分布随样品深度分布显示出,沙三上与沙二段之间的磷灰石也经历过类似的降温过程;

(3) 与现今地层温度相比较,沙二段和沙三段热释光 375 °C 和 425 °C 峰记录的表征温度均大于现今地层温度值(L11-3 的 425 °C 峰表征温度例外).由于石英热释光表征温度反映出一段埋藏历史的平均热体制信息,包含有埋藏史上的古温度变化信息,因此,可以据此推断沙二段和沙三段的古温度变化自埋藏以来呈现出整体冷却的趋势(惟有如此,反映平均温度信息的表征温度数据才会大于地温演化至今的现今地温数据).这点通过前人的相关研究也能得到佐证,赵明等<sup>[26]</sup>通过相关地层处绿泥石成分的演化特征定量出东营凹陷古近纪时期的埋藏温度达 171~238 °C,现今地温显然要低得多<sup>[24,25]</sup>.另外,邱楠生等<sup>[27,28]</sup>对济阳拗陷的构造-热演化历史研究表明渤海湾盆地经历古近纪时期的裂陷,至新近纪时期的拗陷的演化过程,在地温演化历史证据方面得到证明,本文的石英热释光表征温度数据再次为这一盆地构造-热演化历史特征增添了资料;

(4) 前人对于东营凹陷地温场研究表明<sup>[24,28]</sup>,先期沉积的孔店-沙四组具有较高的地温梯度,而后期沉积的沙二-东营组具有相对较低的地温梯度.或者说,从沙四段,沙三段到沙二段,地层的古温度梯度呈现变小的趋势.这一特点,从本次研究中石英 375 °C 和 425 °C 热释光峰对应的表征温度数据不能得到印证.石英 375 °C 热释光峰对应的表征温度数据表明,在大体相同的埋藏深度内,钻孔 L11 沙三段古地温变化比钻孔 J1502 沙二段古地温变化要

小,反映出沙二段地温梯度比沙三段要高。然而,本次研究由于完整的岩芯样品的缺乏,并不能充分说明这一地温梯度的演化趋势,更具有说服力的证据需要更多的岩芯样品的热释光分析,以及其他古温度指标和地质证据的印证。

石英矿物的某些热释光发光峰具有记录受热历史的功能,沉积盆地不同埋深的砂岩或泥岩中石英矿物的 375 °C 和 425 °C 热释光峰就具有这种古温标的功能。热释光发光曲线记录定性地表述了地层古地温变化的差异,而表征年龄和表征温度则半定量地描述了地层埋藏史中的古温度变化历史信息。热释光方法测试获得的表征温度是地质热事件作用在一段时间内的综合度量,属于一个平均度量热作用的概念,而不是反映地质历史中某个时刻古温度变化的实时情况。该古地温指标能够度量一定环境温度变化范围(对于沉积盆地就是一定埋深)以及一定埋藏地质历史时期的古温度变化历史。

本文的研究有针对性地选择与油气盆地烃源岩成熟度研究有关的地层与环境温度,无疑对于探讨油气盆地热演化历史以及生烃等动力学研究具有重要意义。由于石英矿物热释光峰值信号取决于被测试陷阱电子的寿命(包括陷阱参数  $E$  和  $s$ ),因此,石英矿物的几个不同热释光发光峰可能具有记录不同温度变化历史的古温标功能。更多更为详尽的有关矿物热释光表征温度地质意义的研究工作需要展开,特别是针对具有复杂热演化历史的沉积盆地,在通过镜质体反射率、磷灰石裂变径迹等手段获知盆地的部分热历史信息之后,能够通过矿物热释光分析获得一段埋藏历史时期的平均温度信息,无疑是十分有帮助的。这样,尽管石英热释光方法可能不能反映出整个地温场的变化历史,但是,却能够通过陷阱电子数浓度的变化反映出地质上一段时间以来的古温度变化历史,这将拓展石英热释光技术应用范围,同时,也为沉积盆地热历史研究提供出另一种新的古温标——石英热释光。

值得指出的是本文的石英热释光分析测试与表征年龄、表征温度的推导计算,虽然大体能够反映出与研究区地质事实相符的平均地温变化趋势,但是,这种地温变化信息的获得将受到一些基本的前提条件所限。其一,地温变化范围条件的限制。尽管可以利用其他热释光峰值信号来进行分析,但是本文研究表明石英 375 °C 和 425 °C 两个热释光峰适合于地史上 80 °C 至 160 °C 温度范围;其二,地史上平均地温变化趋势的度量,非单一地温演化轨迹的反映。石

英的陷阱捕获电荷数量的变化反映地温变化,这一点与晶体结构的裂变径迹数量与长度变化反映地温变化,原理上相似。因此,石英热释光信号能否反演地质体的热历史,同样取决于对该信号的热历史模拟以及退火动力学方面的深入研究<sup>[29]</sup>。

## 6 结 论

对于持续性沉降的东营凹陷,从中央背斜带的几处钻孔岩芯中选取不同埋深的石英矿物,其自然热释光发光特征可以反映出与岩芯所对应地层的热体制的差异效应,并且与石英热释光发光动力学相符,即随着沉积地层埋深增加、埋藏温度上升与埋藏时间加大,其热释光发光曲线整体向高温方向移动,而发光强度明显减小。石英热释光多片增加剂量分析方法以及单片等温热释光分析方法所获得的表征年龄彼此印证,通过表征年龄的换算,定性或半定量获得描述沉积盆地热演化史的环境古温度变化的一个等效参数——表征温度,该表征温度能够表征沉积盆地一定地层范围埋藏史的古温度变化历史信息。石英热释光是一种潜在的沉积盆地热史研究的古温标,对于石英热释光表征年龄与表征温度地质意义的诠释,仍需要更多的研究事例加以佐证。

## 参考文献(References)

- [1] 胡圣标,汪集旸. 沉积盆地地热体制结构研究的基本原理和进展. 地学前缘,1995,2(4):171~179  
Hu S B, Wang J Y. Principles and progresses on thermal regime of sedimentary basins—An overview. *Earth Science Frontiers* (in Chinese), 1995, 2(4):171~179
- [2] Armstrong P A. Thermochronometers in sedimentary basins. *Reviews in Mineralogy & Geochemistry*, 2005, 19(58): 499~525
- [3] McKeever S W S. Thermoluminescence of Solids. Cambridge: Cambridge University Press, 1985
- [4] Chen Y Y, Li S H, Xie X N. Quartz luminescence geothermometer: preliminary studies on reconstruction of activities of thermal fluid flow in Yinggehai sedimentary basin, China. 11<sup>th</sup> International Conference on Luminescence and Electron Spin Resonance Dating, Cologne, Germany, 2005. 40~41
- [5] Guimon R K, Weeks K S, Keck B D, et al. Thermoluminescence as a palaeothermometer. *Nature*,1984, 311: 363~365
- [6] Reiners P W. Past, present, and future of thermochronology. *Reviews in Mineralogy & Geochemistry*, 2005, 58:1~18
- [7] Dodson M H. Closure temperature in cooling geochronological

- and petrological systems. *Contrib. Mineral and Petrol.*, 1973, **40**:259~274
- [8] Debuyst R, Dejehet F, Grun R, et al. Possibility of ESR dating without determination of annual dose. *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 1984, **86**:399~410
- [9] Grun R, Atsushi Tani, Anatoly Gurbanov, et al. A new method for the estimation of cooling and denudation rates using paramagnetic centers in quartz: a case study on the Eldzhurtinskiy Granite, Caucasus. *Journal of Geophysical Research*, 1999, **4**(B8):17531~17549
- [10] Kirsh Y. Kinetic analysis of thermoluminescence. *Physica Status Solidi (a)*, 1992, **129**(1):15~48
- [11] Chen R, McKeever S W S. Theory of Thermoluminescence and Related Phenomena. Singapore: World Scientific, 1997. 81~83
- [12] George S C, Krieger F W, Eadington P J, et al. Geochemical comparison of oil-bearing fluid inclusions and produced oil from the Toro sandstone, Papua New Guinea. *Organic Geochemistry*, 1997, **26**(3/4):155~173
- [13] Karlsen D A, Nedkvitne T, Larter S R, et al. Hydrocarbon composition of authigenic inclusions: application to elucidation of petroleum reservoir filling history. *Geochemica et Cosmochimica Acta*, 1993, **57**:3641~3659
- [14] Berger G W, Mulhern P J, Huntley D J. Isolation of silt-sized quartz from sediments. *Ancient TL*, 1980, **11**: 8~9
- [15] Aitken M J. Thermoluminescence Dating. London: Academic Press, 1985
- [16] Murray A S, Wintle A G. Application of the single-aliquot regenerative-dose protocol to the 375 °C quartz TL signal. *Radiation Measurements*, 2000, **32**: 579~583
- [17] Adamiec G, Aitken M. Dose-rate conversion factors: update. *Ancient TL*, 1998, **16**(2): 37~50
- [18] Peter J Ypma, Mark B, Hochman M. Thermoluminescence geothermometry-A case study of the Otway Basin. *The APEA Journal*, 1991. 312~324
- [19] 龚育岭, 王良书, 刘绍文等. 济阳拗陷地温场分布特征. 地球物理学报, 2003, **46**(5):652~658
- Gong Y L, Wang L S, Liu S W, et al. Distribution characteristics of geo-temperature field in Jiyang depression, Shandong, North China. *Chinese J. Geophys.* (in Chinese), 2003, **46**(5):652~658
- [20] Rasheedy M S. An independent method for obtaining the activation energy of thermoluminescence glow peaks. *International Journal of Modern Physics B*, 2004, **18**(20/21): 2877~2885
- [21] Chen R. Methods for kinetic-analysis of thermally stimulated processes. *Journal of Materials Science*, 1976, **11**(8): 1521~1541
- [22] Prokein J, Wagner G A. Analysis of thermoluminescence glow peaks in quartz derived from the KTB-Drill hole. *Radiation Measurements*, 1994, **23**(1):85~94
- [23] 龚育岭, 王良书, 刘绍文等. 济阳拗陷大地热流分布特征. 中国科学(D), 2003, **33**(4):384~391
- Gong Y L, Wang L S, Liu S W, et al. The distribution feature of terrestrial heat flow density of Jiyang depression, Shandong, North China. *Science in China (Series D: Earth Sciences)* (in Chinese), 2003, **33**(4):384~391
- [24] 杨绪充. 含油气区地下温压环境. 山东东营:石油大学出版社, 1993. 35~41
- Yang X C. Paleo-thermal and Paleo-pressure Conditions Analyses for Oil Basins (in Chinese). Shandong Dongying: China University of Petroleum Press, 1993. 35~41
- [25] 郭福平, 施晓斌, 王良书. 胜利油田东营凹陷热史分析——磷灰石裂变径迹证据. 石油与天然气地质, 1996, **17**(1): 32~36
- Guo S P, Shi X B, Wang L S. Thermal history analysis of Dongying depression, Shengli Oil region: evidence from apatite fission track. *Oil and Gas Geology* (in Chinese), 1996, **17**(1): 32~36
- [26] 赵明, 陈小明, 季峻峰等. 济阳拗陷古近系原型盆地中绿泥石的成分演化特征及其盆地古地温梯度. 中国科学(D辑:地球科学), 2007, **37**(9):1141~1149
- Zhao M, Chen X M, Ji J F, et al. Evolution of chlorite composition in the Paleogene prototype basin of Jiyang Depression, Shandong, China, and its implication for paleogeothermal gradient. *Science in China (Series D: Earth Sciences)*, 2007, **50**(11):1645~1654
- [27] 邱楠生, 苏向光, 李兆影等. 济阳拗陷新生代构造-热演化历史研究. 地球物理学报, 2006, **49**(4):1127~1135
- Qiu N S, Su X G, Li Z Y, et al. The Cenozoic tectono-thermal evolution of Jiyang depression, Bohai Bay basin, East China. *Chinese J. Geophys.* (in Chinese), 2006, **49**(4):1127~1135
- [28] 邱楠生, 苏向光, 李兆影等. 郯庐断裂中段两侧拗陷的新生代构造-热演化特征. 地球物理学报, 2007, **50**(5):1497~1507
- Qiu N S, Su X G, Li Z Y, et al. The Cenozoic tectono-thermal evolution of depressions along both sides of mid-segment of Tancheng-Lujiang Fault Zone, East China. *Chinese J. Geophys.* (in Chinese), 2007, **50**(5):1497~1507
- [29] 龚革联, 蔡观强, 刘顺生等. 利用石英 375 °C 热释光峰研究其受热历史的模拟实验. 地球化学, 2007, **36**(6):633~637
- Gong G L, Cai G Q, Liu S S, et al. Simulation study on isothermal activation method for tracing thermal history of Quartz using 375 °C thermoluminescence peak. *Geochimica* (in Chinese), 2007, **36**(6):633~637