

# 伊利石的结晶度及其地质意义综述

杨献忠

(南京地质矿产研究所)

**提要** 根据伊利石第一级底面反射峰即  $d=10\text{\AA}$  峰的形状和特征,本文综述了不同作者测定伊利石的结晶度从而判别其结晶程度的几种方法。在此基础上,对伊利石不同结晶度指数及变化在地质学上的应用作了较为详细的总结。

**关键词** 伊利石  $10\text{\AA}$  衍射峰 结晶度 地质意义

**作者简介** 杨献忠 男 30岁 工程师 粘土矿物学

结晶度通常指某一物质内所含晶体的总量;Kübler(1967a)曾定义结晶度为结晶物质晶格内的“有序”程度,但并没有阐明“有序”的意义。结晶度这一术语常用于伊利石矿物,但对于其它层状硅酸盐如绿泥石、蒙脱石、高岭石、叶蜡石等,也能测定其结晶度。本文主要综述伊利石结晶度指数几种不同的测定方法,并对其地质意义进行总结。

## 1 伊利石结晶度指数

伊利石的结晶度常用其第一级底面反射峰即  $d=10\text{\AA}$  峰的形状来测定。若该衍射峰狭窄而对称,则伊利石的结晶程度较高;反之,衍射峰宽阔而不对称,则其结晶程度就较低。基于这一原则,现介绍几种测定伊利石结晶度指数的方法。

### 1.1 Weaver 指数

1960年,Weaver首次用伊利石  $10\text{\AA}$  衍射峰测定其结晶度。他定义了一个“锐度比”(Sharpness ratio),即  $10.0\text{\AA}$  与  $10.5\text{\AA}$  衍射峰的强度比,并规定 Weaver 指数  $=H(10.0\text{\AA})/H(10.5\text{\AA})$ 。数值上,该锐度比值随伊利石结晶程度的增高而增大。

### 1.2 Kübler 指数及锐度指数(acufc index)

Kübler 指数因首先由 Kübler(1964)提出而得名,其大小等于伊利石第一级底面反射峰的半高宽值。锐度指数则是 G. Dunoyer de Segonzac(1969)提出的,其测定方法与 Kübler 指数的测量方法完全相同,只不过前者一般用  $\Delta^\circ(2\theta)$  来表达,后者多用 mm 表示。Kübler 指数及锐度指数均随伊利石结晶度的增大而减少。

Kübler(1968)发现,伊利石结晶度的 Weaver 指数与 Kübler 指数间无线性相关,因而可以推测,Weaver 指数与锐度指数间也无线性关系。

由于上述测定伊利石结晶度的两种方法需要特殊的 X 射线衍射仪和特定的实验条件,而不同仪器和不同的实验条件都会影响伊利石的  $10\text{\AA}$  峰形和峰宽;即使同一台仪器,在不同时间做的实验,也有可能如此,因而现在很少使用。

### 1.3 张开度指数与 Hw 指数

Weaver(1960)还曾提出一个衡量伊利石结晶度的张开度指数,其值等于伊利石 10Å 峰高与该峰半高宽之比值,实际上即为图 1(a)中的 H 值与锐度指数的比值。张开度指数越大,伊利石结晶度越高;反之,张开度指数越小,则伊利石结晶度越低。我国学者刘东生曾提出过测定伊利石结晶度的 Hw 指数,测定方法实际上与上述张开度指数的测定方法相类似。

#### 1.4 Weber 指数

Weber 指数与伊利石(001)峰半高宽( $I_{Hb(001)}$ ,等于锐度指数)及石英(001)峰半高宽( $Q_{Hb(001)}$ )有关,并定义:

$$Hb_{rel} = I_{Hb(001)} / Q_{Hb(100)} \times 100$$

利用上式求得的  $Hb_{rel}$  值即代表伊利石结晶度的 Weber 指数。这里,  $Hb_{rel}$  指的是伊利石(001)峰与石英(100)峰半高宽的相对比值数。需要说明的是,要使所求出的  $Hb_{rel}$  值具有对比性,就必须使用适合于不同 X 射线仪的石英内标。

$Hb_{rel}$  值有这样的规律,即  $Hb_{rel}$  值越大,伊利石结晶度越小,  $Hb_{rel}$  值越小,则伊利石结晶度越大。

#### 1.5 $E_0$ 参数

F · Mellieres 及 H · Pevez - Nieto(1973)对沉积伊利石结晶度测量采用了另一种称为展势(opening status)的参数  $E_0$ :

$$E_0 = 100(S_T - S_I) / S_T$$

式中  $S_T$  为背景线以上 10Å 衍射峰的总面积;  $S_I$  为伊利石 10Å 正常衍射峰的面积。它相当于通过峰顶作垂线,然后依高角度一侧衍射

峰的轮廓,以此垂线为中心画一左右对称的假想衍射峰,此峰的面积即为  $S_I$ (图 2)。样品需用  $Ca^{2+}$  离子饱和,然后再用乙二醇处理。展势参数  $E_0$  的值越大,表明伊利石的结晶程度越差。

由于测量展势参数前样品需经两次预处理,且我们在实际工作中发现,测量出的  $S_T$ 、 $S_I$  值均有一定误差,因此我们认为,这一方法难以推广。

#### 1.6 Weber-Dunoyer de Segonzac-Economou 指数

对于这一指数,域值  $N \cdot d$  是由伊利石 10Å 峰半高宽 B(B 实际上代表 Kübler 指数)用 Scherrer 方程计算出来:

$$N \cdot d = K \cdot \lambda / B \cdot \cos\theta$$

这里, B=伊利石 10Å 峰半高宽( $\Delta^\circ(2\theta)$ ); K=常数,范围在 0.89—0.94 之间;  $\lambda$ =辐射波长; d=面网值; N=平面数;  $N \cdot d$ =相干衍射域值;  $\theta$ =所选反射的布拉格(Bragg)角。

若选择  $K=0.9$ ,用  $CuK\alpha_1$  靶( $\lambda=1.54056 \text{ \AA}$ ),伊利石 10Å 峰的布拉格角( $\cos\theta=0.997$ ),则上述方程近似为:

$$N \cdot d \approx 1.40 / (B - B_0)$$

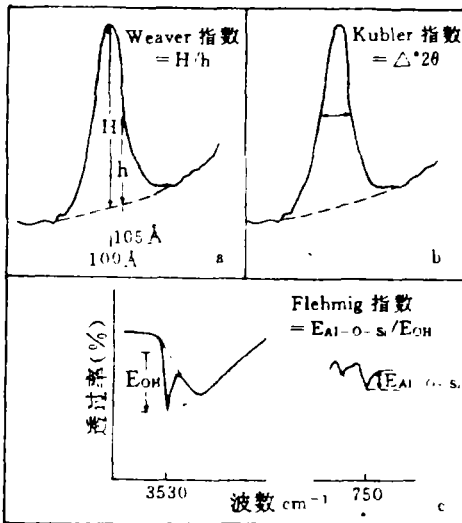


图 1 表征伊利石结晶度的 Weaver 指数(a)、Kubler 指数(b)及 Flehmig 指数(c)的测量和计算方法(据 Frey,1987)

Fig. 1 Definition of illite "crystallinity" indexes. The Weaver index (a), Kübler index (b) and Flehmig index (c)

这里,  $B_0$  代表标准云母的 Kübler 指数。不过, 由于计算上的不便及  $K$  值取值范围的变化, 上述指数目前已很少为粘土学术界所用。

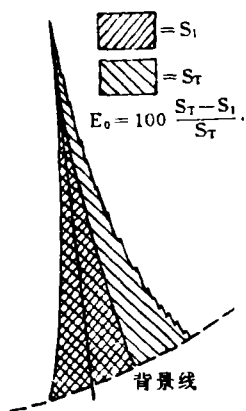


图2 沉积伊利石展势的测量

(仿 F. Mellieres 和 H. Perez-Nieto, 1973)

Fig. 2 Measurement of depositional illite "opening status"

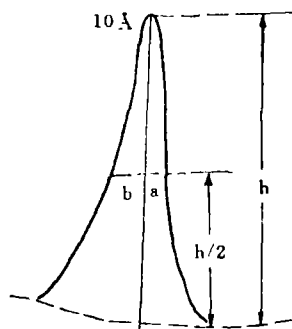


图3 伊利石开形指数与结晶

指数计算图示(据任磊夫, 1984)

$N_s = b/a$  (开形指数)  $C_R = h/N_s$  (结晶指数)

Fig. 3 Methods of measuring of "Opening index" and "crystallizing index" of illite

### 1.7 开形指数及结晶指数

开形指数( $N_s$ )即不对称指数(Non-symmetry index), 是任磊夫教授(1984)提出的又一种以伊利石 10 Å 峰开放度来衡量伊利石结晶程度的参数。该指数的测定方法如下: 以常规实验条件对已制成的伊利石定向样进行扫描, 从测出的伊利石  $d=10$  Å 峰顶作垂线, 以其半高峰两侧的宽度在高角度一侧令其为  $a$ , 在低角度一侧令其为  $b$ , 则开形指数为  $N_s = b/a$  (图3)。伊利石结晶度越高, 则  $N_s$  越小并趋近于 1; 当伊利石结晶度越低时,  $N_s$  值就越大。

当  $N_s = 1$  即  $b = a$  时, 就应用结晶指数, 其表达式为  $C_R = h/N_s$ 。

开形指数是一个比例数, 因此只要仪器符合精度要求, 所得比值原则上不会受到仪器、实验两条件的影响。我们在实际工作中发现, 这种测定、计算伊利石结晶度的方法, 既简便、迅速, 又符合客观实际, 在建议国内同行统一使用、以利对比的同时, 我们还建议: 对伊利石 10 Å 峰扫描时, 若能(1)放慢扫描速度; (2)放大角距, 就可使  $a$ 、 $b$ 、 $h$  的读数更准确, 所求开形指数、结晶指数的精度更高。

### 1.8 Flehmig 指数

到目前为止, Flehmig 指数是唯一的非 X 射线手段测定伊利石的结晶度指数。

Flehmig(1973)提出, 在伊利石红外光谱曲线图上, 测量出  $750\text{cm}^{-1}$  ( $E_{\text{Al-O-Si}}$ ) 和  $3630\text{cm}^{-1}$  ( $E_{\text{OH}}$ ) 两个吸收带的湮灭比(extinction ratio)即为伊利石的结晶度, 并定义为 Flehmig 指数(如图 1(c))。该方法还规定: 结晶十分良好的二八面体白云母之湮灭比( $E_{\text{Al-O-Si}}/E_{\text{OH}}$ )为 10, 那么伊利石的 Flehmig 指数变化范围在 0—10 之间。

事实上, X 射线方法主要考虑是 C 轴方向的无序性, 而红外方法则更注重所有结晶方向

上的无序分布。

由于 Hunziker 等(1986)注意到,在 Kübler 指数与 Flehmig 指数之间存在着良好的负线性相关,因此目前多用 Kübler 指数,似乎 Flehmig 指数已被人们忽略。但是,作为测定伊利石结晶度的一种手段,其仍不失许多优越性。

## 2 伊利石结晶度指数的地质应用

不同的作者从不同的角度研究伊利石 10Å 峰形状和特征,从而产生不同的测定伊利石结晶度的方法,其目的就是利用伊利石结晶度这一指标定量地探讨伊利石自身的矿物学性质和特征,解释与伊利石有关的地质现象异常、地质作用规律。

### 2.1 划分成岩作用阶段

表 1 列出了成岩作用带(即未变带)与近变带、近变带与浅变带之间伊利石结晶度的 Weaver 指数、Kübler 指数及 Weber 指数的界限值;同时,为研究方便及对比之用,将前人研究的对应相等的锐度指数、Kübler 指数及 Weber 指数一并列于表 2 中。

表 1 伊利石结晶度指数与成岩作用阶段

Table 1 The relation between crystallinity indexes of illite and rock-formation stages

结晶度指数	未变带—近变带—浅变带	
Weaver 指数	2.3	12.1
Kübler 指数	0.42	0.25
Weber 指数	225	125

(据 Weaver(1960)、Kübler(1984)、Weber(1972a)资料整理)

表 2 不同结晶度指数间的对应相等值

Table 2 The reciprocal values among Weaver index, Kübler index and Weber index

结晶度指数	对 应 相 等 值					
锐度指数	2.5	3.5	4	5	5.8	7.1
Kübler 指数		0.17	0.20	0.25	0.29	0.35
Weber 指数	165		125		181	222

(据 Frey,1987)

任磊夫(1984)在研究庆 36 井 1197—1550m 深的伊利石 Ns 变化曲线时发现,随着深度的增加,开形指数减小而结晶指数  $C_R$  增加;当开形指数趋近于(等于 1)时峰形趋于对称,此时将进入晚期成岩或晚期成岩的末段即所谓的近变带。我们在实际工作中发现,粘土矿物结晶度随深度出现有规律的变化并非只有伊利石,蒙脱石也有类似的变化规律。

Brauckmann(1984)发现,石英—伊利石氧同位素温度与成岩作用、伊利石结晶度(Weber 指数)间有很好的关系<sup>[11]</sup>,如表 3。氧同位素和流体包裹体数据表明,近变带与成岩带的界限温度为 255℃,而近变带与浅变带的边界温度是 300℃。这一结果与各带中伊利石结晶度及其他方法推出的温度相一致或吻合。

### 2.2 与变质作用关系

Teichmüller 等(1979)注意到,随着板岩向糜棱岩化作用强度的增加,伊利石结晶度下降(表 4,这里需注意,  $Hb_{0.01}$  值越大,伊利石结晶度越差)。其机制如下:引起原油糜棱岩化的作用力使伊利石的机械逆冲方式产生局部晶后形变,从而形成晶格缺陷;糜棱岩化作用的强度增加,伊利石晶格缺陷增多,其晶体结构内原有的有序特征遭到破坏,从而伊利石的结晶程度下降。

不同作者对不同地区区域地质作用产生的伊利石结晶度与相对应的变质相的研究表明,

不同的变质矿物相具有不同的伊利石结晶度,进而反映不同的变质温压条件和变质程度。

表3 成岩作用级别与伊利石 Weber 指数、  
氧同位素间的关系

Table 3 The relations between the grades of  
rock-formation and Weber index of illite,  
and oxygen isotope temperature

成岩作用级别	伊利石 Weber 指数	氧同位素温度
低级	400—500	90—110°C
中级	300	125—130°C
高级(近变质)	150—200	145—155°C

(据 Braukmann, 1984)

表4 伊利石结晶度与糜棱  
岩化作用的关系

Table 4 The relation between  
illite crystallinity and  
mylonitization of slate

岩石类型	糜棱岩化程度	H <sub>brill</sub> 值
板岩	无糜棱岩化	165
板岩	局部糜棱岩化	184
板岩	广泛糜棱岩化	234

(据 Teichmüller 等, 1979)

另一方面, Roberts 和 Merriman (1985) 发现, 如果大范围研究区为强烈构造活动区, 则出现较高的伊利石结晶度; 反之则为较小的伊利石结晶度, 表明, 构造形变强弱与伊利石结晶度之间存在一致的关系。Nyk (1985) 还发现, 在小范围单一向斜褶皱露头上, 伊利石 Flehmig 指数会随着构造应力的增加而增大; 我们的实际研究还表明了这样一个具有意义的事实: 向斜褶皱的缓倾翼内伊利石 Flehmig 指数总是小于同一水平位置上陡倾翼内 Flehmig 指数。这不仅与前述伊利石结晶度(开形指数)随深度的增加而出现的变化规律(伊利石结晶程度也增加)相一致, 而且还表明, 构造运动产生的形变越强, 伊利石 Flehmig 指数越大, 其结晶程度就越高。因此, 构造形变的强弱与伊利石结晶度之间存在一致的关系不仅表现在以上所述的大范围研究区, 小范围研究区乃至向斜露头也会发生。

从已有文献来看, 探讨伊利石结晶度指数与区域煤化程度间的关系, 可能是目前伊利石结晶度指数应用于变质作用较多而且是较成功的方面, 更确切地说, 两者间的关系愈来愈受到人们的注目和重视。Wolf (1975) 的研究表明, 随着镜质体反射率( $R_{max}$ , %)的增大, 伊利石结晶度指数  $H_{brill}$  值将减小; 当处于埋藏变质时, 这一线性关系的斜率较大; 当处于岩浆活动而产生的变质条件下, 这一关系的斜率较低。

### 2.3 在矿物学上的应用

伊利石除其他多型外, 更普遍的则是以  $1M_d$  和  $2M_1$  两种多型出现。自然界存在着  $1M_d \rightarrow 2M_1$  的多型转变现象。多数作者注意到  $1M_d \rightarrow 2M_1$  的转变增强了变质作用的强度, 两者间具有良好的线性相关, 因此对于样品中  $2M_1$  多型的含量可以利用已测出的伊利石结晶度指数来估计, 进而评估成岩作用的级别。

Hunziker 等 (1986) 认为, 随着成岩作用强度的增加, 岩石中伊利石 Kibler 指数下降即伊利石结晶程度增高, 伊利石晶体结构内部负电荷及  $K_2O$  含量会随之增加。我们认为, 这一结论或许仅适合于 Hunziker 等 (1986) 的研究区, 并不符合自然界成岩作用的普遍规律, 因为在成岩作用强度增加的过程中, K 元素的淋滤作用与固着作用的机会均等。如果由于伊利石晶体结构内类质同象对  $K^+$  离子置换而出现负电荷增加是符合 Hunziker 等 (1986) 的结论, 那么  $K_2O$  也随之增加就不足以令人信服, 况且类质同象置换增加了伊利石的结晶程度证据不足; 另一方面, 如果  $K_2O$  含量增高即 K 元素的固着作用增强而使伊利石结晶程度增高这一结论是正确

的,那么所需的类质同象置换就减少,因而总负电荷增加就令人怀疑。

Breitschmid(1980)等认为,伊利石在空气干燥后的结晶度与乙烯乙二醇饱和处理后的结晶度并不一致,两者间具有一定的正线性关系,但对于成岩带的伊利石而言,两者间的差别较大,部分可差一倍。根据伊利石的晶体结构特征及其成分特点,笔者认为,伊利石的结晶度无论是空气干燥还是经乙烯乙二醇处理,两者间的差异应较小。上述资料中的成岩带伊利石,可能相当于含少量膨胀层的伊利石/蒙脱石混层类粘土矿物。

Brauckmann(1984)认为,同一样品中绿泥石结晶度与伊利石结晶度之间,具有良好的正线性关系,而且近似相等。我们认为,这一结论对于中、碱性地质环境内的样品可以适用,对于pH值较小的酸性环境内的样品并不适用,因为酸性环境内可以形成结晶程度较好的伊利石,而绿泥石或难以形成(绿泥石在酸性环境下易溶解),或晶体结构有缺陷,结晶程度自然不会太高。

另外,D. Duba 及 A. E. Williams-Jones(1983)利用伊利石结晶度指数及有机质反射率圈定了一个长约50km、宽约4km的古地槽异常带。进一步研究表明,伊利石结晶度与一个被蚀变晕包围的铜矿床关系密切,且结晶度指数由外向蚀变晕的中心系统增大,从而成功的勘探出这一具经济意义的铜矿床。

综上所述,我们认为加强对伊利石矿物学系统研究,尤其是对伊利石结晶程度的研究,将是一项十分重要、十分有意义的工作。

#### 2.4 在其他方面的应用

目前,伊利石的结晶度指数在地学上的应用不仅仅限于上述几个方面,它在其他方面也得到广泛、成功的应用。如王诗俭(1987)利用“开形指数”成功地探讨并解释了新疆塔里木盆地西南部喀什拗陷和西南拗陷晚白垩世至早第三纪海相沉积岩古地理、古气候环境及油气地质问题;Frey等(1980)的研究表明,随伊利石 Kübler 指数的增高即伊利石结晶程度的下降,流体包裹体成分 $H_2O$ 、 $CH_4$ 、 $HHC$ 会出现明显分带现象,这为进一步勘查油气藏提供了重要的基础地质材料;等等。

## 结语

本文主要总结了测定伊利石结晶度的几种方法,以及不同伊利石结晶度指数在地学上的应用。当然,随着对伊利石研究的不断深入,我们相信将会产生既适合不同研究需要、又符合野外实际现象的测定伊利石结晶度指数的方法,因而其地学意义将不断扩大和完善。

## 参 考 文 献

- 王诗俭,1987,伊利石“开形指数”的地质意义探讨,沉积学报,5卷1期,53—68页。  
任磊夫、陈芸菁,1984,从粘土矿物的转变讨论沉积或岩到变质过程的阶段划分,石油与天然气地质,5卷4期,325—334页。  
杨献忠,1987,蒙脱石矿物的结晶度及其地质意义初探,南京地质矿产研究所所刊,8卷3号,71—80页。  
Brauckmann F. J., 1984, Hochdiagenesis im Muschelkalk der Massive von Bramsche und Vlotho. Bochumer geol. geotech. Arb. V. 14.  
Breitschmid A., 1982, Diagenese und schwache metamorphose in den sedimentaren abfolgen der Zentralschweizer Alpen, E-clogae geol. Helv. 75, p. 331—380.  
Duba D. and A. E. Williams-Jones, 1983, The Application of Illite Crystallinity, Organic Matter Reflectance, and Isotopic Techniques to Mineral Exploration: A case study in south-Western Gaspe, Quebec. Economic Geology, V. 78, N.

7. p. 1350—1363.
- Dunoyer G. de Segonzac. 1968. The birth and development of the concept of diagenesis. *Earth Sci. Rev.* V. 4, p. 153—201.
- Frey M. . 1987. Low temperature metamorphism. Blackie, Glasgow and London, Published in the USA by Chapman and Hall, New York.
- Frey M. , et al. , 1980, Very Low-grade metamorphism in external parts of the Central Alps: Illite crystallinity, coal rank and fluid inclusion data. *Eclogae geol. Helv.* 73, p. 173—203.
- Hunziker J. C. , et al. , 1986, The evolution of illite to muscovite: Mineralogical and isotopic data from the Glarus Alps, Switzerland. *Contrib. Miner. Petrol.* V. 92, p. 413—427.
- Kubler B. , 1964. Les argiles, indicateurs de metamorphisme. *Rev. Inst. Franc. Petrol.* V. 19, p. 1093—1112.
- Flehmig W. , 1973. Kristallinitat und infrarotspekopie naturolicher dioktaedrischer illite. *Neues Jb. Miner. Mh.* , p. 351—361.
- Kübler B. , 1968. Evaluation quantitative du metamorphisme parla cristallinite de l'illite. *Bull. Centre Rech. Pau-SNPA* V. 2, p. 385—397.
- Nyk R. , 1985, Illite crystallinity in Devonian slates of the Meggen mine (Rhenish Massif). *Neues Jb. Miner. Mh.* 1985 (6), p. 268—276.
- Roberts B. and R. J. Merriman, 1985, The distinction between caledonian burial and regional metamorphism in metapelites from North Wales; an analysis of isocryst patterns. *J. Geol. Soc. London* 142(4), p. 615—624.
- Weaver C. E. , 1960. Possible uses of clay minerals in search for oil. *AAPG.* V. 44, p. 1505—1518.
- Weaver C. E. and B. R. Broekstra, 1984. Illite-Mica. In *Shale-Slate Metamorphism in Southern Appalachians*, eds. C. E. Weaver et al. , *Developments in Petrology* 10. Elsevier, Amsterdam, p. 67—97.
- Weber K. , 1972a. Notes on the determination of illite crystallinity. *Neues Jb. Mineral Mh.* , p. 267—276.
- Teichmüller M. and R. Teichmüller. 1979a. Diagenesis coal (coalification). In *Diagenesis in sediments and sedimentary rock*, Vol. 1, eds. G. Larsen and G. V. Chilingar, *Developments in Sedimentology* 25A, Elsevier, Amsterdam p. 207—246.
- Wolf M. , 1975. Ueber die Beziehungen zwischen Illite-Kristallinitat und Inkohlung. *Neues. Jb. Geol. Palaont. Mh.* , p. 437—447.

## Illite Crystallinity and Its Geological Significances

Yang Xianzhong

(Nanjing Institute of Geology and Mineral Resources, Nanjing, 210016)

### Abstract

According to the shapes and characteristics of the first basal reflection of illite, i. e.  $d=10\text{Å}$ , this paper sums up some methods for measuring the crystallinity indexes of illite, including Weaver index, Kübler index and Acute index, Openness index, Weber index, Weber—Dunoyer de Segonzac—Economou index, Opening index and Crystallizing index, and Flehmig index. Each of the indexes may be used as the estimation of crystallizing degree of illite. Based on the variation of the different crystallinity indexes of illite, and the uses in geology are also summarized in the paper.