

文章编号: 1000-6524(2004)04-0346-05

# 裂变径迹长度测量的标准化研究

汤云晖, 袁万明, 韩春明, 董金泉, 王世成

(中国科学院 高能物理研究所, 北京 100039)

**摘要:** 总结了影响裂变径迹长度测量的主要因素——蚀刻程序和测量误差, 提出了对应的解决方法: 采取统一的蚀刻程序和蚀刻标准, 确立长度参照标准。由于锆石铀含量具有差异, 蚀刻标准是锆石长度测量标准化的主要研究内容。

**关键词:** 裂变径迹; 长度测量; 标准化; 影响因素; 解决办法

中图分类号: P597; P575.9

文献标识码: A

## The standardization of length measurement of fission track

TANG Yun\_hui, YUAN Wan\_ming, HAN Chun\_ming, DONG Jin\_quan and WANG Shi\_cheng

(Institute of High Energy Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100039, China)

**Abstract:** This paper deals with standardization of length measurement in fission track thermochronology and describes the main factors affecting the length measurement, etching procedure and measurement error. The application of the same etching procedure and etching standard and the establishment of a reference for length measurement are proposed in this paper. As for zircon, because of different contents of uranium, the etching standard is the main research contents for the standardization of length measurement.

**Key words:** fission track; length measurement; standardization; affecting factor; resolvent

裂变径迹研究, 是利用磷灰石、锆石等含 $^{238}\text{U}$ 矿物的裂变径迹密度、长度分布形态确定地质历史时期地质体热历史的一种方法。近年来, 该研究在地球构造运动、盆地物源分析等方面取得了广泛的应用。裂变径迹长度是热历史反演的主要依据, 也是构造运动、地质体变化解释的支持性信息来源之一, 可以为地质事件年代测定、地质体的冷却和抬升研究以及沉积盆地古地温分析等提供有价值的热历史信息。通过裂变径迹的长度分布形态研究可以确定岩体的冷却状况; 采用裂变径迹反演模型, 可以推导出从晶体的封闭温度直至地表温度的时间-温度曲线。随着裂变径迹研究在地质领域的广泛开展, 磷灰石用于热历史反演产生了良好效果, 锆石的退火

研究开始受到重视, 裂变径迹长度测量的标准化开始提上了研究日程(Hurford, 2001; Barbarand *et al.*, 2003)。

## 1 研究的现状

裂变径迹定年是 20 世纪中期出现的一种定年方法, 它利用磷灰石、锆石等的自发径迹与诱发径迹密度的比值来确定热事件发生年龄。为了简化实验程序和统一实验室数据, 1988 年, 裂变径迹工作者采用 Fish Canon Tuff 等地的样品为标准年龄矿物, 制定了裂变径迹定年刻度 Zeta 标准化方法, 使不同实验室之间的年龄数据可以相互对比(Green, 1985;

收稿日期: 2004-02-03; 修订日期: 2004-07-26

基金项目: 中科院核分析开放实验室基金资助项目

作者简介: 汤云晖(1971-), 女, 博士, 专业方向: 核技术在资源环境领域的应用。

Miller *et al.*, 1985)。但是,对裂变径迹长度测量的标准化仍没有得到足够的重视。而早在1992年,Philadelphia实验室就发现实验室长度数据的变化比估计的大得多(Miller *et al.*, 1993)。

在漫长的地质历史时期,矿物由于铀裂变而产生径迹,径迹随着时间增加而增多。然而一旦再次受到热作用,不仅会使裂变径迹长度缩短,裂变径迹密度也会相应减小,因此所得的裂变径迹表现年龄并不能真正反映地质事件发生的时间(Green, 1988)。早期研究者通过表面径迹的长度测量对年龄进行校正(Grivet *et al.*, 1993),后来随着磷灰石退火性质的研究,各种退火模式陆续提出,通过正演和反演程序的编制,很容易通过磷灰石的长度分布形态,反演出从其封闭温度至完全冷却的时间-温度变化过程(Carlison *et al.*, 1999),径迹长度在裂变径迹应用中起到不可替代的作用。

然而,磷灰石的裂变径迹数据只能反映120℃以下的热历史。为反映较高温度的热历史,研究者普遍转向中温区域的锆石,纷纷开始对锆石退火性质的研究(Tagami *et al.*, 1990; Yamada *et al.*, 1995a, 1995b; Galbrath and Laslett, 1997)。锆石的退火研究,目前主要以裂变径迹长度的变化为研究对象。锆石中的铀含量差别很大,铀含量不同的锆石蚀刻时间也不同。锆石蚀刻时间的不统一,导致了样品的裂变径迹长度难以对比。

## 2 研究内容

### 2.1 测量对象

长度测量可分为表面径迹的投影长度测量(projected length)、真实长度计算(true length)和晶体内的封闭径迹长度测量(TINT)。前二者是早期研究常用的方法,与径迹密度相配合使用。投影长度,为与表面相交的自发径迹在水平面上的长度,呈三角形分布,含较高比例的短径迹,偏离度较大。真实长度是通过Pythagoras法则(勾股定理)将垂直分量添加于所测的水平分量上得到的,形态倾向于呈长方形分布。这两种长度均不能代表相应于全射程的长度,尽管如此,在裂变径迹实际应用的早期,投影长度已应用于热历史分析。通过投影长度进行裂变径迹年龄校正,既可用于年龄计算,也能用于热历史分析,是它的一大优势(Wagner and Hejl, 1991; Grivet *et al.*, 1993)。1990年以来,主要使用的是封闭径迹

(TINT),其长度相当于全射程的长度。封闭径迹是处于晶体表面之下的径迹,由于与表面径迹或裂隙相通,导致蚀刻剂渗入,在晶体内被蚀刻而形成。其测量值呈正态分布,其长度平均值刚好对应于中值位置,能消除以上两种测量方式所带来的误差(Green, 1981)。由于封闭径迹的数量很少,采用<sup>252</sup>Cf源辐照处理磷灰石和锆石,以增加颗粒中封闭径迹的数量,对裂变径迹的应用起到了促进作用。

平行于水平面的封闭径迹,被称为水平封闭径迹(HCT),由于不需测量垂直分量就能提供足够的精度,是目前长度测量采用的方法之一。

### 2.2 影响因素

裂变径迹的长度受多种因素的影响,例如样品的化学成分、退火的各向异性以及实验条件等。采用化学蚀刻、肉眼观测的传统测量方式,误差是不可避免的。在实验室测量方面,长度的偏差主要源于两个方面:测量误差和蚀刻程序。

#### (1) 测量误差

测量误差包括由仪器设备、分析程序等导致的系统误差和观测者的人为误差。Seward等(2000)对不同实验室的Fish Canyon Tuff磷灰石的自发封闭径迹长度测量结果进行了分析统计。由于设备、分析程序、样品粒度等原因产生的系统误差,由有经验的观测者重复测量,误差约为3%(最高可达18%),由不同观测者使用同样的设备观测同一样品,误差为约5%(最高可达30%)。观测者的人为误差主要在于个人技术的不同及测量的可重复性。Hurford(2001)报道了5个裂变径迹工作者对在同一实验室、同一显微镜下观察同一样品(320℃退火10小时的磷灰石)的测量结果,4人得到了不同宽度的双峰模式(图1),平均长度略有偏差(6.98~7.31 μm),另一人则得到了与众不同的单峰模式。

测量时,误差主要出现在短径迹上。据统计(Barbarand *et al.*, 2003),对于>14 μm的水平封闭径迹,不同观测者的结果没有什么不同,偏差仅0.07~0.10 μm;9~14 μm的径迹,不同的观测者间出现了明显的差异,偏差0.10~0.20 μm;<9 μm的径迹,平均偏差0.35 μm,甚至可出现大于1 μm的偏差。

#### (2) 蚀刻程序

蚀刻程序包括蚀刻温度、蚀刻剂种类和浓度、蚀刻时间以及不同径迹产生方式等。蚀刻条件不同,肯定会产生不同的长度,这是目前长度测量不能统

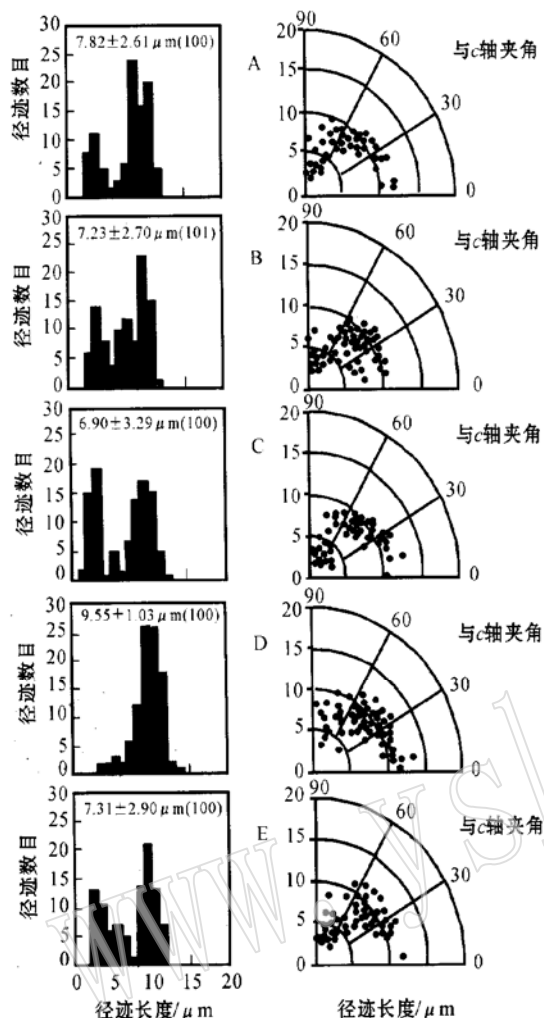


图1 5个分析者对同一个磷灰石样品(320℃退火10 h)封闭径迹长度的测量结果(Hurford, 2001)

Fig. 1 Comparison of confined track length measurements by five analysts upon the same apatite sample (annealed at 320 °C for 10 hours)

的一个主要原因。在同一个颗粒上,由不同的方法产生的径迹,也会有差异,例如由表面径迹产生的封闭径迹(TINT)与由裂隙产生的封闭径迹(TINCLE)的平均长度值、长度分布形态之间存在差异,对平均径迹长度短于12 μm的样品,TINCLE一般较长,且高角度范围短径迹少,能有效地掩盖退火各向异性;重离子轰击产生的TINT存在3%的偏差,平均长度小于14 μm的径迹,在辐照样品上可观察到轻微的平移现象(Barbarand *et al.*, 2003)。

磷灰石的径迹蚀刻程序基本上已经统一,目前普遍采用的是在20~25℃的5N HNO<sub>3</sub>中蚀刻20 s,

有的在时间、温度上稍有偏差。由于采用同样的蚀刻程序,目前磷灰石的长度测量并不存在很大的问题。由磷灰石晶粒的F、Cl成分导致的差异,可以通过每个颗粒的 $D_{par}$ 值(与c轴垂直的表面径迹的开口宽度)来进行校正(Barbarand *et al.*, 2003)。

目前锆石的蚀刻程序基本一致,采用NaOH、KOH为蚀刻剂,但由于不同颗粒铀含量的差异及α损伤程度不同,导致蚀刻时间的差距很大。例如在210~230℃温度下,采用NaOH、KOH熔体,Fish Canon Tuff 锆石蚀刻时间为4~60 h, Buluk Tuff 锆石为13~55 h;即使提高温度(220~230℃),蚀刻时间还是相当长,分别缩短为20~30 h和30~55 h (Garver, 2003)。

## 2.3 解决方法

### 2.3.1 统一的蚀刻程序和蚀刻标准

长度测量标准化的主要内容是统一蚀刻程序与蚀刻标准,尤其是锆石的蚀刻。锆石的蚀刻要考虑晶体的各向异性、铀含量的差异以及其他杂质的影响,过蚀刻是影响锆石径迹长度的主要因素(Yamada *et al.*, 1993)。由于难以确定统一的蚀刻时间,理论上应该得到一致读数的退火锆石,在测量时可能得到不同的长度;即使是同一样品,理论上退火样品的诱发径迹长度应大于未退火样品的自发径迹长度,而在实际测量时也并非如此(表1)。

通常的锆石蚀刻程序(Hasebe *et al.*, 1994)如下:选取晶形完好的锆石晶体,按其c轴定向放置,镶嵌于聚全氟乙丙烯塑料片中;将晶粒研磨、抛光,露出内表面,在225±2℃温度的KOH/NaOH中进行蚀刻。测量采用的是水平封闭径迹HCT。Yamada等(1995a, 1995b, 1998)采取了类似的蚀刻程序,蚀刻温度248±1℃或221±2℃,主要差别在于蚀刻温度。蚀刻速率与蚀刻温度之间呈指数关系,过高的温度可能导致蚀刻过程难以控制,发生所有晶粒完全过蚀刻现象;过长时间的蚀刻又可能导致α损伤的恢复,所以目前普遍采用220~225℃的蚀刻温度。

Hasebe等(1994)采用 $D_{par}$ 为1 μm(自发径迹)2 μm(诱发径迹)为锆石的蚀刻标准。自发与诱发径迹采取不同的标准,是因为α损伤会导致蚀刻的各向异性,而退火过程会导致α粒子辐照所带来损伤的恢复。Yamada等(1995a)刚开始采用了自发、诱发径迹同样的蚀刻标准( $D_{par}$ 为2 μm)以及 $D_{HCT}$ (水平封闭径迹宽度)为1±0.5 μm的附加标

表1 锆石年龄标准样品的水平封闭径迹长度测量

Table 1 Horizontal confined track length of age standard samples of zircon

样品	裂变径迹年龄/Ma	平均长度 ± 标准偏差(μm)			
		自发径迹 $L$	自发径迹 $L_{60}$	诱发径迹 $L$	诱发径迹 $L_{60}$
BM4	16.3 ± 0.2	10.65 ± 0.73	10.48 ± 0.72	10.83 ± 0.65	10.78 ± 0.52
FCT	27.77 ± 0.08	10.78 ± 0.77	10.67 ± 0.73	10.68 ± 0.64	10.61 ± 0.63
MDC	98.7 ± 0.6	10.58 ± 0.99	10.45 ± 0.83	10.64 ± 0.85	10.65 ± 0.80

注:  $L$ —所有水平封闭径迹平均长度;  $L_{60}$ —与  $c$  轴夹角大于  $60^\circ$  的 HCT 平均长度(Hasebe *et al.*, 1994)。

准; 后来, 又采用自发径迹  $D_{par}$  为  $1 \mu\text{m}$ 、诱发径迹  $D_{par}$  为  $2 \mu\text{m}$  的蚀刻标准(Yamada *et al.*, 1995b); 再后, 对于不同类型的径迹, 分别采用了自发径迹 TINCLE 为  $1 \mu\text{m}$ 、TINT 为  $2 \mu\text{m}$  的蚀刻标准, 以及  $D_{HCT}$  为  $1 \pm 0.5 \mu\text{m}$  的附加标准(Yamada *et al.*, 1998)。

蚀刻标准采用  $D_{HCT}$ 、 $D_{par}$  是值得考虑的。 $D_{par}$  为表面径迹的开口宽度值,  $D_{HCT}$  为晶体中的水平封闭径迹宽度值, 在同样的蚀刻条件下  $D_{par}$  大于  $D_{HCT}$ 。要想使晶体中的径迹达到与表面一样的宽度, 显然需要更多的时间。Yamada 和 Hasebe 提出的测量标准, 都是用于低铀、低径迹密度的年轻锆石, 对于自然界广泛存在的高铀含量、高径迹密度的锆石, 可能造成蚀刻过度、适于测量的径迹缺乏。天然产生的封闭径迹, 150~300 个颗粒可能有约 50 个水平封闭径迹, 不适于应用需要。 $^{252}\text{Cf}$  轰击产生的封闭径迹长度, 应是今后主要的使用方法, 由于两者深入晶体的程度不同, 蚀刻标准也应有所考虑。

### 2.3.2 确立长度参照标准

如何降低测量误差, 得到各实验室可相互对比的数据, 已成为裂变径迹长度测量标准化研究的一个重要课题。此前, 裂变径迹年龄也存在类似的问题, 以 Fish Canon Tuff 等地迅速冷却的火山型磷灰石、锆石作为年龄标准, 采用 CN2、CN5 铀玻璃为铀含量标准, 在同样的条件下用未知者的径迹密度与已知者相比, 可得到世界通用的裂变径迹年龄。

针对长度测量, 研究者提出了确立裂变径迹的长度参照标准, 用作长度测量的参照物。Barbarand 等(2003)进行了一系列实验, 提出了自己的蚀刻程序及磷灰石参照标准长度: 选择迅速冷却的火山型磷灰石及其退火样品, 其封闭径迹长度范围为  $14\sim 18 \mu\text{m}$ , 平均长度为  $16.3 \pm 0.9 \mu\text{m}$ , 呈狭窄的高斯分布(图 2a)。初学者可以通过对年龄标准样品的长度测量, 检验自己的蚀刻程序与测量精度。

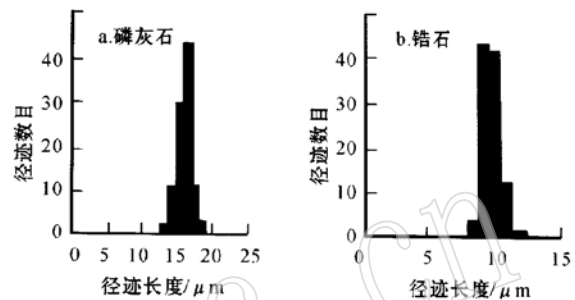


图2 磷灰石(退火)诱发封闭径迹长度(Green, 1981)和火山型锆石自发封闭径迹长度分布图(Yamada 等, 1995b)

Fig. 2 Length distribution for induced tracks of annealing apatite and spontaneous tracks of volcanic zircon

至于锆石, Hasebe 等(1994)通过对 11 个样品的诱发径迹和 3 个锆石年龄标准的自发径迹研究, 提出了锆石长度的蚀刻程序及参照标准长度。迅速冷却的火山型锆石及其退火样品的封闭径迹长度分布均呈窄的高斯分布, 平均长度为  $10.5\sim 11.0 \mu\text{m}$ (图 2b)。迅速冷却的锆石与  $c$  轴夹角大于  $60^\circ$  的自发径迹平均长度为  $10.50 \pm 0.04 \mu\text{m}$ 、标准偏差为  $0.76 \pm 0.03 \mu\text{m}$ , 退火样品的诱发径迹平均长度  $10.73 \pm 0.04 \mu\text{m}$ 、标准偏差  $0.63 \pm 0.03 \mu\text{m}$ 。由于锆石晶体的各向异性, 垂直于  $c$  轴的封闭径迹长度明显比平行于  $c$  轴的短; 年龄标准样品的自发径迹与  $c$  轴成  $60\sim 90^\circ$ , 其水平封闭径迹长度分布与所有退火样品的诱发径迹基本相当。因此, 建议选取测量较高角度( $60^\circ$ 以上)的径迹平均长度为长度标准。

长度标准样品的提出, 为降低观测者误差和长度统一问题提出了初步的解决方法。

## 3 结论

随着裂变径迹应用的发展, 裂变径迹长度测量的标准化日益变得重要起来。根据径迹长度来再造地质热历史, 不仅要考虑长度测量的影响, 还要考虑

晶体退火的各向异性以及其他影响因素(例如成分、均匀性等)对径迹长度的影响。

总之,对裂变径迹长度测量的标准化研究,虽然提出了以上两种解决方法,但还处于初期阶段,有待于进一步研究。

## References

- Barbarand J, Hurford T and Carter A. 2003. Variation in apatite fission-track length measurement: implications for thermal history modeling [J]. *Chemical Geology*, 198: 77~ 106.
- Carlson W D, Donelick R A and Ketcham R A. 1999. Variability of apatite fission-track annealing kinetics: I. Experimental results [J]. *American Mineralogist*, 84: 1 213~ 1 223.
- Galbraith R F and Laslett G M. 1997. Statistical modeling of thermal annealing of fission tracks in zircon [J]. *Chemical Geology*, 140: 123~ 135.
- Garver J I. 2003. Etching zircon age standards for fission-track analysis [J]. *Radiation Measurements*, 37: 47~ 53.
- Green P F. 1981. "Track\_in\_track" length measurements in annealed apatite [J]. *Nucl. Track*, 5: 121~ 128.
- Green P F. 1985. Comparison of Zeta calibration baseline for fission track dating of apatite, zircon and sphene [J]. *Chem. Geol.*, 58 (1): 1.
- Green P F. 1988. The relationship between track shortening and fission track age reduction in apatite: combined influences of inherent instability, annealing anisotropy, length bias and system calibration [J]. *Earth. Planet. Sci. Letter.*, 89: 335~ 352.
- Grivet M, Rebetez M, Ben Chouma N, *et al.* 1993. Apatite fission-track age correction and thermal history analysis from projected track length distributions [J]. *Chemical Geology (Isotope Geoscience Section)*, 103: 157~ 169.
- Hasebe N, Tagami T and Nishimura S. 1994. Towards zircon fission-track thermochronology: reference framework for confined track length measurements [J]. *Chemical Geology (Isotope Geoscience Section)*, 112: 169~ 178.
- Hurford T. 2001. Length measurement, annealing and kinetic models: are we still out to lunch [J]? *On Track*, 11 (1): 16~ 19.
- Miller D S, Duddy I R and Green P F. 1985. Results of interlaboratory comparison of fission track standard. *Fission track workshop\_1984* [J]. *Nuclear Tracks and Radiation Measurements*, 10 (3): 383~ 391.
- Miller D S, Crowley K D, Dokka R K, *et al.* 1993. Results of interlaboratory comparison of fission-track ages for the 1992 fission track workshop [J]. *Nucl. Tracks Radiat. Meas.*, 21: 613.
- Richard A K. 2000. Some thoughts on inverse modeling and length and kinetic calibration [J]. *On Track*, 10 (1): 7~ 12.
- Seward D, Spikings R, Viola G, *et al.* 2000. Etch times and operator variation for spontaneous track length measurements in apatites: an intra-laboratory check [J]. *On Track*, 10 (2): 19~ 21.
- Tagami T, Ito H and Nishimura S. 1990. Thermal annealing characteristics of spontaneous fission tracks in zircon [J]. *Chemical Geology (Isotope Geoscience Section)*, 80: 159~ 169.
- Wagner G A and Hejl E. 1991. Apatite fission-track age spectrum based on projected track length analysis [J]. *Chemical Geology (Isotope Geoscience Section)*, 87: 1~ 9.
- Yamada R, Tagami T and Nishimura S. 1993. Assessment of overetching factor for confined fission-track length measurement in zircon [J]. *Chemical Geology (Isotope Geoscience Section)*, 104: 251~ 259.
- Yamada R, Tagami T, Nishimura S, Ito H. 1995a. Annealing kinetics of fission tracks in zircon: an experimental study [J]. *Chemical Geology*, 122: 249~ 258.
- Yamada R, Tagami T and Nishimura S. 1995b. Confined fission-track length measurement of zircon: assessment of factors affecting the paleotemperature estimate [J]. *Chemical Geology (Isotope Geoscience Section)*, 119: 293~ 306.
- Yamada R, Tyoshioka T, Watanabe K, *et al.* 1998. Comparison of experimental techniques to increase the number of measurable confined fission tracks in zircon [J]. *Chemical Geology*, 149: 99~ 107.

## 声 明

台湾中文电子期刊服务——思博网(CEPS)是目前台湾地区最大的期刊全文数据库,目标为整合全球各地中文期刊出版内容,以满足全球中文人口的知识需要。目前思博网已收录台湾地区300余种核心期刊,并于2004年4月正式进入大陆。

本刊自2004年8月起加入思博网。自此,读者可以通过思博网网址 [www.ceps.com.tw](http://www.ceps.com.tw) 检索《岩石矿物学杂志》自1997年起各期的全文。由于《岩石矿物学杂志》被CEPS收录,今后凡向本刊投稿者,均视为其文稿刊登后可供思博网收录、转载并上网发行,其作者文章著作权使用费与稿酬由本刊一次付清,不再另付其他报酬。

请各位继续支持本刊,谢谢!

《岩石矿物学杂志》编辑部

2004年11月15日