

磷灰石裂变径迹年龄测试分析新方法 ——激光剥蚀-ICPMS法

李天义^{1,2}, 周雁¹, 方石³, 何生², 何治亮⁴, 樊德华¹

(1. 中国石化石油勘探开发研究院 构造与沉积储层实验室, 北京 100083; 2. 中国地质大学 构造与油气资源教育部重点实验室, 湖北 武汉 430074; 3. 吉林大学 地球科学学院, 吉林 长春 130061; 4. 中国石化石油勘探开发研究院, 北京 100083)

摘要:详细介绍了一种全新的磷灰石裂变径迹表观年龄测试分析方法——激光剥蚀-ICPMS法。通过新、老方法测试分析结果对比,认为两种方法所获得3种标准样品磷灰石裂变径迹表观年龄基本一致;测试分析的4块钻井碎屑岩样品表观年龄、单颗粒年龄及U含量的分布特征也基本一致。样品两组年龄均反映同一期构造抬升冷却事件。通过新、老方法测试分析流程对比认为,激光剥蚀-ICPMS法测定磷灰石裂变径迹表观年龄,省去热中子辐照、云母片外探测器蚀刻及诱发径迹统计等诸多程序,比传统的外探测器法步骤更为快捷、方便,缩短了样品测试分析的周期,降低了人为因素对测试结果的影响,更能确保样品测试结果的准确性和可再现性,有可能成为未来裂变径迹定年的主流实验方法。然而,目前激光剥蚀-ICPMS法裂变径迹定年在径迹蚀刻是否对磷灰石颗粒中²³⁸U含量造成影响、激光剥蚀深度、磷灰石颗粒U含量不均匀性及与磷灰石性质相似的标准样品选取等方面仍然存在问题,需进一步加强研究。

关键词:磷灰石;激光剥蚀;电感耦合等离子体质谱;裂变径迹定年

中图分类号:TE132.1

文献标识码:A

A new method for apatite fission track dating—the Laser-ICPMS method

Li Tianyi^{1,2}, Zhou Yan¹, Fang Shi³, He Sheng², He Zhiliang⁴, Fan Dehua¹

(1. Laboratory of Structural and Sedimentological Reservoir Geology, Exploration & Production Research Institute, SINOPEC, Beijing 100083, China; 2. Key Laboratory of Tectonics and Petroleum Resource of Ministry of Education, China University of Geosciences, Wuhan, Hubei 430074, China; 3. College of Earth Sciences, Jilin University, Changchun, Jilin 130061, China; 4. Exploration & Production Research Institute, SINOPEC, Beijing 100083, China)

Abstract: In this paper, a new method for apatite fission track dating using Laser-ICPMS is introduced in detail. The fission track ages of three international standard samples determined by using the new method and the conventional external detector method are basically in consistency. The test results of four clastic rock core samples, including apparent fission track ages, single grain ages and U contents are also basically the same for the new and conventional methods. The two group of ages may reflect the same tectonic uplift cooling event. As it eliminates several steps such as thermal neutron irradiation, mica ablation and induce fission track accounting, the new method is more rapid and convenient than the traditional method, can shorten the cycle of testing, reduce the influence of human factors, and improve accuracy and reproducibility of the analysis results. However, the new method still has some uncertainties such as the influence of ablation on ²³⁸U content, depth of laser ablation, the influence of uneven U content and the selection of standard samples with similar property with apatite.

Key words: apatite, laser ablation, ICPMS, fission track dating

裂变径迹定年是建立在矿物²³⁸U自发裂变辐射损伤效应基础上的一种同位素测年方法。它主要运用锆石和磷灰石裂变径迹的封闭温度和退火原理,通过裂变径迹年龄和长度分布及其分带模式的研究和

分析,能有效记录古地温演化过程中温度和时间两方面的信息^[1-2]。结合裂变径迹古地温反演技术,它能够有效地重塑地壳上部3~5 km范围内的古地温演化过程,为解决沉积盆地构造热演化^[3-5]、沉积物

收稿日期:2012-09-03;修订日期:2013-07-08。

第一作者简介:李天义,男(1982—),博士,海相石油地质与含油气盆地热史分析。E-mail:tylicug@gmail.com。

基金项目:国家自然科学基金重点项目(40739904);国家自然科学基金面上项目(41072093);中石化重大基础研究项目前瞻性项目(YPH08002);国家“十一五”科技重大专项(2011ZX05005-002);中国石化石油勘探开发研究院院控项目《激光剥蚀-ICPM裂变径迹定年技术研究》。

源分析^[6-8]、造山带构造隆升^[9-11]、断裂带活动^[12]及油气勘探^[13-15]等诸多方面的地质问题提供定量年代学依据。

近年来,国内外对磷灰石裂变径迹的基础研究日趋深入,其应用领域和范围也在不断扩展。特别是最近十几年来,裂变径迹的基础研究工作在裂变径迹退火动力学^[16-20]、退火行为的主要影响和控制因素^[21-24]、多元退火模型^[25-27]、二维及三维热史反演^[28-30]以及与其姊妹测试分析技术——(U-Th)/He定年的联合应用^[31-34]等方面取得了较大的突破。除此之外,一种新的裂变径迹测试分析方法——激光剥蚀-ICPMS法^[35-36],更加引起业内人士的关注。由于该方法能够摆脱热中子辐照对裂变径迹定年技术的限制,快捷、方便,人为影响因素相对较小,测试结果准确度及可再现性高,有可能带来裂变径迹热年代学分析方法的又一次革命,成为未来裂变径迹测试的主流方法。

1 激光剥蚀-ICPMS法基本原理

传统的裂变径迹测试方法采用最广泛的是外探测器法^[1,37-39],其原理是利用白云母片外探测器间接测试磷灰石颗粒中的²³⁸U含量。即在核反应堆中通过热中子诱导磷灰石颗粒中的²³⁵U发生裂变,并利用铀含量低的白云母片作为外探测器,记录²³⁵U裂变而产生的径迹(诱发裂变径迹)。通过统计外探测器上的诱发裂变径迹的数目便可得到²³⁵U含量。然后根据自然体系中²³⁸U和²³⁵U含量的比值关系($^{238}\text{U}/^{235}\text{U} = 7.2527 \times 10^{-3}$),便可间接得到磷灰石颗粒中现今²³⁸U含量。但是,由于目前对中子通量检测^[40-41]、²³⁸U裂变常数很难准确确定^[42]、矿物颗粒向白云母片注册诱发径迹的系数^[43]等诸多方面因素的不确定性,影响测试分析结果的准确性。另外,一般辐照过程所需要的时间相对较长,特别是在2011年日本福岛核电站泄露事件后,世界各国均加大对放射性物品审查力度,样品在国际、国内输送周期加长,这也严重制约了裂变径迹定年技术的发展。

随着激光剥蚀-电感耦合等离子体质谱联用技术(Laser-ICPMS)的迅速发展,为裂变径迹定年提供了新的发展契机。这一技术早期在地学中主要用于锆石U/Pb定年,通常要求锆石中铀含量大于 $50 \mu\text{g/g}$ ^[44-45]。近几年,由于这种技术的成熟,使得磷灰石颗粒的²³⁸U含量(一般小于 $30 \mu\text{g/g}$)的直接测量成为了可能,为裂变径迹的测试提供了工作基础^[46-48]。Hasebe等2004年利用该方法进行裂变径迹定年的测试分析,并建立了相对应的年龄计算方程^[35]。即在对磷灰石进行蚀刻

和自发裂变径迹数目统计之后,使用激光剥蚀-ICPMS技术直接进行²³⁸U含量的测试,以用于年龄计算。到目前为止,该方法也主要适用于磷灰石裂变径迹定,其年龄计算方法如下文所述。根据同位素定年的基本原理,单位体积内的²³⁸U在一定的时间内发生自发衰变的个数如式(1)所示:

$$D_t = \frac{\lambda_f}{\lambda_d} N_{238} (e^{\lambda_d t} - 1) \quad (1)$$

式中: D_t 表示矿物颗粒单位体积内²³⁸U在 t 时间自发裂变的总数; N_{238} 为矿物颗粒中单位体积内²³⁸U的原子数; λ_d 为自然界中²³⁸U的总衰变常数,通常取 $1.55124 \times 10^{-10} \text{a}^{-1}$; λ_f 为²³⁸U的裂变常数。那么,矿物颗粒剖光面相交的自发径迹的密度(ρ_s)可以表示为:

$$\rho_s = \frac{\lambda_f}{\lambda_d} N_{238} (e^{\lambda_d t} - 1) R_{sp} k \quad (2)$$

式中: R_{sp} 为单位体积内²³⁸U发生衰变形成的裂变径迹与矿物颗粒剖光面相交的概率系数,通常取半个未退火的封闭径迹长度 $7.5 \times 10^{-5} [49]$; k 是常数,可能随裂变径迹蚀刻条件或观测条件不同发生变化, k 值取1。而单位体积内²³⁸U的原子数可以通过式(3)计算得到:

$$N_{238} = N_A \frac{10^{-16} {}^{238}\text{U}d}{M} \quad (3)$$

式中: N_A 为阿伏伽德罗常数; ${}^{238}\text{U}$ 为ICPMS测得的矿物颗粒中²³⁸U的含量, $\mu\text{g/g}$; d 为磷灰石矿物颗粒的密度,取 3.19g/cm^3 ; M 为²³⁸U的原子量。将式(3)代入式(2)中,并求得 t 值,得到新方法的裂变径迹年龄方程:

$$t = \frac{1}{\lambda_d} \ln \left(1 + \frac{\rho_s \lambda_d M}{10^{-16} \lambda_f N_A {}^{238}\text{U} R_{sp} k} \right) \quad (4)$$

其对应的年龄误差方程如式(5)所示:

$$S_t = t \sqrt{\frac{1}{N_s^2} + \sigma^2} \quad (5)$$

式中: S_t 为年龄误差; t 为裂变径迹表观年龄; N_s 为统计的自发裂变径迹总数; σ 为ICPMS的误差。

然而,公式(4)中部分常数选取仍然存在差异,如封闭径迹长度误差在 $\pm 3\%$ ^[50]、磷灰石颗粒的密度随矿物成分不同变化在 $\pm 1.5\%$ 之间^[22]。而 λ_f 值变化变化区间在 $5 \times 10^{-17} \sim 12 \times 10^{-17} [42]$,对裂变径迹年龄的影响相对较大。另外,概率系数 R_{sp} 和常数 k 也难以确定。因此,一个新的校正系数 ε 被用来矫正该方法的裂变径迹年龄。

$$\varepsilon = \frac{\lambda_d M}{10^{-6} \lambda_f N_A d R_{sp} k} \quad (6)$$

那么,激光剥蚀-ICPMS法裂变径迹年龄计算方程可转化为式(7),校正系数 ε 值可以通过标准样品的已知年龄求得,其计算方法如式(8)所示:

$$t = \frac{1}{\lambda_d} \ln \left(1 + \varepsilon \frac{\rho_s}{^{238}\text{U}} \right) \tag{7}$$

$$\varepsilon = \frac{^{238}\text{U}}{\rho_s} (e^{\lambda_d t_{\text{STD}}} - 1) \tag{8}$$

式中： t_{STD} 为标准样品年龄，Ma。

2 激光剥蚀 – ICPMS 法与其他方法测试过程对比

裂变径迹从发展到现在形成的定年方法主要可以分为重新蚀刻法（RE – ETCH 法）、重新抛光法（REPOLISH 法）、外探测器法及近几年发展的激光剥蚀 – ICPMS 法等^[1-2]。到目前为止，外探测器法是裂变径迹定年的主流方法；激光剥蚀 – ICPMS 法省去热中子辐照，其方法安全、快捷、方便，同时能够极大的降低了人为因素对裂变径迹年龄的影响，很有可能成为未来裂变径迹定年的最主要方法。本文将主要对比外探测器法和激光剥蚀 – ICPMS 法测定磷灰石裂变径迹单颗粒年龄法的主要流程。

外探测器法和激光剥蚀 – ICPMS 法测定裂变径迹年龄都需要对磷灰石颗粒的挑选工作，其主要包括样品的粉碎、水淘、重液分析、电选、磁选，之后如有需要则在显微镜下进行人工挑选。在该过程中，需要注意的是要适当控制粉碎的矿物颗粒目数，同时达到目标矿物分离又要尽可能的减少目标矿物被粉碎的概率。第二步，磷灰石颗粒的固定、剖光和蚀刻，该方面国内外学者都做了大量的研究工作，在此不再赘述。

激光剥蚀 – ICPMS 法与传统外探测器法测试裂变

径迹表观年龄方法大不相同（图 1）。传统的外探测器法需要在蚀刻之后，在矿物颗粒表面加上白云母片外探测器，并确保外探测器与矿物颗粒表面完全、充分接触，送往核反应堆辐照。热中子辐照引起矿物颗粒内部²³⁵U 发生裂变，并在云母片上形成诱发径迹。然后，将云母片与矿物颗粒分离，并进行蚀刻以揭示白云母片上的诱发径迹。最后在显微镜下统计矿物颗粒上的自发径迹及外探测器上与矿物颗粒对应的镜像位置上的诱发径迹含量，并计算样品年龄。激光剥蚀 – ICPMS 法则不需要白云母外探测器，而是直接在显微镜下统计矿物颗粒表面自发径迹的含量和密度，然后通过激光剥蚀 – ICPMS 直接测定磷灰石矿物颗粒中的 U 和 Th 含量，从而计算磷灰石裂变径迹表观年龄。

从图 1 中可以看出，激光剥蚀 – ICPMS 法测定磷灰石裂变径迹表观年龄过程中，省去给矿物加白云母片外探测器、热中子辐照、对外探测器的蚀刻、自发径迹与诱发径迹镜像位置矫正、诱发径迹统计及标准玻璃径迹统计等诸多程序，比外探测器法步骤更为简单、更容易操作，也极大的缩短了样品测试分析的周期。特别是在对比较重要样品补充测样时，往往能达到朝发夕至的效果。激光剥蚀 – ICPMS 法仅对矿物颗粒表面自发径迹进行统计，也极大的降低了人为因素对测试结果的影响，更容易学习，也更能确保样品测试结果的准确性。另外，激光剥蚀 – ICPMS 法在测定磷灰石颗粒 U 和 Th 含量的同时，可以用来分析影响裂变径迹退火的动力学参数 Cl 浓度及颗粒物微量元素的含量，对进一步研究和分析裂变径迹退火动力学过程提供依据。因此，激光剥蚀 – ICPMS 法测定裂变径迹表观年龄有可能成为未来裂变径迹测试分析的主流方法。

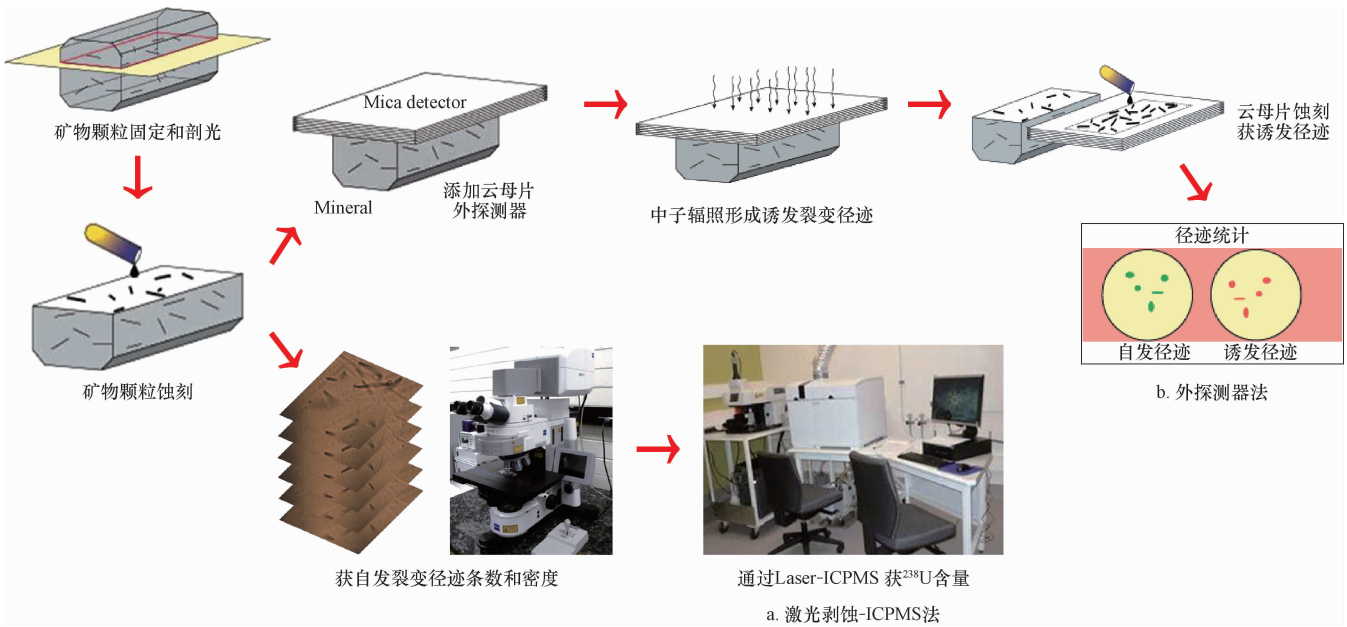


图 1 激光剥蚀 – ICPMS 法和外探测器法测定磷灰石裂变径迹年龄流程对比

Fig. 1 Comparison of fission track dating procedure between the Laser-ICPMS method and the external detector method

3 激光剥蚀 – ICPMS 法与其他方法测试结果对比

3.1 标准样品年龄测试结果对比

Hasebe 等利用激光剥蚀 – ICPMS 法和外探测器法进行了 3 种磷灰石标准样品的 U 含量和表观年龄对比^[35]。从 3 类磷灰石标准样品 U 含量测试分析结果来看,两种方法获得 Durango 磷灰石标准样品 U 分布相对较为集中,这可能是由于所测的颗粒碎片均来自同一矿物颗粒的结果;排除 U 含量在 Durango 磷灰石颗粒中分带性和不均匀分布的影响,其所有矿物碎片的 U 含量应该还是比较接近的。两种方法获得的 Fish Canyon Tuff 磷灰石标准样品 U 含量呈较好的线性关系,外探测器法获得 U 含量明显低于激光剥蚀 – ICPMS 法获得的结果。两种方法获得 Mount Dromedary Complex 标准样品 U 分布相对较为分散,没有明显的关系。

两种方法获得的单颗粒磷灰石裂变径迹年龄分布如图 2 所示。图中:年龄①为标样的同位素年龄;年龄

②为外探测器法获得的裂变径迹表观年龄;年龄③为激光剥蚀 – ICPMS 法测定的裂变径迹表观年龄。从裂变径迹表观年龄测试结果来看(图 2),用两种方法测定的 3 个标准样品表观年龄总体相差不是很大;从单颗粒年龄分布结果来看,Durango 磷灰石颗粒获得单颗粒年龄线性关系较好,其次为 Fish Canyon Tuff 磷灰石,而两种方法获得的 Mount Dromedary Complex 样品单颗粒年龄关系不明显。

3.2 碎屑岩样品测试结果对比

本文中选取我国南方典型的构造复合叠加盆地中扬子江汉平原区^[51],选取当深 3 井和建阳 1 井中生代和新生代地层的碎屑岩样品,分别利用激光剥蚀 – ICPMS 法和外探测器法进行裂变径迹的测试分析工作,并对测试分析结果进行了对比。其中,激光剥蚀 – ICPMS 法测试分析过程在澳大利亚墨尔本大学低温热年代学实验室完成;外探测器法测试分析过程在中国地质大学(北京)地质资源与地质工程国家重点实验室完成。具体的测试结果如表 1 和图 3 所示。

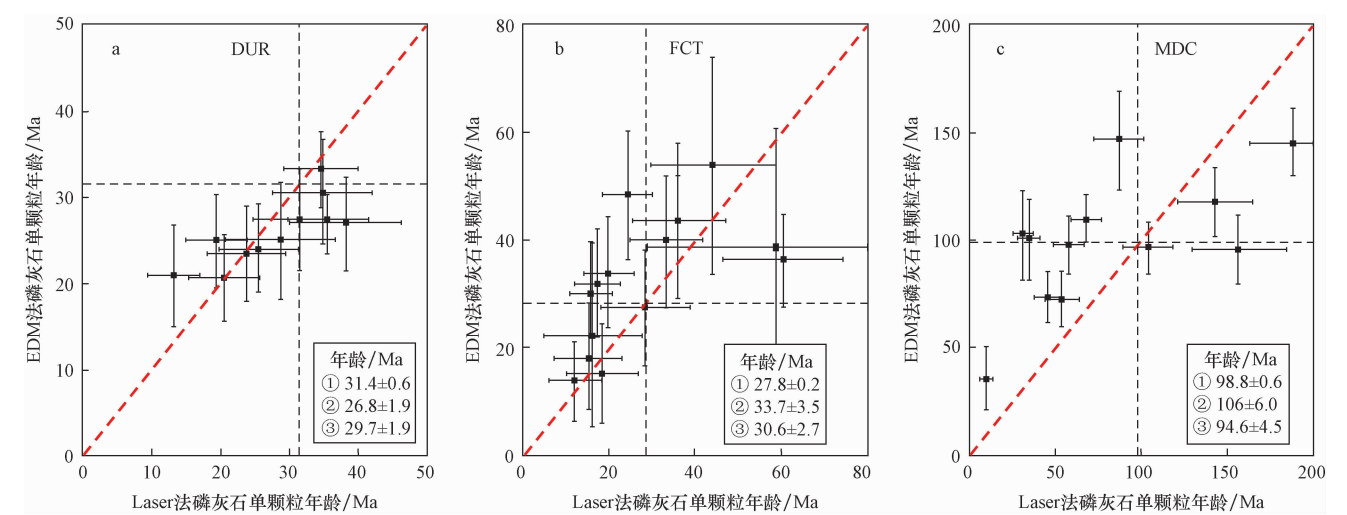


图 2 激光剥蚀 – ICPMS 法和外探测器法测定的磷灰石裂变径迹年龄对比^[35]
Fig. 2 Comparison of fission track dating results of three international standard samples obtained by using the Laser-ICPMS method and the external detector method

DUR. Durango, 磷灰石裂变径迹标样; FCT. Fission Canyon Tuff, 磷灰石裂变径迹标样; MDC. Mount Dromedary Complex, 磷灰石裂变径迹标样;
(EDM 法代表外探测器法; Laser 法代表激光剥蚀 – ICPMS 法。)

表 1 当阳复向斜激光剥蚀 – ICPMS 法裂变径迹测试分析结果

Table 1 Comparison of fission track dating results of four clastic rock samples obtained by using the Laser-ICPMS method the and external detector method											
样号	层位	深度/ m	自发径迹 总数/条	面积/ (10 ⁻⁶ cm ²)	径迹密度/ (10 ⁶ · cm ⁻²)	U 含量/10 ⁻⁶		池年龄/Ma		中心年龄/Ma	
						ICPMS	EDM	ICPMS	EDM	ICPMS	EDM
DS3-1	E ₁ x	411	660	57.71	0.4920	21.16	12.38	49.67	54 ± 5	51.64	56 ± 3
DS3-4	J ₁ x	2667	364	89.15	0.1459	37.60	20.08	8.57	7.8 ± 0.9	10.31	9.8 ± 0.7
JY1-6	E ₁ x	906	1671	89.78	0.5055	24.59	14.37	41.25	41 ± 3	43.46	41 ± 3
JY1-8	T ₁ j	1945	670	80.29	0.3669	25.60	10.23	22.87	25 ± 2	34.18	25 ± 2

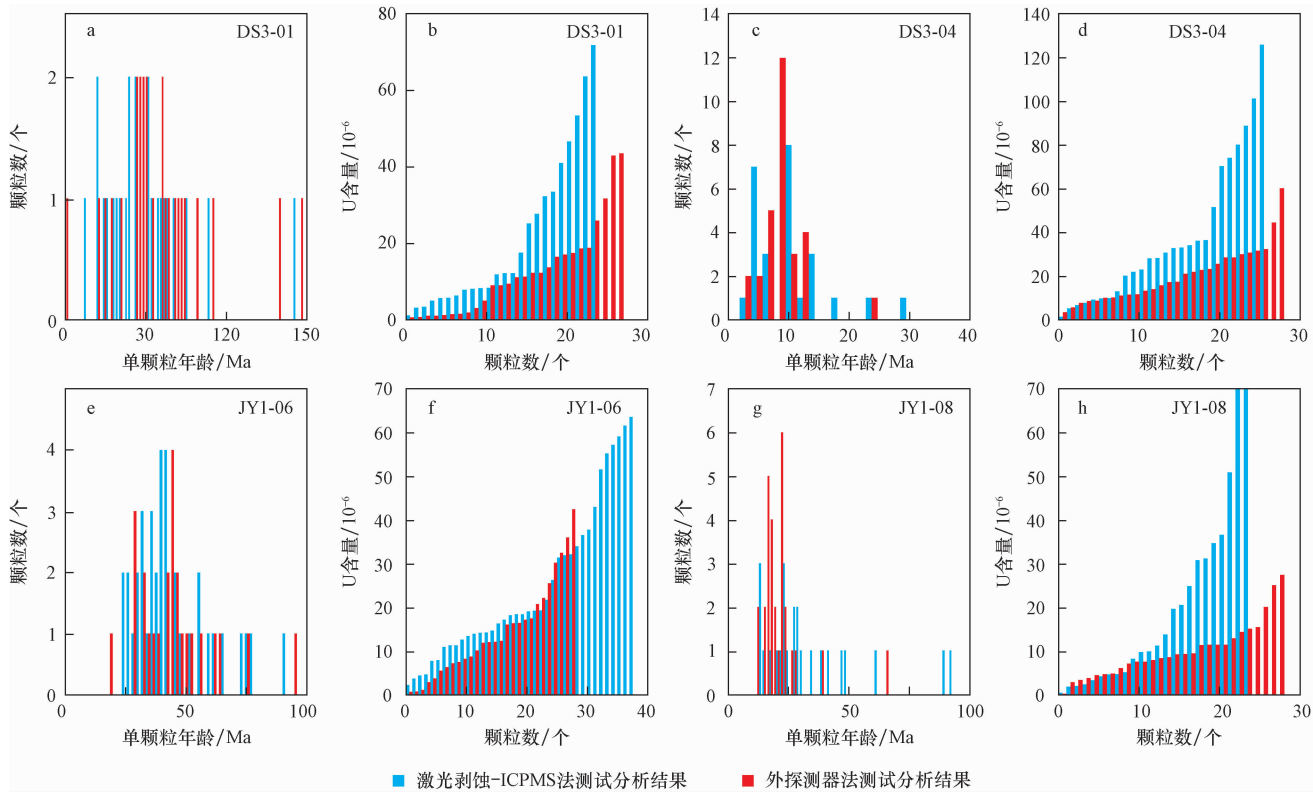


图 3 中扬子地区激光剥蚀-ICPMS 法与外探测器法裂变径迹测试单颗粒年龄和 U 含量分布

Fig. 3 Distribution characteristics of single grain ages and U content obtained by the Laser-ICPMS method and the external detector method

本次测试当深 3 井 DS3-01 样品自发径迹总数为 660 个,对应的径迹密度约为 $4.92 \times 10^5/\text{cm}^2$;DS3-02 径迹总数为 364 个,径迹密度约为 $1.46 \times 10^5/\text{cm}^2$ 。建阳 1 井的两个样品自发径迹总数分别为 1 671 个和 670 个;对应的径迹密度分别为 $5.51 \times 10^5/\text{cm}^2$ 和 $3.52 \times 10^5/\text{cm}^2$ 。从测试结果来看(表 1;图 3),激光剥蚀-ICPMS 法获得的 4 个样品 U 含量分别为 21.16×10^{-6} , 37.60×10^{-6} , 24.59×10^{-6} 和 25.60×10^{-6} ,平均是外探测器法获得 U 含量的 1.71~2.50 倍。这与外探测器法统计的白云母片上诱发径迹含量,仅来源于矿物颗粒剖光面下部矿物中²³⁵U 裂变的结果。实验结果不是准确的两倍可能和实验条件、U 含量磷灰石颗粒中的分带性及不均一性、裂变碎片在磷灰石和云母片中传播速度等方面的因素有关。

激光剥蚀-ICPMS 法获得的 4 个样品的表观池年龄分别为 49.67, 8.57, 41.25 和 22.87 Ma,对应的中心年龄分别为 51.64, 10.31, 43.46 和 34.12 Ma(表 1;图 3)。除 JY1-08 样品所获得激光剥蚀-ICPMS 法中心年龄外,其他年龄与外探测器法所获得年龄非常接近,能够反映相同期次的构造抬升冷却事件。另外,两种方法所获得 4 个样品单颗粒年龄的分布规律也很相似。

4 存在问题

国外学者利用外探测器法定年与激光剥蚀-

ICPMS 定年的对比研究后,发现两种方法虽然获得的表观年龄基本一致,同时也认为尚存一些技术问题:1) 蚀刻的过程会不会造成²³⁸U 的丢失;2) 激光剥蚀会不会受到磷灰石颗粒表面径迹数目的影响;3) 如何控制激光对磷灰石颗粒剥蚀的深度;4) 与磷灰石成分相近的标准样品的制备等。因为上面的这些问题直接或间接地会对磷灰石裂变径迹该方法年龄的可信性或精度产生影响。

4.1 蚀刻过程是否会造成²³⁸U 的丢失

利用激光剥蚀-ICPMS 测定磷灰石单颗粒年龄前,需要对矿物颗粒进行蚀刻以揭露矿物表面的自发径迹。蚀刻可能改变矿物颗粒表面的性质,从而可能对激光剥蚀光学特征、质子在气溶剂中的分布及向质谱传速的过程中产生影响,造成质谱仪分析的 U 含量系统性的偏高或偏低^[52]。另外,蚀刻还可能引起目标矿物内部同位素的选择性溶解、散失,影响测试分析结果^[53]。Hasebe 等 2009 年对蚀刻能否影响测试的磷灰石和锆石²³⁸U 含量及裂变径迹年龄做了大量的实验研究,研究结果表明,蚀刻过程不会对矿物颗粒产生明显的影响,所获得合理的裂变径迹年龄,从而认为该方法可以用来进行裂变径迹年龄分析^[54]。

4.2 激光剥蚀是否影响磷灰石²³⁸U 含量分析结果

裂变径迹测试分析过程中,统计的矿物颗粒表面

的自发径迹由剖光面上部及剖光面下部约半个径迹长度空间范围内所含的²³⁸U 裂变形成。测试分析过程中没有办法测试被剖掉部分的 U 含量,因此,只能依赖于剖光面下部所获得 U 含量。传统方法假设矿物颗粒中 U 含量在小范围内没有太大变化,通过统计外探测器白云母片中记录的热中子辐照产生的诱发径迹。新方法通过激光剥蚀矿物直接测量矿物中 U 含量,然而目前对怎样的剥蚀深度才能更好的代表矿物颗粒的 U 含量,还没有确切的认识。Hasebe 等人 2004 年所做的实验中,对矿物颗粒的激光剥蚀深度一般取 25 μm ± 5 μm^[35]。部分比较小的颗粒,可能被击穿。其研究结果也表明,Durango 磷灰石的剥蚀相对于其他标准矿物相对较浅。这个可能是由于矿物颗粒内部化学成分组成不同,导致矿物颗粒光学性质差异,从而影响了激光剥蚀的效率造成的。另外,矿物颗粒自发径迹密度可能也会影响激光对矿物颗粒剥蚀得效率。

4.3 磷灰石颗粒 U 含量不均匀分布对年龄的影响

矿物颗粒内部 U 含量分布的不均匀性,可能对磷灰石裂变径迹单颗粒年龄产生较大的影响,从而影响整个样品的表观年龄。如图 4a—c 所示,3 个磷灰石颗粒表面的自发径迹分布极不均匀,可能是 U 含量分布不均匀性造成的;而图 4d 中激光剥蚀 - ICPMS 测试的 JY1-36 磷灰石颗粒内部 U 含量随剥蚀时间的变化发生变化。传统的外探测器法一般选择矿物颗粒及

白云母片外探测器镜像位置分别统计自发和诱发径迹含量。而激光剥蚀通常剥蚀矿物颗粒表面直径 40 μm 圆面积进行剥蚀,其测试结果与剖光面 U 含量必然存在差异。而到目前为止,最好的办法就是在选取矿物颗粒表面自发径迹分布相对均匀(U 分布相对均匀)的颗粒进行测试,以保证测试分析结果的准确性。

4.4 与磷灰石成分相近的标准样品的选取

Hasebe 等人年将 NIST 系列标准玻璃作为标准样品进行 ICP - MS 分析,通过多次测量标样 U 含量认为,系统误差是一般低于 10%^[35]。然而通过 Durango 磷灰石的 U 含量分析发现,其实际误差可能超过 10%,这可能是由于磷灰石和标准玻璃在激光剥蚀及离子化过程中的差异造成的。因此,选取化学成分相似、剥蚀转化效率相近的标准样品,有可能进一步提高测试结果的准确性。

5 结论

本文详细介绍了一种利用激光剥蚀 - ICPMS 直接测定磷灰石颗粒²³⁸U 含量,进而摆脱传统热中子辐照、直接进行磷灰石裂变径迹表观年龄测试分析的新方法。通过对比激光剥蚀 - ICPMS 法和外探测器法分别获得的样品测试结果,两种方法所获得 3 种标准样品磷灰石裂变径迹表观年龄基本一致;4 块碎屑岩样品

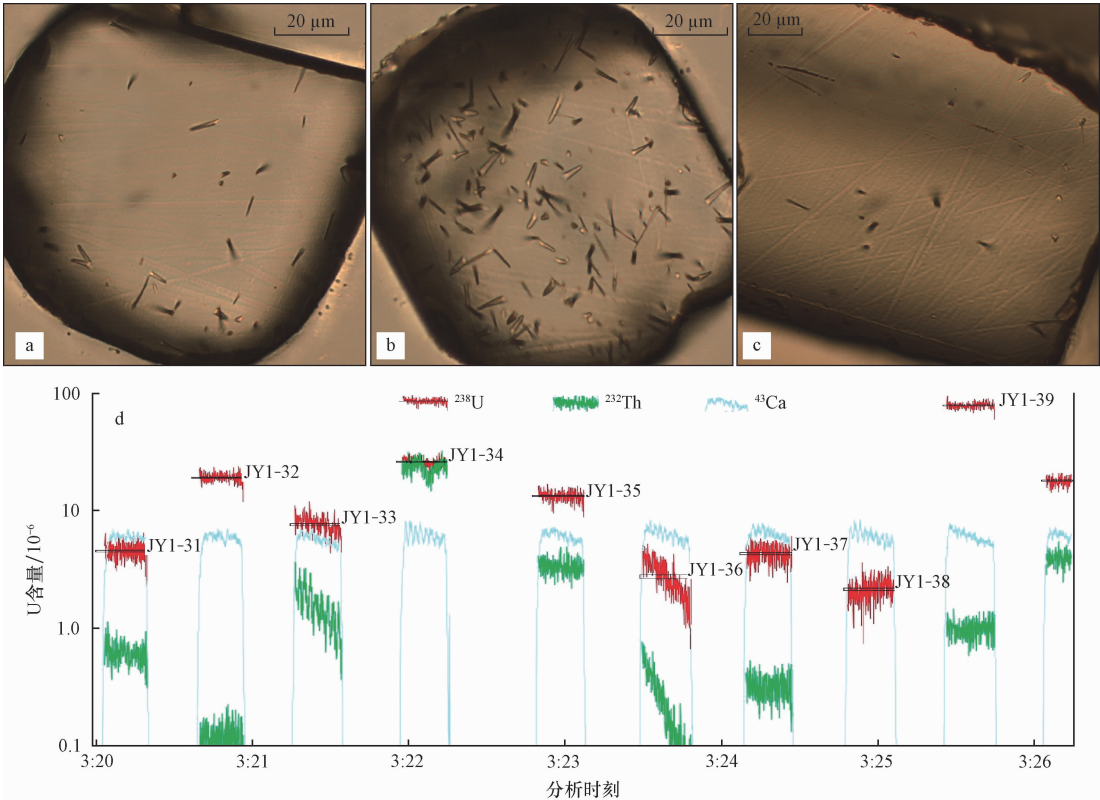


图4 磷灰石颗粒中 U 含量分布的不均匀性

Fig.4 Unevenness of the Uranium content distribution in single apatite grain

表观年龄、单颗粒年龄分布特征及 U 含量分布特征也基本相似。通过新、老方法实验分析流程对比可以发现,新方法在磷灰石裂变径迹表观年龄测试分析过程中避开热中子辐照、云母片外探测器的蚀刻及诱发径迹统计等诸多程序,能极大地缩短样品测试分析的周期;同时,也降低了人为因素对测试分析结果的影响,更能确保测试结果的准确性和可再现性。

激光剥蚀-ICPMS 法测定裂变径迹年龄虽然已经表现出极大地优势,但是其在径迹蚀刻过程是否对磷灰石颗粒中²³⁸U 含量测试的影响、如何选取合适的激光剥蚀特性、磷灰石颗粒 U 含量不均匀性及与磷灰石性质相似的标准样品选取等方面依然存在问题,需要进一步加强研究。

致谢:在利用激光剥蚀-ICPMS 法测试磷灰石裂变径迹年龄测试分析过程中,得到了墨尔本大学地球科学学院 Barry P. Kohn 教授和 Andrew J. W. Gleadow 教授亲自指导;在利用外探测器法测试磷灰石裂变径迹年龄测试分析过程中,得到了中国地质大学(北京)袁万明教授的帮助;另外,本人在墨尔本大学学习和实验过程中,澳大利亚墨尔本大学田云涛博士、钟玲博士、Raul Lugo 博士和 Himansu Sahu 博士给本人很大帮助,在此一并感谢!

参 考 文 献

- [1] Wanger G, Van den haute P. Fission track dating[M]. Dordrecht: Kluwer Academic Publishers, 1992: 15-32.
- [2] Gleadow A J W, Belton D X, Kohn B P, et al. Fission track dating of phosphate minerals and the thermochronology of apatite[J]. Reviews in Mineralogy Geochemistry, 2002, 48: 579-630.
- [3] Armstrong P A. Thermochronometers in the sedimentary basin[J]. Reviews in Mineralogy & Geochemistry, 2005, 58: 205-238.
- [4] 郑德文, 张培震, 万景林, 等. 六盘山盆地热历史的裂变径迹证据[J]. 地球物理学报, 2005, 48(1): 157-164.
Zheng Dewen, Zhang Peizhen, Wan Jinglin, et al. Apatite fission track evidence for the thermal history of the Liupanshan basin[J]. Chinese Journal Geophysics, 2005, 48(1): 157-164.
- [5] 王世明, 马昌前, 余振兵, 等. 柴西新生代沉积源区及盆地热历史的磷灰石裂变径迹分析[J]. 地质科技情报, 2008, 27(5): 29-36.
Wang Shiming, Ma Changqian, She Zhenbing, et al. Apatite fission track analyses of Cenozoic sedimentary source and basin thermal history in west Qaidam basin[J]. Geological Science and Technology Information, 2008, 27(5): 29-36.
- [6] Bernet M, Garver J I. Fission-track analysis of detrital zircon[J]. Reviews in Mineralogy and Geochemistry Series, 2005, 58: 205-237.
- [7] 王国灿. 沉积物源区剥露历史分析的一种新途径——碎屑锆石和磷灰石裂变径迹热年代学[J]. 地质科技情报, 2002, 21(4): 35-40.
Wang Guocan. A new approach to determine the exhumation history of the sediment provenance: detrital zircon and apatite fission track thermochronology[J]. Geological Science and Technology Information, 2002, 21(4): 35-40.
- [8] Brandon M T. Decomposition of fission-track grain-age distributions[J]. American Journal of Science, 1992, 292: 535-564.
- [9] 田云涛, 朱传庆, 徐明, 等. 晚白垩世以来川东北地区的剥蚀历史——多类低温热年代学数据综合剖面的制约[J]. 地球物理学报, 2011, 53(3): 807-816.
Tian Yuntao, Zhu Chuanqing, Xu Ming, et al. Post-Early Cretaceous denudation history of the northeastern Sichuan Basin: constraints from low-temperature thermochronology profiles[J]. Chinese Journal Geophysics, 2011, 54(3): 807-816.
- [10] 王国灿, 向树元, 王岸, 等. 东昆仑及相邻地区中生代—新生代早期构造过程的热年代学记录[J]. 地球科学, 2007, 32(5): 605-615.
Wang Guocan, Xiang Shuyuan, Wang An, et al. Thermochronological constraint to the processes of the east Kunlun and adjacent areas in Mesozoic-Early Cenozoic[J]. Earth Science, 2007, 32(5): 605-615.
- [11] 任战利, 萧德铭, 迟元林, 等. 松辽盆地基底石炭—二叠系热演化史[J]. 石油与天然气地质, 2011, 32(3): 430-439.
Ren Zhanli, Xiao Deming, Chi Yuanlin, et al. Restoration of thermal history of the Permo-Carboniferous basement in the Songliao Basin[J]. Oil & Gas Geology, 2011, 32(3): 430-439.
- [12] Tagami T. Zircon fission-track thermochronology and applications to fault studies[J]. Reviews in Mineralogy & Geochemistry, 2005, 58: 95-122.
- [13] Gleadow A J W, Duddy I R, Lovering J F. Fission track analysis: a new tool for the evaluation of thermal histories and hydrocarbon potential[J]. Australian Petroleum Exploration Association Journal, 1983, 23: 93-102.
- [14] 袁万明, 杜杨松, 杨立强, 等. 西藏冈底斯南木林地区构造活动的磷灰石裂变径迹分析[J]. 岩石学报, 2007, 23(11): 2911-2917.
Yuan Wanming, Du Yangsong, Yang Liqiang, et al. Apatite fission track studies on the tectonics in Nanmulin area of Gangdese Terrane, Tibet plateau[J]. Acta Petrologica Sinica, 2007, 23(11): 2911-2917.
- [15] 郭彤楼, 李国雄, 曾庆立. 江汉盆地当阳复向斜当深3井热史恢复及其油气勘探意义[J]. 地质科学, 2005, 40(4): 570-578.
Guo Tonglou, Li Guociong, Zeng Qingli. Thermal history reconstruction for well Dangshen 3 in the Dangyang synclinorium, Jianghan basin and its exploration implications[J]. Chinese Journal of Geology, 2005, 40(4): 570-578.
- [16] Laslett G M, Galbraith R F. Statistical modelling of thermal annealing of fission tracks in apatite[J]. Geochimica Cosmochimica Acta, 1996, 60: 5117-5131.
- [17] Carlson W. Mechanisms and kinetics of apatite fission-track annealing[J]. American Mineralogist, 1990, 75: 1120-1139.
- [18] Yamada R, Murakami M, Tagami T. Statistical modelling of annealing kinetics of fission tracks in zircon: reassessment of laboratory experiments original research article[J]. Chemical Geology, 2007, 236(1-2): 75-91.
- [19] Yamada R, Tagami T, Nishimura S, et al. Annealing kinetics of fission tracks in zircon: an experimental study[J]. Chemical Geology, 1995, 122: 249-258.
- [20] Hasebe N, Mori S, Tagami T, et al. Geological partial annealing zone of zircon fission-track system: additional constraints from the deep drilling MITI-Nishikubiki and MITI-Mishima[J]. Chemical Geology, 2003, 199: 45-52.
- [21] Donelick R A. Crystallographic orientation dependence of mean etchable fission track length in apatite: an empirical model and experimental observations[J]. American Mineralogist, 1991, 76: 83-91.
- [22] Barbarand J, Carter A, Wood I, et al. Compositional and structural control of fission track annealing in apatite[J]. Chemical Geology, 2003, 198: 107-137.

- [23] Donelick R A, Ketcham R A, Carlson W D. Variability of apatite fission track annealing kinetics II: crystallographic orientation effects [J]. *American Mineralogist*, 1999, 84: 1224 – 1234.
- [24] Ketcham R A. Observations on the relationship between crystallographic orientation and biasing in apatite fission-track measurements [J]. *American Mineralogist*, 2003, 88: 817 – 829.
- [25] Ketcham R A. The role of crystallographic angle in characterizing and modeling apatite fission-track length data [J]. *Radiation Measurements*, 2005, 39: 595 – 601.
- [26] Ketcham R A. Forward and inverse modeling of low-temperature thermochronometry data [J]. *Reviews in Mineralogy and Geochemistry*, 2005, 58: 275 – 314.
- [27] Ketcham R A, Carter A, Donelick R A, et al. Improved modeling of fission-track annealing in apatite [J]. *American Mineralogist*, 2007, 92: 799 – 810.
- [28] Gallagher K, Stephenson J, Brown R, et al. Exploiting 3D spatial sampling in inverse modeling of thermochronological data [J]. *Reviews in Mineralogy and Geochemistry*, 2005, 58: 375 – 387.
- [29] Gallagher K, Stephenson J, Brown R, et al. Low temperature thermochronology and modelling strategies for multiple samples 1: vertical profiles [J]. *Earth and Planetary Science Letters*, 2005, 237: 193 – 208.
- [30] Stephenson J, Gallagher K, Holmes C. Low temperature thermochronology and modelling strategies for multiple samples 2: Partition modelling for 2D and 3D distributions with discontinuities [J]. *Earth and Planetary Science Letters*, 2009, 241: 557 – 570.
- [31] Hansen K, Reiners P W. Low temperature thermochronology of the southern east reenland continental margin: evidence from apatite (U-Th)/He and fission track analysis and implications for intermethod calibration [J]. *Lithos*, 2006, 92: 117 – 136.
- [32] Larre J J, Andriessen P A M. Tectonothermal evolution of the north-eastern margin offberia since the break-up of Pangea to present, revealed by low-temperature fission-track and (U-Th)/He thermochronology: A case history of the Catalan Coastal Ranges [J]. *Earth and Planet. Sci. Lett.* 2006, 243: 159 – 180.
- [33] 邱楠生, 秦建中, Brent M, 等. 川东北地区构造 – 热演化探讨——来自 (U-Th)/He 年龄和 Ro 的约束 [J]. *高校地质学报*, 2008, 14 (2): 223 – 230.
- Qiu Nansheng, Qin Jianzhong, Brent M, et al. Tectono-thermal evolution of the northeastern Sichuan basin: constraints from apatite and zircon (U-Th)/He ages and vitrinite reflectance data [J]. *Geological Journal of China Universities*, 2008, 14 (2): 223 – 230.
- [34] 秦建中, 王杰, 邱楠生, 等. 反演南方海相层系热史动态演化的新温标——磷灰石、锆石 (U-Th)/He 年龄和封闭温度 [J]. *石油与天然气地质*, 2010, 31 (3): 277 – 287.
- Qin Jianzhong, Wang Jie, Qiu Nansheng, et al. New paleo-geothermometers for the inversion of dynamic thermal evolution history of marine sequences in South China—(U-Th)/He age and closure temperature of apatite and zircon [J]. *Oil & Gas Geology*, 2010, 31 (3): 277 – 287.
- [35] Hasebe N, Barbarand J, Jarvis K, et al. Apatite fission-track chronometry using laser ablation ICP-MS [J]. *Chemical Geology*, 2004, 207: 135 – 145.
- [36] Donelick R A, O' Sullivan P B, Ketcham R A. Apatite fission-track analysis [J]. *Review in Mineral Geochemistry*, 2005, 58: 49 – 94.
- [37] Hurford A J, Green P F. A user's guide to fission track dating calibration [J]. *Earth and Planetary Science Letters*, 1982, 59: 343 – 354.
- [38] Gleadow A J W. Fission-track dating methods; what are the real alternatives? [J]. *Nuclear Tracks*, 1986, 15: 3 – 4.
- [39] 康铁笙, 王世成. 地质热历史研究的裂变径迹法 [M]. 北京: 科学出版社, 1991: 23 – 46.
- Kang Tiesheng, Wang Shicheng. Thermal history of the study of geological fission track method [M]. Beijing: Science Press, 1991: 23 – 46.
- [40] Green P F, Hurford A J. Thermal neutron dosimetry for fission track dating [J]. *Nuclear Tracks*, 1984, 9: 231 – 241.
- [41] 王世成, 康铁笙. 裂变径迹定年中子通量的预测 [J]. *原子能科学技术*, 1993, 27 (2): 152 – 156.
- Wang Shicheng, Kang Tiesheng. Neutron flux prediction during fission track dating [J]. *Atomic Energy Science and Technology*, 1993, 27 (2): 152 – 156.
- [42] Bigazzi G. The problems of the decay constant λ_f of ^{238}U [J]. *Nuclear Tracks Detection*, 1981, 5: 35 – 44.
- [43] Gleadow A J W, Lovering J F. Geometry factor for external detectors in fission track dating [J]. *Nuclear Track Detection*, 1977, 1: 99 – 106.
- [44] Hirata T. Soft ablation technique for laser ablation-inductively coupled plasma mass spectrometry [J]. *Journal Analytical Atomic Spectrometry*, 1997, 12: 1337 – 1342.
- [45] Horn I, Rudnick R L, McDonough W F. Precise elemental and isotope ratio determination by simultaneous solution nebulization and laser ablation-ICP-MS: application to U-Pb geochronology [J]. *Chemical Geology*, 2000, 164: 281 – 301.
- [46] Cox R, Kosler J, Sylvester P, et al. Apatite fission track dating by LAM-ICO-MS analysis [Z]. *Goldschmidt Conference Abstracts*, Oxford, 2000.
- [47] Gleadow A J W, Belton D X, Kohn B P, et al. Fission track dating of phosphate minerals and the thermochronology of apatite [J]. *Reviews in Mineralogy and Geochemistry*, 2002, 48: 579 – 630.
- [48] Svojtka M, Kosler M. Fission-track dating of zircon by laser ablation ICPMS [Z]. *Goldschmidt Conference Abstracts*, Davos, 2002.
- [49] Gleadow A J W, Duddy I R, Green P F, et al. Confined fission track lengths in apatite: a diagnostic tool for thermal history analysis [J]. *Contributions to Mineralogy and Petrology*, 1986, 94: 405 – 415.
- [50] Barbarand J, Carter A, Hurford T. Variation in apatite fission-track length measurement: implications for thermal history modelling [J]. *Chemical Geology*, 2003, 198: 77 – 106.
- [51] 沃玉进, 汪新伟. 中、上扬子地区地质结构类型与海相层系油气保存意义 [J]. *石油与天然气地质*, 2009, 30 (2): 177 – 187.
- Wo Yujin, Wang Xinwei. Geologic configuration types of the middle-upper Yangtze region and their significance for hydrocarbon preservation in marine strata [J]. *Oil & Gas Geology*, 2009, 30 (2): 177 – 187.
- [52] Horn I, Gunther D. Transport efficiency and particle size distribution of laser induced aerosols [Z]. *Goldschmidt Conference Abstracts*, Davos, 2002.
- [53] Davis D W, Krogh T E. Preferential dissolution of ^{234}U and radiogenic Pb from α -recoil damager lattice sites in zircon: implication for thermal history and Pb isotopic fractionation in the near surface environment [J]. *Chemical Geology*, 2000, 172: 41 – 58.
- [54] Hasebe N, Carter A, Hurford A J, et al. The effect of chemical etching on La-ICP-MS analysis in uranium determination for fission track chronometry [M] // Lisher F, Ventura B, Glasmacher U A. Thermochronological method: from Palaeotemperature constraints to landscape evolution models. London: Geological Society Special Publisher, 2009: 37 – 46.