

·新技术新方法·

# 核分析新技术:Alpha反冲径迹热年代学

高绍凯,袁万明,董金泉,保增宽

GAO Shaokai, YUAN Wanming, DONG Jinquan, BAO Zengkuan

中国科学院高能物理研究所,北京 100049

Institute of High Energy Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China

**摘要:**矿物中U、Th及其子核进行 $\alpha$ 衰变释放出 $\alpha$ 粒子时,剩余重核受到反冲而产生辐射损伤。在适当条件下经化学蚀刻,这些辐射损伤成为在光学显微镜下可观测的核径迹。通过建立适当的蚀刻模型和定年模型,计算径迹面密度和体密度,并测量U、Th含量,便可得到年龄。Alpha反冲径迹年代学的特点是可以确定较年轻的时代(百万年至数百年),故在资源环境、地理、考古等领域具有广泛的应用前景。

**关键词:**Alpha反冲径迹;定年方法;热年代学;核分析技术;云母

中图分类号:O571.32<sup>+</sup>1;P597<sup>+</sup>.3 文献标识码:A 文章编号:1671-2552(2005)10~11-1032-07

Gao S K, Yuan W M, Dong J Q, Bao Z K. A new method of nuclear analysis: Alpha-recoil track thermochronology. *Geological Bulletin of China*, 2005, 24(10~11): 1032~1038

**Abstract:** When U, Th and their daughter nuclei emit  $\alpha$  particles after  $\alpha$  decays, heavy residual nuclei are recoiled, leaving behind a trail of radiation damage in the mineral. The trail of radiation damage is called the nuclear track and can be observed under optical microscope through chemical etching under appropriate conditions. Based on the etching and dating models established, we can obtain both the alpha-recoil track (ART) areal densities and volume densities, as well as the concentrations of U and Th, and then the age of the mineral can be calculated. Alpha-recoil track thermochronology is dominantly used in dating younger samples ( $10^6$ ~ $10^2$  a) and can be widely used in areas of resource environment, geology, archeology and so on.

**Key words:** Alpha-recoil track; dating method; thermochronology; technique of nuclear analysis; mica

## 1 原 理

放射性元素U和Th在矿物中主要作为痕量元素存在,其同位素 $^{238}\text{U}$ 、 $^{235}\text{U}$ 和 $^{232}\text{Th}$ 及衰变系列其他一些子核通过 $\alpha$ 衰变分解,从 $^{238}\text{U}$ 到 $^{206}\text{Pb}$ 的衰变过程中释放8个 $\alpha$ 粒子,从 $^{235}\text{U}$ 到 $^{207}\text{Pb}$ 释放7个 $\alpha$ 粒子,从 $^{232}\text{Th}$ 到 $^{208}\text{Pb}$ 释放6个 $\alpha$ 粒子(图1)。在重复的 $\alpha$ 分解过程中,可以释放几个MeV的能量,其主要作为发射的 $\alpha$ 粒子动能<sup>[1~6]</sup>。根据动量守恒定律,剩余核受到反冲,其能量与质量成反比。在U、Th衰变链中, $\alpha$ 粒子的质量数是4,反冲核的质量数是200多,所以 $\alpha$ 反冲核的能量是总衰变能的2%左右,大约为170 keV,每个核为0.7 keV左右。在固体中,反冲核

的反冲范围约为30~40 nm,其通过核周围晶格原子的弹性碰撞损失动能,留下辐射损伤痕迹,通过化学蚀刻,这些痕迹被扩大,从而变为在光学显微镜下可以观测的 $\alpha$ 反冲径迹(ART)(图2)。到目前为止, $\alpha$ 反冲径迹只能在云母的节理面上观测到,这也许与云母在蚀刻时高度各向异性有关。在裂变链中,Rn的扩散导致其下的 $\alpha$ 反冲事件与上一个反冲事件可能在不同的位置发生<sup>[1,2,4]</sup>,即Rn的扩散导致一个衰变系列产生多于1条的 $\alpha$ 反冲径迹(图3)。

在 $\alpha$ 衰变过程中,剩余核连续受到每次约30 nm范围的反复反冲,因为单个反冲的方向是任意的, $\alpha$ 反冲核走的是之字形的路线,形成圆状辐射损伤,所以与裂变径迹的线型形状

收稿日期:2005-01-12;修订日期:2005-08-05

基金项目:国家自然科学基金项目(40072068,10175076,10475093)、国家重点基础研究发展计划项目(2001CB409804)资助。

作者简介:高绍凯(1981- ),男,在读硕士,研究方向:裂变径迹方法学及其应用。E-mail: gaosk@ihep.ac.cn

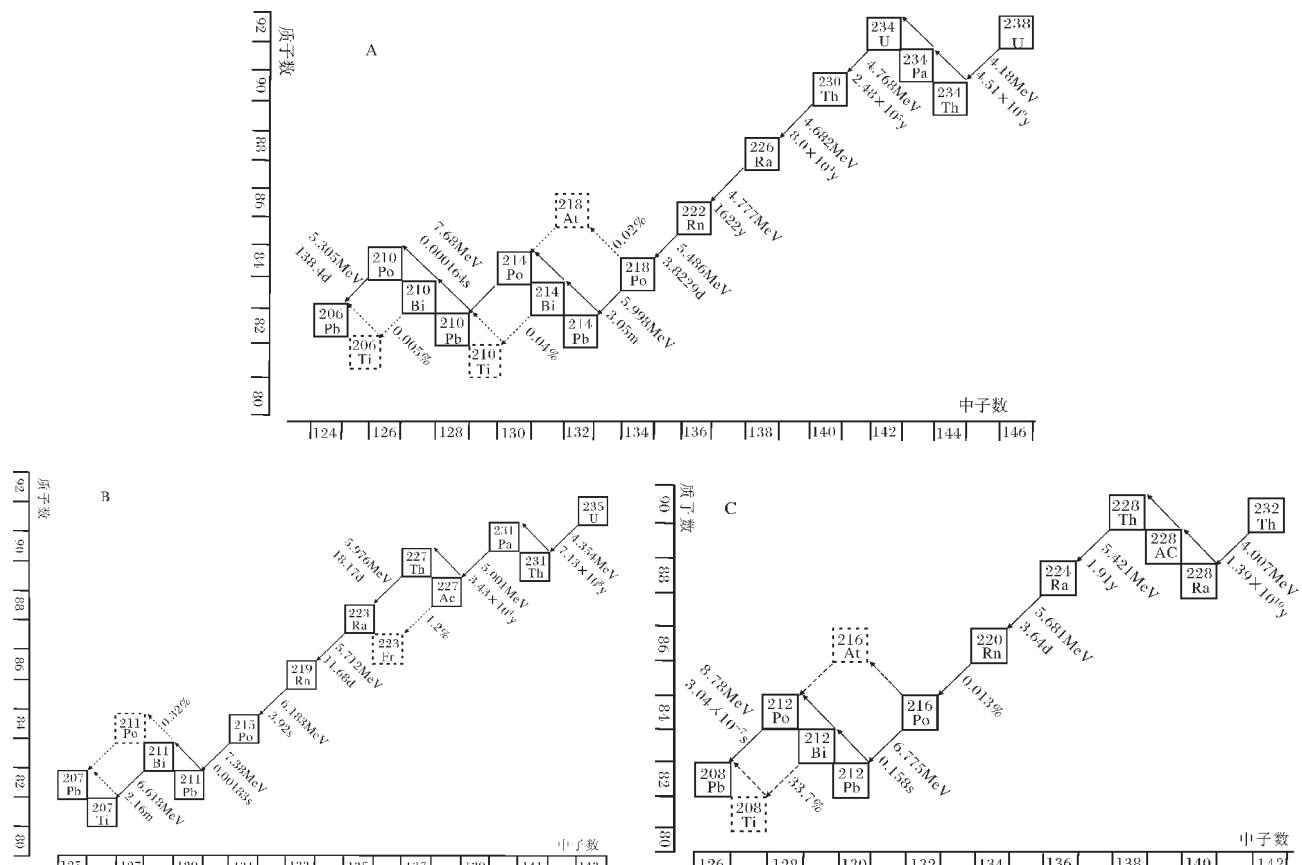
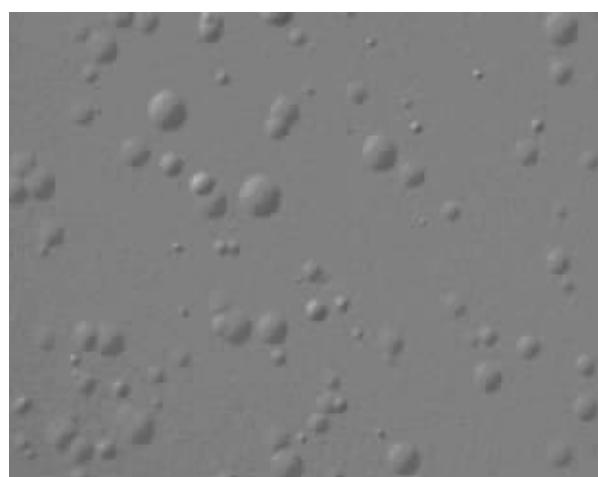


图1 U、Th衰变示意图

Fig.1 Schematic figure of U and Th decay

A— $^{238}\text{U}$  到  $^{206}\text{Pb}$  衰变系列; B— $^{235}\text{U}$  到  $^{207}\text{Pb}$  衰变系列; C— $^{232}\text{Th}$  到  $^{208}\text{Pb}$  衰变系列

不同,  $\alpha$ 反冲径迹的形状是圆形的<sup>[7]</sup>(图2)。根据定量定年模型,有必要知道 $\alpha$ 反冲径迹是由单个还是多个 $\alpha$ 反冲构成的。Gentry<sup>[5]</sup>、Katoff<sup>[6]</sup>、Hashimoto等<sup>[8]</sup>用实验清楚地证明了在白云母、黑云母和金云母中单个 $\alpha$ 反冲事件已足够产生一条可蚀刻径迹(图4)。根据Mento-karo方法<sup>[7]</sup>算出在金云母中由U系同位素在0~1 Ma的范围内产生的随时间而变化的径迹大小主要有2个分布区:第1个分布区是单个 $\alpha$ 衰变所形成的径迹,平均大小为30 nm,标准偏差约为5 nm,分布较窄;大部分径迹是由 $^{238}\text{U}$ 、 $^{234}\text{U}$ 衰变到稳定的 $^{206}\text{Pb}$ 形成的,其平均值约125 nm,标准偏差约为50 nm,分布较宽。第1个分布区与时间不成线性关系,并且在约1 Ma时达到饱和。第2个分布区则在100 ka~1 Ma的整个时间间隔内几乎与时间成线性关系。蚀刻的反冲径迹大小分布范围并不是潜径迹大小范围的真实反映,而是在蚀刻过程中蚀刻径迹的数目因新径迹不断增加而增加的结果。由于潜反冲径迹非常小,因此即使是少量的表面蚀刻也会在初始表面以下产生大量径迹,即蚀刻坑。除了直径更小一些,它们和与初始表面相交的径迹是相同的。在这种情况下,径迹的分布是单调的非双峰的形状。如果蚀

图2 黑云母的 $\alpha$ 反冲径迹( $4\%$ HF,  $25^\circ\text{C} \pm 1^\circ\text{C}$ , 蚀刻150min)Fig.2 ARTs in biotite, etched for 150 minutes  
in 4% HF acid at  $25 \pm 1^\circ\text{C}$

刻出来的反冲径迹与潜反冲径迹的大小分布没有关系的话,那么在显微镜下不能分辨出由单个 $\alpha$ 衰变和多个连续 $\alpha$ 衰变所形成的径迹。然而,对于 $\alpha$ 反冲径迹定年,倾向于只计数由多个 $\alpha$ 衰变所形成的径迹,因为其密度与时间是准线性关系,而由单个 $\alpha$ 反冲所形成的径迹密度与时间是亚线性关系。在蚀刻过程中,新径迹的持续增加有2个结果。第一,不考虑总的蚀刻时间,由于径迹初始直径很小,因此总有一部分径迹在显微镜下看不到。第二,延长蚀刻时间,由于径迹数目和大小的增加,彼此之间相互重叠,在显微镜下计数变得困难。这些问题都表明建立可靠的蚀刻模型的重要性,这种模型应该能把观测到的蚀刻径迹面密度与潜径迹的体密度联系起来,从而与矿物年龄联系起来。蚀刻坑直径、蚀刻时间、酸浓度之间的关系如图5所示。

## 2 $\alpha$ 反冲径迹蚀刻行为

### 2.1 $\alpha$ 反冲径迹的蚀刻效率

对于单个的 $\alpha$ 反冲径迹(例:由 $^{208}\text{Po}$ 的 $\alpha$ 衰变产生),可以应用通常意义上的“蚀刻临界角”。但是,对于由一系列 $\alpha$ 衰变和反冲所形成的复合 $\alpha$ 反冲径迹来说,不能应用通常意义上的“临界角”概念<sup>[2]</sup>。为了得到一个大概的蚀刻效率,在 $\alpha$ 反冲径迹中通常用“有效”临界角来代替通常意义上的临界角,即 $[(\theta c)_{\text{eff}}]$ :

$$[(\theta c)_{\text{eff}}] = \arcsin[V_{\alpha}]_{\text{eff}}^{-1} \quad (\text{I})$$

$$[V_{\alpha}]_{\text{eff}} = [(V_T)_{\alpha}]_{\text{eff}} / V_g \quad (\text{II})$$

在(II)式中, $[(V_T)_{\alpha}]_{\text{eff}}$ 是由多于一个子核的连续 $\alpha$ 反冲所形成的复合 $\alpha$ 反冲径迹的有效蚀刻速率, $V_g$ 为介质体蚀刻速率。因此,以小于 $[(\theta c)_{\text{eff}}]$ 的有效倾角( $\varphi$ )和表面靠近的复合 $\alpha$ 反冲径迹不能被揭示出。对于普通径迹,即在整个探测器体积内随机分布的径迹来说,其蚀刻效率定义为:

$$\eta = \cos^2 \theta c \quad (\text{III})$$

如果将(III)式应用于 $\alpha$ 反冲径迹,那么其蚀刻效率可以表达为:

$$\eta_{\alpha} = \cos^2 [(\theta c)_{\text{eff}}] \quad (\text{IV})$$

一个可以表征 $\alpha$ 反冲径迹蚀刻效率的径迹参数是用 $\alpha$ 反冲径迹直径和其相应裂变径迹直径做比较得出的比值。

### 2.2 $\alpha$ 反冲径迹的可蚀刻范围

Huang等<sup>[1]</sup>用如下年龄公式计算出径迹大小范围( $R_{\alpha}=125\text{\AA}$ ):

$$\rho_{\alpha} = N_v [C(U)\lambda(U) + C(Th)\lambda(Th)] R_{\alpha} T \quad (\text{V})$$

其中 $\rho_{\alpha}$ 是 $\alpha$ 反冲径迹的面密度, $N_v$ 是探测器单位体积的原子数, $C(U)$ 和 $C(Th)$ 是U原子和Th原子的分数, $\lambda(U)$ 和 $\lambda(Th)$ 是 $^{238}\text{U}$ 和 $^{232}\text{Th}$ 的衰变常数, $R_{\alpha}$ 是 $\alpha$ 反冲径迹的范围, $T$ 是样品的年龄(为了使上述公式正确假定其远小于 $1/\lambda$ )。上述年龄计算可能存在以下缺陷。

(1) $\alpha$ 反冲径迹和裂变径迹的表观年龄被认为是一致的,然而将样品置于高温时,2种径迹的行为并不一样,因而上述假设错误。

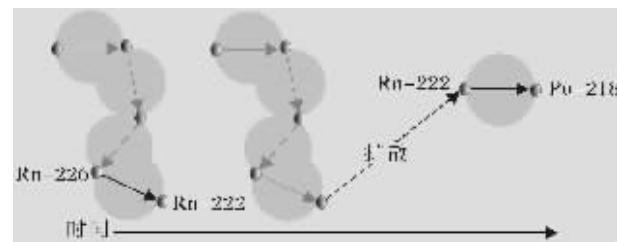


图3 Rn的扩散在每个衰变级引起2个分离的 $\alpha$ 反冲径迹

Fig.3 Diffusion of radon creates two separate ARTs per decay cascade

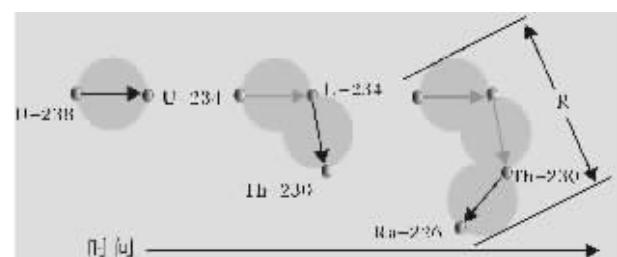


图4  $\alpha$ 反冲径迹形成和发展的二度空间模型

Fig.4 Two-dimensional model of ART formation and development

$^{238}\text{U}$ 是8个连续 $\alpha$ 分裂衰变系列的开头。在一个衰变系列中,第一个分裂给出的是潜反冲径迹,以后的分裂只增加径迹的大小而不产生新径迹。一个 $\alpha$ 反冲径迹的直径 $R$ 是由时间来决定的,被定义成当前辐射损伤的最大范围

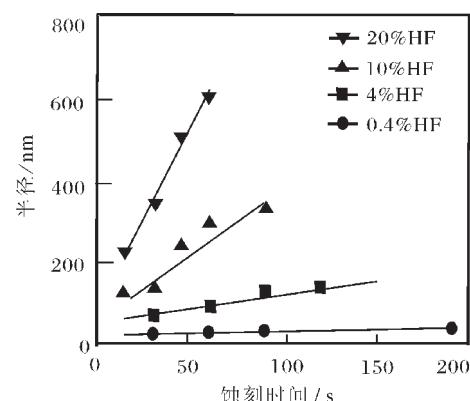


图5 不同酸浓度时蚀刻坑的直径与蚀刻时间的关系

Fig.5 Relationship between the diameter of the etching pit and etching time with different concentrations of acid

(2)上述公式中假设2种径迹蚀刻效率相同。

(3)没有考虑蚀刻时间对 $\alpha$ 反冲径迹密度的影响。

(4)上述公式认为一个 $\alpha$ 衰变系列只形成一条 $\alpha$ 反冲径迹,即未考虑子核的迁移问题。

当速率足够大时,运动粒子主要以与静止媒介的原子核电子相互碰撞的方式来损失能量,导致激发和离子化<sup>[2]</sup>。简单运动学表明,在U系衰变中,由<sup>210</sup>Po的α衰变所产生的<sup>206</sup>Pb核具有480 eV/核的反冲能量,这些能量对应于 $v=3.03\times10^7\text{cm/s}$ ,这要比玻尔第一电子的速率 $V_0$ 小一个数量级。这种能量下,能量损失主要通过原子核碰撞而非电子激发的形式进行。当能量小于0.01 MeV/核时,可以通过Lindhard、Scharff和Schott(LSS,1963)理论计算云母中<sup>206</sup>Pb反冲核的完全静止能。在计算例如黑云母此类化合物的( $dE/dx$ )<sub>total</sub>时,用以下公式:

$$(dE/dx)_{\text{compound}} = (1/M) \sum N_i M_i (dE/dx)_i \quad (\text{VI})$$

其中M是化合物分子量;N<sub>i</sub>是质量数为M<sub>i</sub>的元素i(化合物的分子式中)的原子个数;(dE/dx)<sub>i</sub>是包含元素i的静止媒介中移动粒子的静止能。当其小于0.01 MeV/核时,dE/dx值通过LSS理论计算得到,当高于0.01 MeV/核时,dE/dx值通过Henke和Benton(1967)范围-能量理论计算得到。计算结果表明,由<sup>210</sup>Po通过α衰变得到的反冲Pb原子的dE/dx值要比总能量为2~40 MeV,在适当蚀刻条件下可在黑云母中产生可蚀刻径迹的<sup>20</sup>Ne离子的dE/dx值高<sup>[3]</sup>。在这个基础上,在黑云母中单个α衰变产生的α反冲径迹可以被蚀刻出来。

用上述LSS理论所得到的黑云母中单个α反冲径迹的完全静止能计算出黑云母中单个α反冲径迹的范围为210Å。如果所有的反冲遵循“随机行走”原则,那么由U系8个α衰变所产生的 $R_{\alpha(\text{ms})}$ 为 $\sqrt{8} R_{\alpha}$ ,在黑云母中即600Å。如果对称性为4π,则与表面相交径迹的可蚀刻范围为从0到 $R_{\alpha(\text{ms})}$ ,观测到的平均值为 $R_{\alpha\text{平均}}=1/2R_{\alpha(\text{ms})}$ ,因此,观测到的与表面相交的α反冲径迹的可蚀刻范围的平均值为300Å。由于黑云母和白云母的范围-能量曲线非常相似,因而这种计算同样适用于白云母。

### 3 α反冲径迹退火行为

α反冲径迹退火要比裂变径迹容易得多。在给定的退火温度下,黑云母中α反冲径迹全退火时间要比自发裂变径迹全退火时间低一个数量级左右,这种差异是由于裂变径迹中心和α反冲径迹中心辐射损伤程度不同造成的<sup>[9]</sup>。α反冲径迹和裂变径迹封闭温度的不同对于可记录2种径迹的地质样品热历史的确定非常有用。比较简单研究裂变径迹的退火行为,样品的冷却历史可延伸到一个更低的温度范围。对于退火和未退火的样品来说,其径迹的大小范围和蚀刻效率显然不同,因此,有必要清楚退火和未退火样品径迹的大小范围和蚀刻效率。而且由于放射性衰变链中的子核扩散,子核可能偏离母核原位置,因此,自然样品中α反冲径迹未必都是由同一位置连续α反冲所形成的复合径迹。对于年龄与<sup>238</sup>U、<sup>235</sup>U和<sup>232</sup>Th衰变系列中寿命最长的子核同位素相当的年轻样品来说,在单个初始衰变母核位置上发生的反冲数目依赖于时间,因此,希望当样品置于高温下时,α反冲径迹的消失与构成α反冲径迹所需要的反冲数成正比。即形成径迹时所需α反冲数目越少,退火时径迹越容易消除。因此在α反冲径迹定年

实验中,需要知道全部径迹中由不同反冲数目所构成的径迹比例,而且需要知道单个和复合α反冲径迹退火的时间-温度关系。

### 4 U、Th含量分析

α反冲径迹定年技术需要测定U、Th含量,但是由于云母中其含量为10<sup>-9</sup>量级而使其分析困难。目前,几种分析U、Th含量的可行性方法是裂变径迹法和激光剥蚀-电感耦合等离子体-质谱法(LA-ICP-MS)。

云母具有片状结构,由于U的泄漏和沉积,只能分析其内层,而且在显微镜下计数云母薄片上的径迹时,要避开裂缝和边缘部分,因为这些区域往往存在U富集现象。用裂变径迹分析U、Th含量的优点在于其能够准确测定计数α反冲径迹区域U、Th含量的微分布特征。其中U含量用热中子照射样品以后产生的<sup>235</sup>U诱发裂变径迹来确定,Th含量用快中子照射样品以后产生的<sup>238</sup>U诱发裂变径迹来确定。即采用双照射办法:先用热中子照射,再用快中子照射。定量分析需要通过与参照物对比来实现,通常是在中子照射过程中加入U玻璃。由于云母中U、Th含量很低,所以需要精确计算中子通量,而且也需要制备U、Th含量与之相当的标准玻璃。

LA-ICP-MS法已经被广泛用于测定微量固体样品中的化学组成。这种方法不需要特别的样品处理,因而非常省时。然而用LA-ICP-MS法得到的U、Th含量在即使小于10 μm的尺度上分布也可能是不一致的,这种现象在平行和垂直于C轴的方向上都有体现,因而在微米尺度范围内需要做多次测量,以求一个平均值来减小误差<sup>[3]</sup>。

### 5 蚀刻模型

单位面积内α反冲径迹数目( $\rho_a$ )随蚀刻时间而线性增长。当α反冲径迹之间相互重叠时,在显微镜下变得无法辨认而达到表观饱和值。同时,α反冲径迹的直径也是随蚀刻时间的增加而增加的<sup>[10-14]</sup>。 $\rho_a$ 随时间线性增加是因为除了与基面相平行的蚀刻速率 $v_h$ 外,还存在与基面相垂直的蚀刻速率 $v_v$ 。假设云母晶体具有均匀的径迹体密度 $\rho_v(\text{mm}^{-3})$ (即每单位体积α反冲径迹数目),则未蚀刻表面的初始面密度为 $\rho_a R_e$ , $R_e$ 为α反冲径迹的射程,当通过蚀刻除去没有辐射损伤的表面层时,平行于它初始表面位置的基准面逐渐移向云母内部。此过程原有径迹未消失而新径迹又增加(图6),这导致随蚀刻时间 $t_e$ 增加, $\rho_a$ 线性增加,表示为:

$$\rho_a = \rho_v v_h t_e + \rho_v R_e \quad (\text{VII})$$

式(VII)为图6中的曲线(1)。光学显微镜的分辨极限为 $r_0$ (约0.5 μm),所以与原始面相交的径迹被蚀刻到在镜下可见所需时间为 $t_{e0}=r_0/v_h$ 。这段时间内已有数目为 $\rho_a r_0(v_v/v_h)$ 的径迹被蚀刻出,而其却在镜下不可见,其中 $v_h$ 为平行于云母节理面的蚀刻速度。因此方程(VII)<sup>[4]</sup>修改为:

$$\rho'_a = \rho_v v_h t_e + \rho_v R_e - \rho_a r_0(v_v/v_h) \quad (\text{VIII})$$

如图6中曲线(2)所示。由方程(VIII)可以看出,通过蚀刻可以得

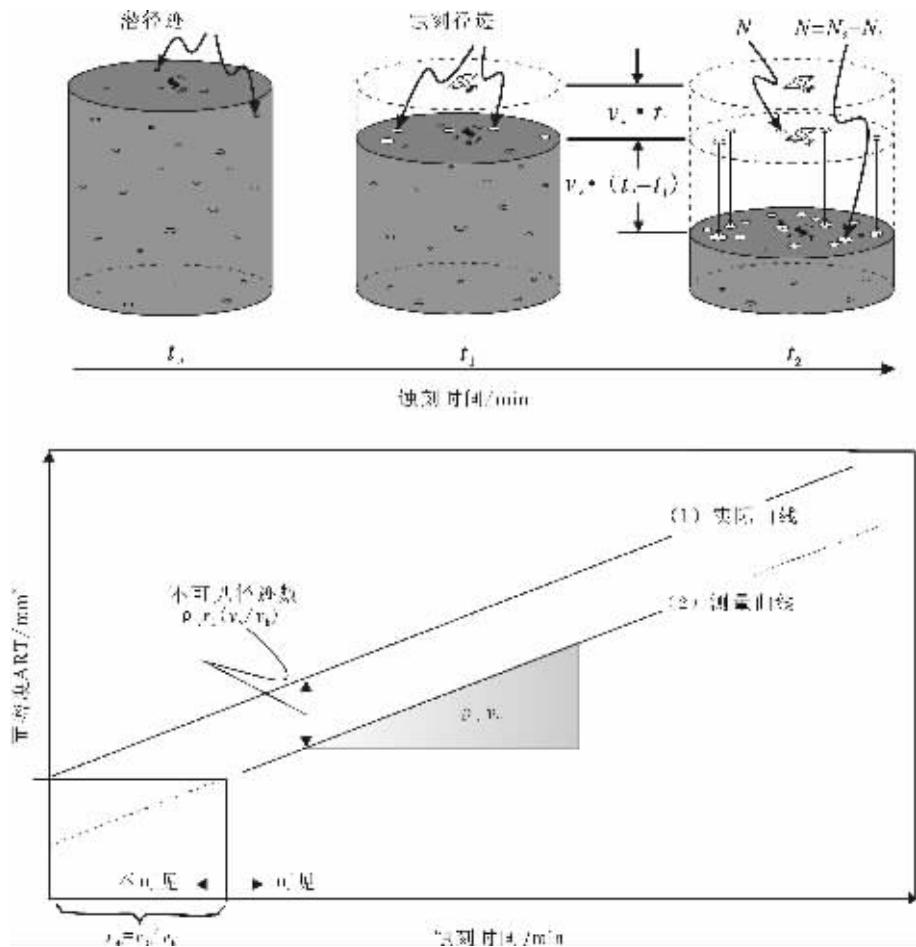


图6 黑云母和金云母的蚀刻模型  
Fig.6 Etching model for biotite and phlogopite

到径迹数目随时间的变化曲线,即 $N-t$ 图。 $\rho_v$ 值可以从斜率或直线与y轴交点获得。如果 $\rho_v$ 从斜率获得,不需要求 $R_0$ 。由于云母的解理和缺陷,将 $v_e$ 换成 $v_{eff}$ 。图7所示为测定 $v_{eff}$ 的原理。

## 6 定年模型

在矿物形成(或退火)时间 $t_0$ 中,样品包含了各种 $\alpha$ 发射核素最初含量 $N_0$ ,例如 $^{238}\text{U}$ 、 $^{234}\text{U}$ 、 $^{230}\text{Th}$ 、 $^{232}\text{Th}$ 、 $^{235}\text{U}$ 等,其子体核素也是 $\alpha$ 发射体。第一次 $\alpha$ 分裂形成径迹,此后衰变系列中的 $\alpha$ 分解只是改变初始母核形成的 $\alpha$ 反冲径迹的形状和直径而不形成新径迹。这种 $\alpha$ 反冲径迹形成模式最初由Hashemi-Nezhad等<sup>[2]</sup>提出。

单位体积 $\alpha$ 反冲径迹数目即 $\rho_v$ 从矿物形成时间 $t_0$ 开始随 $t$ 增加而增加。因而通过计算 $\rho_v$ 可以得出矿物年龄 $t$ 。为了使 $\rho_v$ 随时间 $t$ 的增加得到量化而做如下假设:云母结晶处岩浆处于放射性平衡状态,即对于每个衰变系列中的全部放射性核素,衰变常数 $\lambda[\text{a}^{-1}]$ 和原子数 $N[\text{mm}^{-3}]$ 的乘积 $\lambda \cdot N$ 相同且是常数。当云母从岩浆结晶出的瞬间(液/固相转换),进入

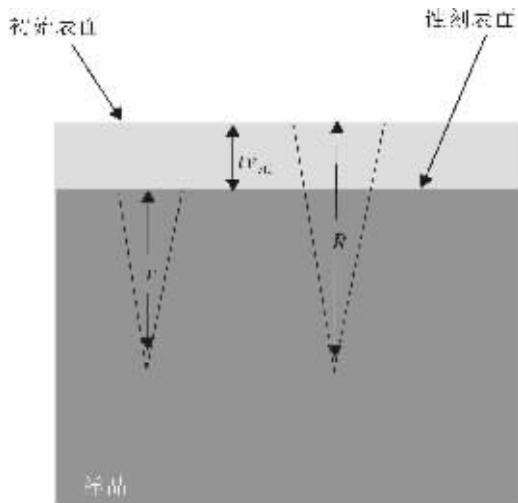
云母的各种放射性核素或多或少与其原始浓度 $N_0$ 分离。根据 $N_t = N_0 e^{-\lambda t}$ ,最初释放 $\alpha$ 粒子的放射性核素逐渐衰变,其放射性子体也随之增加。由于初始核素单次分解足够形成一条 $\alpha$ 反冲径迹,且在此模型中,ART与放射性衰变系列中的子核相当,因此,对于每个初始核素来说, $\alpha$ 反冲径迹按照 $\rho_v = \sum N_{0i} (1 - e^{-\lambda_i t})$ 增加。

实际上只考虑长寿命(大于 $10^4$ )核素如 $^{238}\text{U}$ 、 $^{235}\text{U}$ 、 $^{234}\text{U}$ 、 $^{232}\text{Th}$ 和 $^{230}\text{Th}$ , $^{235}\text{U}$ 衰变系列中的 $^{231}\text{Pa}$ 也可忽略,因为 $^{235}\text{U}$ 与 $^{238}\text{U}$ 同位素丰度比只有 $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}=0.007$ ,被忽略的核素 $^{231}\text{Pa}$ 对 $\rho_v$ 的贡献小于2%。为了减少地球化学参数,实际中只考虑 $\text{U}$ 、 $\text{Th}$ 同位素。在结晶过程中 $\text{U}$ 、 $\text{Th}$ 经过化学分离,矿物s和岩浆m之间的分馏通过如下分配系数得到

$$D = \frac{[Th/U]_s}{[Th/U]_m} \quad (\text{IX})$$

由这些核素产生的全部 $\alpha$ 反冲径迹密度 $\rho_v$ 为:

$$\rho_v = U_s \cdot e^{-238\lambda_s t} \cdot [(1 - e^{-238\lambda_s t}) + \frac{238\lambda_s}{234\lambda_t} \cdot (1 - e^{-234\lambda_t t})]$$

图7  $v_{\text{eff}}$  的确定原理Fig.7 Principle for determining  $v_{\text{eff}}$ 

$$+D \cdot \frac{^{238}\lambda}{^{230}\lambda} (1 - e^{-^{230}\lambda}) + I \cdot (1 - e^{-^{235}\lambda}) \\ + D \cdot [Th/U]_s \cdot (1 - e^{-^{232}\lambda}) \cdot \eta_{\text{tot}} \\ = [Th/U].$$

其中:  $^{238}\lambda$ 、 $^{230}\lambda$ 是各( $x$ )的衰变常数;

$\eta_{\text{tot}}$ 是对 $\alpha$ 反冲径迹的总效率系数,约为1;

$^{238}U_a$ (原子数/mm<sup>3</sup>)是矿物中 $^{238}U$ 的原子频数,用此关系计算:

$$^{238}U_a = ^{238}U_g n_s N_A / M_U \quad (\text{XI})$$

$U_g$ 是U的重量浓度(g/g);

$N_A$ 是阿伏加德罗常数( $=6.02 \times 10^{23}$ );

$n_s$ 是矿物密度(g/mm<sup>3</sup>);

$M_U$ 代表U的摩尔质量(g/mol)。

除 $D=[Th/U]/[Th/U]_s$ 之外,方程(X)中全部参数都是已知或可测的。图8显示按照方程(X)对各种 $[Th/U]_s$ 比率的 $\rho_v^{[U]}$ 生长曲线,方法是把 $\rho_v$ 归一化为1 ng/gU。为获得年龄 $t$ ,方程(X)可以迭代或画图来解。

方程(X)假设在矿物形成时,岩浆处于放射性平衡。然而,在岩浆中共生的液固相部分熔融和分馏结晶作用导致年轻火山岩样品的活性比率为0.9~1.1不等(少数为0.7~1.4)(Ivanovich等,1992),如果岩浆中放射性平衡的假设不成立,方程中也只有 $^{230}\text{Th}$ 项受到非放射性平衡的影响,与其他的核素相比,其浓度很低。即使 $^{238}\text{U}/^{230}\text{Th}$ 的活性比率在0.7~1.4的范围内变化,其导致的误差也小于5%(由方程(X)),与目前20%的ART定年误差相比可忽略。

用具有已知年龄的样品作为标准,假设参数 $[Th/U]_s$ 对于所有研究样品都一致,则可以得到U归一化的ART体密度 $\rho_v^{[U]}$ 与样品已知年龄的一个重要关系,从而可以利用其反推,得到未知样品的年龄。这种关系与理论预测一致<sup>[7]</sup>(图9)。

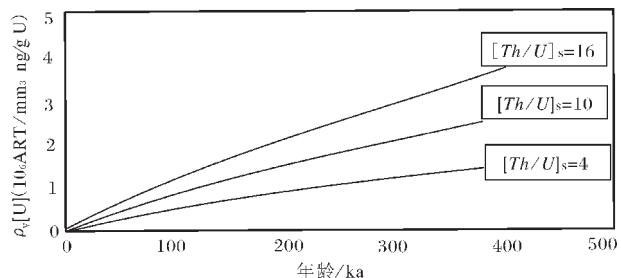
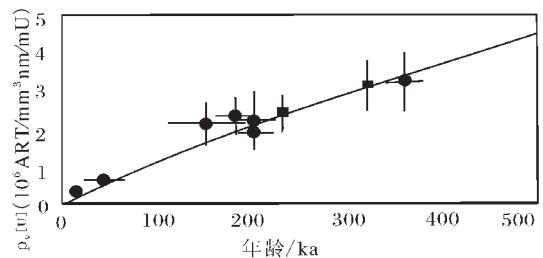
图8 在各种 $[Th/U]$ 条件下U归一化 $\alpha$ 反冲径迹体密度 $\rho_v^{[U]}$ 对年龄生长曲线Fig.8 Growth curves of uranium-normalized ART volume density  $\rho_v^{[U]}$  versus age under various conditions of  $[Th/U]$ ,

图9 K. Gögen等的实验中所研究云母的数据点

Fig.9 Data points of mica studied in the experiment of K. Gögen and G.A Wagner

## 7 结 论

通过建立适当的蚀刻模型和定年模型,得到ARTs的面密度和体密度,如果测得U、Th含量和垂直蚀刻速率,则可以得到矿物年龄。通过退火实验,样品的冷却历史可延伸到一个更低的温度范围。目前 $\alpha$ 反冲径迹定年技术存在20%的误差,引起这些误差的可能原因归结为以下几点<sup>[15,16]</sup>。

(1) 放射性衰变链中的子核迁移造成了一个初始的衰变系列可能产生1条以上的径迹,从而导致了计数的误差。

(2) 显微镜下不能区分径迹是由单个 $\alpha$ 反冲还是多个 $\alpha$ 反冲形成的,因此在退火实验中无法区分这2种不同径迹的退火行为。

(3) 云母中U、Th含量很低而且分布不均匀,导致很难精确测定其含量,目前只能通过测量多个区域平均含量的办法来减小误差。

(4) 由于仪器的精度原因,很难精确测量其蚀刻后厚度的微小变化,因而 $v_{\text{eff}}$ 的测定存在一定误差。

(5) 实验条件的控制和计数 $\alpha$ 反冲径迹的习惯所造成的 $N-t$ 直线非严格线性,使得用斜率求出的 $\rho_v$ 不够精确。

$\alpha$ 反冲径迹方法适于在 $10^2$ ~ $10^6$ a范围内定年黑云母和金云母。因为0.5 mm大小以上的单个颗粒对于年龄的测定已经

足够,因而来自第四纪火山岩云母的 $\alpha$ 反冲径迹定年可以成为一个重要的火山灰年代学工具。这种小尺寸也可以对来自远端火山灰的云母定年,这是其他定年方法不可能做到的。

对于年龄大于 $10^6$ a的黑云母,必须计数多于 $10^5$ ART/mm $^2$ 径迹密度,它是当前在光学显微镜下精确计数的上限。用原子力或电子显微镜观测未蚀刻的(潜在的)或简单蚀刻的 $\alpha$ 反冲径迹( $<10$ s,在40%HF中)能够扩宽年龄范围到 $10^9$ a。由于白云母U、Th含量低,其可能是这个年龄段比较好的定年矿物。

#### 参考文献:

- [1]Huang W H, Walker R M. Fossil alpha-particle recoil tracks: a new method of age determination[J]. Science, 1967,155: 1103–1106.
- [2]Hashemi-Nezhad S R, Durrani S A. Registration of alpha-recoil tracks in mica: the prospects for alpha-recoil dating method [J]. Nucl. Tracks, 1981,5:189–205.
- [3]Glasmacher U A, Lang M, Klemme S, et al. Alpha-recoil tracks in natural dark mica: Dating geological samples by optical and scanning force microscopy[J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms, 2003,209:351–356.
- [4]Gögen K, Wagner G A. Alpha-recoil track dating of volcanics[J]. Chemical Geology, 2000,166(1–2):127–137.
- [5]Gentry R V. Fossil alpha-recoil analysis of certain variant radioactive halos[J]. Science, 1968, 160:1228–1269.
- [6]Katcoff S. Alpha-recoil tracks in mica: registration efficiency[J]. Science, 1969, 166:382–384.
- [7]Raymond Jonckheere, Kürsad Gögen. A Monte-Carlo calculation of the size distribution of latent alpha-recoil tracks[J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms. 2001,183(3–4):347–357.
- [8]Hashimoto T, Sugiyama H, Sotobayashi T. Alpha-recoil track formation on muscovite and measurement of recoil-range using  $^{252}\text{Cf}$ -sources[J]. Nucl. Tracks, 1980,4:263–269.
- [9]Hashemi-Nezhad S R, Durrani S A. Annealing behaviour of alpha-recoil tracks in biotite mica: implication for alpha-recoil dating method[J]. Nucl. Tracks, 1983,7:141–146.
- [10]Lang M, Glasmacher U A, Moine B, et al. Etch-pit morphology of tracks caused by swift heavy ions in natural dark mica[J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms, 2004,218:466–471.
- [11]Lang M, Glasmacher U A, Neumann R, et al. Etching behaviour of alpha-recoil tracks in natural dark mica studied via artificial ion tracks [J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms, 2003,209:357–361.
- [12]Lang M, Glasmacher U A, Moine B, et al. Heavy-ion induced defects in phlogopite imaged by scanning force microscope [J]. Surface and Coatings Technology, 2002,158–159:439–443.
- [13]Gogen K, Jonckheere R C, Wagner G A. On the dimensions and densities of etched and latent alpha-recoil tracks[A]. In: Abstract, 19th Internat. Conf. on Nuclear Tracks in Solids[C]. Besancou, 1998.805.
- [14]Norman M, Brown D, Zhi Hui Liu. The etching of natural alpha-recoil tracks in mica with an argon RF-plasma discharge and their imaging via atomic force microscopy[J]. Applied Surface Science, 1996,93(2):89–100.
- [15]Huang W H, Maurette M, Walker R M. Observation of fossil  $\alpha$ -particle recoil tracks and their implication for dating measurements[A]. In: Radioactive dating and methods of lowlevel counting[C]. IAEA, Vienna, 1967.415–429.
- [16]Wolfman D, Rolniak T M. Alpha-recoil track dating: problems and prospects[J]. Archaeo-Physika, 1978;512–521.