中国科学: 地球科学 2012 年 第 42 卷 第 10 期: 1559 ~ 1567
www.scichina.com earth.scichina.com
《中国科学》杂志社
SCIENCE CHINA PRESS

论 文

中子热化不充分对裂变径迹年龄测定影响的初步研究

庞建章*, 郑德文, 万景林, 李大明, 张培震, 杨静

中国地震局地质研究所地震动力学国家重点实验室, 北京 100029
* E-mail: pangjzg@gmail.com

收稿日期: 2011-10-31; 接受日期: 2012-06-11
地震动力学国家重点实验室开放基金(编号: LED2009A05)和国家自然科学基金重点项目(批准号: 41030317)资助

摘要 裂变径迹测年方法中, 母体的测量是通过热中子诱发 ^{235}U 裂变产生的诱发裂变径迹间接测得的. 当热化不充分时, 还会诱发 ^{238}U 和 ^{232}Th 裂变, 造成母体测量的误差. 因此, 中子热化充分与否对年龄测试结果存在重要影响. 2007 年, 由于安全生产的原因, 原 101 反应堆关闭, 本研究尝试 492 反应堆做热中子辐照的可行性及从理论上探讨相关因素对裂变径迹结果可能的影响. 本文采用 SRM612 和 CN5 标准玻璃成对辐照方法, 通过多次的监测结果, 研究了反应堆中子热化(thermalization)的情况. 研究表明, 热中子在空间上(无论在横向上, 还是在纵向上)表现出不均匀性, 特别是横向上的不均匀性较大. 但是在原子能反应堆中适当的位置, 可以满足裂变径迹测试的辐照条件. 本文计算、评估了当前热化不充分条件对裂变径迹年龄测定的影响, 发现影响年龄的主要因素是标准样与样品中的 ^{232}Th/^{238}U 比值. 当样品中的 ^{232}Th/^{238}U 比值与标准样品一致时, 对测试结果无影响; 当样品的 ^{232}Th/^{238}U 比值大于标准样品 ^{232}Th/^{238}U 比值时, 测试结果偏小; 相反, 则偏大. 研究认为, 为了减小辐照带来的误差, 应严格地限定辐照的通道及位置, 另外减小每包的样品量, 降低横向上热化不均匀性的影响, 也是减小误差的一种方式.

关键词
中子热化
裂变径迹测年
^{232}Th/^{238}U 比值

自从 Fleischer 等[1]发表 *Nuclear Tracks in Solids: Principles and Applications* 以来, 裂变径迹热年代学方法得到了充分的发展[2~6]和广泛的应用[7~19]. 裂变径迹测年方法是同位素测年方法的一种, 其通过测量 ^{238}U 裂变的母体和子体来获得年龄. 与传统同位素年代学方法不同的是, 裂变径迹法中的子体并不是元素, 而是铀裂变时对矿物造成的电离损伤即裂变径迹. 通过化学蚀刻, 这种电离损伤可以在显微镜下观测. 自发裂变径迹是 ^{238}U 在自然状态下裂变的子体, 通过测量计年矿物(如磷灰石、锆石等高铀含量矿物)中的自发裂变径迹获得. 除自发裂变外, 通过中子辐照也可以使铀发生裂变, 称为诱发裂变. 原子能反应堆中的热中子(thermal neutron)可以诱发 ^{235}U 裂变产生诱发径迹. 由于自然界中, 衰变达到稳定状态时, 同位素 ^{235}U/^{238}U 比是一恒定值(0.0072527)[20], 因此通过测量 ^{235}U 诱发裂变产生径迹的方法, 便可获得 ^{238}U 的量, 从而获得裂变径迹年龄.

原子能反应堆中, 中子源由一系列能量不同的

英文引用格式: Pang J Z, Zheng D W, Wan J L, et al. Insufficient thermalization effects on determining fission-track ages. Sci China Earth Sci, 2012, doi: 10.1007/s11430-012-4471-7

中子混合而成, 由快中子(fast neutron)、超热中子(epithermal neutron)和热中子(thermal neutron)组成. 热中子、快中子和超热中子均可诱发 ^{235}U, ^{238}U 和 ^{232}Th 产生裂变(诱发裂变的参数见表 1). 由高能量(0.5~10 MeV)的快中子降低能量为低能量(0~0.25 eV)的热中子的过程称为中子热化(thermalization), 如果能量降低不充分, 热中子所占比例不足够高, 快中子和超热中子诱发 ^{235}U, ^{238}U 和 ^{232}Th 裂变产生的径迹超过 1%, 则称中子热化不充分(poor thermalization), 此时会对样品年龄的测试产生影响[21,22]. 因此反应堆的热化情况对裂变径迹年龄测定的准确性具有重要影响.

2007 年, 随着对核放射性安全要求的提高, 原 101 反应堆关闭. 实验室开始使用 492 堆. 492 堆的体积相对较小, 以快中子为特征, 且中子通量的不均匀性较明显[23]. 但是 492 反应堆中中子热化程度如何, 能否达到裂变径迹年龄测试的要求呢? 如果热化程度较差, 对裂变径迹年龄测定有何影响? 为了研究这些问题, 本文通过使用标准玻璃对(SRM612 和 CN5)同时辐照的方法评估了中子热化情况、并探讨了其对年龄测试的影响.

1 基本原理

1.1 测试热化程度的基本原理

在原子能反应堆中, 不同中子诱发产生的径迹量(N_i)与同位素(^{235}U, ^{238}U 和 ^{232}Th)的量、对应的活化截面σ以及中子累积通量ϕ成正比, 如: ^{235}U 的诱发径迹为 $^{235}N_i$=^{235}U×ϕ_{th}×σ_{th}, 其中, $^{235}N_i$ 为诱发径迹数量; ^{235}U 为铀 235 的量; ϕ_{th} 为热中子累积通量; σ_{th} 为 ^{235}U 对应的热中子活化截面. 当热化充分时, 超热中子和快中子诱发的裂变径迹可忽略不计, 相关核反应参数见表 1.

在缺乏精确热化参数的情况下, 我们利用现有条件, 采用 SRM612 和 CN5 两种铀标准玻璃测量反应堆中中子热化的程度及分布情况. SRM612 和 CN5 是裂变径迹法测年中常用的两种铀标准玻璃. SRM612 中 U 含量为 37.38 ppm(1 ppm=1 μg g^{-1}), 其中 ^{238}U 含量为 37.2908 ppm, ^{235}U 的含量为 0.0892 ppm, ^{235}U/^{238}U 值为 0.002392, Th 的含量为 37.8 ppm[24]; CN5 中 U 含量为 12.2 ppm, 其中 ^{238}U 含量为 12.11215 ppm, ^{235}U 含量为 0.087846 ppm, ^{235}U/^{238}U 值为 0.0072527, 不含 Th[1,20,25]. 两种标准玻璃的 ^{235}U 含量几乎相等, 但是标准玻璃 SRM612 所含 ^{232}Th 和 ^{238}U 明显大于 CN5, 因此, 如果中子热化充分, 两种标准玻璃诱发径迹的密度应该近似; 若中子热化不充分, 快中子和超热中子就会诱发 ^{235}U, ^{232}Th 和 ^{238}U 产生大量径迹, 导致 SRM612 的诱发径迹密度远大于 CN5 的密度. 因此我们把这两种标准玻璃同时放到反应堆中辐照, 可以粗略监测反应堆中中子的热化情况.

1.2 监测指标——标准玻璃 ρ_{SRM612}/ρ_{CN5} 比值

诱发径迹是 ^{235}U, ^{238}U 和 ^{232}Th 发生中子反应, 生成径迹的总和, 如公式(1)[21]:

$$\begin{aligned} N_i^m &= {}^{235}N_i + {}^{238}N_i + {}^{232}N_i \\ &= {}^{235}\mathrm{U}({}^{235}\sigma_{th}\phi_{th} + {}^{235}\sigma_f\phi_f + {}^{235}\sigma_{epi}\phi_{epi}) \\ &\quad + {}^{238}\mathrm{U}({}^{238}\sigma_f\phi_f + {}^{238}\sigma_{epi}\phi_{epi}) + {}^{232}\mathrm{Th}\times{}^{232}\sigma_f\phi_f, \end{aligned} \quad (1)$$

σ为中子活化截面(thermal neutron cross-section), ϕ为中子累计通量(thermal neutron fluence); 下标 th, f 和 epi 分别表示热中子、快中子和超热中子; 左上标数字 235, 238, 232 分别代表 ^{235}U, ^{238}U 和 ^{232}Th.

(1) 中子热化充分时, 即 ϕ_{th}/ϕ_f>7.5 和 ϕ_{th}/ϕ_{epi}>100 时, ϕ_f, ϕ_{epi} 贡献的径迹数小于总径迹的 1%, 可以近似认为ϕ_f=0, ϕ_{epi}=0, 忽略快中子和超热中子产生的径迹[4]. 因此, 式(1)简化为

$$N_i = {}^{235}\mathrm{U}\times\phi_{th}\times\sigma_{th}. \quad (2)$$

CN5 和 SRM612 诱发径迹比值为

表 1 ^{238}U, ^{235}U 和 ^{232}Th 中子反应参数表[4]

同位素	天然丰度(%)	热中子活化截面(σ_{th})	超热中子活化截面(σ_{epi})	快中子活化截面(σ_f)
^{232}Th	100	negl.	negl.[a)]	0.081
^{235}U	0.72	586	275	1.203
^{238}U	99.27	negl.	0.0015	0.305

a) negl.表示可以忽略<1 mb(=10^{-3} barn)

$$\frac{N_{i612}}{N_{i\mathrm{CN5}}}=\frac{0.0892\times 586\times \phi_{\mathrm{th}}}{0.08785\times 586\times \phi_{\mathrm{th}}}=1.0154. \quad (3)$$

(3) 中子热化不充分时, 以 N_i^{m} 表示热化不充分时的值, 则两种标玻的诱发径迹公式分别为

$$\begin{aligned}N_{i612}^{\mathrm{m}} &= {}^{235}N_i+{}^{238}N_i+{}^{232}N_i\\ &= {}^{235}\mathrm{U}_{612}\left({}^{235}\sigma_{\mathrm{th}}\phi_{\mathrm{th}}+{}^{235}\sigma_{\mathrm{f}}\phi_{\mathrm{f}}+\phi_{\mathrm{epi}}{}^{235}\sigma_{\mathrm{epi}}\right)\\ &\quad+{}^{238}\mathrm{U}_{612}\left({}^{238}\sigma_{\mathrm{f}}\phi_{\mathrm{f}}+\phi_{\mathrm{epi}}{}^{238}\sigma_{\mathrm{epi}}\right)+{}^{232}\mathrm{Th}_{612}\times{}^{232}\sigma_{\mathrm{f}}\phi_{\mathrm{f}},\end{aligned} \quad (4)$$

$$\begin{aligned}N_{i\mathrm{CN5}}^{\mathrm{m}} &= {}^{235}N_i+{}^{238}N_i+{}^{232}N_i\\ &= {}^{235}\mathrm{U}_{\mathrm{CN5}}\left({}^{235}\sigma_{\mathrm{th}}\phi_{\mathrm{th}}+{}^{235}\sigma_{\mathrm{f}}\phi_{\mathrm{f}}+\phi_{\mathrm{epi}}{}^{235}\sigma_{\mathrm{epi}}\right)\\ &\quad+{}^{238}\mathrm{U}_{\mathrm{CN5}}\left({}^{238}\sigma_{\mathrm{f}}\phi_{\mathrm{f}}+\phi_{\mathrm{epi}}{}^{238}\sigma_{\mathrm{epi}}\right).\end{aligned} \quad (5)$$

由(4)式和(5)式做比, 并带入相关系数得两标玻的诱发径迹比值为

$$N_{i612}^{\mathrm{m}}/N_{i\mathrm{CN}5}^{\mathrm{m}}=1.0154+(0.03749\phi_{\mathrm{epi}}+10.6845\phi_{\mathrm{f}})/(51.48\phi_{\mathrm{th}}+24.1769\phi_{\mathrm{epi}}+3.79989\phi_{\mathrm{f}}). \quad (6)$$

上面推导表明: 热化充分时 $\rho_{\mathrm{SRM612}}/\rho_{\mathrm{CN5}}$ 径迹密度的比值为 1.0154(由于式(3), (6)的比值是相同体积的 SRM612 和 CN5 产生的体密度比值; 因为 U 含量在标准玻璃中分布均匀, 所以面密度的比值等于体密度比值). 因此, 热化充分时 $\rho_{\mathrm{SRM612}}/\rho_{\mathrm{CN5}}$ 径迹密度的比值为 1.0154, 即这两种标准玻璃的诱发径迹的密度比在 1%~2%的统计误差范围内应该基本一致. 如果热化不充分, 比值应大于 1.0154. 本文就是利用这一指标判断热化充分与否.

2　实验方法及测试结果

2.1　实验测试方法简介

通常辐照时样品放置情况如图 1 所示. 在铝罐中并列放置两列样品(a 列和 a′列), 每列样品的顶底及中间加标准玻璃(SRM612 和 CN5, 多数情况下用 CN5)监测辐照的累积通量, 通过对标准玻璃的诱发径迹密度在纵向上的线性插值, 获得每一个样品对应的辐照剂量. 本文一共统计了 6 次辐照数据, 详细的放置情况见图 1 及表 2.

样品照射完, 对作为标准玻璃外探测器的低铀含量的白云母蚀刻, 蚀刻条件为 40%的 HF, 21℃, 40 min. 在 Zeiss 显微镜, 放大 1000 倍下进行了径迹统计, 测试数据见表 2.

2.2　测试结果

本文共统计了 6 批次辐照的标准玻璃, 结果列于表 2, 其中 $\rho_{\mathrm{SRM612}}/\rho_{\mathrm{CN5}}$ 是根据两种标准玻璃的实验数据并按样品在样品柱的位置进行插值并做比得出. 标准玻璃对应的诱发径迹的密度在纵向上和横向上的变化可以反映中子通量在空间上的变化, 标准玻璃 SRM612 和 CN5 的诱发径迹密度比值 $\rho_{\mathrm{SRM612}}/\rho_{\mathrm{CN5}}$ 在纵向上和横向上的比值变化可以检测空间上中子热化程度的差异. 总体上, SRM612 的诱发径迹密度变化范围为 0.77~1.74(10^6 n cm^{-2}), CN5 的诱发径迹密度变化范围为 0.76~1.35(10^6 n cm^{-2}), $\rho_{\mathrm{SRM612}}/\rho_{\mathrm{CN5}}$ 比值的变化区间为 0.973~1.595.

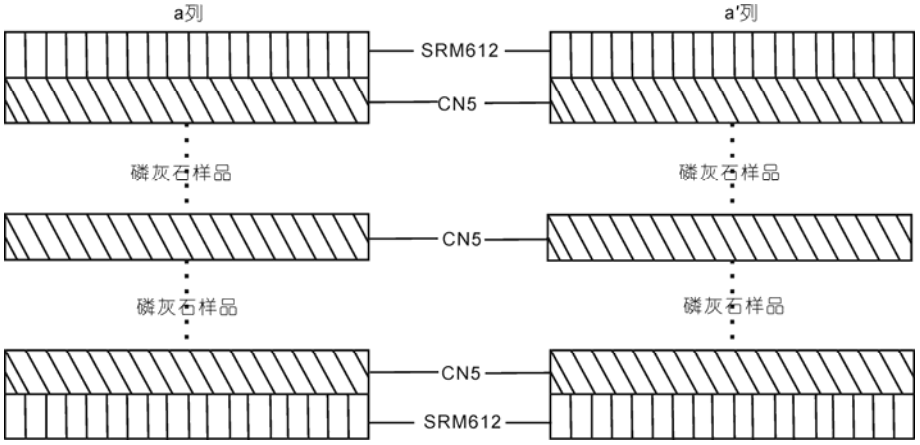

图 1　反应堆内样品包辐照放置纵剖面图

a 和 a′代表同一铝罐中紧邻的两列样品; SRM612 和 CN5 分别为不同的标准玻璃

表 2　标准玻璃 SRM612 和 CN5 的径迹密度表 [a)]

编号	密度($\times10^6$ cm^{-2})	位置(mm)	$\rho B_{612}/\rho CN_5$	编号	密度($\times10^6$ cm^{-2})	位置(mm)	$\rho B_{612}/ CN_5$
Ⅰ				Ⅱ			
B-9	1	5.83	1.015	B-11	1.24	0.95	1.134
C-11	1.012	7.73	1.011	C-5	1.083	2.85	1.134
B-8	1.06	10.71	1.006	C-6	1.012	15.55	1.133
C-10	1.08	12.61	0.989	C-7	0.913	28.25	1.167
B-7	1.08	15.59	1	B-12	1.053	30.15	1.172
C-9	1.08	17.49	1.018				
B-6	1.13	20.47	1.046				
C-8	1.151	22.37	0.999				
		a 列				a′列	
Ⅲ				Ⅲ			
B-5	1.49	0.95	1.124	C-7	1.29	0.95	1.011
C-5	1.26	3.93	1.146	B-7	1.29	2.85	1.011
C-11	0.933	18.79	1.303				
C-6	0.889	34.73	1.092	B-8	1.05	33.91	0.997
B-6	0.942	36.63	1.066	C-8	1.04	35.81	0.995
Ⅳ				Ⅳ			
B-11	1.74	0.95	1.595	B-9	1.36	0.95	0.98
C-18	1.08	2.85	1.569	C-9	1.35	2.85	0.991
C-19	0.99	18.79	1.326	C-20	1.03	18.79	1.115
C-12	0.885	34.73	1.053	C-10	0.907	34.73	1.057
B-12	0.886	36.63	1.015	B-10	0.936	36.63	1.049
Ⅴ				Ⅴ			
C-13	1.26	0.95	1.042	B-15	1.49	0.95	1.291
B-13	1.282	2.85	1.046	C-15	1.141	2.85	1.28
C-17	0.937	18.79	1.095	C-21	1.03	18.79	1.18
B-14	0.77	34.73	0.989	C-16	0.83	34.73	1.17
C-14	0.76	36.63	0.973	B-16	0.942	36.63	1.168
Ⅵ				Ⅵ			
B-2	1.39	0.95	1.14	B-4	1.73	0.95	1.426
C-1	1.2	2.85	1.14	C-3	1.19	2.85	1.414
C-2	0.882	33.91	1.143	C-4	0.816	33.91	1.12
B-3	0.986	35.81	1.143	B-5	0.867	35.81	1.093

a) “编号”中 B 代表标准玻璃 SRM612, C 代表标准玻璃 CN5; “位置”为标准玻璃距离样品柱顶部距离(mm); “Ⅰ~Ⅵ”为样品辐照的不同批次

根据表 2 做径迹密度图(图 2)和径迹密度比值图(图 3).

图 2(a), 标准玻璃诱发径迹密度曲线紧紧缠绕在一起, 纵向上, 随标准玻璃所处位置变化较小, 且近线性变化. 相似地, 图 2(b)和(c)的 a′列、(d)的 a 列也表现出诱发径迹密度随标准玻璃的位置近线性变化的特征, 说明中子通量虽然在纵向上分布不均匀, 但是其变化均匀, 可以用简单的线性插值获得. 与目前简单地线性插值的方法吻合. 相反, 图 2(c)的 a 列、(d)的 a′列和(e), 诱发径迹密度的变化表现为折线的特征, 表明中子通量的变化不均匀, 用简单地的线性插值的方法获得各个位置的通量, 可能带来一定的误差, 这与王非等[23]的结果基本一致. 图 2(f)和(c)的 a′列, 每条线只有两个数据点组成, 没有用来讨论中子通量的空间变化.

图 2((c)~(f))中的数据是由平行放置的 2 列(a 与 a′列)标准玻璃获得, 可以用来考察中子通量在横向上的分布. 如果同批次两列样品中, 相同标准玻璃的诱发密度曲线相近或重合, 表明中子通量在横向上的变化小或基本上没有变化; 否则, 表明横向上中子通量存在变化. 图 2((c)~(f))中, 同种标玻密度曲线均有不同程度的分离, 且曲线不平行, 这说明中子通量在横向上存在变化, 且变化不均匀. 与王非等[23]在 ^{39}Ar/^{40}Ar 法中得出结论类似. 但是, 由于单颗粒样品

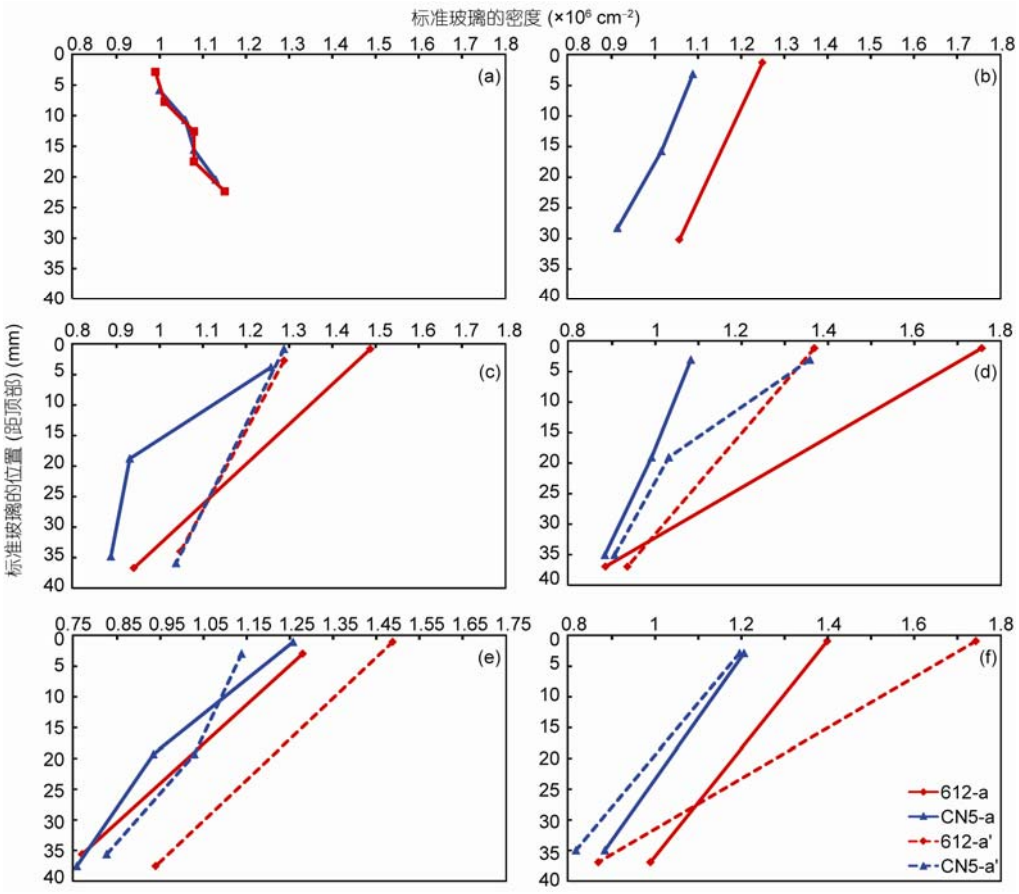

图 2　标准玻璃诱发径迹密度随位置变化图

(a)~(f)分别为 I~VI批次. 实线代表 a 列标准玻璃密度曲线, 虚线代表 a′列标准玻璃密度曲线; 红色代表 SRM612 标准玻璃, 蓝色代表 CN5 标准玻璃; 横轴为标准玻璃的密度

裂变径迹年龄是根据同一位置自发与诱发径迹测量的统计结果, 所以当热化充分时横向上中子通量不均匀不是影响年龄的主要因素; 当热化不充分时, 水平位置上不同点对裂变径迹年龄的影响是不同的.

图 3 共 50 个诱发径迹密度比值(ρ_{SRM612}/ρ_{CN5}), 详细的展示了径迹密度比值在空间上的变化. 其中, 23 个点落在理论上热化充分的范围(绿色条带)内或附近, 此 23 个点的密度比平均值为 1.0156, 及其接近理论值 1.0154, 认为这些点的热化程度较好, 满足裂变径迹测试的热化程度要求. 达到热化充分要求的占~46%. 其中, Ⅰ批次样品的比值均落在绿条带中, 相似地, Ⅲ-a′, Ⅳ-a′和Ⅴ-a 的大部分位置也处于绿条带中, 表明这些样品辐照时的反应堆中位置的热化程度很好, 基本符合裂变径迹测试的要求. 相反, 个别样品(Ⅳ-a)的 ρ_{SRM612}/ρ_{CN5} 比值达到 1.6, 说明热化程度较差. 热化不充分位置的标玻 SRM612 和 CN5 的诱发径迹密度比(ρ_{SRM612}/ρ_{CN5})主要集中在 1.1~1.2 之间, 共 19 个点, 其平均值~1.137; 个别样品点的 ρ_{SRM612}/ρ_{CN5} 偏离较远.

2.3　热化程度的参数估算

根据以上实验数据, 分别估算热化不充分与充分位置的辐照热化参数(ϕ_{th}/ϕ_f)范围, 并与 Wagner 和 Van den Haute[4]给出的热化充分条件ϕ_{th}/ϕ_f>7.5 做比较.

图 3 中热化不充分位置集中的 19 个密度比值的平均值 ρ_{SRM612}/ρ_{CN5}=1.137 代入式(6)得

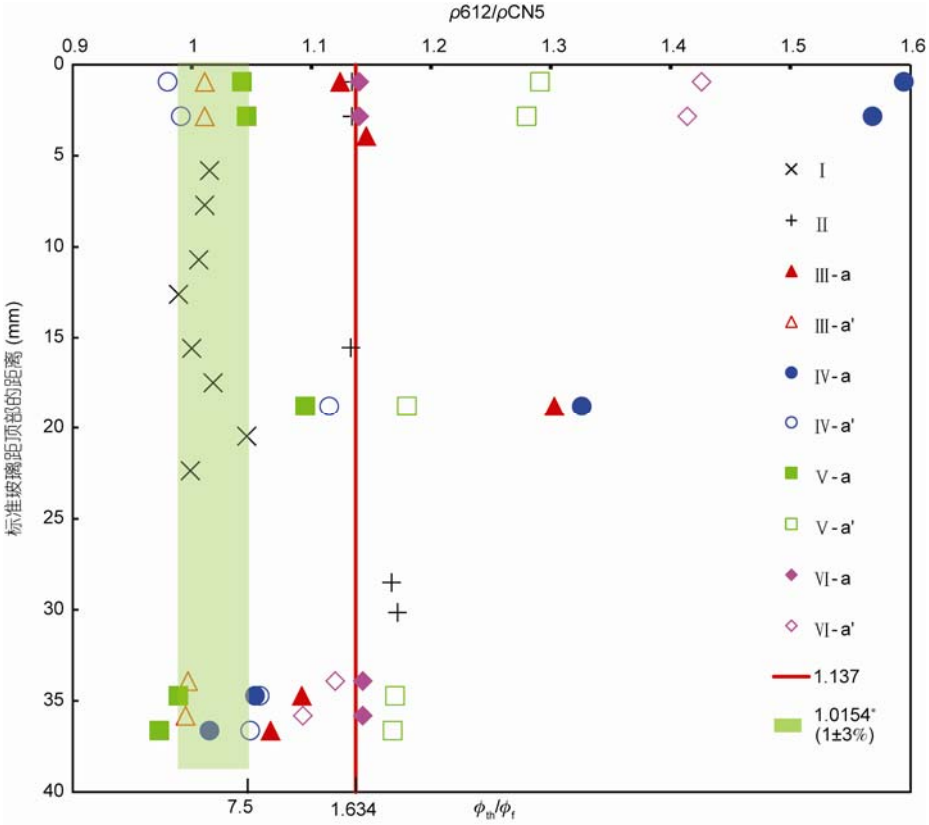

图 3　标玻诱发径迹密度比与样品位置关系图

I~VI为批次编号, “a”、“a”代表不同列; 绿色条带是以 3%为统计误差的、在热化充分时标准玻璃 SRM612 与 CN5 的诱发径迹密度比值(理论上, 热化充分时的比值为 1.0154); 红线为热化不充分集中部分标准玻璃诱发径迹密度比的平均值, 1.137

$$(0.03749\phi_{epi}+10.6845\phi_f)/(51.48\phi_{th}+24.1769\phi_{epi}+3.79989\phi_f)=0.1216. \quad (7)$$

整理(7)式分别得

$$\phi_{th}/\phi_f=1.634-0.4639\times(\phi_{epi}/\phi_f). \quad (8)$$

由(8)式得

$$0<\phi_{th}/\phi_f<1.634,\ 0<\phi_{epi}/\phi_f<3.522. \quad (9)$$

式(9)结果与 Wagner 和 Van den Haute[4]给出的热化充分条件 $\phi_{th}/\phi_f>7.5$ 存在一定差距. 可见, 反应堆中 $\phi_{th}/\phi_f<7.5$, 即快中子含量偏高可能是造成热化不充分的主要原因. 由于标准玻璃种类较少, 目前还无法估算 ϕ_{th}/ϕ_{epi} 比值.

同理根据图 3 绿色条带范围 23 个密度比值的平均值 $\rho_{SRM612}/\rho_{CN5}=1.0156$ 算得热化充分位 $\phi_{th}/\phi_f>1037$, 完全满足 Wagner 和 Van den Haute[4]给出的热化充分条件 $\phi_{th}/\phi_f>7.5$.

3　中子热化程度对样品年龄的影响

3.1　FT 年龄基本公式

实验结果表明, 辐照中存在热化程度不理想的情况, 它对裂变径迹年龄的影响如何呢? 我们用 ρ_{SRM612}/ρ_{CN5} 的平均值, 探讨了其对于裂变径迹年龄测定的影响.

裂变径迹年龄公式为

$$t=\frac{1}{\lambda_D}\ln\left(1+\lambda_D g\zeta\left(\frac{\rho_s}{\rho_i}\right)_{unk}\rho_d\right). \quad (10)$$

其中, ζ (Zeta)的表达式为 $\zeta=\dfrac{e^{\lambda_D T_{STD}}-1}{\lambda_D g\left(\rho_s/\rho_i\right)_{STD}\rho_d}$;

λ_D 为总衰变常数(1.55×10^{-10} a^{-1})[26]; g 为几何因子; ρ 为径迹密度; 下标 unk 和 STD 分别代表未知样品和标准样; 下标 s 和 i 分别代表自发和诱发; T_{STD} 为标准

样年龄; ρ_d 为标准玻璃的诱发径迹密度; 标准样品 Durango 磷灰石年龄为 31.4 Ma, 标准样品 Fish Canyon 磷灰石年龄为 27.8 Ma[27].

当中子热化充分时单次测得的ρ_d 之间差别有限, 因此 Zeta 中长期、多次测试的平均值ρ_d 和年龄公式中单次测得的ρ_d 可看做近似相等; Zeta 值测试实验条件与样品测试条件一致, g 值一致, 所以把ζ 代入年代公式得

$$t=\frac{1}{\lambda_D}\ln\left[1+\frac{e^{\lambda_D T_{STD}}-1}{(\rho_s/\rho_i)_{STD}}(\rho_s/\rho_i)_{UNK}\right]. \quad (11)$$

3.2　中子热化程度对年龄测试的影响

由式(11)知, 决定年龄的主要因素为标样和待测样品的自发和诱发径迹密度比值. 当热化充分时, 诱发径迹只由热中子激发产生; 不充分时, 由快中子、热中子和超热中子激发产生.

由式(1)及(2)得到热化不充分与充分时, 样品诱发径迹密度比值为

$$\frac{N_i^m}{N_i}=\frac{^{235}U\times\left(^{235}\sigma_{th}\phi_{th}+^{235}\sigma_{epi}\phi_{epi}+^{235}\sigma_f\phi_f\right)+^{238}U\times\left(^{238}\sigma_{epi}\phi_{epi}+^{238}\sigma_f\phi_f\right)+^{232}Th\times^{232}\sigma_f\phi_f}{^{235}U\times^{235}\sigma_{th}\times\phi_{th}}. \quad (12)$$

把式(8)带入(12)式得

$$\frac{N_i^m}{N_i}=1+\frac{0.3137+1.996\times\phi_{epi}/\phi_f+{}^{232}Th/{}^{238}U\times0.081}{6.9446-1.972\times\phi_{epi}/\phi_f}. \quad (13)$$

设: $\phi_{epi}/\phi_f=N$, $^{232}Th/^{238}U=M$, $N_i^m/N=F$. 式(13)简化为

$$F=\frac{N_i^m}{N_i}=\frac{7.2583+0.024N+M\times0.081}{6.9446-1.972N}. \quad (14)$$

F 代表热化不充分时与热化充分时样品诱发径迹密度的比值, 设 F_1 为标准样比值, F_2 为待测样品比值. 由于 N_i 为相同体积内的诱发径迹数, 相当于体密度. 假设 U, Th 在样品内均匀分布, 面密度等于体密度. 因此, $N_i^m/N_i=\rho_i^m/\rho_i$, 则$(\rho_i)^n_{STD}=F_1\times(\rho_i)_{STD}$, $(\rho_i)^m_{unk}=F_2\times(\rho_i)_{unk}$.

由式(11)得热化不充分时的年龄公式为

$$t^m=\frac{1}{\lambda_D}\ln\left[1+\frac{e^{\lambda_D T_{STD}}-1}{(\rho_s/\rho_i)_{STD}}(\rho_s/\rho_i)_{UNK}(F_1/F_2)\right]. \quad (15)$$

式(15)中, 除了 F_1/F_2 外, 其他与年龄公式没有区别. 因此, F_1/F_2 就成为影响年龄的因子. 由(14)式可知:

$$\frac{F_1}{F_2}=\frac{7.2583+0.024N+0.081M_1}{7.2583+0.024N+0.081M_2}. \quad (16)$$

可见, 当 $M_1=M_2$ 时, 由于辐照条件相同(N 值相同), 所以 $F_1/F_2=1$, 此时在当前中子热化条件下对年龄没有影响. 这与 Crowley[21]的结论相同.

当 $M_1\neq M_2$ 时: 由(9)式知 $0<\phi_{epi}/\phi_f<3.522$. 所以 $0<0.024\phi_{epi}/\phi_f<0.0845$, 对 F_1/F_2 比值几乎没有影响, 可以忽略. 标准样品 Durango 磷灰石中典型的 Th/U 的值约为 15~25[28~30], 但 Iunes 等[31]测得的值较大, ~30. 取 20 作为 Durango 磷灰石 Th/U 比值, 即 $M_1=20$, 式(16)简化为

$$\frac{F_1}{F_2}=\frac{8.8783}{7.2583+0.081M_2}. \quad (17)$$

因为 $M_2\geqslant0$, 所以 $0<F_1/F_2<1.223$.

中子热化不充分时, 年龄的相对偏差为: $\Delta t/t=(t^m-t)/t$, Δt 为中子热化不充分与热化充分时测得样品年龄差值; $\Delta t/t$ 为样品年龄在中子热化不充分时相对于中子热化充分时的偏差; 设 $\left(\frac{\rho_s}{\rho_i}\right)_{UNK}\Big/\left(\frac{\rho_s}{\rho_i}\right)_{STD}=K$, K 值为年龄的相关系数, 并带入各参数值, 则式(11)和(15)分别变为

$$t=\frac{1}{1.55}\times10^{10}\times\ln\left[1+0.004879K\right], \quad (18)$$

$$t^m=\frac{1}{1.55}\times10^{10}\times\ln\left[1+0.004879K\left(\frac{F_1}{F_2}\right)\right]. \quad (19)$$

因此,

$$\frac{\Delta t}{t}=\frac{t^m-t}{t}=\frac{\ln[1+0.004879\times K\times(F_1/F_2)]}{\ln(1+0.004879K)}-1. \quad (20)$$

实践中, 年龄小于 0.5 Ma, 自发径迹很少; 大于 300 Ma, 自发径迹又很密, 均难以精确测量. 因此取 0.5~300 Ma 为测量范围, 得到 K 值的大致范围约为 $0.01<K<10$. 由 K 及 F_1/F_2 的取值范围知 0.004879 K 和 $0.004879\times K\times(F_1/F_2)$ 值均远远小于 1, 根据极限 $\lim\limits_{x\to0}\ln(1+x)=x$ 得

$$\frac{\Delta t}{t}\approx\frac{0.004879\times K\times(F_1/F_2)}{0.004879K}-1=F_1/F_2-1. \quad (21)$$

由式(17)和(21)式得

$$\frac{\Delta t}{t}\approx\frac{8.8783}{7.2583+0.081M_2}-1. \qquad (22)$$

由式(22)知, $\Delta t/t$ 的变化受 K 值的影响可忽略(经计算不超过 1%), 主要影响因素为样品的 $^{232}Th/^{238}U(M_2)$值. 同时, 我们按照式(20), 计算了不同年龄(不同 K 值)的$\Delta t/t$ 随 M_2 的变化, $\Delta t/t$ 随 M_2 的变化趋势线紧密排列, 变动范围较窄, 表明受 K 值的影响很小, 即受年龄影响较小, 可用同一条曲线表示, 如图 4 中 Dur 曲线.

图 4 中 Dur 曲线, 从相对年龄偏差$\Delta t/t$ 的值随 M_2 变化的趋势线上发现, 当 M_2=20 时, 即与标准样品 Durango 磷灰石的 Th/U 比相同时, 年龄偏差为 0, 热化不均匀对测试年龄没有影响. 当 $0<M_2<20$ 时, $\Delta t/t$ 随着 M_2 的增大而减小, $\Delta t/t$ 的变化范围是 0~22%, $\Delta t/t$ 为正值, 表明测试年龄值偏大; 当 $20<M_2<30$ 时, $\Delta t/t$ 的的绝对值随 M_2 的增大而增大, 当 M_2=30 时, $\Delta t/t$ 约为−8%, $\Delta t/t$ 为负值表明造成测试年龄偏小; 当 M_2=4 时(自然界样品 $^{232}Th/^{238}U$ 均值为~4), $\Delta t/t$ 的值约为 17%, 说明选取 Durango 磷灰石为标准样品时, 中子热化不充分对自然界平均 $^{232}Th/^{238}U$ 比值样品(M_2=4)裂变径迹年龄的影响范围约为 17%.

同理, 选用鱼骨凝灰岩(Fish Canyon Tuff)作为标准样, 取其 $^{232}Th/^{238}U$ 比值约为 5, 其不同年龄(不同 K 值)的$\Delta t/t$ 随 M_2 的变化, 展示于图 4 中 FCT 曲线. 图 4 中 FCT 曲线显示: 当待测样品 M_2=5 时, 年龄偏差为 0, 热化不均匀对年龄测试没有影响; 当 $0<M_2<5$ 时, 相对年龄$\Delta t/t$ 随着 M_2 的增大而减小, $\Delta t/t$ 为正值, $\Delta t/t$ 的变化范围是 0~6%; 当 $5<M_2<30$ 时, $\Delta t/t$ 的的绝对值随 M_2 的增大而增大, $\Delta t/t$ 为负值, $\Delta t/t$ 的变化范围是 0~−21%. 自然界样品 $^{232}Th/^{238}U$ 平均值为~4, 此时 $\Delta t/t$ 的值约为 1%, 表明选取 Fish Canyon Tuff 磷灰石为标准样品时, 中子热化不充分对裂变径迹年龄测试的影响在 1%的误差范围内.

通常选取标准样 Durango 磷灰石和鱼骨凝灰岩中的磷灰石来测量和计算平均ζ值, 若以自然界 $^{232}Th/^{238}U$ 的均值~4 为参考, 则裂变径迹年龄测定的误差介于 1%~17%之间. 当前热化条件下如式(8)和(9), 当待测样品的 Th/U 比值接近自然界 $^{232}Th/^{238}U$ 的均值~4 时, 选用鱼骨凝灰岩作为标准样对年龄测试的影响较小.

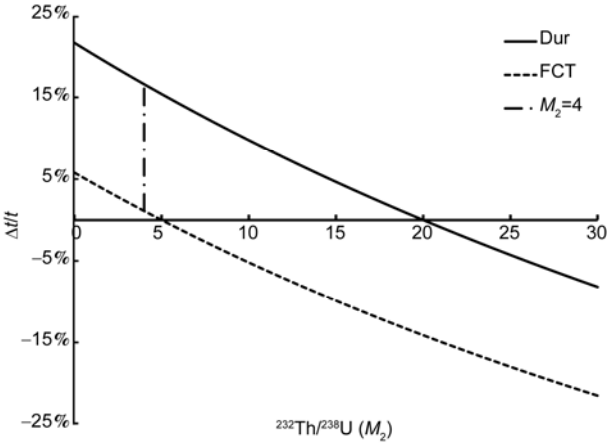

图 4　年龄影响率Δ t/t 随 M_2 变化曲线

FCT 曲线为选用鱼骨凝灰岩(Fish Canyon Tuff)为标准样时Δ t/t 随 M_2 的变化曲线; Dur 曲线为选用 Durango 磷灰为石标准样时Δ t/t 随 M_2 的变化曲线

4　结论

(1) 实验表明, 多次辐照中有时热化充分, 有时热化不充分, 这可能是在反应堆中辐照位置不同所致. 可见, 严格限制辐照样品的通道位置, 能够获得符合要求的热化程度. 根据热化不充分位置 ρ_{SRM612}/ρ_{CN5} 的均值计算, 得到ϕ_{th}/ϕ_f<1.634, 低于裂变径迹测年对于这一指标的要求(ϕ_{th}/ϕ_f >7.5)[4]. 因此, 快中子含量偏高可能是热化不充分的重要原因. 由于标准玻璃种类较少, 目前还无法估算ϕ_{th}/ϕ_{epi} 比值的影响. 另外, 将样品由两列改成一列, 也是降低中子热化不均匀影响的一种方法. 同时在样品柱中增加标准样品(调整 ζ 值)以及通过两种标准玻璃 SRM612 和 CN5 的对比监控方法可提高实验结果的准确性.

(2) 当前辐照条件下, 年龄偏差主要受 $^{232}Th/^{238}U$ 比值的影响. 当待测样品和标准样的 $^{232}Th/^{238}U$ 值相同时, 热化程度对年龄测定没有影响. 当待测样品 $^{232}Th/^{238}U$ 值小于标准样品 $^{232}Th/^{238}U$ 值时, 热化程度对年龄的影响随 $^{232}Th/^{238}U$ 值增大而减小, 测试年龄大于实际年龄; 当样品 $^{232}Th/^{238}U$ 值大于标准样品的 $^{232}Th/^{238}U$ 值时, 热化程度对年龄的影响随 $^{232}Th/^{238}U$ 值增大而增大, 测试年龄小于实际年龄.

致谢 感谢匿名评审专家及编辑建设性的意见. 感谢地震动力学国家重点实验室谷元珠工程师在样品测试及数据处理方面给予的支持, 感谢郑文俊、张会平副研究员对本文提出的宝贵意见, 同时, 作者对中国地震局地质研究所张竹琪博士、刘彩彩博士、王伟涛博士以及武颖给予的种种帮助一并表示衷心感谢.

参考文献

1 Fleischer R L, Price P B, Walker R M. Nuclear Tracks in Solids: Principles and Applications. Berkeley: University of California Press, 1975
2 Hurford A J, Green P F. A users' guide to fission track dating calibration. Earth Planet Sci Lett, 1982, 59: 343–354
3 Hurford A J, Green P F. The zeta age calibration of fission-track dating. Chem Geol, 1983, 41: 285–317
4 Wagner G A, Van den Haute P. Fission Track Dating. Amsterdam: Elsevier, 1992
5 Hasebe N, Barbarand J, Jarvis K, et al. Apatite fission-track chronometry using laser ablation ICP-MS. Chem Geol, 2004, 207: 135–145
6 Hadler J C, Iunes P J, Telloet C A, et al. Experimental study of a methodology for Fission-track Dating without neutron irradiation. Rad Meas, 2009, 44: 955–957
7 Green P F, Duddy I R, Gleadow A J W, et al. Apatite fission track analysis as a paleotemperature indicator for hydrocarbon exploration. In: Naeser N D, McCulloh T, eds. Thermal History Analysis in Sedimentary Basins. Berlin: Springer, 1989. 181–195
8 Brown R W. Backstacking apatite fission-track "stratigraphy": A method for resolving the erosional and isostatic rebound components of tectonic uplift histories. Geology, 1991, 19: 74–77
9 Zheng D W, Zhang P Z, Wan J L, et al. Rapid exhumation at ~ 8 Ma on the Liupan Shan thrust fault from apatite fission-track thermochronology: Implications for growth of the northeastern Tibetan Plateau margin. Earth Planet Sci Lett, 2006, 248: 198–208
10 Glotzbach C, Bernet M, van der Beek P, et al. Detrital thermochronology records changing source areas and steady exhumation in the Western European Alps. Geology, 2011, 39: 239–242
11 王庆隆, 戎嘉树, 赵云龙, 等. 裂变碎片径迹技术及其在地球化学中的应用. 北京: 科学出版社, 1984
12 陈文寄, 彭贵. 年轻地质体系的年代测定. 北京: 地震出版社, 1991
13 丁林, 钟大赉, 潘裕生, 等. 东喜马拉雅构造结上新世以来快速抬升的裂变径迹证据. 科学通报, 1995, 40: 1479–1500
14 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. 地球物理学报, 2005, 48: 157–164
15 朱文斌, 张志勇, 舒良树, 等. 塔里木北缘前寒武基底隆升剥露史: 来自磷灰石裂变径迹的证据. 岩石学报, 2007, 23: 167–1682
16 袁万明, 保增宽, 董金泉, 等. 新疆土屋一延东斑岩铜矿区成矿时代与构造活动的裂变径迹分析. 中国科学 D 辑: 地球科学, 2007, 37: 1130–1137
17 陈正乐, 李丽, 刘健, 等. 西天山隆升-剥露过程初步研究. 岩石学报, 2008, 24: 625–636
18 万景林, 郑文俊, 郑德文, 等. 祁连山北缘晚新生代构造活动的低温热年代学证据. 地球化学, 2010, 39: 439–446
19 刘建辉, 张培震, 郑德文, 等. 秦岭太白山新生代隆升冷却历史的磷灰石裂变径迹分析. 地球物理学报, 2010, 53: 2405–2414
20 Cowan G A, Adler H H. The variability of the natural abundance of ^{235}U. Geochim Cosmochim Acta, 1976, 40: 1487–1490
21 Crowley K D. Neutron dosimetry in fission-track analysis. Nucl Tracks Radiat Mem, 1986, 11: 237–243
22 Bigzzi G, Guedes S, Hadler J C, et al. Potentialities and practical limitations of absolute neutron dosimetry using thin films of uranium and thorium applied to the fission track dating. Radiat Meas, 1999, 31: 651–656
23 王非, 贺怀宇, 朱日祥, 等. ^{40}Ar/^{39}Ar 年代学国际国内标样的对比标定. 中国科学 D 辑: 地球科学, 2005, 35: 617–626
24 Carpenter B S. Calibrated glass standards for fission track use—Supplement. Gaithersburg and Washington: US Dept of Commerce, 1984
25 Bellemans F, DeCorte F, Van DenHaute P, et al. Composition of srm and cn u-doped glasses: Significance for their use as thermal neutron fluence monitors in fission track dating. Radiat Meas, 1995, 24: 153–160
26 Jaffey A H, Flynn K F, Glendenin L E, et al. Precision measurement of half lives and specific activities of ^{235}U and ^{238}U. Phys Rev C, 1971, 4: 1889–1906
27 Naeser C W, Fleischer R L. The age of the apatite at Cerro de Mercado, Mexico: A problem for fission track annealing corrections, Geophys Res Lett, 1975, 2: 67–70
28 Hurley P M, Fairbairn H W. Abundance and distribution of uranium and thorium in zircon, sphene, apatite, epidote and monazite in granitic rocks. Trans Am Geophys Union, 1957, 38: 939–944
29 Young E J, Myers A T, Munson E L, et al. Mineralogy and geochemistry of fluorapatite from Cerro de Mercado. In: HIckel W J, Pecora W T, eds. Geological Surrey Professional PaPer 650-D. Washington: United Staces Government Printing Office, 1969
30 House M A, Farley K A, Stockli D. Helium chronometry of apatite and titanite using Nd-YAG laser heating. Earth Planet Sci Lett, 2000, 183: 365–368
31 Iunes P J, Bigazzi G, Hadler J C, et al. The Th/U ratio in minerals by a fission-track technique: Application to some reference samples in order to estimate the influence of Th in fission-track dating. Radiat Meas, 2002, 35: 195–201