



裂变径迹 LA-ICP-MS/FT 法原理、实验流程和应用

武利民^{1,2}, 闵康², 高剑峰³, 彭头平¹

1. 中国科学院广州地球化学研究所同位素地球化学国家重点实验室, 广东广州 510640; 2. 中国科学院大学, 北京 100049; 3. 中国科学院地球化学研究所矿床地球化学国家重点实验室, 贵阳 贵州 550081

摘要: 裂变径迹是一种重要的低温热年代学测年方法, 目前被广泛应用于岩体冷却年龄测试及各种构造演化热历史等的研究。该方法主要包括传统的外探测器法和近年来新开发的激光-电感耦合等离子质谱法(LA-ICP-MS/FT)。由于传统的外探测器法一直受限于国内反应堆中子热化不充分、辐照周期长以及辐照带来的环境安全等问题, 无法有效、快速地获得数据。相反, LA-ICP-MS/FT 法的建立和应用不仅避免了因中子热化不充分、热中子分布不均带入的误差而提高了测年精度, 而且还极大地提高了测试效率, 缩短了解决科学问题的时间。通过对近年来新建立的裂变径迹 LA-ICP-MS/FT 法的测年基本原理和方法、实验步骤、常用年龄值和裂变径迹退火等的详细介绍, 综述了该方法在相关应用方面的研究进展, 并与传统的外探测器法进行了详细的对比。最后综述了 LA-ICP-MS/FT 法在造山带冷却隆升历史、沉积盆地分析、盆-山耦合系统分析、断裂活动、成矿时代和矿体保存等多方面的应用。

关键词: 低温年代学; 裂变径迹; LA-ICP-MS/FT 法; 造山带; 沉积盆地

PRINCIPLE, EXPERIMENTAL PROCESS AND APPLICATION OF FISSION TRACK LA-ICP-MS/FT METHOD

WU Li-min^{1,2}, MIN Kang², GAO Jian-feng³, PENG Tou-ping¹

1. State Key Laboratory of Isotope Geochemistry, Guangzhou Institute of Geochemistry, CAS, Guangzhou 510640, China; 2. University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China; 3. State Key Laboratory of Ore Deposit Geochemistry, Institute of Geochemistry, CAS, Guiyang 550081, China

Abstract: Fission track, an important low-temperature thermochronology dating method, is widely used in rock mass cooling age tests and study of thermal history of tectonic evolution. It mainly includes the traditional external detector (EPMA) method and newly-developed LA-ICP-MS/FT method. Due to the limitations of traditional method, such as inadequate neutron thermalization in domestic reactors, long irradiation period and environmental security problems, data cannot be obtained effectively and quickly. On the contrary, the establishment and application of LA-ICP-MS/FT not only avoids the errors caused by inadequate neutron thermalization and uneven thermal neutron distribution, but also greatly improves the testing efficiency and shortens the time to solve scientific problems. Through the detailed introduction to fission track LA-ICP-MS/FT dating principle and method, experimental process, commonly-used age value and fission track annealing, the paper discusses the research progress of the method in related applications and compares with traditional external detector method, and finally summarizes the applications in analyses of cooling and

收稿日期: 2020-02-06; 修回日期: 2020-04-13. 编辑: 李兰英.

基金项目: 国家重点研发计划项目“喜马拉雅山构造碰撞变形过程”(41490613); “中国腾冲地块-缅甸密支那-抹谷高级变质带变火成岩研究及地质意义”(41672058).

作者简介: 武利民(1996—), 男, 硕士研究生, 主要从事构造地质学研究, 通信地址 广东省广州市天河区科华街 511 号, E-mail//wulimin@gig.ac.cn

通信作者: 高剑峰(1977—), 男, 研究员, 主要从事矿床地球化学研究, 通信地址 贵州省贵阳市观山湖区林城西路 99 号, E-mail//gaojianfeng@mail.gyig.ac.cn

uplift history of orogenic belts, sedimentary basins, basin-mountain coupling system, fault activities, metallogenic age and orebody preservation.

Key words: low-temperature thermochronology; fission track; LA-ICP-MS/FT; orogenic belt; sedimentary basin

0 前言

随着对同位素研究的不断深入,人们在20世纪60年代建立了一种新的同位素测年体系——裂变径迹(Fission Track)热年代学方法.自然界中的铀同位素主要由 ^{238}U 和 ^{235}U 组成,这两种同位素的地球元素丰度分别为 1.49×10^{-8} 和 1.05×10^{-10} .裂变径迹的形成主要是由 ^{238}U 自发核裂变形成的2个高能带电粒子经过绝缘固体(一般为磷灰石和锆石)而形成的损伤.裂变径迹的形成均符合“离子爆发穿刺”模型^[1]的解释.该模型(图1)认为部分铀原子发生活化(图1A),活化的铀原子自发裂变成带正电的碎片(图1B),带正电的裂变碎片在经过非传导性固体介质时会沿着传播路径诱发电离形成一排带正电的晶格离子,这些正电离子相互排斥从而形成了裂变径迹(如图1C).

该方法和其他测年方法相比,具有无需重大的贵重仪器,所需样品量少,可测定的对象多等一系列优点.目前主要有两种实验方法完成裂变径迹测试数据,包括传统的外探测器法(EPMA)和近年来新开发的激光-电感耦合等离子质谱法(LA-ICP-MS/FT).但是,由于传统的外探测器法存在中子通量检测困难^[2-3]、 ^{238}U 裂变常数确定不够准确^[4]、矿物颗粒向白云母片注入诱发径迹的系数不准确^[5]等因素而影响年代测定的准确性.此外,该方法在国内一直受限于反应堆中子热化不充分、辐照周期长以及辐照带来的环境安全等问题^[6],无法有效、快速地获得数据.相反,

LA-ICP-MS/FT法的建立是随着质谱和激光技术的发展,如磷灰石等低铀矿物中铀含量的直接测量成为可能而开发的一种新的低温测年技术.该方法的应用不仅避免了因中子热化不充分、热中子分布不均带入产生的误差而提高了测年精度,而且还极大地提高了测试效率,缩短了解决科学问题的时间^[7-8].因此,LA-ICP-MS/FT法在最近的10余年得到了快速的发展,并被广泛地应用在造山带隆升和冷却历史、盆-山耦合关系、沉积盆地热历史模拟和矿床保存等方面的研究^[9-20].因此,有必要重点介绍该方法的一些基本原理、相关技术和流程以及相关研究的应用,以便更广泛地被研究者熟悉和应用.

1 裂变径迹 LA-ICP-MS/FT 法

1.1 方法原理

LA-ICP-MS/FT法原理主要包括裂变径迹的形成、径迹的观测和统计以及裂变径迹年龄的获取3个部分.LA-ICP-MS/FT法中的裂变径迹的形成和径迹的观测、统计均与裂变径迹外探测器法相一致.裂变径迹的形成均符合“离子爆发穿刺”模型的解释.而径迹的观测和统计中的径迹的蚀刻、裂变径迹的观测、围限径迹的长度分布和热历史的模拟均与裂变径迹外探测器法的处理步骤相同.这两种方法唯一不同的地方就是裂变径迹年龄的获取方面,LA-ICP-MS/FT法利用激光的方法直接获取磷灰石样品中 ^{238}U 的含量,再

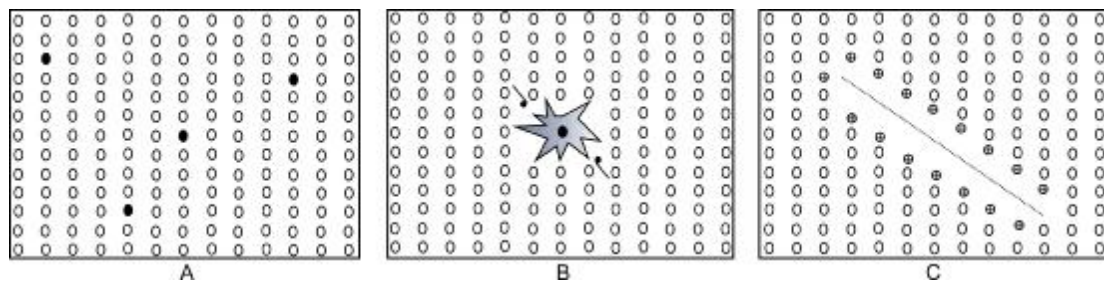


图1 裂变径迹形成模式图

(据文献[1])

Fig. 1 Formation patterns of fission track

(From Reference [1])

经过校正后可以带入公式中计算出磷灰石的裂变径迹年龄. 而外探测器法则需要经过热中子照射并需要校正过程中的各个参数因子最后再带入公式计算年龄. 经过对比明显可以看出 LA-ICP-MS/FT 法在测试周期和处理数据的过程中优于外探测器法.

1.2 实验流程

传统的裂变径迹法 (EPMA) 需要经过中子照射来形成诱发径迹, 从而进一步来估算样品中 ^{238}U 的含量. 这不仅大大加长了测试时间和测试费用, 同时由于后期的人工估算和测量也会导致数据误差的增大. 如今随着分析测试技术的不断进步, 特别是 LA-ICP-MS 的出现和应用, 使样品中 ^{238}U 含量的直接测定成为了可能. 这也就衍生出了一种新的裂变径迹定年法——LA-ICP-MS/FT 法^[7,21]. 这种方法不需要经过热中子的照射来产生诱发裂变, 也不需要后期对诱发裂变径迹和标准铀玻璃裂变径迹的密度进行测定. 该方法大大缩短了测试的周期, 也减少了测试所需要的费用. 该实验的流程大致可以分为 6 个部分: 1) 制靶; 2) 抛光; 3) 蚀刻; 4) 裂变径迹参数测定, 如径迹密度、长度和 Dpar 值的测定; 5) 激光剥蚀测定 ^{238}U 的含量; 6) LA-ICP-MS/FT 年龄获得和热史模拟.

1.2.1 制靶

首先, 利用 400 目的砂纸对 $25\text{ mm} \times 18\text{ mm}$ 规格的玻璃片进行去棱角处理, 以防后期在抛光过程中玻璃碎屑对磷灰石的破坏. 其次是进行样品采集. 样品的采集要在表面平整干净的特氟龙板上进行. 在特氟龙板上滴取 2 滴酒精, 然后将样品中的磷灰石洒到酒精中, 并利用大头针将磷灰石颗粒分散成近圆形的区域, 尽可能保证磷灰石颗粒之间无重叠现象. 再次是配好所需要的树胶和搭桥片. 树胶由环氧树脂和硬化剂按照 4:1 的比例配制而成, 同时进行真空处理以防后期的气泡对结果的影响. 搭桥片则选择 $0.3\sim 0.5\text{ mm}$ 厚的硬纸片. 最后是在酒精挥发完后, 滴取 1~2 滴树胶于磷灰石颗粒上, 并将玻璃片从搭桥片一侧倾斜并缓慢放下, 最终玻璃片平稳放在硬纸片上, 将其放置 8 h 左右即可剥离 (图 2).

1.2.2 抛光

抛光处理是实验中比较重要的一个环节, 抛光的好坏直接影响后期对磷灰石颗粒密度、长度和 Dpar 值等参数的测量. 将制好的磷灰石靶放在抛光机上进行

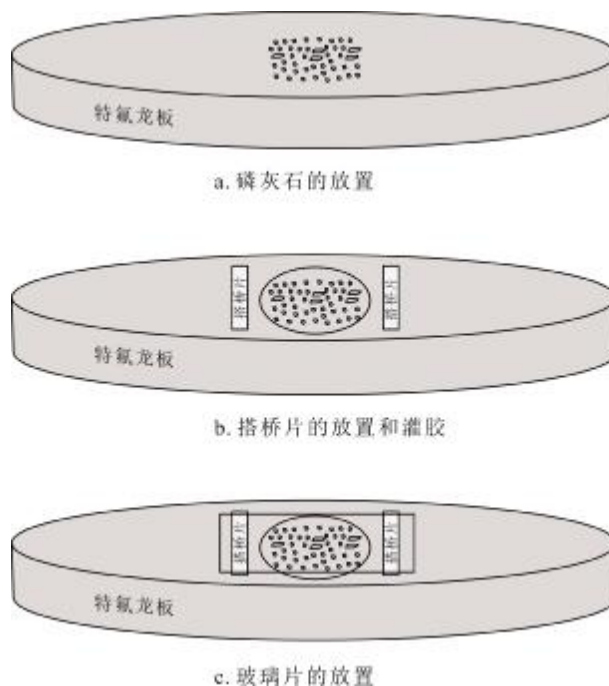


图 2 制作磷灰石靶实验流程图

Fig. 2 Sketch of apatite mounting process

抛光, 在抛光过程中尽可能多地抛出磷灰石颗粒的内表面, 并且抛光面要高度光洁, 尽量无擦痕和斑点, 以防后期蚀刻过程出现大量假蚀坑, 影响观测结果. 抛光的标准为抛磨出至少 50% 的矿物颗粒或 70~100 个颗粒内表面.

1.2.3 蚀刻

矿物中未经过化学处理的裂变径迹并不能在光学显微镜下观测出来, 这种未被处理的径迹称为潜伏径迹. 虽然潜伏径迹也可以在电子探针显微镜下进行观察, 但是由于电子的加入会导致带正电荷的离子变为原子从而使径迹消失. 因此, 直接利用电子探针显微镜观测的误差太大, 该方法并不可取. 然而前人发现利用化学试剂处理不仅可以使径迹的直径扩大便于观察, 同时蚀刻后径迹的长度也不会发生太大的改变. 因此, 该种化学法被广泛应用于裂变径迹的蚀刻. 在蚀刻过程中, 最终的结果是由沿着磷灰石矿物表面蚀刻速率 V_G 和沿着径迹的蚀刻速率 V_T 所决定的. 也就是只有当蚀刻到一定的时间节点时, 即径迹与矿物表面的夹角 $\theta > \sin^{-1}(\frac{V_G}{V_T})$ ^[22] (如图 3), 其裂变径迹未被蚀刻面方向的蚀刻所抹除, 从而可以在光学显微镜下观测到.

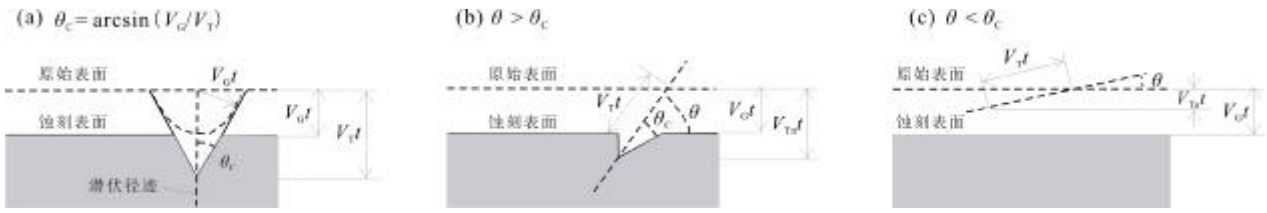


图3 与矿物表面夹角不同的裂变径迹形成的不同蚀刻形态
(据文献[22])

Fig. 3 Fission track patterns etched in minerals by different angles
(From Reference [22])

裂变径迹的长度和密度都会随着蚀刻剂、蚀刻温度和时间的变化而变化. 因此,合适的蚀刻剂、温度和时间的选取对于径迹的测量尤为重要. Barbarand 和 Carlson 等^[23-24]对磷灰石蚀刻条件的研究发现,其最佳的蚀刻环境为 21℃、5.5 mol/L 的 HNO₃ 中蚀刻 20 s 或者在 20℃、5 mol/L 的 HNO₃ 中蚀刻 20 s,蚀刻后的磷灰石样品中可以见到不同形态的裂变径迹(如图 4).

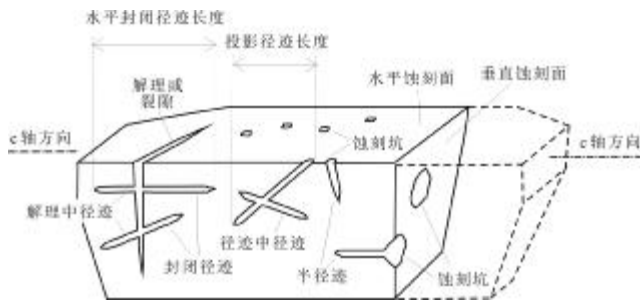


图4 蚀刻后不同形态的裂变径迹
(据文献[25])

Fig. 4 Fission track patterns after etching
(From Reference [25])

1.2.4 裂变径迹参数测定

磷灰石裂变径迹的参数主要包括径迹密度、长度和 Dpar 值, 这些参数的测量工作均在 Zeiss Axio Imager M2m 显微镜下搭配墨尔本大学编著软件 TrackWorks 完成. 测量工作主要分 3 步进行: 首先根据薄片中的铜网对颗粒进行定位; 其次是对颗粒的选择和标记, 挑选的标准为矿物颗粒表面有强烈的抛光痕迹与反射光下蚀刻坑的长轴平行; 最后是对径迹密度、长度和 Dpar 值的确定, 只有平行于矿物结晶 C 轴的磷灰石内表面可用来测试参数.

1.2.5 LA-ICP-MS 测定磷灰石 ²³⁸U/⁴³Ca 值

磷灰石的 ²³⁸U/⁴³Ca 比值测定利用 LA-ICP-MS 完

成. LA-ICP-MS 的本底采集信号为 20 s, 激光剥蚀时间为 20 s. 测试过程中外标采用 NIST610 和 NIST612 作标准, 数据处理利用 ICPMS DataCal 软件完成. 磷灰石标样采用 Fish Canyon Tuff 或 Durango, 样品中 U 密度不均匀者, 采用增加激光剥蚀数量并求其平均值方法来增加结果的精确度, 而低密度者则采用外探测器手段, 将 U 含量或 ²³⁸U/⁴³Ca 近似地转换为诱发裂变径迹数值来计算^[26].

1.2.6 LA-ICP-MS 裂变径迹年龄获得和热史模拟

在测年体系中裂变径迹测年原理与同位素年代学测年原理相一致, 都是根据放射性元素衰变成稳定元素来测年的, 只是裂变径迹不需要测量衰变子体的数量, 而是测量径迹数和径迹密度来进行定年. 因此, 利用裂变径迹法定年时的子体同位素含量为零. 根据同位素测年原理, 假设 ²³⁸U 在磷灰石矿物中均匀分布, 则单位体积样品中 ²³⁸U 发生衰变而形成的原子数(D)计算公式如下.

$$D = [^{238}\text{U}] (e^{\lambda_D t} - 1) \tag{1}$$

式中 [²³⁸U] 为单位体积中 ²³⁸U 的原子数, t 为裂变径迹的年龄, λ_D 为 ²³⁸U 的总衰变常数: 1.551×10⁻¹⁰/a. 则单位体积中 ²³⁸U 的自发衰变的子体数 D_s 为:

$$D_s = \frac{\lambda_f}{\lambda_D} [^{238}\text{U}] (e^{\lambda_D t} - 1) \tag{2}$$

λ_f 为自发裂变常数: (8.5±0.1)×10⁻¹⁷/a, 则磷灰石某一个内表面的裂变径迹密度 ρ_s 为:

$$\rho_s = D_s q_s R \tag{3}$$

其中 q_s 为裂变径迹所占抛光面的比例, 随不同的蚀刻条件而改变; R 为裂变径迹的选数比例.

由(2)(3)式可得:

$$\rho_s = \frac{\lambda_f}{\lambda_D} [^{238}\text{U}] (e^{\lambda_D t} - 1) q_s R \tag{4}$$

因此, 裂变径迹的年龄为:

$$t = \frac{1}{\lambda_D} \cdot \ln\left(1 + \frac{\lambda_D \rho_s}{\lambda_f q_s R [^{238}\text{U}]}\right) \quad (5)$$

裂变径迹方法中常见的两种年龄值为绝对年龄和 Zeta 年龄^[26]. 其中绝对年龄即是根据公式(5)分别测量出 ρ_s 、 λ_f 、 q_s 和 $[^{238}\text{U}]$ 参数的值并代入其中所计算出的年龄. 由于 λ_f 、 q_s 、 R 等参数的准确测定较难, 所以借助外探测器法进行 Zeta 值常数修正, 计算出的年龄即为 Zeta 年龄:

$$t = \frac{1}{\lambda_D} \cdot \ln\left(1 + \frac{1}{2} \zeta_{\text{ICP}} \lambda_D \cdot \frac{\rho_s}{[^{238}\text{U}/^{\text{A}}\text{X}]}\right) \quad (6)$$

修正参数 ζ_{ICP} 由年龄标样测量获得, 有

$$\zeta_{\text{ICP}} = \frac{2(e^{\lambda_D t_{\text{STD}}} - 1)}{\lambda_D \cdot \left(\frac{\rho_s}{[^{238}\text{U}/^{\text{A}}\text{X}]}\right)_{\text{STD}}} \quad (7)$$

$^{\text{A}}\text{X}$ 为某种元素的同位素, 其中磷灰石一般为 ^{43}Ca , 锆石一般为 ^{29}Si ^[26]. 裂变径迹的热历史模拟利用 HeFTy 软件实现模拟操作^[27].

2 LA-ICP-MS/LA 法和外探测器法的对比

外探测器法的优势是由于外部探测器上的裂变径迹的位置和磷灰石径迹相互对应, 一方面有利于分析不同矿物的不同年龄值, 另一方面也有利于分析磷灰石不同位置的 U 含量. 外探测器法是一种原位的、非破坏性的方法. 因此, 可以在分析完一个流程后再对薄片进行打磨和蚀刻, 开展新的分析. 但是外探测器法也存在着许多缺点, 实验过程中会存在一些不确定因素影响实验的精确度, 比如测试过程中人为测量自发裂变径迹密度和诱发裂变径迹密度的误差、 ^{238}U 裂变常数的不确定性和中子通量检测困难等都可能影响最终裂变径迹年龄(表 1).

随着现代分析技术的不断发展, 近几年来 LA 和 ICP-MS 的联机使我们直接对磷灰石中 U 含量的测定成为了可能. 采用 LA-ICP-MS/FT 法可以直接对磷灰石表面不同区域的 U 含量进行测定(图 5), 省去了外探测器法中的中子活化等诸多繁琐的实验步骤, 同时也大大缩短了实验测试的周期和测试费用.

3 裂变径迹年代学应用研究

裂变径迹是一种低温年代学方法, 它根据不同矿物的退火特性差异来建立温度和时间的函数, 从而反

表 1 外探测器法与 LA-ICP-MS/FT 法的测试手段对比

Table 1 Comparison between EPMA and LA-ICP-MS/FT methods

测试分析方法	外探测器法	LA-ICP-MS/FT 法
样品前处理	复杂	简单处理
热中子照射	需要	不需要
蚀刻云母片与铀玻璃	需要	不需要
裂变径迹选数	自发, 诱发, 铀玻璃径迹	自发裂变径迹
径迹长度与 Dpar 值	测试过程相同	测试过程相同
$^{238}\text{U}/^{43}\text{Ca}$ 值	不需要	需要
测试周期	长, 需 3-4 月	短, 需 2-3 周

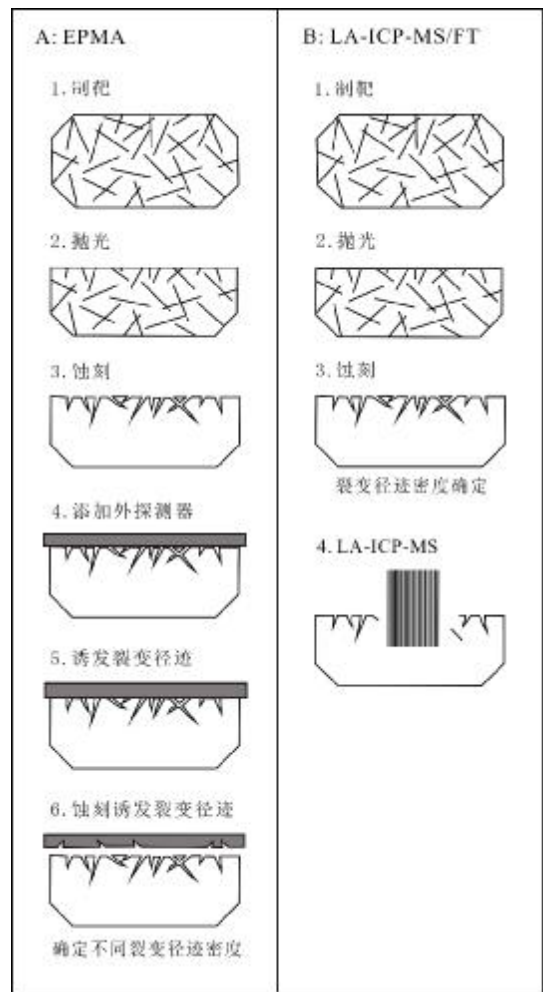


图 5 外探测器法和 LA-ICP-MS/FT 的实验流程简图 (据文献[28])

Fig. 5 Sketch of EPMA and LA-ICP-MS/FT methods (From Reference [28])

演出研究区的地热历史. 传统外探测器法模拟研究区地热历史的方法也可运用于 LA-ICP-MS/FT 法中. 同样地, LA-ICP-MS/FT 法也可用来解决造山带隆升历史、沉积盆地演化、盆-山耦合关系、断裂带时间限定和矿体的保存等科学问题. 与传统的探测器法相比, LA-ICP-MS/FT 法具有更加方便、快捷和分析精度较高的优势.

3.1 造山带隆升历史

造山带演化的研究对于全球构造、气候、地理等方面的研究有着重要的意义和价值. 然而利用一些传统的年代学方法并不能解决年轻造山带的演化历史问题. 裂变径迹作为一种低温年代学方法, 可以解决造山带的冷却速率和隆升历史问题, 主要包括矿物对法、年龄-高程法和年龄-封闭温度法^[29-31].

3.1.1 矿物对法

裂变径迹矿物对法是利用同一岩体中不同矿物, 如磷灰石、锆石等, 根据这些矿物不同的封闭温度所记录的不同裂变径迹年龄来计算隆升剥蚀速率、冷却速率等. 目前使用最多的为磷灰石和锆石矿物对法. 该方法需要获得磷灰石和锆石的封闭温度并要求在地质过程中地温梯度的稳定.

剥蚀速率计算方法为: 剥蚀速率 \times (年龄 a -年龄 b)=封闭温度 a -封闭温度 b ; $V_1=(\text{锆石封闭温度}-\text{磷灰石封闭温度})/(\text{锆石裂变径迹年龄}-\text{磷灰石裂变径迹年龄})$; $V_2=(\text{矿物封闭温度}-\text{地表平均温度})/\text{裂变径迹年龄}$; $V_3=V_1/\text{古地温梯度}$; $H=V_3\times\text{时间差}$. (V_1 、 V_2 为冷却速率, V_3 为隆升速率, H 为剥蚀深度^[32-33])

3.1.2 年龄-高程法

该方法主要适用于热历史稳定的研究区域. 当矿物颗粒形成并冷却到封闭温度时, 则矿物的年龄随着高程的不断变化而出现线性的关系. 因此, 不同高程下矿物样品的裂变径迹年龄记录着其通过封闭温度的时间, 利用这一点可以计算造山带的剥蚀速率. 剥蚀速率=样品的高程差/样品裂变径迹的年龄差.

3.1.3 年龄-封闭温度法

该方法主要应用于热历史比较简单的研究区域. 利用该方法时只需要知道研究区矿物的封闭温度和裂变径迹年龄. 假设研究区的样品所处地区的古地温梯度已知, 则隆升速率 $=[(\text{封闭温度}-\text{地表温度})/\text{地温梯度}]/\text{年龄值}$.

通过上述方法和相应的数据, 可以制作高程-时间和温度-时间曲线来描述造山带地区的隆升和冷却历史. 目前造山带热历史的研究已经取得了重要进展, 如我国的秦岭-大别山和喜马拉雅山等造山带. 尽管如此, 青藏高原作为现今依然在发生造山隆升的造山带高原, 其详细的热历史研究仍显不足. 利用该方法来研究青藏高原的地质热历史依然具有巨大的应用前景.

3.2 沉积盆地分析

沉积盆地裂变径迹研究至今也是一个热点问题, 主要是利用裂变径迹分析沉积盆地的热史和物源区以及计算周缘造山带剥蚀量等问题. 其研究方法主要包括碎屑磷灰石、锆石和楣石的裂变径迹分析. 其中碎屑磷灰石所具有的裂变径迹信息最为丰富, 可以提供热史的模拟. 碎屑颗粒裂变径迹的应用则是依据 Dodson 的封闭温度理论原理^[34].

沉积盆地的热史分析是油气研究方面一个重要的难题, 目前研究盆地热史问题主要有 2 种方法, 一种是利用古地温的方法来恢复热历史, 另一种是利用盆地演化的热动力学模型来恢复热历史. 其中利用古地温的方法需要借助实验数据进行大量的分析, 这是一种精确度较高的研究方法, 而磷灰石裂变径迹正属于这种方法. 磷灰石的退火特性是研究沉积盆地冷却抬升的关键, 当沉积的古地温高于样品的完全退火温度时, 该样品中的裂变径迹数为零, 则裂变径迹的年龄同样为零. 只有当该地区后期经历了快速冷却事件后, 磷灰石所处的温度低于完全退火温度时, 裂变径迹才开始保存, 这时同位素时钟所记录的年龄为最近的一次冷却事件发生的时间. 因而在研究沉积盆地的热历史中, 磷灰石的完全退火带和冷却带的确定最为关键.

在沉积盆地物源分析中, 由于锆石的封闭温度较高, 所以应用比较广泛. 但是在较浅的沉积盆地中, 磷灰石的裂变径迹年龄和径迹长度同样也可以用于物源的分析. 在沉积盆地中沉积物的来源比较丰富, 当磷灰石处于未完全退火带时, 其裂变径迹年龄并不是单一年龄而是多组分年龄, 由各源区的母岩组分混合组成. Galbraith 等^[35]提出了利用 X^2 检验来判断碎屑颗粒是否服从泊松分布, 即判断碎屑颗粒是否属于同一组分. 当样品没有通过 X^2 检验时, 即 $P(X^2) < 5\%$, 则表明样品由多组分组成; 而样品通过 X^2 检验, 即 $P(X^2) >$

5%, 表明样品由同一组分组成. 如果碎屑样品属于多组分年龄, 那么则可以根据 Brandon^[36] 所提出的确定碎屑样品总体混合成分组分离的技术来进行判断. 周祖翼等^[37] 利用裂变径迹多组分分离技术在盆地沉积物源分析中进行了详细的介绍.

在沉积盆地剥蚀量计算方面目前已经有许多种的剥蚀量计算方法, 而裂变径迹法则是近 10 年来新出现的计算盆地剥蚀量的方法. 裂变径迹法计算剥蚀量仍然依据的是磷灰石的退火特性. 基本方法是依据磷灰石裂变径迹年龄、径迹的平均长度和径迹的长度等参数来确定样品所在深度的热史演化过程和温度的变化规律, 以此来计算最大埋深和最小埋深的古地温并推算剥蚀量^[38]. 计算方法为求出样品的最高古地温 T_{peak} 和对应的古地温梯度 dT/dZ , 选取合适的古地表温度 T_s , 则剥蚀量 $H_e = \frac{T_{peak} - T_s}{dT/dZ}$.

3.3 盆-山耦合关系分析

造山带和沉积盆地都是大地构造中比较重要的构

造单元, 也是地球动力学研究中重要的一个整体. 造山带和沉积盆地在时间和空间上有着明显的联系, 它们在空间上相互依存, 物质上相互供给, 演化上相互影响, 动力学上相互转化. 盆-山耦合关系即为造山和成盆过程之间相互关联、相互制约和相反相成的共生关系^[39]. 在盆-山的耦合过程中, 盆地的不断沉降为沉积物的沉淀提供了空间, 造山带的不断剥蚀则为沉积物的形成提供了物源, 沉积物从形成到盆地的沉积所需要的动力和通道由造山带和盆地之间的高程差所控制. 整体上对造山带和盆地的研究比单独的研究更具有深刻的地质意义, 对盆-山耦合系统的研究最常用的方法为磷灰石和锆石碎屑颗粒裂变径迹年代学方法 (图 6).

3.4 断裂的构造热演化历史和时间限定

断裂带的研究可以为区域构造运动提供相应的约束, 而裂变径迹低温年代学的应用可以对断裂带的热演化历史和时间进行测定. 由于断裂的形成经历了高压和高温的条件, 但压力对磷灰石和锆石的退火作用

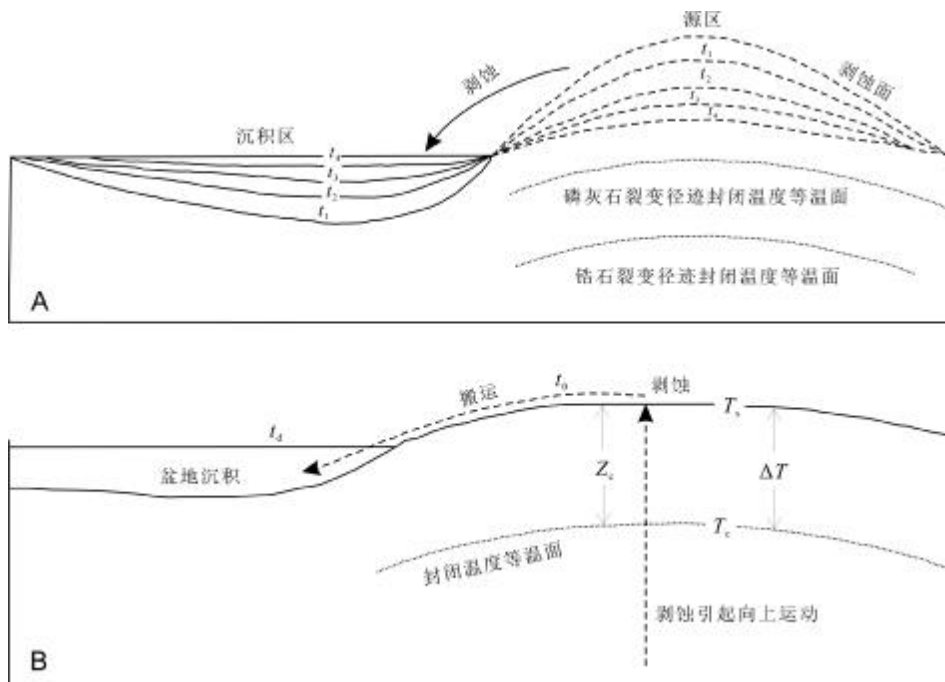


图 6 盆-山耦合关系图解(A)和裂变径迹年龄分析图(B)

(据文献[40])

Fig. 6 Diagrams of basin-mountain coupling relation (A) and fission-track ages (B)

(From Reference [40])

t_d —沉积时间(sedimentation time); t_0 —剥露时间(exhumation time); t_c —封闭时间(closure time); T_s —地表温度(surface temperature); T_c —封闭温度(closure temperature); ΔT —温度差(temperature difference); Z_c —封闭温度等温面深度(depth contour of closure temperature)

影响较小, 裂变径迹的应用可以有效地研究断裂带最后一次热历史活动及其相应的热历史时间. 断裂带的热模拟历史可以为研究区的伸展变形和岩体的隆升剥蚀提供重要的线索^[41-42].

3.5 矿床学研究

裂变径迹的热史模拟也可以用于研究矿体的保存. 通过对矿体内磷灰石裂变径迹研究来进一步探讨矿体在形成后的抬升和剥蚀, 从而对矿体的位置进行限制, 以确定矿体是否经过抬升剥蚀后消失^[43]. 裂变径迹也可以用于对热液矿床的成矿时代和成矿期次的研究. 热液矿床的形成主要由热液流体所主导, 因此, 裂变径迹地温热年代学方法可以有效地恢复热液矿床的热演化史^[44-45].

3.6 其他方面应用

磷灰石裂变径迹也可以用于油气生油窗的深度研究、陨石年龄测定和地貌演化历程等. 由于磷灰石的退火温度与油气的生成温度相近, 因此, 可以根据磷灰石裂变径迹数据进行模拟和计算, 从而探测生油窗的埋藏深度. 而陨石中的铀同位素经历了长时间的衰变, 利用磷灰石裂变径迹也可以获得相应的陨石年龄, 这一点为陨石的年龄测定提供了新的方法. 磷灰石裂变径迹法在地貌的长期演化研究方面应用也比较广泛, 主要是综合全球磷灰石裂变径迹数据, 并结合地形学、地球物理学、地温梯度等信息来研究地貌的演化历程和动力学模型, 最终也可以为全球气候研究提供重要的信息.

4 问题讨论

4.1 裂变径迹的退火作用

裂变径迹的退火作用是指在漫长的地质历史中, 径迹的长度和密度受温度的影响很大, 一般在温度升高的过程中径迹的长度和密度会逐渐减小直至完全消失^[46]. 不同矿物具有不同的退火特性, 一般来说磷灰石和锆石的封闭温度分别为 100 ± 20 °C 和 210 ± 40 °C. 这表明磷灰石和锆石的裂变径迹年龄是记录其通过封闭温度等温面以后的年龄, 也称为冷却年龄. 研究表明, 磷灰石和锆石的退火作用主要受到温度和时间的影响, 而与压力和 pH 值等物理化学条件无关. 因此, 裂变径迹的退火程度可以视为温度和时间的函数. 磷灰石和锆石的退火作用研究为地质热历史的正、反演提

供了基础. Ketcham^[47-49]在早先扇形退火模型的基础上建立了多元退火模型, 并借助 HeFTy 软件实现了多个动力学参数对地质热历史的精细重建. 田云涛等^[50]对此多元退火模型也进行了进一步探讨.

4.2 LA-ICP-MS 测试过程中的问题

由于外标(NIST 标准玻璃)与磷灰石矿物的激光剥蚀速率不同, 可能导致基体效应, 因此需要实验来评估基体效应的影响程度, 或选择与磷灰石成分相同的矿物作为外标. 此外, 磷灰石中 CaO 含量的准确测定也是影响年龄结果准确度的重要因素, 因此需要同时测试 Mn^{2+} 、 Sr^{2+} 、 Ba^{2+} 、 Fe^{2+} 等容易替换 Ca^{2+} 的元素, 以便准确计算 CaO 的含量.

参考文献(References):

- [1] Fleischer R L, Price P B, Walker R M, et al. Nuclear tracks in solids: Principles and applications [M]. Berkeley: University of California Press, 1975: 1-624.
- [2] Green P F, Hurford A J. Thermal neutron dosimetry for fission track dating[J]. Nuclear Tracks and Radiation Measurements (1982), 1984, 9(3/4): 231-241.
- [3] 王世成, 康铁笙. 裂变径迹定年中子注量的测量[J]. 原子能科学技术, 1993, 27(2): 152-156.
Wang S C, Kang T S. Thermal neutron fluence measurement for fission track dating[J]. Atomic Energy Science and Technology, 1993, 2(27): 152-156.
- [4] Bigazzi G. The problem of the decay constant λ_f of ^{238}U [J]. Nuclear Tracks, 1981, 5(1/2): 35-44.
- [5] Gleadow A J W, Lovering J F. Geometry factor for external detectors in fission track dating[J]. Nuclear Track Detection, 1977, 1(2): 99-106.
- [6] Pang J Z, Zheng D W, Wan J L, et al. Insufficient thermalization effects on determining fission-track ages [J]. Science China Earth Sciences, 2013, 56(7): 1233-1241.
- [7] Hasebe N, Barbarand J, Jarvis K, et al. Apatite fission-track chronometry using laser ablation ICP-MS[J]. Chemical Geology, 2004, 207(3/4): 135-145.
- [8] Hasebe N, Carter A, Hurford A J, et al. The effect of chemical etching on LA-ICP-MS analysis in determining uranium concentration for fission-track chronometry[J]. Geological Society, London, Special Publications, 2009, 324(1): 37-46.
- [9] Zhang Y Z, Replumaz A, Leloup P H, et al. Cooling history of the Gongga batholith: Implications for the Xianshuihe Fault and Miocene kinematics of SE Tibet [J]. Earth and Planetary Science Letters, 2017, 465: 1-15.
- [10] Deng B, Liu S G, Li Z W, et al. Differential exhumation at eastern margin of the Tibetan Plateau, from apatite fission-track thermochronometry [J]. Earth and Planetary Science Letters, 2017, 465: 1-15.

- onology[J]. *Tectonophysics*, 2013, 591: 98–115.
- [11] Jing L Z, Zhang J Y, McPhillips D, et al. Multiple episodes of fast exhumation since Cretaceous in southeast Tibet, revealed by low-temperature thermochronology [J]. *Earth and Planetary Science Letters*, 2018, 490: 62–76.
- [12] Tang Y, Zhang Y P, Tong L L. Mesozoic-Cenozoic evolution of the Zoige depression in the Songpan-Ganzi flysch basin, eastern Tibetan Plateau: constraints from detrital zircon U-Pb ages and fission-track ages of the Triassic sedimentary sequence[J]. *Journal of Asian Earth Sciences*, 2018, 151: 285–300.
- [13] 丁汝鑫, 周祖翼, 王玮. 利用低温热年代学数据计算造山带剥露速率[J]. *地球科学进展*, 2007, 22(5): 447–455.
- Ding R X, Zhou Z Y, Wang W. Modeling exhumation rates of orogenic belts with low-temperature thermochronological data [J]. *Advances in Earth Science*, 2007, 22(5): 447–455.
- [14] 胡迪, 沈传波, 刘泽阳. 川东北地区埋藏-剥露历史分析——来自盆地模拟和热年代的制约[J]. *大地构造与成矿学*, 2016, 40(6): 1145–1153.
- Hu D, Shen C B, Liu Z Y. Basin modeling and thermochronological constrains on the burial and denudational history of the northeast Sichuan Basin [J]. *Geotectonica et Metallogenia*, 2016, 40(6): 1145–1153.
- [15] 李振华, 陈刚, 丁超, 等. 碎屑颗粒裂变径迹热年代学在沉积物源区剥露历史分析中的应用[J]. *地质科技情报*, 2012, 31(2): 19–26.
- Li Z H, Chen G, Ding C, et al. Application of detrital grain thermochronology on the exhumation history of the source areas[J]. *Geological Science and Technology Information*, 2012, 31(2): 19–26.
- [16] 刘武生, 秦明宽, 漆富成, 等. 运用磷灰石裂变径迹分析鄂尔多斯盆地周缘新生代沉降隆升史[J]. *铀矿地质*, 2008, 24(4): 221–227, 232.
- Liu W S, Qin M K, Qi F C, et al. Analysis on the Meso-Neozoic subsidence and uplift history of the periphery of Ordos Basin using apatite fission track[J]. *Uranium Geology*, 2008(4): 221–227, 232.
- [17] 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 G C. 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.
- [18] 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 S M, Ma C Q, She Z B, 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.
- [19] 邢凯, 舒启海, 赵鹤森, 等. 滇西普朗斑岩铜矿床中磷灰石的地球化学特征及其地质意义[J]. *岩石学报*, 2018, 34(5): 1427–1440.
- Xing K, Shu Q H, Zhao H S, et al. Geochemical characteristics and geological significance of apatites in the Pulang porphyry copper deposit, NW Yunnan Province[J]. *Acta Petrologica Sinica*, 2018, 34(5): 1427–1440.
- [20] 张丽婷, 袁万明, 李娜, 等. 甘孜-理塘金成矿带构造活动的磷灰石裂变径迹年代学制约[J]. *岩石学报*, 2015, 31(11): 3353–3362.
- Zhang L T, Yuan W M, Li N, et al. Apatite fission track constrains on tectonic activities in Ganzi-Litang gold belt, Qinghai-Tibet Plateau [J]. *Acta Petrologica Sinica*, 2015, 31(11): 3353–3362.
- [21] Donelick R A, O'Sullivan P B, Ketcham R A. Apatite fission-track analysis[J]. *Reviews in Mineralogy and Geochemistry*, 2005, 58(1): 49–94.
- [22] Fleischer R L, Trower W P. Tracks to innovation: nuclear tracks in science and technology[J]. *Physics Today*, 1999, 52(3): 84–86.
- [23] Barbarand J, Carter A, Wood I, et al. Compositional and structural control of fission-track annealing in apatite[J]. *Chemical Geology*, 2003, 198(1/2): 107–137.
- [24] Carlson W D, Donelick R A, Ketcham R A. Variability of apatite fission-track annealing kinetics: I. Experimental results[J]. *American Mineralogist*, 1999, 84(9): 1213–1223.
- [25] Malusà M G, Fitzgerald P G. Fission-track thermochronology and its application to geology[M]. Cham: Springer, 2019: 1–373.
- [26] Vermeesch P. Statistics for LA-ICP-MS based fission track dating[J]. *Chemical Geology*, 2017, 456: 19–27.
- [27] Vermeesch P, Tian Y T. Thermal history modelling: HeFTy vs. QTQt [J]. *Earth-Science Reviews*, 2014, 139: 279–290.
- [28] Tagami T, O'Sullivan P B. Fundamentals of fission-track thermochronology[J]. *Reviews in Mineralogy and Geochemistry*, 2005, 58(1): 19–47.
- [29] 刘海青, 李荣西, 张艳妮, 等. 磷灰石裂变径迹在确定造山带隆升速率中的应用[J]. *西北地质*, 2014, 47(2): 119–125.
- Liu H Q, Li R X, Zhang Y N, et al. The application of apatite fission track in determining the tectonic uplift rates[J]. *Northwestern Geology*, 2014, 47(02): 119–125.
- [30] 余梦丽. 裂变径迹方法及其在造山带隆升中的应用[J]. *化学工程与装备*, 2017(12): 93–94, 102.
- Yu M L. Fission track method and its application in orogenic uplift [J]. *Chemical Engineering & Equipment*, 2017, 46(12): 93–94. (in Chinese)
- [31] 张世平. 裂变径迹方法及其在造山带隆升中的应用[J]. *化工管理*, 2018(11): 15–16.
- Zhang S P. Fission track method and its application in orogenic uplift [J]. *Chemical Enterprise Management*, 2018(11): 15–16. (in Chinese)
- [32] 葛玉魁. 冈底斯造山带新生代以来剥露历史的热年代学约束及沉积响应[D]. 北京: 中国地质大学, 2016.
- Ge Y K. The Exhumation history of the Gangdese batholith from low temperature thermochronology and sedimentary response [D]. Beijing:

- China University of Geosciences, 2016.
- [33]赵富远. 胶东三佛山早白垩世花岗岩磷灰石、锆石裂变径迹研究 [D]. 北京: 中国地质大学, 2015.
- Zhao F Y. Study on apatite and zircon fission-track of Early Cretaceous granite of Sanfoshan in Jiaodong [D]. Beijing: China University of Geosciences, 2015.
- [34]Dodson M H. Closure temperature in cooling geochronological and petrological systems [J]. *Contributions to Mineralogy and Petrology*, 1973, 40(3): 259-274.
- [35]Galbraith R F. The radial plot: graphical assessment of spread in ages [J]. *International Journal of Radiation Applications and Instrumentation. Part D. Nuclear Tracks and Radiation Measurements*, 1990, 17(3): 207-214.
- [36]Brandon M T. Decomposition of fission-track grain-age distributions [J]. *American Journal of Science*, 1992, 292(8): 535-564.
- [37]周祖翼, 毛凤鸣, 廖宗廷, 等. 裂变径迹年龄多成分分离技术及其在沉积盆地物源分析中的应用 [J]. *沉积学报*, 2001, 19(3): 456-458, 473.
- Zhou Z Y, Mao F M, Liao Z T, et al. Estimation of the multi-component fission track age data and its application in the provenance study of sedimentary basins [J]. *Acta Sedimentologica Sinica*, 2001, 19(3): 456-458, 473.
- [38]王毅, 金之钧. 沉积盆地中恢复地层剥蚀量的新方法 [J]. *地球科学进展*, 1999, 14(5): 482-486.
- Wang Y, Jin Z J. Progress of the methods on the recovery of the thickness of eroded strata in basin [J]. *Advances in Earth Science*, 1999, 14(5): 482-486.
- [39]刘树根, 罗志立, 赵锡奎, 等. 中国西部盆地系统的耦合关系及其动力学模式——以龙门山造山带-川西前陆盆地系统为例 [J]. *地质学报*, 2003, 77(2): 177-186.
- Liu S G, Luo Z L, Zhao X K, et al. Coupling relationships of sedimentary basin-orogenic belt systems and their dynamic models in West China: A case study of the Longmenshan orogenic belt-West Sichuan foreland basin system [J]. *Acta Geologica Sinica*, 2003(2): 177-186.
- [40]Garver J I, Brandon M T, Roden-Tice M, et al. Exhumation history of orogenic highlands determined by detrital fission-track thermochronology [J]. *Geological Society, London, Special Publications*, 1999, 154(1): 283-304.
- [41]陈威威, 何碧竹, 许志琴, 等. 裂变径迹方法约束的塘古兹巴斯坳陷-新生代热演化史——来自青藏高原构造运动的响应 [J]. *岩石学报*, 2016, 32(12): 3817-3834.
- Chen W W, He B Z, Xu Z Q, et al. The thermal evolution history of Tangguzibas depression in the Meso-Cenozoic based on constraints of fission track method: Manifestation of the tectonic movements in Tibet Plateau [J]. *Acta Petrologica Sinica*, 2016, 32(12): 3817-3834.
- [42]许立青, 李三忠, 郭玲莉, 等. 郯庐断裂带对鲁西隆升过程的影响: 磷灰石裂变径迹证据 [J]. *岩石学报*, 2016, 32(4): 1153-1170.
- Xu L Q, Li S Z, Guo L L, et al. Impaction of the Tan-Lu Fault Zone on uplift of the Luxi Rise: Constraints from apatite fission track thermochronology [J]. *Acta Petrologica Sinica*, 2016, 32(4): 1153-1170.
- [43]闵康, 高剑峰, 齐有强, 等. LA-ICP-MS/FT 方法在矿床保存研究中的应用——以赣东北德兴铜矿和银山铅锌矿床为例 [J]. *大地构造与成矿学*, 2019, 44(1): 80-91.
- Min K, Gao J F, Qi Y Q, et al. LA-ICP-MS/FT application in preservation evaluation of ore deposits—case studies of the Dexing copper deposit and Yinshan Pb-Zn deposit, northeastern Jiangxi Province [J]. *Geotectonica et Metallogenia*, 2019, 44(1): 80-91.
- [44]杨莉, 袁万明, 王珂. 热年代学方法、技术手段及其在矿床地质中的研究进展 [J]. *地球科学*, 2018, 43(6): 1887-1902.
- Yang L, Yuan W M, Wang K. Research advances of thermochronology in mineral deposits [J]. *Earth Science*, 2018, 43(6): 1887-1902.
- [45]袁万明. 矿床保存变化研究的热年代学技术方法 [J]. *岩石学报*, 2016, 32(8): 2571-2578.
- Yuan W M. Thermochronological method of revealing conservation and changes of mineral deposits [J]. *Acta Petrologica Sinica*, 2016, 32(8): 2571-2578.
- [46]周海, 雷川. 磷灰石裂变径迹 (AFT) 研究进展 [J]. *西北地质*, 2013, 46(1): 168-177.
- Zhou H, Lei C. The study progress in apatite fission track (AFT) [J]. *Northwestern Geology*, 2013, 46(1): 168-177.
- [47]Ketcham R A, Donelick R A, Donelick M B. AFT solve: A program for multi-kinetic modeling of apatite fission-track data [J]. *American Mineralogist*, 2003, 88(5/6): 929.
- [48]Ketcham R A. Forward and inverse modeling of low-temperature thermochronometry data [J]. *Reviews in Mineralogy and Geochemistry*, 2005, 58(1): 275-314.
- [49]Ketcham R A, Carter A, Donelick R A, et al. Improved modeling of fission-track annealing in apatite [J]. *American Mineralogist*, 2007, 92(5/6): 799-810.
- [50]田云涛, 袁玉松, 胡圣标. 磷灰石裂变径迹分析新进展 [J]. *地球物理学进展*, 2009, 24(3): 909-920.
- Tian Y T, Yuan Y S, Hu S B. New progresses in apatite fission track analysis [J]. *Progress in Geophysics*, 2009, 24(3): 909-920.