CNIC-01045
BRIUG-0029

CN9600974

中国核科技报告

CHINA NUCLEAR SCIENCE AND TECHNOLOGY REPORT

裂变径迹定年技术的改进

（国家自然科学基金资助项目）

AN IMPROVED TECHNIQUE FOR FISSION TRACK DATING

(Project Supported by the National Science Foundation of China)

(In Chinese)

中国核情报中心
原子能出版社

China Nuclear Information Centre
Atomic Energy Press

VOL. 27 № 1 1

赵云龙：核工业北京地质研究院研究员，分析测试中心主任。1964年毕业于吉林大学物理系核物理专业。

Zhao Yunlong: Professor, director of Analysis and Test Centre, Beijing Research Institute of Uranium Geology, CNNC. Graduated from Physics Department of Jilin University in 1964, majoring in nuclear physics.

CNIC-01045
BRIUG-0029

裂变径迹定年技术的改进*

赵云龙　翟鹏济[1)]　武朝晖　夏毓亮
黄秋红　王　兵　胡瑞英[2)]
（核工业北京地质研究院）

摘　要

叙述了国内外裂变径迹定年技术改进的必要性，并进行了技术改进。提出用裂变产物法刻度铀标准玻璃的常数 b 值，刻度三种铀标准玻璃，它们是 NBS SRM962a、UB_1 和 UB_2。并建立了 $\sigma \cdot \Phi = \rho_d / b$ 测定中子注量的新方法，它避免了中子能谱变化对注量测定的影响。改进的锆石蚀刻方法采用 NaOH＋KOH 熔融蚀刻和 HNO_3＋HF 混合酸二步蚀刻，使径迹蚀刻充分，径迹清晰度增加、干扰减少，真实地反映径迹密度；根据自发径迹在矿物晶面不同的角分布，划分角区观测径迹，并用改进的蚀刻方法消除径迹不均一的角分布，保证径迹观察的准确性。用改进的定年技术进行了实验室标准化刻度。用国际裂变径迹年龄标样测定证明这些技术对获取准确裂变径迹定年数据是可靠的和实用的。

* 国家自然科学基金资助项目
1) 工作单位：中国科学院高能物理研究所（100080）
2) 工作单位：中国科学院广州地球化学研究所（510640）

An Improved Technique for Fission Track Dating*

(In Chinese)

ZHAO Yunlong ZHAI Pengji[1] WU Zhaohui XIA Yuliang
HUANG Qiuhong WANG Bing HU Ruiying[2]
(Beijing Research Institute of Uranium Geology)

ABSTRACT

The necessity of improving the fission track dating (FTD) technique both at home and abroad is illustrated. The ways of making such improvement are also proposed. It is suggested to calibrate the constant b value of the uranium standard glass by using the method of fission products activity. The 3 kinds of uranium standard glass which have been calibrated are NBS SRM962a, UB_1 and UB_2. A established new method $\sigma \cdot \Phi = \rho_d / b$, to measure neutron fluence, avoids the influence of the varing neutron spectrum on measuring neutron fluence. The improved etching technique for fission tracks in zircon adopted a two-step method which includes the molten alkali system etching using NaOH + KOH and the mixed acid system etching using HNO_3 + HF; this technique results in adequate track etching, increased track clarity and less interference. In this way the intensity of tracks is authentically reflected. Dividing angular zone in accordance with the angular distribution of spontaneous fission track on the crystal surface of minerals to count the tracks and using the improved etching technique to remove the non-uniform angular distribution of spontaneous fission tracks in zircon, ensure the accuracy of tracks count. The improved FTD techniques were used to finish Laboratory Standradized Calibration. The tests using internation FTD age standards samples have proved that above meotioned techniques are reliable and practical in obtaining the accurate FTD data.

---

* Project Supported by the National Natural Science Foundation of China

1) Institute of High Energy Physics, Academia Sinica, Beijing 100080, PRC.
2) Gunzhou Institute of Geochemistry, Academia Sinica, Gunzhou, 510640, PRC.

前　言

自从 1964 年提出裂变径迹测定地质年代的方法以来[1]，由于其方法简单、实验费用较低、可以测定包括晶体和非晶体在内的各种样品，测定的年代范围宽（从几十年到几十亿年）、使用的样品少（几个颗粒就可以测定）以及可以利用裂变径迹的退火特性来研究热历史和上升速度等优点，使这一技术发展很快，并得到广泛的应用。例如，在地质构造学中测定冷却速度和上升速度，在地层学中标记地层年代，在沉积盆地热历史研究、元素迁移（特别是铀矿的铀来源研究）研究及考古学等研究中都起了重要作用[2~7]，但至今，这一技术仍然存在着一些问题[8]，致使在 1984 年 Troy 裂变径迹测定地质年代学术讨论会上各实验室报出的同一个样品的年龄数据散度很大[9]。

为了解决这一问题，1986 年国际地质年代委员会向世界从事裂变径迹测定年代和对这一技术感兴趣的人发出了 277 份意见征询表，有 80 人做了全面的回答，可以说对同一问题的回答差距都很大，有的甚至是截然相反，但有一点是共同的，那就是 80 个人都希望对裂变径迹测定地质年代方法进行标准化刻度。1986 年国际地质年代委员会根据上述情况成立了以 Hurford 为主持人的国际裂变径迹测定地质年代刻度标准化工作组，工作组的其他九位成员是 Gleadow (Melbourne)，Kohn (Beer Sheva)，Miller (Troy)，Naeser (Denver)，Nagpaul (Faridabad)，Suzuki (Tokyo)，Van den Haute (Ghent)，Wangner (Heideberg) 和赵云龙（北京）[10]，由这个工作组来统一和标准化这一技术，并进一步改进测定技术。但是在 1988 年裂变径迹测定年代学术讨论会上，各实验室报出的同一样品的年龄数据仍然不尽一致[11]，例如，88-1 锆石样品（年龄值（11.6±0.4）Ma）的 9 个分析测定得到的年龄范围是从 9.2 到 12.7 Ma，相当于年龄值的 79%到 109%；88-3 磷灰石样品（年龄值（127±5）Ma）的 21 个分析测定得到的年龄范围从 91.6 到 130.6 Ma，相当于年龄值的 72%到 103%。这些事实说明确实需要统一刻度，并建立公共的刻度基线。并希望各国的科学家们从方法学上完善这一技术，本工作就是在这方面进行研究，经过几年的工作对定年方法有较大改进。

1　裂变径迹定年方法概述[2,3]

矿物中的裂变径迹几乎全部来自^{238}U 的自发裂变，自发裂变径迹密度和矿物中铀含量成正比，并随矿物年龄的增加而增加。^{235}U 在热中子照射下发生诱发裂变，裂变碎片的质量和能量分布与^{238}U 自发裂变一样，也在矿物中产生径迹，由于^{235}U 在铀元素中的丰度通常为常数，因此测量其诱发裂变径迹密度和热中子注量，即可计算出矿物中的铀含量。这样，裂变径迹年代测定问题就归解为测量^{238}U 自发裂变径迹密度和^{235}U 诱发裂变径迹密度及中子照射注量的问题，通常其年代公式为：

$$T = \frac{1}{\lambda_d}\ln\left(1 + \frac{\rho_s}{\rho_i}\frac{\lambda_d}{\lambda_f}\sigma \cdot I \cdot \Phi\right) \tag{1}$$

式中：λ_d 为^{238}U 的总衰变常数，λ_f 为^{238}U 的自发裂变常数；ρ_s 和 ρ_i 分别为自发和诱发裂变径迹密度；σ 为^{235}U 热中子诱发裂变截面；I 为^{235}U 的天然同位素丰度；Φ 为热中子注量；T 为地质年代。

在地质年代研究和地质应用中应用最多的矿物主要有磷灰石、榍石、锆石等，在这些

矿物定年中技术难点大的就是锆石。

裂变径迹定年的基本技术主要是

1.1 样品制备

选取单矿物，并根据定年测量中必须统计样品单位面积中的径迹数目，需要制备成光薄片，就是把选出来的矿物，利用环氧树脂或其他粘合剂固定，然后磨平、抛光，使与抛光面相交的径迹经蚀刻以后能暴露出来。

1.2 样品的中子照射

对于制备好的样品，装入反应堆照射罐内，照射时要准确测定中子注量，严格按放射性操作规程操作。

1.3 裂变径迹的蚀刻

因为裂变产物形成的潜径迹是很细小的，其直径仅为 1 μm 左右，但是潜径迹可以被一定种类的化学试剂优先溶解，即可把径迹蚀刻出来，用光学显微镜就可以观测到，对于不同矿物需要采取不同的蚀刻剂和蚀刻条件，如温度、时间等。

1.4 裂变径迹的观察和统计

根据径迹在矿物中的特征，用光学显微镜观察和统计矿物中的自发裂变径迹和诱发裂变径迹，计算出自发和诱发裂变径迹密度。

1.5 裂变径迹年龄的计算

将上述各步骤中测得的照射中子注量、观察和统计的自发和诱发裂变径迹密度以及各常数代入公式（1）中，即可计算出裂变径迹年代来。

上述各项技术的成熟度，对得到准确的年代数据关系十分大。到目前为止，裂变径迹定年的各步骤都需要进一步的标准化和技术改进。

2 裂变径迹定年技术的改进

2.1 准确测定中子注量[12,17]

裂变径迹技术测定年代必须使用准确的中子注量和^{235}U 的中子有效裂变截面，通常是采用 Au 和 Co 活化监示器或用铀标准剂量玻璃的 B 值（$\Phi=B\rho_d$，Φ 为照射的中子注量，ρ_d 为中子照射后铀标准剂量玻璃的诱发裂变径迹密度）测定中子注量，一般这些方法测定的中子注量不能代表与^{235}U 反应的实际注量，有时测定值和实际值之间的差别是不能忽略的，由于^{235}U 的裂变截面、Au 和 Co 的激活截面都与中子能量有关，相同的中子能谱，它们的截面曲线趋势也是不同的。这种差别的一个重要说明是采用金和铜活化监示器多次测量美国国家标准局用于裂变径迹技术的中子预照射铀标准剂量玻璃 SRM 962a 的注量，两种活化监示器得到的值相差达 11%[13]。用常规方法得到的铀标准剂量玻璃的 B 值作为以后照射中子注量的基准也存在问题，不同中子能谱照射得到的 B 值要导致中子注量 Φ 测定的不准确。Hurford 等人[14]历时 7 年刻度铀标准剂量玻璃 SRM612，得到 74 个 B_{612}值，其散度是大于根据单个测定计算的误差基线，它暗示这些测定的不准确度被严重地低估了。Galbrait 验证这些数据的大部分之后得到了类似的结论，单个测定全部散布在平均值±20%的范围内。

本工作采用测定^{235}U 裂变产物绝对活性法测定照射中子注量与^{235}U 反应中子有效裂变截面的乘积，同时得到铀标准剂量玻璃刻度常数 b，对裂变径迹定年的中子注量测定技术加

以改进。

由^{235}U裂变产生同位素 i 的放射性 A_i（n，f）可由下式算出：

$$A_i(n,f) = Y_i\sigma\Phi N_a S_i W I_{235} E_i^{-1} A_u^{-1} \tag{2}$$

在式中σ是^{235}U中子裂变截面；A_u是天然铀原子量；N_a是阿伏加德罗常数；$S_i=1-\exp(-\lambda_i T_b)$，$\lambda_i$是同位素 i 的衰变常数，$T_b$是照射时间；$Y_i$是同位素 i 的累积裂变产额；$I_{235}$是$^{235}U$的丰度；$E_i$是系统计数效率；$W$是铀的重量；$\Phi$是照射的中子注量。

从方程式（2）中我们得到

$$\sigma\Phi = A_i(n,f)E_i A_u / Y_i N_a S_i W I_{235} \tag{3}$$

为了测定$\sigma\Phi$，准确称取 10 mg 铀标准（U_3O_8，天然丰度，为防止自屏蔽用SiO_2稀释），每次照射均包括铀标准，样品照射是在中国原子能科学研究院试验反应堆中的几个垂直孔道内的不同位置上完成的，照射条件是：中子注量率（1～8）$\times10^{13}$ n/（$cm^2\cdot s$），^{235}U的镉比从 5.1 到 129.4，照射时间大约 100 s，裂变产物γ射线能谱是用高纯锗自动γ射线能谱仪测量的。该系统计数效率是用^{241}Am，^{57}Co，^{152}Eu，^{137}Cs和^{60}Co标准放射源刻度的，刻度效率误差是±1.6%（1σ），样品照射后（1～2）d，用γ谱仪测定$^{99}Mo\rightarrow^{99M}Tc$或$^{143}Ce$等核素的绝对活性；或照射后 7 至 8 天，测定$^{141}Ce$、$^{147}Nd$、$^{95}Zr$等核素的绝对活性。照射的中子注量与$^{235}U$的中子有效裂变截面的乘积（$\sigma\cdot\Phi$）就可以从方程式（3）中计算出来。

本工作在反应堆中的不同超热中子成分下测量了照射的中子注量与^{235}U反应的有效裂变截面的乘积，为了与通常活化监示器的方法比较，也用 Au 活化监示器测定了照射的中子注量，中子诱发 UG-5 铀标准玻璃中^{235}U裂变事件的数目是用紧贴在玻璃上的低铀优质白云母外探测器上记录的，白云母探测器在 25℃，45% 的氢氟酸中蚀刻 40 min。

测定结果列于表 1 中。

表 1　实验数据

照射位置	^{235}U的镉比	$\frac{\Phi_{Au}}{10^{15}n/cm^2}$	裂变产物法 $\sigma_R\Phi_R$（10^{-6}）	ρ_{UG-5}（$10^5t/cm^2$）	$b1$（$\times10^{11}$）$\rho_{UG-5}/\sigma_0\Phi_{Au}$	$b2$（$\times10^{11}$）$\rho_{UG-5}/C_R\Phi_R$
A11	5.1	2.12±0.11	1.05±0.04	1.27	1.03±0.06	1.21±0.05
B11	13.3	2.00±0.06	1.03±0.04	1.26	1.09±0.04	1.22±0.05
C11	46.6	1.86±0.09	1.023±0.04	1.27	1.18±0.06	1.24±0.05
D11	71.4	1.54±0.04	0.879±0.04	1.09	1.22±0.04	1.24±0.05
E11	129.4	1.47±0.04	0.847±0.04	1.06	1.24±0.04	1.25±0.05

注：$\sigma_0=580.0b$；数据误差均为 1σ；UG-5 剂量玻璃的铀含量是 5.00ppm，天然丰度。

UG—5 剂量玻璃用中子照射后，在外探测器中可测定诱发裂变径迹密度，众所周知，理论径迹密度可用下式给出：

$$\rho_i = (\sigma\cdot\Phi)(NI_{235}R_{235}E_f), \tag{4}$$

式中N是在 UG-5 铀标准剂量玻璃中单位体积里的铀原子数目；I_{235}是铀中^{235}U的丰度；R_{235}是在剂量玻璃中^{235}U裂变碎片的射程；E_1是可蚀刻效率。

在方程式（4）中的第 2 个括号内的所有参数在相同蚀刻条件下都是常数。从方程式（4）中可以得到

$$\rho_i/\sigma\cdot\Phi) = NI_{235}R_{235}E_f, \tag{5}$$

$$b = \rho_i / \sigma \cdot \Phi, \tag{6}$$

式中常数 b 代表 $NI_{235}R_{235}E_f$ 常数。

事实上，b 就是铀标准剂量玻璃刻度系数。本工作在反应堆中不同超热中子成分的情况下测定了照射中子注量与^{235}U 有效裂变截面的乘积（$\sigma \cdot \Phi$），测定方法是采用测定^{235}U 裂变产物的绝对活性，得到了 UG-5 铀标准剂量玻璃刻度常数 b，它的平均值是（1.23±0.06）$\times 10^{11}$。该常数（b_{UG-5}值）作为以后照射测定中子注量的基础。

将来在反应堆照射样品，中子注量与^{235}U 中子有效裂变截面的乘积（$\sigma \cdot \Phi$）可用下式求出

$$\sigma \cdot \Phi = \rho_{i(UG-5)} / b_{UG-5}, (\text{通用公式为 } \sigma \cdot \Phi = \rho_d / b) \tag{7}$$

式中 $\rho_{i(UG-5)}$是在未知照射中贴在 UG－5 铀标准剂量玻璃表面上外探测器上的诱发裂变径迹密度。

表 1 表明了当用足够热化的中子照射样品时，采用裂变产物法和 Au 活化监示器法得到的铀标准剂量玻璃的刻度常数 b 是十分一致的；当用有较高超热中子成分的中子照射样品时，两种方法得到的刻度常数是明显的不一致。但是本工作用裂变产物法在不同超热中子成分的情况下得到的 UG－5 铀标准剂量玻璃的刻度常数 b 在误差范围内是常数，这与理论的预期是一致的。

在反应堆中心孔道内照射样品，一般有相当多的裂变中子成分，在有些情况下裂变中子成分要多于已热化的中子，由于这些原因，在不同的反应堆里或在同一个反应堆的不同位置上照射样品，中子能谱是不同的，在准确测定中子剂量中由于中子能谱和中子温度不同产生的差异是必须考虑的，^{235}U 的中子裂变截面不能认为是常数。

本工作用裂变产物法测量了绝对中子注量与^{235}U 反应有效裂变截面的乘积，刻度了 UG－5 铀标准剂量玻璃刻度常数 b，这种方法直接测定照射的中子注量与^{235}U 反应的效应，避免了中子测量中由于中子能谱和中子温度变化带来的影响。

用本工作提出的 $\sigma \cdot \Phi$ 法刻度了美国国家标准局用于裂变径迹刻度的铀标准玻璃，其中 NBS SRM962a 的 b 值为 3.00×10^{11}；刻度了本专题组研制的 UB_2 铀标准玻璃（铀含量为 11.18×10^{-6}），其 b 值为 2.79×10^{11}；UB_1 标准铀玻璃（铀含量为 1.89×10^{-6}），其 b 值为 4.68×10^{10}。

用 b 值法测定中子注量十分简便，只要将白云母探测器贴在铀标准玻璃上，与样品同时照射，测出径迹密度 ρ_d，代入（7）式就可简便地测出中子注量，该法在核工业北京地质研究院、中国科学院高能所、中国科学院广州地化所应用以来，收到很好的效果。

2.2 裂变径迹定年锆石蚀刻技术的改进[15]

尽管用化学方法揭示锆石中裂变径迹比其他一些矿物困难得多，但锆石用于裂变径迹定年有许多优点，因此人们一直在努力发展和改进锆石的蚀刻方法。自 1964 年以来先后有 H_3PO_4，375～500℃；100mol/L NaOH，220℃；H_2SO_4＋HF，150-180℃和 NaOH＋KOH 熔融，200℃，几种蚀刻程序被陆续发展并得以应用，但有时蚀刻不够充分，我们研究了一个碱、酸结合的蚀刻程序，并改进了碱溶蚀刻装置。

本研究中所用锆石晶粒是菲什峡谷凝灰锆石（Fish Canyon Tuff FC-3）。

（1）**制样** 把锆石晶粒有序摆放于一载玻片上，然后将其放在约 280℃的电热板上加热几分钟，用聚全氟乙丙烯塑料盖在锆石颗粒上（事先在电热板上方反复烘烤一会，否则会

因静电作用把有序的锆石颗粒打乱），迅速以另一事先预热的载玻片覆盖，加压以保证锆石粒牢牢嵌进塑料。之后移至较大玻璃板上冷却。用标准抛光法抛光塑料片上的锆石。以双面胶纸把这样的片粘在合适的有机玻璃模块上，先以碳化硅（5μm）小心磨出颗粒内表面，再用氧化铝抛光粉（2μm）和三氧化二铬抛光液抛好待用。

（2）**蚀刻** 我们使用拟合在不锈钢罐中的聚四氟乙烯罐作为装碱或酸的蚀刻容器。它既抗强酸又抗强碱，我们用它替代白金或银坩埚，既可免去许多麻烦又经济牢固耐用，是理想的锆石蚀刻容器。工作温度不超过250℃是安全的。蚀刻时把装有称好的NaOH+KOH的蚀刻罐放在温度已达220℃的控温电热板上（或烘箱内），约1 h后碱呈清彻的熔融液，把样片锆石颗粒面朝下放在液面上（或置样片于聚四氟乙烯片架上放在熔融液中），蚀刻24～66 h。酸蚀刻条件是浓HNO_3+40%HF。在通风柜中取等体积的两种酸于蚀刻罐中搅拌均匀后，放入夹有锆石样片的聚四氟乙烯片架，盖好聚四氟乙烯盖，最后拧紧不锈钢盖，迅速放进已恒温190℃的烘箱中并在此温度下维持蚀刻1.2～3.5h。

锆石标样FC-3在我们的碱熔融体系蚀刻24 h径迹已出现，随着蚀刻时间继续增加径迹密度迅速达到该体系下的密度饱和坪区，直到66 h几乎保持不变（见图1）。但在坪区开始以后的很长一段时间内密度虽不低于更长时间，观测却要费时的，因为径迹反差较小，坪区后部径迹反差增加，就此而言蚀刻时间长些为好，实验中我们发现连续蚀刻时间太长时，塑料片上会有一层暗灰色沉积物附着于塑料片上，这会妨碍蚀刻的，如果用间断蚀刻法或蚀刻一定时间酌情动一动塑料片就能克服这个问题。

HNO_3+HF混合液190℃蚀刻FC-3锆石样其径迹密度与碱一致。当把两条件结合在一起时，效果非常明显。由表2可以看出无论是先a后b还是先b后a的蚀刻顺序都能达到同样的效果，蚀刻效率大大提高，径迹密度明显增加。干扰减少，径迹清晰度增加，光学特性好，易于判断，读数可重复性好。可观测面积增加，a或b条件单独蚀刻过的颗粒上原存在的不易观测的模糊或干扰部位，结合蚀刻后大都清楚了，观测部位界限清楚，面积易于测准，先a后b的蚀刻顺序尤为明显（见表3）。因此可利用率高，径迹总数增加，这是令人希望的结果，因为用外探测器法定年中自发径迹密度是由颗粒上可观测部位的面积和读数计算的，一般情况下总有一些部位因为干扰等因素不能利用。而云母上的诱发径迹密度是由整个颗粒对应面积计算的密度，如果颗粒中铀分布不均匀，两者就会有差异而不是严格对应。所以自发径迹观测面积越接近颗粒全面积越好。此外，表2中还附列了部分径迹投影长度与开口处宽度比的参数，径迹细长比值就大（各条件下的值均为颗粒上最细长者中的一部分，以便比较），可以看出a+b情况高于a或b。在蚀刻顺序上先a后b优于先b后a，因为后者可观测面积无明显增加，有些径迹蚀刻过头并且掉了一粒，这也许是b时间嫌长了些。就

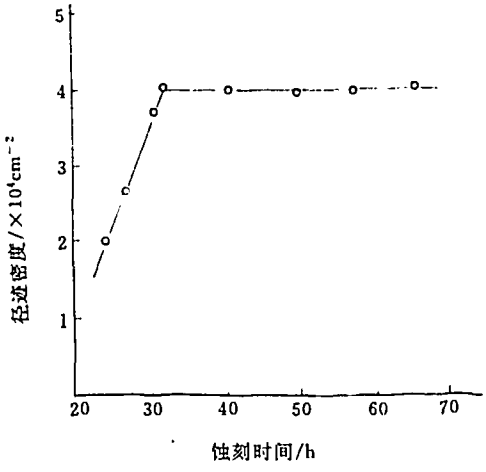

图1 熔融碱蚀刻锆石径迹密度与蚀刻时间关系

先 a 后 b 而言，a 适中时间比过长时间为好（由表 3 很明显，且投影径迹长度比也高），因为太长时间者 b 蚀刻后掉了两粒，这是不希望的。a 和 b 结合蚀刻法缩短了总的蚀刻时间，得到了满意的结果。

利用聚四氟乙烯蚀刻装置，使用 NaOH+KOH 熔融蚀刻和 HNO_3+HF 混合酸相结合技术显示锆石裂变径迹方便易行，达到效率最高。此外本方法用于其他类似矿物可能也是有希望的。

表 2　不同蚀刻条件下 FC-3 锆石自裂变径迹密度　（$\times 10^5 tcm^{-2}$）

编　号	A_{15}（9 粒）				A_{11}（8 粒）		A_{19}（10 粒）					
蚀刻条件	a	a	a	a+b	b	b+a[1)]	a	a	a	a	a	a+b[2)]
蚀刻时间/h	24	27	31	31+2	3.5	3.5±44	32	41	50	58	66	66±1.2
径迹密度	2.01	2.62	3.69	4.87	4.01	4.80	4.02	3.96	3.94	3.95	4.04	4.69
径迹总数	749	822	1192	2245	3145	3539	981	1770	1827	1743	1871	1852
径迹长度比	14.02±1.45			16.62±2.75	13.75±2.25		12.39±1.47		12.17±1.81		14.25±3.14	
（所测条数）	(9)			(15)	(10)		(11)		(17)		(12)	

a. 10g NaOH+14.4gKOH，220 ℃熔融；　b. 浓 HNO_3+40%HF（7+7ml）. 190 ℃；　1）a 步掉 1 粒；　2）b 步掉 2 粒。

表 3　A_{15}样品两步结合蚀刻观测面积、径迹数和密度变化

No.	N_S		S		$\rho_S/\times 10^5 tcm^{-2}$	
	a	a+b	a	a+b	a	a+b
2	35	75	8.5	11.8	4.12	6.36
3	67	182	23.3	40.9	2.88	4.45
6	167	309	41.5	65.2	4.02	4.74
7	238	423	52.7	70.4	4.52	6.01
8	80	226	23.0	52.2	3.48	4.33
11	112	285	31.0	63.6	3.61	4.48
12	160	335	48.8	68.9	3.28	4.86
19	101	135	32.6	35.6	3.10	3.79
21	188	275	43.0	52.3	4.37	5.26
总计	1192	2245	322.9	460.9	3.69*	4.87*

N_S——自裂变径迹总数，本实验中径迹全是用 Olympus 显微镜油镜 100×，目镜 15×读出的；a 和 b 同表 2；
ρ_s——自裂变径迹密度；　S——读径迹数的观测面积，数字为网格中片中小格数，1 格面积=1×10^{-6} cm^2；
* 数字为总平均径迹密度。

2.3　裂变径迹观察技术的改进[16]

裂变径迹观察也属锆石矿物较困难，我们在开发裂变径迹定年的矿物蚀刻技术中发现，同一矿物不同的晶面的体蚀刻速度不同，因而径迹形态不同。后来又发现，甚至同一晶面也存在着各向异性的现象，即垂直于 C 晶轴的径迹易蚀刻，而平行于 C 轴的径迹较难蚀刻。这就有可能造成丢失径迹，而使径迹密度偏低，从而使裂变径迹法测定的地质年代偏低，这是应当尽量避免的。我们测定了不同蚀刻条件下揭示的锆石（100）面自发裂变径迹的角分布，结果表明有些蚀刻条件下的确不同程度地存在着各向异性的角分布。

（1）**原理**　锆石颗粒中的微量铀，自发裂变所产生的碎片是以 4π 几何随机发射的，其

潜径迹的角分布，在统计范围内应是各向同性的、均匀的分布。当把锆石晶粒的内表面抛光后，在一定的化学条件下，把这些潜径迹变成光学显微镜下可观测的径迹时，由于不同的化学试剂成分对锆石晶体结构内成分、杂质成分等不同作用特性的差异，使得同一晶面上也不一定全部的潜径迹，都能变成光学显微镜下可见的投影径迹。有些方向的径迹，可能未被揭示出来或者丢失了，这就出现了各向异性的角分布。

（2）**方法** 把 FC-3 菲什峡谷凝灰锆石（Fish Canyon Tuff FC-3）晶粒制成以聚全氟乙丙烯塑料为底衬的样片若干。用 5μm 碳化硅抛出内表面，再以 2μm 氧化铝抛光粉和三氧化二铬水液抛光，洗净晾干待用。这些抛光好的样片分别以 6 种不同的蚀刻条件蚀刻。每次蚀刻完毕，用 Olympus 光学显微镜油浸物镜（×100）、目镜（×15），观测（100）面上不同角度内的所有投影径迹。测量之前，先找好待测颗粒（100）的 C 轴方向，定为该观测面坐标的 y 轴，与 y 轴垂直方向定为 x 轴，xy 坐标由显微镜目镜内的格网片叉线定好。如图 2 所示，整个 2π 平面共分为 6 个角度区间，每 60°为一区间。根据径迹在（100）面上投影方向（径迹在该表面的开口为入射点）与 xy 轴的夹角来判断其属于哪个角度范围。把整个（100）面上的全部投影径迹按此归类，得到各角度范围内径迹总数。再把同一条件下所测的全部（100）面晶粒的结果加合起来，就可以得到该蚀刻条件下锆石裂变径迹角分布的统计结果。

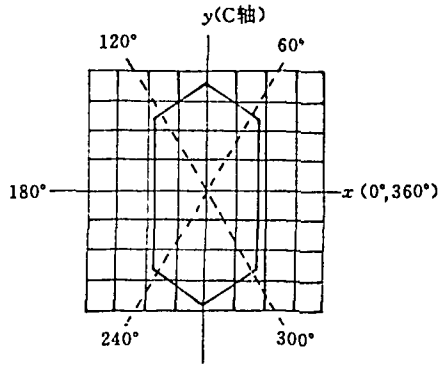

图 2 径迹角分布测定，坐标和角区示意图

根据上述角度范围划分的原则可知，在实际测量中，只有恰好位于 0°、90°、180°和 270°位置的投影径迹，根据网格片上的交叉直线容易肯定判断。其他角度是在 90°范围内估计的。例如，60°、120°、240°和 300°均要根据离开 y 轴（90°和 270°线）左右估计 30°来判断的，在恰好处于 y 轴±30°交界处附近的径迹就可能归属错。但统计性趋势是能够反映出来的。表 4 给出了 6 种不同的蚀刻条件下，锆石裂变径迹角分布的测量结果。在我们的角区划分中，90°和 270°线两侧各 30°范围内的径迹，应属近于平行于 C 轴的径迹，而 0°和 180°线两侧各 30°范围内的径迹，应属近于垂直于 C 轴方向的径迹，如果把这四个区域的径迹分别处理，结果给在图 3 中。从图 3 和表 4 可见，不同蚀刻条件下揭示的锆石裂变径迹，平行和垂直于 C 轴方向的差异。用混合酸的条件不同程度的存在各向异性的角分布，用体积比 1∶1 好于其他配比，混合的熔融碱蚀刻体系情况不错，碱酸蚀刻体系结合起来的两步法蚀刻程序最好，几乎不存在各向异性的角分布。图 3 中阴影部分表示的是与 C 轴近于平行方向的径迹，每种蚀刻条件下，其阴影面积之和小于空白面积之和。这表明有一部分近于平行 C 轴方向的径迹损失了（最明显的是表 4 中第 3 种蚀刻条件）。

因此，我们认为应当选择碱酸蚀刻体系相结合的锆石裂变径迹蚀刻程序。此外，本工作也表明测定裂变径迹的角分布，是检验蚀刻条件是否最佳的一种新方法。

表 4　各种蚀刻条件下的裂变径迹角分布*

角度范围		a	b	c	d	e	f	N	n	$N/6$
1	径迹数 (a_i)	242	201	259	257	197	231	1387	8	231
	$a_i/(N/6)$	1.05	0.87	1.12	1.11	0.85	1.00			
2	径迹数 (a_i)	256	140	229	257	155	242	1279	5	213
	$a_i/(N/6)$	1.20	0.66	1.08	1.21	0.73	1.14			
3	径迹数 (a_i)	191	26	159	148	30	184	738	5	123
	$a_i/(N/6)$	1.55	0.21	1.29	1.20	0.24	1.50			
4	径迹数 (a_i)	182	102	179	181	125	203	972	7	162
	$a_i/(N/6)$	[illegible]	[illegible]	1.10	1.12	0.77	1.25			
5	径迹数 (a_i)	[illegible]	[illegible]	282	285	255	278	1660	9	277
	$a_i/(N/6)$	1.06	[illegible]	1.02	1.03	0.92	1.00			
6	径迹数 (a_i)	259	252	265	262	235	237	1510	7	252
	$a_i/(N/6)$	1.03	1.00	1.05	1.04	0.93	0.94			

* a. 0°～60°; b. 60°～120°; c. 120°～180°; d. 180°～240°; e. 240°～300°; f. 300°～360°, N. 所测量的总径迹数; n. 所测量的锆石颗粒数。1. HNO_3 : HF=1 : 1 (V/V), 150℃, 36h; 2. HCl : HF=1 : 1 (V/V), 150℃, 36h; 3. HNO_3 : HF=2 : 1 (V/V), 190℃, 3h; 4. HNO_3 : HF=1 : 2 (V/V), 190℃, 3h; 5. 10g NaOH+14.4g KOH, 210℃, 35h (在烘箱中); 6. 10g NaOH+14.4g KOH, 220℃, 46h (在电热板上), 然后在 $HNCO_3$: HF=1 : 1 (V/V), 190℃, 2h。

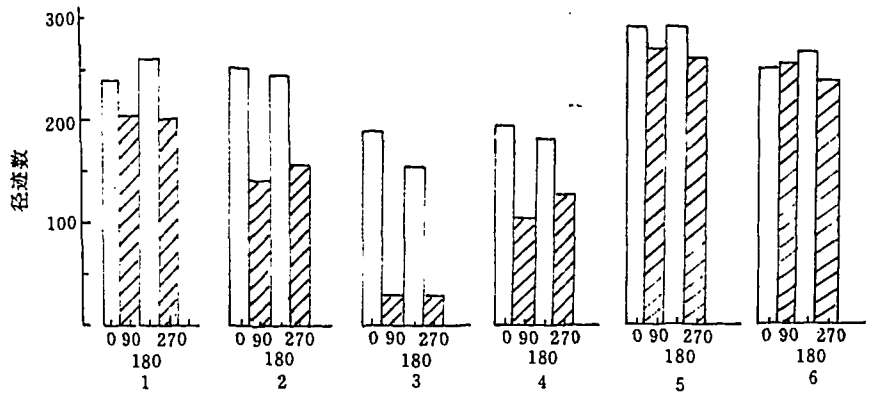

图 3　各种蚀刻条件下揭示的锆石裂变径迹角分布

1—6 同表 4

2.4　对实验室进行了标准化刻度[17~18]

国际裂变径迹定年标准化工作组于 1988 年推荐的裂变径迹定年标准化建议，要求从事该项工作的实验室要进行标准化刻度，否则其数据的可靠性不能被接受。进行实验室刻度是高水平实验室的标准，我们完成了这项工作。具体步骤是：

(1) 年龄标准

Zeta 刻度法的刻度系数是以准确测定过其年龄的标样为基准的。本工作中所用的标样均为第六届国际裂变径迹测定地质年代学术讨论会上推荐的，表 5 列出了这些标样及其年龄。铀剂量玻璃是美国国家标准局生产的 NBS－SRM612，整个 Zeta 刻度实验都采用外探测器法进行，外探测器为含铀极低的四川雅安白云母。

(2) 样品制备

锆石颗粒用聚全氟乙丙烯塑料做片基，在 280～290℃电热板上把颗粒牢牢嵌进塑料片固定。FCT 磷灰石、Durango 磷灰石和榍石用环氧树脂滴于颗粒上制成薄片，分别在 40°、70°和 96℃条件下烘烤 7、15 和 7 h 使其固化。固定好锆石、磷灰石和榍石颗粒的片用粒径为 5 μm 碳化硅小心磨出颗粒内表面，再分别用粒径为 2 μm 氧化铝抛光粉和三氧化二铬抛光制备成光薄片。

(3) 蚀刻处理

样品蚀刻是用化学试剂揭示出样品表面的自发裂变径迹。使用聚四氟乙烯罐作为装酸、碱蚀刻容器，以不锈钢罐作拟合外罐。先以 NaOH 和 KOH 熔融碱液 210℃蚀刻 TR 样 16h、FCT 样 19h、BM 样 20h，然后再用 HNO_3+HF 1∶1，混合液于 190℃蚀刻 2h。用 HF∶HNO_3∶HCl∶H_2O=1∶2∶3∶6 的混合液 32℃蚀刻 MD 样 8min。磷灰石样用 7% HNO_3 于 25℃蚀刻 30S。整个实验过程中对蚀刻进行检测，以达到最大程度的揭示出自发裂变径迹、又便于清楚地观测程度。蚀刻后的样品用热水、冷水、蒸馏水冲洗，干燥后待用。

表 5 年龄标样及其参考年龄[9,19]

样 品 名 称	矿物种类	参考年龄 /Ma
Fish Canyon Tuff (FCT)	锆 石	27.8±0.7
Buluk Member (BM)	锆 石	16.2±0.2
Tardree Rhyokite (TR)	锆 石	58.7±1.1
Fish Canyon Tuff (FCT)	磷灰石	27.8±0.7
Durango	磷灰石	31.4±0.5
Mount Dromedary (MD)	榍 石	98.7±0.6

(4) 照射和观测

所有蚀刻好的样片分别用新解理的白云母片覆盖，使用透明胶纸紧密固定使其面接触紧密。铀玻璃 NBS－SRM612 清洗干燥后置于新解理成为两片的白云母中间，做成夹心用透明胶纸固定牢。再把所有待照样品迭放起来，置于两块铀玻璃夹心中间用胶纸扎牢，用铝箔包好，送重水反应堆照射。FCT 和 BM 锆石各进行了 3 次不同剂量的照射，FCT 磷灰石进行了 4 次不同剂量的照射，TR 锆石、Durango 磷灰石和 MD 榍石各进行了一次照射。照射后的白云母外探测器片在放 40%HF 中，根据室温情况分别蚀刻 25～63min 不等，使达到蚀刻完全。

蚀刻好的光薄片和白云母片上的自发和诱发裂变径迹，使用 Olympus 生物显微镜观测、用油浸 1500 倍（100×物镜和 15×目镜）读自发径迹。用干镜 600 倍（40×物镜和 15×目镜）观测云母上的诱发径迹（实验表明用 100×和 40×两种物镜读云母上诱发径迹，在 1%误差范围内一致）。

(5) Zeta 值计算

Zeta 由下式计算得到：

$$\zeta = \rho_i/\lambda_D g \rho_s \rho_d [\exp(\lambda_D T_{std} - 1)]$$

中 λ_D 是^{238}U 总衰变常数，其值为 $1.55125\times10^{-10}\ a^{-1}$；$\rho_s$ 和 ρ_i 分别是同一年龄标样矿粒上和白云母上自发和诱发裂变径迹密度，T_{std}是年龄标样的参考年龄值；g 是几何因子，取 0.5；ρ_d 是铀玻璃在白云母上的诱发径迹密度。

Zeta 误差由下式得到：

$$\sigma_\zeta = \zeta(1/N_s + 1/N_i + 1/N_d)^{1/2}$$

式中 N_s、N_i 和 N_d 分别为年龄标样自发、诱发和铀玻璃在白云母上读出的径迹总数。

(6) 结果分析

表 6 列出了 3 种锆石，两种磷灰石和一种榍石标样 Zeta 值测定结果，Zeta 值及其误差计算未考虑年龄标样参考年龄误差。由表 6 可见 3 种锆石 5 种不同剂量的照射所得 7 个 Zeta 值在 313.3 到 370.4 之间变化。其加权平均值为 335.6±8.2 (2σ)。两种磷灰石 4 种不同剂量照射所得 6 个 Zeta 值在 326.1～358.1 之间变化，其加权平均值为 343.3±14.6 (2σ)。连同榍石在内总共 14 个 Zeta 值的加权平均值为 339.2±6.6 (2σ)，三种矿物的 Zeta 值之间差异不大，与加权平均值接近。因此使用一个总的加权平均 Zeta 值测定未知矿样的年龄不会引起大的误差。三种矿物 Zeta 值接近表明其自裂变径迹蚀刻效率是相同的。表明，我们的实验室水平已全面达到测定磷灰石、锆石、榍石等矿物的裂变径迹年代的水平，其数据得到公认。

表 6 Zeta 值测定结果

样品名称	ρ_s (N_s) $10^5 tcm^{-2}$	ρ_i (N_i) $10^5 tcm^{-2}$	ρ_d (N_d) $10^5 tcm^{-2}$	n	γ	P (X^2) %	ζ ($\pm 1\sigma$)
锆 石							
FCT	4.57 (1547)	8.20 (7029)	3.00 (19741)	7	0.974	22	332.8±9.6
	5.20 (1540)	4.11 (2401)	1.26 (12620)	6	0.909	8	348.2±11.8
	4.98 (3249)	5.61 (5514)	1.83 (12338)	10	0.960	48	343.7±8.2
BM	0.869 (639)	5.70 (10329)	6.79 (17712)	11	0.944	98	313.3±13.0
	0.822 (1261)	1.19 (2373)	1.26 (12620)	11	0.908	69	370.4±13.3
	0.678 (691)	1.43 (1920)	2.00 (12002)	10	0.987	97	342.3±15.5
TR	5.64 (1557)	2.03 (1906)	1.26 (12620)	9	0.969	20	336.2±11.9
					加权平均值 335.6±8.2 (2σ)		
磷灰石							
FCT	0.175 (619)	0.131 (665)	1.26 (12620)	26	0.970	98	329.1±18.6
	0.175 (405)	0.708 (2446)	6.79 (17712)	20	0.932	83	326.1±17.7
	0.619 (406)	0.217 (522)	2.00 (12002)	16	0.979	97	358.1±23.9
	0.171 (584)	0.218 (744)	2.00 (12002)	19	0.949	95	354.9±19.9
	0.196 (477)	0.599 (1458)	4.95 (19309)	19	0.926	93	344.9±18.3
Durango	0.106 (793)	0.118 (4948)	2.00 (12002)				350.7±13.8
					加权平均值 343.3±14.6 (2σ)		
榍石							
MD	6.66 (4630)	5.77 (4007)	4.95 (19309)	8	0.990	7	347.7±7.9
					三种矿物总加权平均值 339.2±6.6 (2σ)		

注：ρ_s＝自裂变径迹密度；　N_s＝读的自裂变径迹总数；

ρ_i＝诱发裂变径迹密度；　N_i＝读的诱发裂变径迹总数；

ρ_d＝白云母上铀玻璃径迹密度；　N_d＝测读的径迹总数；

n＝矿物颗粒数，　γ＝自发和诱发径迹相关系数；

P (X^2) ＝自由度为 V (V＝颗粒数 $n-1$)，由观测值得到的 X^2 参数值的几率

3 改进的裂变径迹定年方法的验证[20]

为了检验本工作研究的各项裂变径迹定年技术改进的效果，我们选用国际裂变径迹年代标准样品进行验证。

选定的国际裂变径迹定年标准样品列在表 7 中。

表 7　年龄标样及其参考年龄

样　品　名　称	矿物种类	标准样品年龄 Ma
Fish Canyon Tuff	锆石	27.8±0.7
Buluk Member	锆石	16.2±0.2
Tardree Rhyolite	锆石	58.7±1.1
Durango	磷灰石	31.4±0.5
Fish Canyon Tuff	磷灰石	27.8±0.7

全部样品都采用外探测器法进行年龄测定。Fish Canyon Tuff（FCT）锆石和磷灰石，Buluk Member（BM）锆石都分别进行了三次不同的照射，Tardree Rhyolite（TR）锆石和 Durango 磷灰石各进行了一次照射测定其年龄。锆石颗粒用聚全氟乙丙烯塑料做片基固定，磷灰石用环氧树脂制成薄片分别在 40℃，70℃和 96℃，烘烤 7 h，15 h 和 7 h，然后用 5 μm 碳化硅先小心磨出颗粒内表面，再用 2μm 氧化铝抛光粉和三氧化铬抛光液抛光。用拟合在不锈钢罐中的聚四氟乙烯罐作为装碱或酸的蚀刻容器，先以 NaOH-KOH 熔融碱液 210℃蚀刻 TR 样 16 h，FCT 样 19 h，BM 样 12 h，然后再用 HNO_3-HF 混合液，190℃蚀刻 2 h。磷灰石用 7% HNO_3，25℃蚀刻 30 s。整个实验过程中对蚀刻进行检测以使达到最大程度的揭示出自发裂变径迹而又便于清楚地观测。

蚀刻好的样品清洗、干燥后分别用新解理的含铀很低的白云母片覆盖，使用透明胶纸保持两个接触面紧密固定。把清洗干燥好的 SRM612 标准铀玻璃片置于新解理成为两片的白云母中间，作为夹心，透明胶纸固定。把所有待照样品迭起来，置于两片标准铀玻璃夹心中间，胶纸扎紧，用铝箔包好，送原子能科学研究院重水反应堆照射。照射后的白云母探测器片在 40%HF 中，根据室温情况分别蚀刻 25～63 min 不等，使其达到蚀刻完全。

蚀刻过的径迹在一台 Olympus 生物显微镜上使用 100×油浸物镜和 15×目镜 1500 倍读自发径迹。40×物镜和 15×目镜观测云母上的诱发径迹，分别用 100×和 40×两种物镜读其径迹，结果在 1%误差以内是一致的。

样品裂变径迹年代由下式求出

$$T = 1/\lambda_d \ln(1 + \lambda_d \sigma \Phi I G \rho_s / \rho_i \lambda_f)$$

式中　$\lambda_d = 1.55125 \times 10^{-10}\ a^{-1}$；$\lambda_f = 7.03 \times 10^{-17}\ a^{-1}$

$I = 7.2527 \times 10^{-3}$（$^{235}U/^{236}U$）；　　$G = 0.5$（外探测器法几何因子）；

$\sigma\Phi$ 由 $\sigma\Phi = \rho_d / b$ 给出；

式中 ρ_d＝铀玻璃在白云母上的诱发径迹密度；

$b = 3.00 \times 10^{11}$（刻度系数）；ρ_s 和 ρ_i 分别为自发和诱发裂变径迹密度，由测量得到。其年龄误差由下式计算，

$$\sigma_T / T = [1/N_s + 1/N_i + (\Delta\Phi/\Phi)2 - 2\gamma_{si} / \sqrt{(N_s N_i)}]^{1/2}$$

式中 $\Delta\Phi/\Phi$ 由 b 值误差（<5%）代替，γ_{si}为相关系数，由自发和诱发径迹相关性得到。

测定结果列于表 8 中。

表 8　裂变径迹定年国际标样年龄测定结果

矿物名称	颗粒数 n	ρ_s (N_s)	ρ_i (N_i)	ρ_d (N_d)	γ_{si}	S (%)	$T\pm1\sigma$ Ma
FCT 锆石	7	4.57 (1547)	8.20 (7029)	3.00 (19741)	0.97	2.8	28.7±1.5
	6	5.20 (1540)	4.11 (2401)	1.26 (12620)	0.91	3.3	27.4±1.4
	10	4.98 (3249)	5.61 (5514)	1.82 (12338)	0.96	2.2	27.8±1.4
BM 锆石	11	0.869 (639)	5.70 (10329)	6.79 (17712)	0.99	4.1	17.8±1.0
	11	0.822 (1261)	1.19 (2373)	1.26 (12620)	0.91	3.5	15.0±0.8
	10	0.678 (691)	1.43 (1920)	2.00 (12002)	0.99	4.4	16.3±0.8
TR 锆石	9	5.64 (1557)	2.03 (1906)	1.26 (12620)	0.97	5.6	60.0±3.0
FCT 磷灰石	26	0.175 (619)	0.131 (665)	1.26 (12620)	0.97	5.6	29.0±1.5
	20	0.175 (405)	0.708 (2446)	6.79 (17712)	0.93	5.4	28.8±1.7
	16	0.169 (406)	0.217 (522)	2.00 (12002)	0.98	6.6	26.7±1.4
Durango		0.106 (793)	0.118 (4948)	2.00 (12002)		3.8	30.8±1.9

ρ 是测量的径迹密度，单位 ρ_s 和 ρ_i 是 10^5 径迹 cm^{-2}，ρ_d 是 10^5 径迹 cm^{-2}，括号中（N）表示记录的径迹数

$S=(1/N_s+1/N_i)^{1/2}$

由表 8 可见本工作中所测 FCT 锆石年龄在 27.4～28.7 Ma 之间，磷灰石年龄在 26.7～29.0 Ma 之间，其单次测定最大误差为 1.7 Ma，而它们的加权平均值分别为 27.7 Ma 和 28.0 Ma，误差 0.8 Ma 和 0.9 Ma，与表 7 给出的参考年龄符合。BM 锆石三次测定结果在 15.0～17.8 Ma 之间，最大误差 1.0 Ma，其加权平均年龄 16.1±0.5 Ma，与表 7 给出的参考年龄一致。TR 锆石和 Durango 磷灰石的测定结果与表 7 给出的参考年龄误差不大，均符合很好。

本工作通过自行刻度的 b 值，由标准铀玻璃在白云母上诱发径迹密度确定 $\sigma\Phi$ 值，采用本工作改进技术，利用外探测器方法测定的裂变径迹定年国际标样中三种锆石和两种磷灰石年龄，其结果与第六届国际裂变径迹测定地质年代学术会议推荐之参考年龄在误差范围内一致。说明经本工作研究，制定的工作方法和实验程序可行，结果可信。

参考文献

1 Fleischer P L, Price P B, Geochim Cosmochim Acta, 1964, 28: 1705

2 王庆隆、戎家树、赵云龙等．裂变径迹技术及其在地球化学中的应用．北京：科学出版社，1984

3 刘顺生等，裂变径迹年龄测定，北京：地质出版社，1984

4 Wagner G A, Earth Planet Sci Lett, 1968, 4: 411

5 Naeser C W J. Geophys Res, 1969, 74: 705
6 Aandiessen P A M. Nucl. Track Radiat. Meas., 1990; 17: 285
7 Kohn B P, Feinstein S, Eyal M. Nucl. Track Radiat. Meas., 1990; 17: 381
8 Hurford A. J. Nucl. Track Radiat. Neas., 1986; 11: 329
9 Miller D. S., Duddy Ian R., Green Paul F, et al. Nucl. Track, 1985; 10: 383
10 Hurford A. J., Chem. Geology, 1990; 80: 171
11 Miller D. S., Eby N, Mc Corkell R., et al. Nucl. Track Radiat. Meas., 1990; 17: 237
12 Zhao Yun Long. Nucl. Tracks Radiat, Meas., 1990; Vol. 17 (3) 327
13 Carpenter, B. S., NBS Special Publication, 260-92. 1984
14 Hurford, A. J., Isotope Geoscience, 1983 (1): 285
15 翟鹏济、赵云龙、王世成．科学通报，1990，35 (21)：1660
16 翟鹏济，赵云龙．科学通报，1992，37 (1)：16
17 赵云龙、翟鹏济．核技术 1992，15 (9)：569
18 翟鹏济，赵云龙．岩矿测试，1996，15 (1)：18
19 Hurford, A J, et al. Chem. Geol, 1987, 66 (3): 209
20 翟鹏济、赵云龙．铀矿地质，1995，11 (4)：240

（京）新登字 077 号

图书在版编目（CIP）数据

中国核科技报告＝CNIC01405：裂变径迹定年技术的改进＝AN IMPROVED TECHNIQUE FOR FISSION TRACK DATING/赵云龙等著．—北京：原子能出版社，1996．1

Ⅰ．中… Ⅱ．赵… Ⅲ．①核技术-研究报告-中国 Ⅳ．TL-24

中国版本图书馆 CIP 数据核字（95）第 19733 号

©

原子能出版社出版发行
责任编辑：李曼莉
社址：北京市海淀区阜成路 43 号 邮政编码：100037
中国核科技报告编辑部排版
核科学技术情报研究所印刷
☆
开本 787×1092 1/16・印张 1・字数 21 千字
1996 年 1 月北京第一版・1996 年 1 月北京第一次印刷

CHINA NUCLEAR SCIENCE & TECHNOLOGY REPORT

This report is subject to copyright. All rights are reserved. Submission of a report for publication implies the transfer of the exclusive publication right from the author(s) to the publisher. No part of this publication, except abstract, may be reproduced, stored in data banks or transmitted in any form or by any means, electronic, mechanical, photocopying, recording or otherwise, without the prior written permission of the publisher, China Nuclear Information Centre, and/or Atomic Energy Press. Violations fall under the prosecution act of the Copyright Law of China. The China Nuclear Information Centre and Atomic Energy Press do not accept any responsibility for loss or damage arising from the use of information contained in any of its reports or in any communication about its test or investigations.