

文章编号: 1000-0550(2001)03-0456-03

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^①

周祖翼¹ 毛凤鸣² 廖宗廷¹ 郭彤楼²

1(同济大学海洋地质教育部重点实验室 上海 200092)

2(江苏石油勘探局地质研究院 江苏扬州 225261)

摘 要 在沉积岩样品的单颗粒裂变径迹年龄测试中,常常出现同一个样品的径迹年龄可能由多个不同年龄组分构成的情况。当样品的年龄未能通过 χ^2 检验时,就必须对样品的年龄进行进一步的多成分分析。本文介绍的最大似然估计方法就是一种有效的年龄成分分离技术。应用这一技术,我们对苏北盆地 JSG 井的 3 个岩心样品(JSG1、JSG2、JSG3)的 144 个磷灰石单颗粒矿物年龄进行了多成分分离,表明上述三个样品实际上是由年龄值分别为 70 Ma 和 167 Ma 左右的两个成分组成的。这两组年龄的存在表明沉积时存在两个不同的物源区,两组径迹年龄反映的则是磷灰石碎屑颗粒在物源区最后一次达到完全退火温度(大于 120 °C)的时间。

关键词 裂变径迹分析 多成分分离 沉积盆地 物源 苏北盆地

第一作者简介 周祖翼 男 1965 年出生 教授 大陆边缘构造、盆地分析

中图分类号 TE121.1 **文献标识码** A

1 前言

裂变径迹分析技术在 80 年代的一个重大突破是“ ζ ”年龄校正方法^[1]及外探测器方法的引入,它们一方面使得分析者可以对同一个样品的各个磷灰石或锆石矿物进行单颗粒矿物的定年,另一方面使得这一技术在测量精度上与其它同位素测年方法处于相同的水平上。但是,单颗粒年龄测试方法带来的一个问题是同一样品的不同颗粒可能出现不同的年龄值,亦即在统计学上一个样品的年龄可能属于不同的组分。有许多因素可以导致一个样品中多个年龄组分的存在,如矿物颗粒之间具有不同的化学成分,外探测器(白云母片)与矿物之间的接触不够紧密,矿物的包裹体或晶格位错,等等。此外,有时实测颗粒的径迹密度较低,相应的单颗粒年龄存在较大的误差范围。对沉积岩来说,如果沉积后样品未经完全退火,则其单颗粒年龄实际上还有可能是各物源区母岩组分的混合。针对上述情况,Galbraith^[2]提出了用 χ^2 检验来判断颗粒年龄是否服从泊松分布,亦即所有颗粒是否属于同一组分。如果样品的年龄未能通过 χ^2 检验(即 $P(\chi^2) < 5\%$),则表明数据质量较差,被测矿物颗粒来自不同的物源区,或者具有不同的化学成分或化学动力学行为。在这种情况下,需对样品进行进一步的分析(多成分分离、矿物内部成分及结构特征的分析,等等)。

判断样品的裂变径迹年龄是否是由多个组分构成的另一个方法是 Galbraith^[2]提出的放射图(图 1)。在放射图上,矿物单颗粒的裂变径迹年龄精度和标准方差以及一批矿物颗粒的中值年龄及其标准方差均一目了然。但是,放射图无法定量地给出各年龄组分的年龄值和比例。

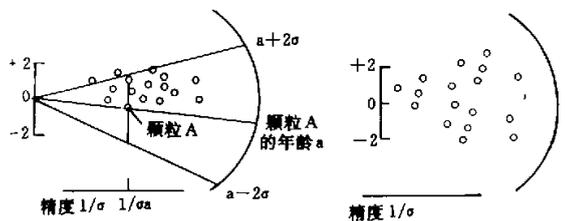


图 1 用放射图来表示裂变径迹年龄的基本原理

颗粒——左侧 O 点的连线与右侧大圆弧的交点即为该颗粒的年龄。X 轴表示年龄精度(向右增加),Y 轴表示所有单颗粒年龄的标准方差。左图表示单一年龄组分,右图则表示样品的年龄由多个组分混合而成。

Fig. 1 Illustration of the radio plot used for the analysis of fission track age data

在其它同位素年代学方法中,同一样品的 SHRIMP 离子微探针锆石年龄亦存在多个年龄成分的现象。Sambridge 等^[3]曾成功地用混合模拟的方法对锆石年龄成分进行了分离。我们认为这一技术同样可以应用于裂变径迹年龄组分的分离。

① 国家自然科学基金(批准号:49876013)、教育部资助优秀年轻教师基金、高等学校骨干教师资助计划联合资助项目
收稿日期:2000-07-12 收修改稿日期:2001-01-05

2 估计年龄成分的数学原理

假设:

- n : 样品中测定的颗粒数(单颗粒年龄数)
- a_i : 样品中第 i 个颗粒的裂变径迹年龄 ($i = 1, 2, \dots, n$)

δ_i : 样品中第 i 个颗粒的裂变径迹年龄的标准方差 ($i = 1, 2, \dots, n$)

m : 样品的年龄成分数

t_j : 样品各成分的裂变径迹年龄 ($j = 1, 2, \dots, m$)

π_j : 样品 n 个测定年龄中属于 j 成分的比例 ($j = 1, 2, \dots, m$)

$$\sum_{j=1}^m \pi_j = 1 \tag{1}$$

虽然样品的年龄成分数 m 是未知的, 计算中我们将其视为一个固定的常数, 实际模拟时我们取不同的 m 值对各成分的年龄值及其比例进行分别计算, 从中选取最佳者。通常 δ_i 的分布服从高斯分布。在求取最佳的年龄组分及其比例时, 对于每一个实测年龄值 a_i , 它属于各个未知年龄组分的比例的似然估计函数为:

$$f(a_i, \delta_i) = \sum_{j=1}^m \pi_j f_j(t_j) \tag{2}$$

式中 $f_j(t_j)$ 指年龄为 t_j 的组分的误差分布函数, 在此后我们用 f_{ij} 来表示。

对于所有实测的颗粒来说, 如果颗粒之间的年龄是相互独立的, 则有以下的完全似然函数

$$L = \prod_{i=1}^n f(a_i, \delta_i) \tag{3}$$

现在的问题归结为寻找一些不同比例的年龄组分 (t_j, π_j), 使完全似然函数取得最大值。将(3)式两边加对数:

$$\ln L = \sum_{i=1}^n \ln f(a_i, \delta_i) \tag{4}$$

上式代入(2)式:

$$\ln L = \sum_{i=1}^n \ln \left(\sum_{j=1}^m \pi_j f_{ij} \right) \tag{5}$$

(5)式加上(1)式就使上述最大似然估计可以用拉格朗日乘法求解, 即要找 L 在附加条件 $\sum_{j=1}^m \pi_j = 1$ 下的可能极值点, 可以先构成辅助函数

$$F = \ln L + \lambda \left(\sum_{j=1}^m \pi_j - 1 \right) \tag{6}$$

通过 F 对 t_j, π_j, λ 分别求导, 最后可得:

$$\pi_j = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^n \frac{\pi_j f_{ij}}{S_i} \tag{7}$$

$$\sum_{i=1}^n \frac{\pi_j f_{ij}}{S_i} = 0 \tag{8}$$

$$(7)、(8) \text{ 式中, } S_i = \sum_{k=1}^m \pi_k f_{ik}, f'_{ij} = \frac{\partial f_{ij}}{\partial t_j}$$

当年龄误差服从高斯分布时,

$$f_{ij} = \frac{1}{\delta_i \sqrt{2\pi}} \exp \left\{ - (a_i - t_j)^2 / 2\delta_i^2 \right\} \tag{9}$$

由(8)、(9)式可得:

$$t_j = \frac{\sum_{i=1}^n \pi_i a_i f_{ij} / \delta_i^2 S_i}{\sum_{i=1}^n \pi_i f_{ij} / \delta_i^2 S_i} \tag{10}$$

因此, 对于每一年龄成分 j ($j = 1, 2, \dots, m$), 由(7)和(10)式可求出 t_j 和 π_j 。方法如下: 先给定 π_j, t_j 的初始值 (π_j^0, t_j^0), 代入(7)、(10)式右侧, 求得 (π_j^1, t_j^1), 再代入(7)、(10)式右侧, 求得 (π_j^2, t_j^2), \dots , 重复这一过程, 直至所得 (t_j^n, π_j^n) 比 (t_j^{n-1}, π_j^{n-1}) 小 0.1%, 则 (t_j^n, π_j^n) 即为 j 组分的年龄、比例的最大似然估计。

3 应用实例

我们曾对苏北盆地 JSG 井进行了磷灰石的裂变径迹分析。分析采用的 ζ_{QNS} 值和标准样等见表 1 的注释。在 JSG 井的 3 个岩心样品 (JSG1、JSG2、JSG3) 中共取得了 144 个磷灰石单颗粒矿物年龄 (表 1)。由表 1 可知, 所有 3 个样品的中值年龄均没有通过 5% 置信水平上的 χ^2 检验。这意味着所有样品的年龄均不是由单一年龄组构成, 而是数个不同年龄组分的叠加结果。也就是说, 分析所用的磷灰石有可能来自不同的物源区。为了将每个混合碎屑年龄分解成若干个单一年龄组分, 我们采用了上述介绍的分离方法对所有

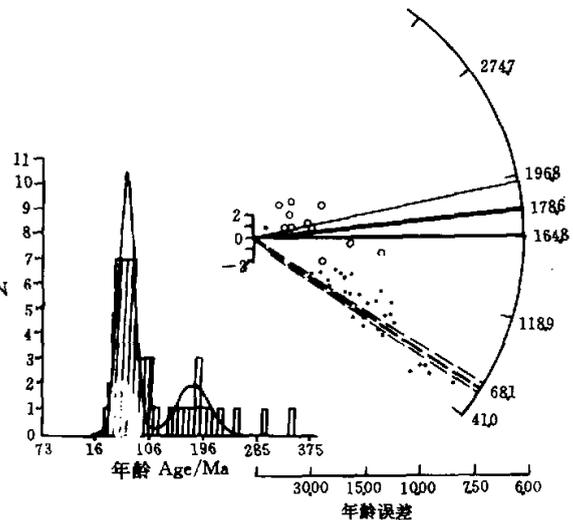


图2 JSG—3 样品裂变径迹年龄的多成分分离结果。左: 年龄组分频率直方图; 右: 年龄组分放射图

Fig. 2 Age component analysis result for sample JSG—3

表1 苏北盆地JSG井新生代沉积物磷灰石裂变径迹数据

Table 1 Apatite fission track data of the Cenozoic sediments from well JSG in Sabei Basin

样品号	地层	高程 /m	辐照号(颗粒数量)	标准径迹密度 $\times 10^4 \text{ cm}^{-2}$ (统计径迹数量)	$P_s \times 10^4 \text{ cm}^{-2}$ (统计径迹数量)	$P_i \times 10^4 \text{ cm}^{-2}$ (统计径迹数量)
JSG-1	Ed ²	-824	eth-114-6 (12)	147.9 (5937)	62.0 (280)	148.2 (669)
			eth-114-7 (16)	141.9 (5937)	121.8 (826)	215.5 (1461)
JSG-2	Ef ⁴	-1217	eth-114-8 (33)	135.9 (5937)	198.8 (1806)	423.8 (3908)
			eth-114-3 (30)	165.9 (5937)	226.1 (2407)	324.3 (3453)
JSG-3	Ef ¹	-2037	eth-114-4 (31)	159.9 (5937)	213.4 (1976)	434.8 (4026)
			eth-114-5 (22)	153.9 (5937)	99.8 (707)	397.2 (2815)

样品号	U含量 $\times 10^{-6}$	$P \chi^2\%$	平均围限径迹 长度 / μm , $\pm \sigma$ 径迹数量	标准偏差 $\sigma/\mu\text{m}$	中值年龄 /Ma, $\pm 2\sigma$	年龄组 1 /Ma, $\pm 2\sigma$	年龄组 2 /Ma, $\pm 2\sigma$
JSG-1	12.5	4.2	12.06 \pm 0.43 (11)	1.42	106.6 \pm 9.8		
	19.0	0	12.38 \pm 0.58 (5)	1.29	162.6 \pm 19.3		
			12.16 (16)	1.35		156.8 \pm 12.7	73.2 \pm 5.1
JSG-2	39	0	12.41 \pm 0.22 (25)	1.04	130.0 \pm 10.0		
	24.4	0	10.30 \pm 0.34 (20)	1.51	195.1 \pm 12.6		
			11.46 (45)	1.62		177.8 \pm 4.64	72.3 \pm 3.0
JSG-3	34.0	0	10.56 \pm 0.33 (22)	1.60	134.3 \pm 11.8		
	32.3	0	10.63 \pm 0.26 (18)	1.12	66.8 \pm 5.2		
			10.6 (40)	1.41		178.6 \pm 7.5	68.1 \pm 2.2

注释:(1) P_s 和 P_i 分别表示自发径迹密度和诱发径迹密度。 $P(\chi^2)$ 是自由度为 ν (ν 为颗粒数量) 时 χ^2 的概率。所有样品在 5% 置信水平上未能通过 χ^2 检验。

$\lambda D = 1.55125 \times 10^{-10}$, 年龄的计算采用 CN5 标准玻璃, $\zeta_{\text{CN5}} = 341.6 \pm 10$ 。样品均采用澳大利亚 ANSTO 设施进行辐照。

(2) 使用外探测器分析方法, $4\pi/2\pi$ 几何校正系数为 0.5;

(3) 裂变径迹计数和围限径迹长度的测量在放大 1100 倍的显微镜下进行。中值年龄的计算采用 IUGS 地质年代学委员会建议的方法(Hurford, 1990)。

(4) 模拟计算时综合使用两个辐照号样品的数据。

样品的单颗粒年龄进行了成分分离。在分离过程中, 我们不但可以求出样品各个年龄组分的年龄值, 而且可以算出各年龄组分所占的比例。并且可以将分离结果以年龄组分频率直方图和放射图等形式进行表达(图 2)。对于比例少于 10% 的组分, 我们在最后统计时一般予以忽略。

分离结果表明, 所有样品均由具不同比例的两个年龄组分构成(表 1), 从三个样品的年龄成分来看, 各样品的年龄成分有较好的一致性, 它们分别落入 68~73 Ma 和 156~178 Ma 两个区间内。考虑到测试以及统计的误差, 可以认为上述三个样品实际上是由年龄值分别为 70 Ma 和 167 Ma 左右的两个成分组成的。这两组年龄值均大于样品的地层年龄(始新统阜宁组, 55 Ma 以来), 表明地层沉积后沉积物中磷灰石颗粒的裂变径迹未曾经过完全退火。因此两个年龄组分的存在表明沉积时存在两个不同的物源区, 这一结果与前人在该地区进行的沉积物源分析^[4]的结果是一

致的。两组径迹年龄反映的则是磷灰石碎屑颗粒在物源区最后一次达到完全退火温度(大于 120 °C)的时间。

致谢: 江苏石油勘探局地质研究院陈高协助取样, 瑞士联邦高等理工学院(ETH) 裂变径迹实验室提供样品分选和测试的实验条件, 作者在此致谢。

参考文献

- Hurford A J. Standardization of fission track dating calibration: recommendation by the Fission Track Working Group of the IUGS Subcommittee on Geochronology[J]. Chem. Geol. (Isotope Geoscience Section), 1990, 80: 171~178
- Galbraith R F. The radio plot: Graphical assessment of spread in ages[J]. Nucl. Tracks Radiat. Meas, 1991, 17: 197~206
- Sanbridge M S. Compston. W. Mixture modelling of multi-component data sets with application to ion-probe zircon ages[J]. Earth and Planetary Science Letters, 1994, 128: 373~390
- 张国栋, 王慧中. 中国东部早第三纪海侵和沉积环境——以苏北盆地为例[M]. 北京: 地质出版社, 1987. 199

(Continued on page 473)

second cracking of those heavy hydrocarbons formed at the early stage, such as asphaltene, NSO fraction, and n-alkanes with high carbon number, makes the remaining n-alkanes markedly riched ^{13}C in carbon isotope, especially for the heavily weighed fraction. Significant differences (1 to 4‰) in the carbon isotopic compositions are observed between the n-alkanes in the residual oils or the expelled oils generated at this stage and those formed at the former stage. Since thermal maturation has effects on the carbon isotopic compositions of n-alkanes due to different generation mechanisms may occur at the different stages, therefore, to explain the significant difference when taking the oil/oil and oil/source correlations, we also need consider thermal maturation other than organic source. The conclusion of heterogeneity should not be made easily. In addition, the experimental results show that the hydrocarbon expulsion has no considerable effect on the carbon isotopic composition of the liquid n-alkanes.

Key words hydrocarbon generation expulsion expelled oil residual oil n-alkane GC-IRMS



(Continued from page 458)

Estimation of the Multi-component Fission Track Age Data and Its Application in the Provenance Study of Sedimentary Basins

ZHOU Zu-yi¹ MAO Feng-ming² LIAO Zong-ting¹ GUO Tong-lou²

¹(MOE Laboratory of Marine Geology, Tongji University, Shanghai 200092)

²(Geology Research Institute, Jiangsu Bureau of Petroleum Exploration, Yangzhou Jiangsu 225261)

Abstract

A common problem in single grain fission track analysis by the external method is the detection of component ages when a sample contains grains with several different true ages. Further analysis is required if the ages failed to pass the χ^2 test. This paper introduces the maximum likelihood method for the estimation of proportions and ages of age components. The method is applied to three core samples from Subei basin. The 144 single grain ages from these samples failed to pass the χ^2 test and our analysis yields two true age components for these grains (70 Ma and 167 Ma). This result shows that there exist two different provenances for the sediments from Subei basin, which is in line with the previous sedimentological studies.

Key words fission track analysis multi-component separation sedimentary basin provenance Subei basin