Д. В. Алексеев, А. В. Травин

Новосибирский государственный технический университет пр. Карла Маркса, 20, Новосибирск, 630064, Россия

Институт геологии и минералогии им. В. С. Соболева СО РАН пр. Акад. Коптюга, 3, Новосибирск, 630090, Россия

E-mail: A.Daniil.V@yandex.ru; travin@igm.nsc.ru

ИЗМЕРЕНИЕ РАСПРЕДЕЛЕНИЯ ТЕМПЕРАТУРЫ НА ПОВЕРХНОСТИ МИНЕРАЛОВ ПРИ ЛАЗЕРНОМ АРГОН-АРГОНОВОМ ДАТИРОВАНИИ

Разработан пирометрический метод измерения распределения температуры на поверхности природных минералов при лазерном ⁴⁰Ar/³⁹Ar датировании. Предложенный метод достаточно прост, при этом не требует наличия предварительных сведений о поглощательной способности исследуемого объекта, что особенно важно при исследовании поля температур природных минералов. Метод предполагает формирование двух цифровых изображений объекта на одной частоте. Применение разработанного метода на стандартных лазерных комплексах, предназначенных для ⁴⁰Ar/³⁹Ar датирования, не требует существенных дополнительных затрат. Для автоматизации обработки данных написана программа на платформе Framework 4.0. Исследовано поле температур в ряде образцов природных минералов при лазерном ⁴⁰Ar/³⁹Ar датировании. Результаты экспериментов показали, что распределение температуры во время датирования в некоторых образцах существенно неоднородно, что может приводить к возникновению не учитываемой ошибки в значении его возраста, величина которой может быть в несколько раз больше аналитической погрешности. Таким образом, результаты измерений указывают на необходимость контроля однородности распределения температуры в образцах минералов при лазерном ступенчатом ⁴⁰Ar/³⁹Ar датировании.

Ключевые слова: тепловое излучение, температура, оптическая пирометрия, лазерное 40 Ar/ 39 Ar датирование.

Введение

Аргон-аргоновый метод датирования в современной геологии — один из самых востребованных методов определения возраста горных пород и минералов. Он уникален тем, что позволяет не только определить возраст образца, но и восстановить его термическую историю. В настоящий момент ⁴⁰Ar/³⁹Ar метод датирования используется в лабораториях Швейцарии, Англии, Японии и др. [1–3]. Детальное описание данного метода можно найти в работах [4–6].

При $^{40}{\rm Ar}/^{39}{\rm Ar}$ датировании возраст образца определяется по изотопному составу содержащегося в нем аргона. Чаще всего вы-

деление аргона осуществляется с помощью ступенчатого отжига: температуру образца, помещенного в вакуумную камеру массспектрометра, повышают в несколько этапов, анализируя изотопный состав газа выделенного на каждой ступени нагрева. В результате получают ряд значений возраста, соответствующих последовательно увеличивающимся температурам, - возрастной спектр. Изотопный состав аргона может меняться от ступени к ступени, т. е. разным ступеням нагрева и, следовательно, температурам могут соответствовать различные значения возраста. Как правило, в возрастном спектре присутствует несколько последовательных ступеней, которым отвечает

^{*} Работа выполнена при поддержке РФФИ (проект № 12-05-31037). Материалы работы были представлены на V Российской конференции «Геохронометрические изотопные системы, методы их изучения, хронология геологических процессов» (ИГЕМ РАН) при поддержке РФФИ (проект № 12-05-16030-моб з рос).

одно и то же значение возраста. Это значение и является истинным возрастом образца [4–6].

Во многих случаях ступенчатый нагрев образцов осуществляется с помощью лазерного излучения, поскольку в этом случае отсутствует фон по аргону, обусловленный нагревом стенок вакуумной камеры [6-9]. Из общих соображений ясно, что при лазерном нагреве распределение температуры в образце может быть неравномерным вследствие неоднородности распределения интенсивности в лазерном пятне или неоднородности физических свойств самого образца. Неравномерность распределения температуры в минерале во время датирования может приводить к искажению возрастного спектра из-за того, что на высоких ступенях нагрева будет происходить смешивание высоко- и низкотемпературных фракций аргона, выделившихся из участков минерала, различающихся температурой нагрева. Другими словами, неравномерность прогрева приводит к усреднению возрастного спектра по температурам и, как следствие, может приводить к искажению возраста. Отсюда ясно что, контроль однородности распределения температуры в образце во время ступенчатого нагрева – необходимое условие корректности результатов датирования.

В современной литературе обсуждение вопроса об однородности поля температур в образцах во время ⁴⁰Ar/³⁹Ar датирования ограничивается общими теоретическими предположениями, детальные экспериментальные исследования не выполнялись [1–9]. Так как при лазерном датировании образцам минералов придается форма тонких пластин, задача заключается в исследовании поля температур на их поверхности. В связи с тем, что во время нагрева образец находится в вакуумной камере, измерение распределения температуры удобнее выполнять пирометрическим методом.

Для измерения температуры яркостными методами необходимо располагать данными о поглощательной способности исследуемого объекта [11–14]. Поглощательная способность природных минералов в большинстве случаев сильно зависит как от координат на их поверхности, так и от температуры, причем эта зависимость, как правило, заранее неизвестна. Существенная зависимость поглощательной способности минералов от температуры обусловлена трансформацией

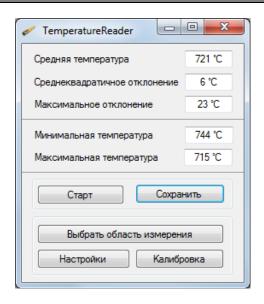
их кристаллической решетки, происходящей во время вакуумного нагрева [6]. Таким образом, непосредственное применение яркостных методов для измерения распределения температуры на поверхности образцов природных минералов затруднительно.

Современные спектральные методы измерения температуры, не требующие какихлибо сведений о поглощательной способности исследуемого объекта, предполагают измерение спектральной плотности теплового излучения на нескольких сотнях или тысячах частот и поэтому с технической точки зрения сложнее яркостных методов [15]. Реализация спектрального метода измерения распределения температуры на поверхности минералов на стандартном лазерном комплексе, предназначенном для ⁴⁰Ar/³⁹Ar датирования, требует существенных дополнительных затрат.

Настоящая работа посвящена разработке достаточно простого пирометрического метода измерения распределения температуры на поверхности природных минералов во время лазерного ступенчатого ⁴⁰Ar/³⁹Ar датирования. Представлены некоторые результаты экспериментального исследования поля температур на поверхности образцов во время датирования.

Метод измерений

Лазерные комплексы, предназначенные для ⁴⁰Ar/³⁹Ar датирования, оснащаются USBвидеомикроскопами, необходимыми для наблюдения образцов во время нагрева. Для ступенчатого нагрева датируемых минералов используются непрерывные, инфракрасные СО₂-лазеры. Образцы минералов, подготовленные для лазерного, ступенчатого 40 Ar/ 39 Ar датирования, представляют собой тонкие пластины, в большинстве случаев непрозрачные в видимой области спектра из-за сложного химического состава, присутствия множества примесей и включений. Достаточно большая температура образца во время ступенчатого нагрева позволяет фиксировать его тепловое излучение в видимом диапазоне спектра с помощью USB-видеомикроскопа. Поэтому, чтобы избежать дополнительных технических затрат, для измерения распределения температуры на поверхности минералов была выбрана видимая часть спектра теплового излучения.



Puc. 1. Главное окно программы TemperatureReader

Процедура измерения распределения температуры на поверхности минералов во время датирования заключается в следующем.

В поле зрения USB-видеомикроскопа, оснащенного узкополосным оптическим фильтром, вместе с датируемым образцом минерала помещается однородный образец с известной индикатрисой отражения рассеянного излучения (калибровочный образец). Изображение, формируемое на полупроводниковой матрице USB-видеомикроскопа, выводится на монитор компьютера. В состав лазерных комплексов, предназначенных для датирования, входит система дополнительной подсветки образцов. Оптический фильтр выбирается таким образом, чтобы яркости пикселей изображения датируемого минерала во время лазерного нагрева при выключенной подсветке определялись спектральной плотностью его теплового излучения на частоте прозрачности фильтра. Не нагретый образец виден на мониторе компьютера только при включении дополнительной подсветки. Как показала практика, с учетом указанных требований к фильтру в условиях лазерного датирования нижняя граница измеряемых температур составляет примерно 600 °C, что соответствует типичной температуре первой ступени нагрева. Распределение температуры определяется с помощью программы, написанной на платформе Framework 4.0, по цифровым изображениям образцов на мониторе компьютера (рис. 1).

До начала лазерного нагрева датируемого образца включают подсветку, обеспечивающую достаточно четкую видимость образцов. Нажатием кнопки «Выбрать область измерения» (см. рис. 1) разворачивают полупрозрачное окно, покрывающее весь экран. С помощью элемента управления «резиновая рамка» выбирают область экрана, в которой находится изображение датируемого образца, и область, в которой находится изображение калибровочного образца.

Далее датируемый образец нагревают, выключив дополнительную подсветку, и нажимают кнопку «Старт». Программа захватывает изображение экрана посредством функций Windows API и сканирует изображение датируемого минерала с указанным в настройках шагом, определяя яркости пикселей в соответствии с цветовой моделью HSB (hue-saturation-brightness). Результаты сканирования сохраняются в виде двухмерного массива, каждый элемент которого представляет собой яркость пикселя в соответствующей точке экрана. Яркости пикселей определяются по изображению на мониторе для того, чтобы программа давала возможность анализировать изображение, получаемое с видеомикроскопа, независимо от интерфейса обмена данными между видеомикроскопом и компьютером.

Полученный массив яркостей пересчитывается в массив спектральных плотностей теплового излучения на частоте пропускания фильтра ω_0 по калибровочной кривой I(i), где i — яркость данного пикселя, I — спектральная плотность излучения, распространяющегося от соответствующего участка исследуемой поверхности в сторону объектива видеомикроскопа, на частоте ω_0 , приходящаяся на единицу видимой площади данного участка поверхности. Калибровочная кривая сохранена в одном из файлов программы.

Для подавления влияния пиксельного шума и случайных флуктуаций поля температур на результаты измерений, приложение TemperatureReader делает указанное в настройках количество снимков экрана с указанным интервалом времени и представляет результаты серии снимков в виде двухмерного массива усредненных по времени спектральных плотностей $I^{(sr1)}$.

После завершения первой серии снимков, поддерживая температуру датируемого минерала неизменной, включают подсветку, обеспечивающую освещение образцов рассеянным светом. Освещенность датируемого минерала и калибровочного образца должна быть одинаковой и равномерной. Малые размеры образцов (диаметр не более 2-3 мм) позволяют легко добиваться выполнения указанных условий. Далее запускают следующую серию снимков. По изображению калибровочного образца программа определяет спектральную плотность излучения I_0 , отражаемого от участка его поверхности, соответствующего одному пикселю, в сторону объектива видеомикроскопа на частоте ω_0 , приходящуюся на единицу площади указанного участка поверхности. По изображению датируемого минерала, аналогично тому, как формировался массив $I^{(sr1)}$. формируется массив спектральных плотностей $I^{(sr2)}$.

Программа вычисляет массив $r_{i,j}$, каждый элемент которого представляет собой коэффициент отражения рассеянного излучения в сторону объектива USB-видеомикроскопа в одной из точек измерения температуры:

$$r_{i,j} = \frac{I_{i,j}^{(sr2)} - I_{i,j}^{(sr1)}}{I_0} R,$$

где R — коэффициент отражения рассеянного излучения в сторону объектива видеокамеры, характеризующий калибровочный образец; нижними индексами обозначен номер элемента массива.

Массив температур $T_{i,j}$ определяется в соответствии с формулой Планка и законом Кирхгофа, записанным для теплового излучения, распространяющегося в сторону объектива USB-видеомикроскопа:

$$T_{i,j} = \frac{\hbar \omega_0}{k \cdot \ln \left[\frac{\hbar \omega_0^3}{4\pi^2 c^2} \cdot \frac{(K - r_{i,j})}{I_{i,j}^{(sr1)}} + 1 \right]},$$

где K — доля энергии, излучаемой ламбертовой поверхностью в единицу времени в сторону объектива USB-видеомикроскопа, данный коэффициент легко определяется экспериментально или рассчитывается теоретически, k — постоянная Больцмана, \hbar — постоянная Планка, c — скорость света в вакууме.

По полученной матрице температур приложение TemperatureReader вычисляет характеристики распределения температуры по поверхности минерала, позволяющие судить о его однородности, и отображает их (см. рис. 1). Нажатием кнопки «Сохранить» распределение температуры по поверхности образца можно сохранить в виде таблицы в формате xlsx или txt.

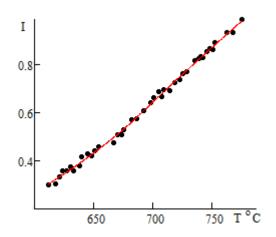
Один из путей устранения искажений возрастного спектра за счет неравномерности прогрева состоит в сканировании образца лазерным лучом [9]. Поэтому в настройках программы предусмотрен дополнительный режим работы — режим сканирующего теплового поля. В этом случае каждый элемент массива температур будет представлять собой максимальную температуру в соответствующей точке поверхности образца за все время измерения.

Для адаптации программы к конкретной измерительной системе предусмотрена процедура калибровки. Для калибровки необходимо использовать источник излучения с известной спектральной плотностью на частоте пропускания выбранного оптического фильтра. В качестве такого источника удобно использовать модель абсолютно черного тела, т. е. однородно прогретую полость с небольшим отверстием для вывода теплового излучения. В целом приложение ТетрегаtureReader имеет простой, интуитивно понятный интерфейс.

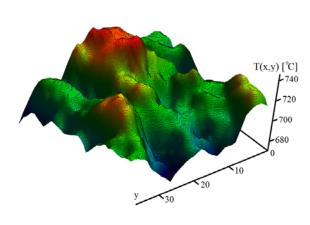
Обсуждение предложенного метода измерений

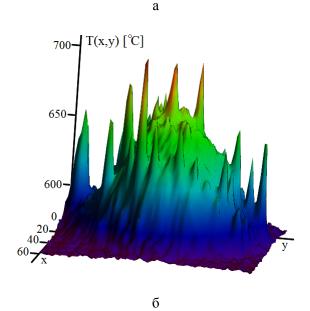
Особенность разработанного метода состоит в том, что распределение температуры вычисляется по двум сериям снимков, одна из которых делается с подсветкой.

Главное преимущество метода по сравнению с аналогичными яркостными и радиационными методами [11–14] заключается в том, что он не требует каких-либо предварительных сведений о поглощательной способности исследуемого объекта. Предложенный метод позволяет экспериментально учитывать зависимость поглощательной способности нагреваемого объекта как от координат на его поверхности, так и от температуры, поскольку коэффициенты направленного отражения рассеянного излучения в точках измерения температуры определяются непосредственно в условиях исследуемо-



Puc. 2. Зависимость яркости пикселей от температуры





 $Puc.\ 3.\$ Распределение температуры на поверхности слюды (биотит) (a), распределение температуры на поверхности вулканического стекла (δ)

го распределения температуры. Как показал элементарный теоретический анализ, за счет того, что при измерениях, по сути, определяются эффективные коэффициенты направленного отражения, предложенный метод снижает ошибку измерения температуры, связанную с неровностями поверхности образца.

По сравнению со спектральными методами измерения температуры [15] разработанный метод существенно проще в реализации, поскольку предполагает формирование двух цифровых изображений объекта на одной частоте. Его применение на стандартных лазерных комплексах, предназначенных для 40 Ar/ 39 Ar датирования, практически не требует дополнительных затрат.

Предлагаемый метод применим только в тех случаях, когда исследуемый объект непрозрачен на частоте ω_0 . Данный недостаток не является принципиальным, поскольку может быть исключен для заданного класса исследуемых объектов выбором указанной частоты. Как показала практика, выбор видимого диапазон спектра приемлем в условиях лазерного $^{40}{\rm Ar}/^{39}{\rm Ar}$ датирования. Предложенный метод применим лишь в тех случаях, когда имеется возможность создать необходимую подсветку рассеянным излучением, например в лабораторных условиях.

Измерение распределения температуры на поверхности образцов

Исследовано поле температур в ряде образцов во время лазерного $^{40}{\rm Ar}/^{39}{\rm Ar}$ датирования. Эксперименты выполнялись на измерительном комплексе «Argus».

Видеомикроскоп был оснащен узкополосным красным оптическим фильтром, полуширина полосы пропускания которого составляет 40 нм. Коэффициент пропускания фильтра обеспечивал необходимое затемнение объектива видеомикроскопа. Программа была откалибрована по известной модели абсолютно черного тела — резистивной печке с небольшим отверстием для вывода теплового излучения. Зависимость яркости пикселей от температуры в печке приведена на рис. 2. При построении калибровочной кривой температура в печке измерялась с помощью термопары. В качестве

стандартного образца с известным коэффициентом отражения рассеянного излучения в направлении объектива видеокамеры использовался однородный образец белого полевого шпата. Общая погрешность измерения температуры на поверхности минералов составила 10 °C, пространственное разрешение — 120 мкм. Для измерений использовались образцы минералов, непрозрачные в видимой области спектра.

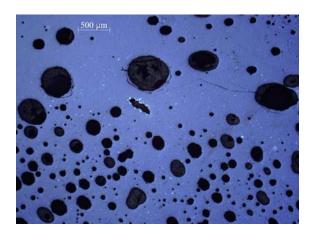
На рис. 3, а приведено распределение температуры на поверхности биотита на одной из ступеней лазерного нагрева. Из данного графика видно, что распределение температуры на поверхности образца существенно неоднородно. Максимальный разброс температур составляет 60 °С. С учетом того, что шаг по температуре при ступенчатом нагрев составляет, как правило, 50-150 °C, следует ожидать, что такая неоднородность будет приводить к ощутимому искажению возрастного спектра. При перемещении лазерного луча по поверхности слюды поле температур перемещалось вслед за лучом, не меняя своей формы, следовательно, неоднородность температуры была вызвана неоднородностью распределения интенсивности в лазерном пятне и низкой теплопроводностью слюды. Фотография образца приведена на рис. 4, а.

На рис. 3, б приведено распределение температуры на поверхности вулканического стекла. Данное распределение содержит множество пиков, высота наибольшего составляет 70 °C. При смещении лазерного луча положение пиков не менялось, следовательно, неоднородность поля температур в данном случае вызвана неоднородностью физических свойств образца. Из фотографии поверхности образца (рис. 4, б) видно, что неоднородность температуры связанна с присутствием множества микровключений свободного углерода. Эксперимент был выполнен повторно с тем же образцом, поверхность которого была покрыта сажей. Результаты повторного измерения аналогичны результатам описанного выше эксперимента. Исходя из общих физических соображений, нетрудно прийти к выводу, что неоднородность поля температур в данном случае объясняется неоднородностью теплопроводности образца.

Из сказанного выше видно, что неоднородности распределения интенсивности в



a



б

 $\it Puc.~4$. Биотит $\it (a)$, поверхность вулканического стекла $\it (6)$

лазерном пятне и неоднородности физических свойств образцов могут приводить к существенным неоднородностям поля температур, вызывающим искажения возрастного спектра. При первых испытаниях лазерного комплекса «Argus» было обнаружено, что для некоторых образцов датировки при нагреве в резистивной печке отличаются от датировок, получаемых при лазерном нагреве. В качестве примера можно привести вьетнамский серицит. Значение возраста, полученное при нагреве образца в резистивной печке, составляет 231 ± 2 млн лет, возраст, полученный при лазерном ступенчатом нагреве, -199 ± 2 млн лет. В данном случае систематическая ошибка в 16 раз превосходит аналитическую погрешность. Описанные эксперименты объясняют данное несоответствие.

Заключение

Предложен пирометрический метод измерения распределения температуры на поверхности природных минералов во время лазерного 40 Ar/ 39 Ar датирования. Главное преимущество разработанного метода по сравнению с аналогичными яркостными методами [11-14] заключается в том, что он не требует наличия каких-либо предварительных сведений о поглощательной способности исследуемого объекта. Разработанный метод значительно проще в реализации по сравнению со спектральными [15]. Его применение на лазерных комплексах, предназначенных для 40 Ar/39 Ar датирования, практически не требует дополнительных затрат. Для автоматизации измерений написана программа на платформе Framework 4.0.

Разработанным методом исследовано поле температур в ряде минералов во время лазерного 40 Ar/ 39 Ar датирования. В некоторых образцах распределение температуры во время датирования было существенно неоднородно, что может приводить к возникновению не учитываемой ошибки в значении его возраста, величина которой в несколько раз больше аналитической погрешности. Поскольку все причины неоднородности поля температур в минерале заранее учесть довольно трудно, в особенности неоднородность физических свойств образца, описанный в данной работе метод контроля поля температур должен быть включен в стандартную процедуру лазерного 40 Ar/39 Ar датирования.

Список литературы

- 1. Challandes N., Marquer D., Villa I. Dating the Evolution of C-S Microstructures a Combined ⁴⁰Ar/³⁹Ar Step-Heating and UV Laser Probe Analysis of the Alpine Roffna Shear Zone // Chemical Geology. 2003. Vol. 197. Is. 1–4. P. 3–19.
- 2. Flude S., Burgess R., Mc Garvie D. W. Silicic Volcanism at Ljósufjöll, Iceland: Insights into Volution and Eruptive History from ⁴⁰Ar/³⁹Ar Dating // J. of Volcanology and Geothermal Research. 2008. Vol. 169. Is. 3–4. P. 154–175.

- 3. Ishizuka O., Uto K., Yuasa M., Hoch-staedter A. G. Volcanism in the Earliest Stage of Back-Arc Rifting in the Izu-Bonin Arc Revealed by Laser-Heating ⁴⁰Ar/³⁹Ar Dating // J. of Volcanology and Geothermal Research. 2003. Vol. 120. Is. 1–2. P. 71–85.
- 4. *Фор Г*. Основы изотопной геологии. М.: Мир, 1989. 590 с.
- 5. *Dickin P.* Radiogenic Isotope Geology. Cambridge Univ. Press, 2005. 506 p.
- 6. *Hyodo H.* Laser Probe ⁴⁰Ar)³⁹Ar Dating: History and Development from a Technical Perspective // Gondwana Research. 2008. Vol. 14. P. 609–616.
- 7. Gianfranco Di Vincenzo, Rocchi S., Rossetti F., Storti F. ⁴⁰Ar/³⁹Ar Dating of Pseudotachylytes: The Effect of Clast-Hosted Extraneous Argon in Cenozoic Fault-Generated Friction Melts from the West Antarctic Rift System // Earth and Planetary Science Letters. 2004. Vol. 223. Is. 3–4. P. 349–364.
- 8. Hudgins J. A., Spray J. G., Kelley S. P., Korotev R. L., Sherlock S. C. A Laser Probe ⁴⁰Ar/³⁹Ar and INAA Investigation of Four Apollo Granulitic Breccias // Geochimica et Cosmochimica Acta. 2008. Vol. 72. Is. 23. P. 5781–5798.
- 9. Gouzu C., Itaya T., Hyodo H., Cretaceous A. T. Isochron Ages from K–Ar and ⁴⁰Ar/³⁹Ar Dating of Eclogitic Rocks in the Tso Morari Complex, Western Himalaya, India // Gondwana Research. 2006. Vol. 9. Is. 4. P. 426–440.
- 10. Свет Д. Я. Оптические методы измерения истинных температур. М.: Наука, 1982. 296 с.
- 11. Каримова Ф. Ф., Орловская С. Г., Калинчак В. В., Шкоропадо М. С. Исследование температурных полей излучающих объектов // Физика аэродисперсных систем. 2006. Вып. 43. С. 39–45.
- 12. *Kavner A., Panero W. R.* Temperature Gradients and Evaluation of Thermoelastic Properties in the Synchrotron-Based Laser-Heated Diamond Cell // Physics of the Earth and Planetary Interiors. 2004. Vol. 143–144. P. 527–539.
- 13. Александров С. Е., Гаврилов Г. А., Капралов А. А., Сотникова Г. Ю., Черных Д. Ф., Алексеев А. Н., Дудин А. Л., Коган И. В., Шкурко А. П. Устройство пирометрического контроля температуры подложки GaAs для установки молекулярно-лучевой

эпитаксии // Журн. техн. физ. 2004. Т. 74, вып. 1. С. 123–127.

14. Ивлев Г. Д. Оптическая пирометрия поверхности кремния, расплавленного наносекундным лазерным облучением // Письма в ЖТФ. 1996. Т. 22, вып. 11. С. 86-90.

15. Магунов А. Н. Спектральная пирометрия (обзор) // Приборы и техника эксперимента. 2009. № 4. С. 5–28.

Материал поступил в редколлегию 28.08.2012

D. V. Alekseev, A. V. Travin

MEASUREMENT OF TEMPERATURE DISTRIBUTION ON MINERAL SURFACE DURING ARGON-ARGON LASER STEP HEATING DATING

New pyrometric method of temperature distribution measurement on surface of natural mineral during laser ⁴⁰Ari³⁹Ar dating has been devised. Peculiarity of this method is that it is relatively simple and does not require in availability of information about under test object absorption ability. It is very important during measurement of temperature distribution on surface of natural mineral. Proposed method includes forming of two digital pictures of sample in one frequency only, using of proposed method in conventional laser complexes intended for 40Ar/39Ar dating does not require large additional technical expense. Special program on the basis of platform Framework 4.0 has been devised for data processing automatization. Temperature field in several geological samples has been researched using method proposed. Data obtained indicates that temperature distribution in some of the samples during laser stepwise dating is sufficiently heterogeneous. Nonuniformity of temperature distribution can result in appearance do not taking into account inaccuracy in age value, that larger of analytical inaccuracy in few time. Thus, data obtained indicates that control of temperature distribution homogeneity during laser ⁴⁰Ar/³⁹Ar stepwise dating is necessary condition of accuracy dating result. *Keywords*: heat radiation, temperature, optical pyrometry, laser ⁴⁰Ar/³⁹Ar dating.