

·方法与应用·

磷灰石(U-Th)/He 定年方法综述

蒋毅^{1,2}, 常宏¹

(1. 中国科学院地球环境研究所, 黄土与第四纪地质国家重点实验室, 陕西 西安 710075;

2. 中国科学院研究生院, 北京 100049)

摘要: 磷灰石 He 封闭温度是目前已知定年体系中最低的, 能够反映低温阶段(40~90℃)的热历史信息, 该方法现已成为低温热年代学领域研究的重要手段。本文概述了磷灰石(U-Th)/He 定年方法的原理、校正、实验流程、应用以及存在的问题。其中, 重点介绍了近几年国内外(U-Th)/He 定年中辐射损伤研究的进展, 主要包括以下几个方面: ①辐射损伤的原理: 捕获模型的提出及应用; ②辐射损伤对磷灰石(U-Th)/He 定年的影响; ③新模型的提出: 辐射损伤累积-退火模型; ④辐射损伤的实际应用。

关键词: 磷灰石(U-Th)/He; 辐射损伤; 低温热年代学

中图分类号: P597

文献标识码: A

文章编号: 1000-6524(2012)05-0757-10

Apatite (U-Th)/He dating: A Review

JIANG Yi^{1,2} and CHANG Hong¹

(1. State Key Lab of Loess and Quaternary Geology, Institute of Earth Environment, Chinese Academy of Sciences, Xi'an 710075, China; 2. Graduate University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China)

Abstract: The apatite (U-Th)/He dating method has been proved to be a powerful and useful tool in the field of low-temperature thermochronology, because it has the lowest available He closure temperature and can reflect the information of the thermal histories at low temperature (40~90℃). This review gives a brief account of the principles, calibrations, laboratory procedures, applications and existing problems of the method, highlighting the progress of the study of radiation damage in recent years. The main content of this paper includes: ① the principle of the radiation damage and the development of the "trapping model"; ② the effect of the radiation damage on apatite (U-Th)/He dating; ③ the development of the new model, i. e., the Radiation Damage Accumulation and Annealing Model; ④ the Applications of the radiation damage.

Key words: apatite; (U-Th)/He; radiation damage; low-temperature thermochronology

利用元素的放射性特征来进行绝对地质年代测定是十分普遍的地质学方法(Reiners *et al.*, 2005), 例如 Sm-Nd 法、K-Ar 法等。(U-Th)/He 定年方法与其他放射性定年方法原理一样, 虽然早在一百年前就被 Strutt 提出来了, 但是由于测试仪器的限制以及测得的年龄偏低等原因(Hurley, 1954; Hurley *et al.*, 1956; Damon and Kulp, 1957; Damon and

Green, 1963), 一直没有得到广泛的应用。直到 1987 年, Zeitler 等(1987)在对磷灰石进行(U-Th)/He 定年时发现磷灰 He 年龄是通过较低温度时的冷却年龄, 并指出(U-Th)/He 定年有可能作为一种低温温度计, 这项研究引起了研究人员的极大关注, 从而为(U-Th)/He 定年的快速发展奠定了基础。由于磷灰石 He 封闭温度是目前已知定年体系中最低

收稿日期: 2012-01-03; 修订日期: 2012-06-26

基金项目: 国家自然科学基金中美重大国际合作项目(40921120406)

作者简介: 蒋毅(1987-), 男, 汉族, 在读硕士, 第四纪地质学专业, E-mail: jiangyi@ieccas.cn

的,所以它能反映更低温阶段的热历史信息,在低温热年代学领域具有很好的应用前景(Farley, 2002),如在造山带、盆地演化以及古地形研究中的应用(保增宽等, 2005)。

目前,磷灰石(U-Th)He定年方法的应用日趋成熟,人们对其原理研究的也已十分透彻。在利用该方法定年时磷灰石(U-Th)He年龄会受多种因素影响,如: α 粒子射出效应(Farley *et al.*, 1996)复杂热历史(Mitchell and Reiners, 2003)矿物内元素的不均匀分布(Hourigan *et al.*, 2005),以及晶体的辐射损伤(Shuster *et al.*, 2006)。为了降低这些影响,研究人员建立了相应的校正模型来提高He年龄的可信度。其中,辐射损伤是近几年来研究的一个重点。辐射损伤,即磷灰石中U、Th重核元素的自发放射性衰变通过产生孤立的缺陷和空位来改变晶体结构的现象。为了明白辐射损伤的原理,Shuster等(2006)通过“捕获模型”来分析它对He扩散动力学的影响,成功地解释了辐射损伤对磷灰石He封闭温度和对埋藏后重新加热的影响,得到更精确的He年龄。本文主要介绍磷灰石(U-Th)He定年方法的原理、校正、实验流程、应用以及存在的问题。

1 测年原理

1.1 ^4He 年龄方程

^4He (α 粒子)是由一系列放射性衰变产生的,主要由 ^{238}U 、 ^{235}U 与 ^{232}Th 衰变而来,这三种元素属于铀系元素,少量的由 ^{147}Sm 衰变产生(可忽略)(Farley, 2002)。因此He年龄方程为: $^4\text{He} = 8 \left[^{238}\text{U} \exp(\lambda_{238}t) - 1 \right] + 7 \left[^{238}\text{U} / 137.88 \right] \exp(\lambda_{235}t) - 1 + 6 \left[^{232}\text{Th} \exp(\lambda_{232}t) - 1 \right]$ 其中 ^4He 、 ^{238}U 、 ^{232}Th 为现今的原子数, t 为放射性累积时间,即He的年龄, λ 为衰变常数, ^{238}U 与 ^{235}U 现今的丰度比为137.88,方程右边每项前面的系数代表每个衰变链产生的 α 粒子个数,如 ^{238}U 衰变成 ^{206}Pb 会释放出8个 α 粒子(即 ^4He)。

λ 是已知的, ^4He 、 ^{235}U 、 ^{232}Th 原子数通过仪器可测得,因此经过计算可得出 t ,即He的年龄。这里强调的是 ^4He 不是真正意义上的放射性子体同位素,而是 α 衰变的产物。

该方程有两个假定条件,这两个假定对大多数应用来讲是成立的:①衰变链中所有子体同位素处于长期平衡状态(Farley, 2002);②晶体中没有初始

He的存在。对于第二个假定,需要注意的是,虽然可以忽略大气He对样品的影响,但磷灰石中流体包裹体可能携带地壳或地幔中的氦,从而影响He的年龄。因此在挑选磷灰石晶体时要尽量筛除带有包裹体的晶体。

1.2 磷灰石He扩散行为与He部分保留区(HePRZ)

为了研究(U-Th)He测年的可靠性,Wolf等(1996)研究了He扩散性,并且测试了杜兰戈(Durango)磷灰石(作为国际标准的一种磷灰石,产于墨西哥的杜兰戈地区)的He年龄。他们测试了从合适温度到极低温度时的扩散率,所有的磷灰石都显示了相似的He扩散行为。He丢失明显是以体扩散形式出现的。在温度小于 300°C 时,扩散率服从高度线性的Arrhenius关系,需要的活化能大约为 36 kcal/mol ,超过这个温度后扩散率出现线性偏离,朝向更低的活化能方向发展。这说明,当温度小于 300°C 时,磷灰石He扩散是单一的热活性体扩散过程。前人利用稳定加热法和分步升温法,通过限定Arrhenius关系式的参数来研究磷灰石He扩散行为(Farley, 2002): $D/a^2 = D_0/a^2 \exp(-E_a/RT) \rightarrow \ln D/a^2 = -E_a/RT + \ln D_0/a^2$ 。其中, D 为扩散率, D_0 为温度无穷高时的扩散率, E_a 为活化能, R 为气体常数, T 为开尔文温度, a 为扩散半径。若这个关系式成立的话,那么 $\ln D/a^2$ 就是温度倒数的线性函数,它们在直角坐标系中将会形成一条截距为 $\ln D_0/a^2$,斜率为 $-E_a/R$ 的直线(图1)。如果没有形成直线,那么就可能存在更为复杂的行为,如多扩散机制。

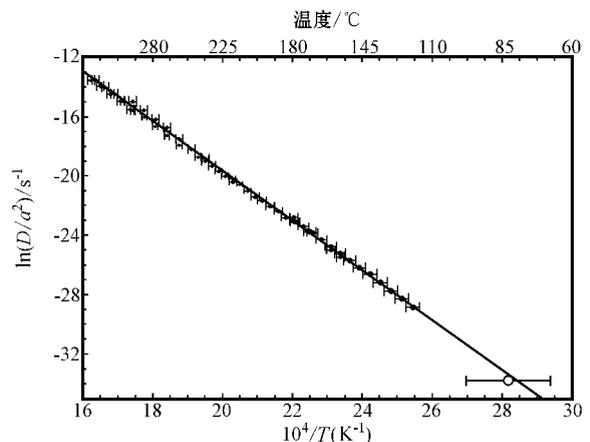


图 1 He 扩散与温度的 Arrhenius 关系图
(据 Farley 2002)

Fig. 1 Arrhenius plot: helium diffusion versus temperature (after Farley, 2002)

在杜兰戈磷灰石中,扩散域是颗粒本身, D/a^2 的量会随着颗粒大小而变化。杜兰戈磷灰石的He扩散是各向同性的。前人通过实验研究表明:磷灰石He扩散活化能为 $32\sim 38\text{ kcal/mol}$ ($1\text{ kcal/mol}=4.186\text{ kJ/mol}$);半径为 $70\sim 90\text{ }\mu\text{m}$ 的磷灰石封闭温度为 70°C 。

最直接地证实He扩散行为的方法是检测钻孔中He年龄分布,因为钻孔中温度会随着深度增加而升高,因此,He年龄会随着深度增加而降低,当He年龄出现迅速降低时,就表明有He丢失(即He扩散),这同时也证明了He部分保留区(HePRZ)的存在。

Wolf等(1998)详细地研究了磷灰石He部分保留区:温度小于 40°C 时,He定量地保留下来,此时He年龄正常地记录日历时间。相反,温度大于 90°C 时,He基本全部扩散丢失,此时He年龄基本为零。在 $40\sim 90^\circ\text{C}$ 之间,He年龄对温度是十分敏感的,即He年龄随温度的升高会迅速降低。这个温度区间就是He部分保留区。

2 数据校正: α 粒子射出效应

磷灰石He年龄的准确性会受到 α 粒子射出效应的影响(常远等,2010a),因此,通过实验仪器测出的He年龄还应进行相应的校正。下面简要介绍 α 粒子射出效应的原理及校正方法。

矿物内的放射性元素 ^{238}U 、 ^{235}U 、 ^{232}Th 在衰变过程中产生的 α 粒子具有一定的初始动能,使其相对于母核运动一段距离后才停止,这一距离称为 α 粒子停止距离(Farley *et al.*, 1996),一般为 $11\sim 34\text{ }\mu\text{m}$ 。如果 α 粒子停止距离大于母核距晶体边缘的距离,那么 α 粒子就可能射出到晶体外面,引起He丢失,这就是 α 粒子射出效应的原理。这个过程并不会随着矿物冷却到低于其封闭温度而停止。

α 粒子射出效应的校正公式为: $T_{\text{校正年龄}} = T_{\text{测试年龄}}/F_T$ 。其中测试年龄 $T_{\text{测试年龄}}$ 是通过实验仪器测试,用年龄方程计算出来的年龄; F_T 为 α 粒子射出效应的校正参数,其含义为实际保存在磷灰石晶体中的 ^4He 含量与U、Th衰变释放出的 ^4He 总量的比值。由该公式可以看出,校正参数是得到准确He年龄的关键。研究表明:校正参数 F_T 与晶体颗粒大小、几何形状和U、Th成分环带三种因素有关,是放射性元素分布状态 $U(x, y, z)$ 与晶体几何形状

的函数(Farley *et al.*, 1996),由体积分形式表示为: $F_T = \frac{\int_{\Omega} F(x, y, z)U(x, y, z)dx dy dz}{\int_{\Omega} U(x, y, z)dx dy dz}$ 。式中 $F(x, y, z)$ 为矿物体内某一点 (x, y, z) 处的放射性元素所产生的 ^4He 能够保存在矿物内的比例。

为了准确计算磷灰石晶体的校正参数,前人提出了4种校正模型:①“均匀球”校正模型(Farley *et al.*, 1996)。在该模型中,假定矿物晶体是一个半径为 R 的球体,且放射性元素均匀分布在球体内,那么通过模型计算可以得出校正参数 $F_T = 1 - (3S/4R) + S^3/16R^3$,式中, S 为 α 粒子停止距离, R 为球体半径。因此, F_T 的大小主要取决于晶体半径 R 。因此要想获得高的 F_T ,则应选取颗粒大的磷灰石进行(U-Th)/He定年,但也不能无限制的大,一般选取直径为 $60\sim 70\text{ }\mu\text{m}$ 的较为合适。②“元素环带”校正模型(Wolf, 1997; Farley, 2002)。由于磷灰石晶体内放射性元素(主要指U、Th)分布不总是均匀的,有时会成环带分布,从而造成U、Th元素在晶体边缘的富集或亏损。在实际应用中,很难得到母核元素分布函数 $U(r)$ 的具体形式和参数。因此,研究者采用多种方法加以限制,如利用LA-ICP-MS的激光剥蚀技术测定母核元素的分布剖面,得到该元素从核部到边缘的含量变化,然后根据实测剖面数据变化拟合出分布函数 $U(r)$ (Hourigan *et al.*, 2005);或者对于那些已经进行过裂变径迹蚀刻的样品,可以通过观测晶体表面径迹的密度分布差异大致估算出放射性元素的环带分布性质和程度,然后拟合出 $U(r)$ 再校正He年龄。由于磷灰石的成分环带并不是很显著,因此目前许多实验室没有将其环带效应考虑在内,但随着对磷灰石(U-Th)/He定年精度要求的增加,该校正方法将会得到更多的应用。③“等比表面积球”校正模型(Meesters and Dunai, 2002a, 2002b)。把不同晶形的矿物统一转化为与其具有相同的表面积与体积比的圆球体,然后按照球体模型计算 α 粒子射出效应的校正参数 F_T 。④晶体几何形态校正。实验表明,无论矿物晶体形态如何,晶体的表面积与体积的比值 β 可作为一个比较理想的衡量晶体在 α 粒子射出作用下保存 ^4He 的能力(Farley *et al.*, 1996; Farley, 2002), β 与 F_T 之间的函数关系为: $F_T = 1 + a_1\beta + a_2\beta^2$ 。参数 a_1 、 a_2 可通过实验模拟得到。由于 ^{238}U 的 α 粒子射出效应的参数 a_1 、 a_2 与 ^{232}Th 的 α 粒子射出效应的参数 a_1 、 a_2 是不同

的,所以计算出的 $^{238}F_T$ 与 $^{232}F_T$ 也是不同的,因此需要通过加权平均计算出 $^{平均}F_T$ 来反映这两大衰变元素共同作用的结果。 $^{平均}F_T = a_{238}^{238}F_T + (1 - a_{238})^{232}F_T$,当矿物 He 年龄小于 200 Ma 时, a_{238} 可近似为 $[1.04 + 0.245(\text{Th}/\text{U})]^{-1}$ 。目前这种方法的应用是最普遍的。

3 辐射损伤原理及其影响

自发形成的放射性衰变可以通过产生孤立的缺陷和空位来改变晶体的结构,这种现象被称为辐射损伤。除了电离元素通过 α 、 β 、 γ 衰变时会产生辐射损伤,铀系元素衰变也会产生大量的永久性的原子位错(即辐射损伤)。磷灰石与锆石晶体中由 α 衰变产生的辐射损伤累积速率是温度的函数。磷灰石辐射损伤在超过一定温度后会发生退火,其累积速率会下降。这与磷灰石裂变径迹的退火行为相似但不等同。

3.1 辐射损伤原理:捕获模型(trapping model)

以前的研究者(Farley, 2002)已经意识到晶体中辐射损伤会对 He 扩散行为产生影响。但人们对这种影响的认识却一直处于探索之中。起初,人们在对很老的锆石和榍石晶体(U-Th)/He 年龄进行分析时发现辐射损伤加快了 He 丢失。他们认为这是因为整齐排列的晶格因辐射损伤而出现晶格缺陷和空位(Shuster *et al.*, 2006),从而对 He 移动性的阻碍

能力下降所致。但后来,实验(Shuster and Farley, 2005)表明人工产生的辐射损伤可以阻止石英中的 He 扩散,这就得出了一个完全相反的结论:辐射损伤提高了 He 保存率。

为了弄清这个问题,Shuster 等(2006)设计了一个“捕获模型”来分析辐射损伤对 He 扩散动力学的影响(图 2)。图中圆圈代表辐射损伤的位置,箭头表示 He 原子的运动轨迹和方向。当一个 He 原子以扩散形式在晶体中运动时,如果晶体中没有辐射损伤(图 2a),那么 He 扩散动力学就只是温度的函数。自由 He 原子(He_f)在晶体中的扩散率取决于对应的活化能 E_a 。如果在 He 原子前进方向上出现一个晶格缺陷(图 2b),那么 He 原子在靠近这个空位时需要的活化能为 E_a ,当它进入空位被捕获后,在空位中运动因阻力降低而需要低的活化能,这时被捕获的原子(He_t)的运动状态类似于在气体中的运动。但是当它沿着这个方向继续运动时,就需要克服更大的能量障碍(E_t)以刺入到晶格中,从而射出到矿物外面,完成 He 扩散丢失过程。这就意味着因辐射损伤产生的“陷阱”会使 He 扩散变得更难,提高了 He 保存率。当辐射损伤随着时间累积后,“陷阱”增多,He 保存率就逐渐升高。值得注意的是,若损伤密度(即“陷阱”密度)非常高以至于在晶体表面与内部形成了通道,则会降低 He 保存率。这也许可以解释上面提到的非常老的锆石与榍石为什么会出加快 He 丢失。

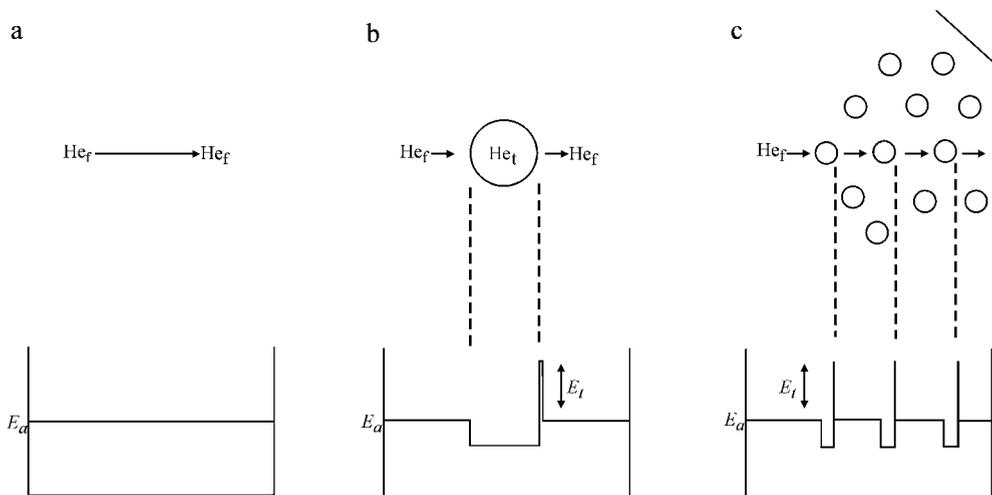


图 2 “捕获模型”原理图(Shuster *et al.*, 2006)

Fig. 2 A schematic diagram of the “trapping model”(after Shuster *et al.*, 2006)

3.2 辐射损伤的影响

3.2.1 对封闭温度的影响

有效封闭温度 (T_{ec}) 是冷却速率与等效 U 浓度 [eU (effective uranium concentrations), $eU = U + 0.235Th$] 的函数 (图 3), T_{ec} 通过插入“陷阱模型”到 He 生产——扩散模型中计算得出。从图中可以看出, 在快速冷却的时候, T_{ec} 的值比杜兰戈磷灰石的小, 在缓慢冷却情况下, 不同 eU 对应的磷灰石 T_{ec} 出现发散, 因为有更多的时间形成辐射损伤以阻止 He 扩散, 提高 He 保存率, 从而间接地使 He 封闭温度升高。当冷却速率下降, T_{ec} 的斜率降低也是同样的原因。单调冷却的磷灰石 (U-Th)/He 年龄与 T_{ec} 有关, 但是图 3 表明 T_{ec} 差异最大可达 15°C。快速冷却时磷灰石迅速穿过 HePRZ, 很少受到辐射损伤的影响, 所以 T_{ec} 比杜兰戈标准的小; 反之, 缓慢冷却时, T_{ec} 比杜兰戈标准高。辐射损伤对 He 扩散的影响超过了其他已知因素对 He 扩散的影响, 比如粒度。

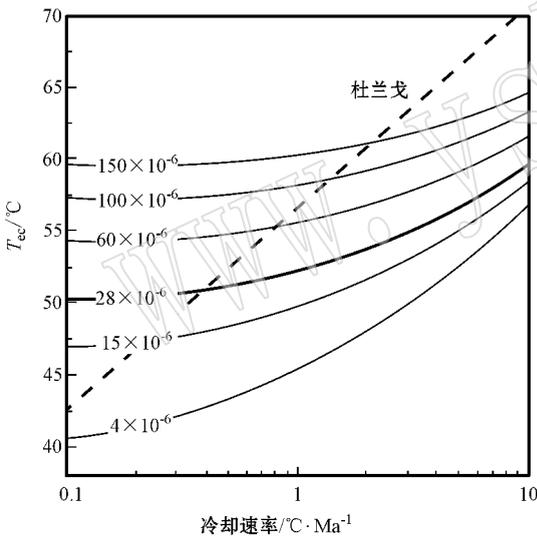


图 3 有效封闭温度 T_{ec} 与冷却速率和等效 U 浓度 (标记为 1×10^{-6}) 图 (Shuster *et al.*, 2006)

Fig. 3 Effective closure temperature (T_{ec}) as a function of cooling rate and eU (labeled in 1×10^{-6}) (after Shuster *et al.*, 2006)

Shuster 和 Farley (2009) 用中子辐照磷灰石来产生人造辐射损伤, 模拟天然磷灰石中的 U、Th 衰变产生的辐射损伤, 实验结果表明: 人造辐射损伤能够提高 He 扩散的活化能 (E_a) 和频率因子 [frequency factor (D_0/a^2)], 并且产生了更高的 He 封闭温度 (T_c)。例如: 用一个 220 MeV 的质子束对磷灰石辐

照 100 h 可以使 He 封闭温度提高 36°C (Shuster and Farley, 2009)。因此他们通过实验手段直接证明: 辐射损伤能够提高磷灰石 He 保存率以及 He 封闭温度 (T_c)。

3.2.2 对埋藏后重新加热的影响

假设磷灰石从 300 Ma 到 200 Ma 一直处于 0°C 的环境中 (图 4), 在这期间, 辐射损伤累积起来, 接着从 0°C 加热到峰值温度 (T_{pk} , $0^\circ C \leq T_{pk} \leq 100^\circ C$) 用时 100 Ma, 然后单调冷却到 0°C, 再用时 100 Ma。这种情况可能发生在经历了埋藏加热的碎屑磷灰石中。在这个假设中, 等效 U 浓度 eU 十分关键。当 T_{pk} 低时, 所有的 He 都被保存, 因此记录的时间为 300 Ma; 当 T_{pk} 超过 90°C 时, 所有的晶体全部 He 扩散丢失, 记录的年龄约为 100 Ma, 此时年龄的不同是因为不同的 eU 有不同的 T_{ec} 所致 (图 3)。当 T_{pk} 位于中间时 (U-Th)/He 年龄就会出现一个很大的范围, 在最极端的情况 60°C 时, 低 eU 的晶体因 T_{ec} 低于 60°C 而几乎全部 He 丢失, 而高 eU 的晶体因 T_{ec} 高于 60°C 几乎不发生 He 丢失。因此 He 年龄跨度很大, 要想得到更精确的 He 年龄还得知道 eU 有多大。

3.3 辐射损伤累积-退火模型 (RDAAM)

在人造辐射损伤实验中, Shuster 等 (2009) 发现: 磷灰石中 U、Th 经 α 衰变产生的辐射损伤可以

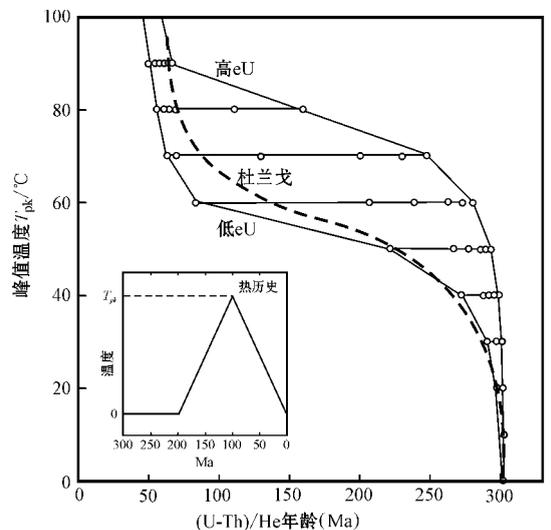


图 4 经历重新加热后的 (U-Th)/He 年龄与 eU 和峰值温度 T_{pk} 的关系图 (Shuster *et al.*, 2006)

Fig. 4 (U-Th)/He ages which underwent a reheating event as a function of eU and peak temperature (after Shuster *et al.*, 2006)

阻碍 He 扩散,而热退火过程可以使积累的辐射损伤消失,从而消除这一阻碍作用,因此辐射损伤与热退火是一种可逆过程。于是 Flowers 等(2009)根据已有的实验数据开发出新的模型:辐射损伤累积-退火模型(RDAAM, Radiation Damage Accumulation and Annealing Model)。该模型与 He 捕获模型(HeTM; Shuster *et al.*, 2006)原理是一样的,所不同的是:RDAAM 采用有效裂变径迹密度(effective fission-track density)来作为辐射损伤累积量的衡量指标,而 HeTM 采用的是 He 浓度来作为衡量指标。有效裂变径迹密度与晶体中 U、Th 的 α 衰变产生的辐射损伤是成比例的,而 He 浓度与晶体中的辐射损伤是不成比例的。因此 RDAAM 有效地解决了 HeTM 的局限性,RDAAM 能够更加精确地解释磷灰石的 He 年龄。和传统的杜兰戈模型相比较,RDAAM 考虑了 He 扩散率随着时间的变化(随着时间的增长,累积的辐射损伤会逐渐增强对 He 扩散的阻碍,从而使扩散率下降),而杜兰戈模型则认为 He 扩散是常数,不会随时间发生变化。在适用性方面,RDAAM 可以定量解释先前已经发表的数据,而且还可以解释一些以前报道的(U-Th)/He 和 AFT 结果之间的差异,例如:(U-Th)/He 年龄比相应的 AFT 年龄要老。但是 RDAAM 也依然存在一些无法解决的问题(Flowers *et al.*, 2009)对于年代老的样品,RDAAM 并不能全部解释(U-Th)/He 和 AFT 方法之间的差异,因此还需进一步地更新这个模型。

3.4 实例应用

Flowers 等(2007)通过对科罗拉多高原大峡谷(Grant Canyon)地区不同地层的碎屑磷灰石研究发现(U-Th)/He 年龄变化范围为 5~104 Ma,这种变化范围远远地超过了分析的不确定性。这些年龄数据比对应的地层年龄小,说明这些样品在沉积后经历过部分到完全的 He 丢失。从图 5 中可以看出,磷灰石 He 年龄分布与 eU 和 He 浓度呈现正相关关系,即(U-Th)/He 年龄随着 eU 与 He 浓度的增高而升高。这再次证明 eU 高, T_{cc} 就高,He 记录时间就越早(U-Th)/He 的年龄就升高。而 He 是由 U、Th 衰变而来的,因此在同样的样品中,eU 高,则 He 浓度就高,所以(U-Th)/He 年龄与 He 浓度也呈正相关关系。然后他们利用辐射损伤陷阱模型来重新生成数据,从而模拟该地区的热演化史,并推测科罗拉多高原大峡谷地区的埋藏/剥露历史(图 5e, f)。后来,Flowers 等(2009)又利用 RDAAM 重新计算了科

罗拉多高原 Esplanade 地区的磷灰石 He 年龄数据,并根据该模型重新模拟该地区的热演化史,得出的结果与捕获模型的模拟结果是一致的。因此,这证明 RDAAM 的应用是比较成功的。此外,相对于原理较为简单的捕获模型来说,复杂的 RDAAM 能够更加准确地模拟磷灰石所经历的热演化过程,这有可能使该模型得到更加广泛的应用。

4 实验流程

磷灰石(U-Th)/He 实验流程包括 3 个方面:样品制备、晶体释气与 He 浓度测试、U、Th 含量测试。

上世纪末,加州理工学院的科研人员曾采用双样品法来测试 U、Th、He 的含量,但双样品法的误差较大。后来随着测试技术的发展开发出了单样品法,克服了双样品法的天然缺陷。如今几乎所有的(U-Th)/He 测年实验室都采用单样品法来测试 U、Th、He 的含量。下面将详细介绍单样品法的 3 个步骤:①样品制备:采集的岩石样品首先要进行矿物的分选,包括破碎、碾磨、过筛、淘洗、重液分离和磁选分离,得到磷灰石矿物颗粒(锆石颗粒同理)。然后在双目显微镜下从分选出来的重矿物精矿中手工挑选自形磷灰石晶体。晶体的挑选要求比较高,挑选时尽量确保磷灰石晶体不含包裹体,因为对于流体包裹体,里面可能含有壳源或幔源的 He,从而使测得的 He 浓度偏高;而对于锆石包裹体,会产生多余的 U、Th。此外,由于 α 粒子射出效应的影响,晶体最短轴直径最好为 60~70 μm 。用经过校正的数码相机对挑选出的磷灰石晶体的形状、尺寸进行测量、照相,计算出校正参数 F_T ,进行年代校正。②磷灰石晶体的释气与 He 浓度测试:将单颗粒样品放入金属箔容器中,用激光束恒温加热,温度为 1000~1300 $^{\circ}\text{C}$,时间为 3~5 min。然后对提取出来的 ^4He 加入约 9 ncc(1 ncc = 1×10^{-9} mL)的 ^3He ,在低温条件下(16 K)用活性炭进行聚集、纯化,将提纯后的 He 输入四级场质谱仪(Quadrupole Mass Spectrometer),在静态模式下测量 $^4\text{He}/^3\text{He}$ 比值。③U、Th 含量测试:将测试完 $^4\text{He}/^3\text{He}$ 的样品放入经过校准的 ^{229}Th 和 ^{233}U 溶液,然后将样品在浓度约 30%的 HNO_3 中溶解,待样品完全溶解并混合均匀后,用等离子质谱仪来测量 $^{238}\text{U}/^{233}\text{U}$ 和 $^{232}\text{Th}/^{229}\text{Th}$ 的比值。

该实验流程为目前大多数实验室所采用,但不同实验室在具体的细节上可能会有所不同,如激光

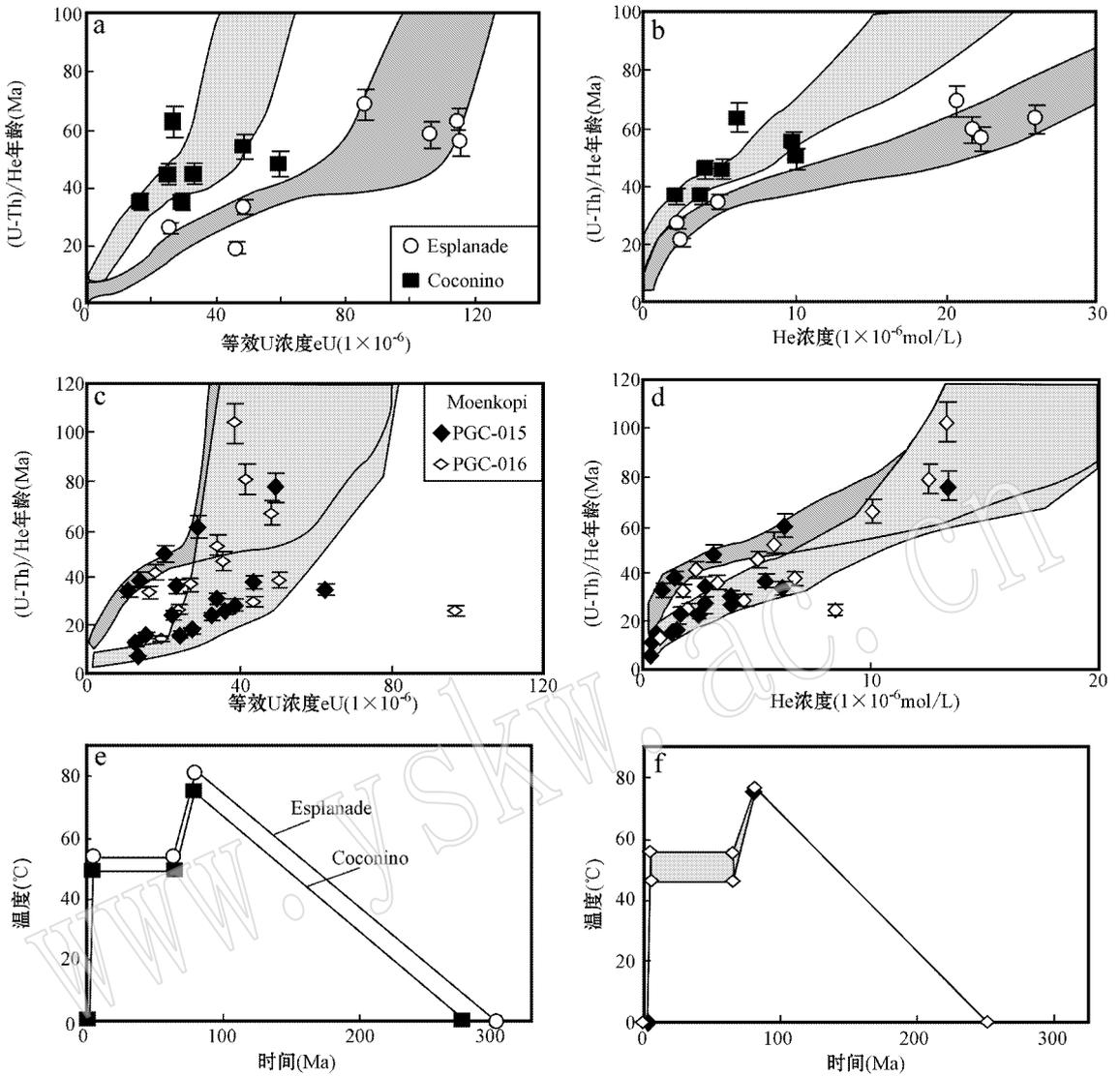


图 5 Esplanade 组 (a)、Coconino 组 (b) 和 Moenkopi 组 (c、d) 地层中磷灰石样品的 (U-Th)/He 年龄与 eU 和 He 浓度关系图 (Flowers *et al.*, 2007)

Fig. 5 Individual (U-Th)/He apatite ages as a function of effective U concentration and He concentration for Esplanade and Coconino samples (a and b) and Moenkopi samples (c and d) (after Flowers *et al.*, 2007)

加热选用的温度点可能有差别, 恒温加热时间也不同, U、Th 测试时, HNO₃ 的溶解时间可能不同, 而且有的实验室可能会采用加热方式来加速溶解。此外, 不同的样品所采用的实验流程可能也会有细微差别。

5 地质应用

因为磷灰石 (U-Th)/He 的封闭温度是目前已有定年体系中较低的, 所以它能反映低温阶段的热历史信息。目前多数的应用研究中, 都采用磷灰石 (U-

Th)/He 与磷灰石裂变径迹或锆石 (U-Th)/He 等定年技术相结合的方法 (Reiners *et al.*, 2004; Hacker *et al.*, 2011) 来详细地研究地质时间或地质体在低温阶段的演化过程。

5.1 在造山带研究中的应用

在造山带演化研究中, 利用磷灰石裂变径迹可以模拟矿物的热演化历史 (常远等, 2004), 从而理解造山带中地质体的构造演化。磷灰石 (U-Th)/He 定年方法可以为裂变径迹提供年代约束, 使得矿物的温度-时间 (T-t) 演化历史更加可靠。例如许长海等 (2010) 在对大巴山弧形构造带形成与两侧隆起关系

的研究中,利用 FT 和 (U-Th)/He 低温热年代学方法分别分析了南大巴山弧形带的历史,以及汉南-米仓山隆起和黄陵隆起的热历史。具体的步骤为利用实验测得的 FT 数据,使用 (U-Th)/He 数据作为下限约束和中间插入点,在计算机模型中模拟出 $T-t$ 演化曲线,根据该演化曲线计算出不同时期的冷却速率(常远等,2010b),从而推断出造山带在地质历史时期中的隆升快慢,然后分析可能存在的构造事件。比如许长海等(2010)通过研究发现南大巴山弧形带及其两侧隆起在约 45 Ma 经历了一次较为快速的隆升事件,认为这次构造隆升在时间上与青藏碰撞造山事件的时间是一致的。

5.2 在盆地演化研究中的应用

目前,国际上关于沉积盆地热史的恢复总体上采用两种方法:一种是古温标法,另一种是依据盆地构造演化的热动力学模型来恢复热历史。虽然磷灰石 (U-Th)/He 测年方法已广泛应用于地质体定年、造山带热史及地形地貌演化等方面的研究中,但运用于沉积盆地热史恢复却是一种全新的应用。盆地在下降埋藏过程中,越早沉积的沉积物其 He 年龄越老,这种过程会在磷灰石 (U-Th)/He 中被记录下来。这就造成了与造山带截然相反的时间沉积序列,下部岩石的 He 年龄老于上部岩石(造山带是下新上老)。但随着深度继续增加,温度会超过磷灰石 He 封闭温度,则 He 年龄会出现下降,直至为零。目前国际上的研究实例均采用将 (U-Th)/He 法与镜质体反射率、裂变径迹以及 K/Ar、Ar/Ar 等方法结合起来进行,以便利用不同矿物封闭温度的不同,对复杂热历史轨迹进行恢复。

例如邱楠生等(2010)在对塔里木盆地早古生代构造热演化进行研究时,就利用塔里木盆地钻井样品的磷灰石与锆石 (U-Th)/He 年龄数据,结合磷灰石裂变径迹和有机质镜质体反射率等古温标模拟了塔里木盆地不同井区古生代的热历史,并计算了古生代不同时期的古地温梯度。该技术为缺乏常规古温标的塔里木盆地地下古生界碳酸盐层系所经受热史的恢复提供了新方法。

5.3 古地形研究

磷灰石 He 的封闭温度约为 70°C,这一温度位于地表以下 2~3 km 处,因此磷灰石 He 年龄对该深度范围内的温度变化反映灵敏。由于地下等温面会受上覆地形的影响,尤其是近地表等温面随地形的起伏变化较大,因此 House 等(1998)利用这一特点

来研究 Sierra Nevada 山脉的地形演化历史。他们认为:在山脉抬升剥蚀过程中,古峡谷底下的岩石比山脊底下的岩石先冷却到 He 年龄封闭温度之下,所以现今同一海拔高度的 He 年龄变化可以反映古地形的变化。他们在 Nevada 山脉中部和南部海拔 2 000 m 的横断面上采集样品,测试其磷灰石 He 年龄,结果发现:样品的年龄范围为距今 44.5~84.6 Ma, San Joaquin 和 Kings 两条峡谷的 He 年龄比位于两者之间同一高程的山脊样品的 He 年龄约老 20 Ma,而且 He 年龄随距离的分布特征与该区山脊与沟谷地形间存在耦合关系,基本可视为现代地形的镜像反映。这一结果表明, San Joaquin、Kings 河流的下切始于 70~80 Ma 以前,此时内华达山脉已经形成了与现在相近的地貌格局。

5.4 其他方面的应用

磷灰石 (U-Th)/He 定年方法除了在造山带演化与盆地演化中有广泛应用外,在矿床年代学(张彦等,2008)等方面也有重要的应用。

由于 He 同位素可以保存在许多矿物中,如橄榄石、辉石、角闪石、石榴子石、锆石、磷灰石等,因此用 (U-Th)/He 方法对这些矿物进行年龄测定,为矿床年代学研究提供了新的途径。但在这些矿物中,目前只有磷灰石与锆石应用比较多,因为 He 更容易保存在这两种矿物晶体中。许多非金属矿床中都会含有磷灰石与锆石,所以可以直接用 (U-Th)/He 定年法测定成矿时代。大部分金属矿床都含有微量的 U、Th,并且其衰变产物 He 也可保存在其中。因此,用 (U-Th)/He 定年技术为金属矿床的定年提供了可能性。此外,磷灰石 (U-Th)/He 还可以用来确定金属矿床的揭顶时代,从金属矿床中挑选的磷灰石,不论其是否和金属矿物同期生成,该磷灰石的 (U-Th)/He 年龄都可能是金属矿床的揭顶年龄。

6 存在的问题

6.1 矿物中包裹体的影响

磷灰石 (U-Th)/He 定年体系是一个封闭体系,理想情况下磷灰石晶体中的 He 应全部来自 U、Th 放射性同位素的衰变,既无继承 He 也无 He 丢失。但矿物包裹体对 He 年龄的影响很难消除。因为实际的地质样品中,磷灰石中往往有许多 U、Th 含量很高的小包裹体,会造成晶体中 He 过剩从而使年龄值偏大。虽然理论上磷灰石的包裹体在显微镜下很

容易被识别出来,但在实际操作中有时难以在镜下挑选出完全没有包裹体的磷灰石颗粒(邱楠生等, 2010)。因此,在目前的实验条件下,只能尽力挑选出包裹体含量少且包裹体个体小的磷灰石晶体。也许随着技术的进步,将来能更好地处理包裹体的问题。

6.2 α 粒子输入效应的影响

磷灰石晶体外部发生的衰变可能会使一部分 α 粒子从外部射入晶体内部从而使 He 含量升高。这种情况一般只发生在距离晶体最外层表面约 20 μm 左右的地方,因此有一种方法是用化学手段或机械手段去除晶体的最外层。但这种方法并不常用。因为一般情况下磷灰石晶体周围介质的 U、Th 含量较低,所以 α 粒子输入量也很低,可选择忽略。并且,去除晶体最外层势必会使晶体变小,He 年龄的校正误差就会增大。所以在目前的测年应用中,基本未考虑 α 粒子输入效应的影响,但这种效应又确实存在,特别是当磷灰石周围介质 U、Th 含量较高时,可能会显著影响 He 年龄。

除了上述两种影响之外,还存在其他的影响因素,如晶体颗粒大小,晶体形状,U、Th 环带等,这些影响因素在不同的样品中影响程度不一样。因此在进行磷灰石(U-Th)/He 定年时,应先对待测样品进行分析,从而制定出合适的实验流程与校正方法,得出更精确的年龄。

致谢 感谢审稿人及编辑的建设性意见和细心地评阅,他们的意见对文章的改善有很大的帮助。

References

Bao Zengkuan, Yuan Wanming, Wang Shicheng, *et al.* 2005. Apatite (U-Th)/He dating and its application [J]. *Acta Petrologica et Mineralogica*, 24(2): 126~132 (in Chinese).

Chang Yuan, Liu Rui and Yang Jia. 2004. The Summarization of Fission-track Technology and Its Applications in Earth Science [J]. *Shanghai Geology*, 1: 47~53 (in Chinese).

Chang Yuan, Xu Changhai and Zhou Zuyi. 2010a. (U-Th)/He Dating Method: α -ejection Influence and Corrector [J]. *Advances in Earth Science*, 25(4): 418~427 (in Chinese).

Chang Yuan and Zhou Zuyi. 2010b. Basic Methods to Inverse Exhumation Rates Using Low-Temperature Thermochronological Data [J]. *Science & Technology Review*, 28(21): 86~94 (in Chinese).

Damon P E and Green W D. 1963. Investigations of the Helium Age Dating Method by Stable Isotope Dilution Technique, Radioactive

Dating [M]. Vienna: IAEA, 55~71.

Damon P E and Kulp J L. 1957. Determination of radiogenic helium in zircon by stable isotoped dilution technique [J]. *Transaction-American Geophysical Union*, 38: 945~953.

Farley K A, Kohn B P and Pillans B. 2002. The effects of secular disequilibrium on (U-Th)/He systematics and dating of Quaternary volcanic zircon and apatite [J]. *Earth and Planetary Science Letters*, 201: 117~125.

Farley K A, Wolf R A and Silver L T. 1996. The effects of long alpha-stopping distances on (U-Th)/He ages [J]. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 60: 4 223~4 229.

Farley K A. 2002. (U-Th)/He Dating: Techniques, Calibrations, and Application [J]. *Review in Mineralogy & Geochemistry*, 47: 819~844.

Flowers R M, Ketchamb R A, Shuster D L, *et al.* 2009. Apatite (U-Th)/He thermochronometry using a radiation damage accumulation and annealing model [J]. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 73: 2 347~2 365.

Flowers R M, Shuster D L, Wernicke B P, *et al.* 2007. Radiation damage control on apatite (U-Th)/He dates from the Grand Canyon region, Colorado Plateau [J]. *Geology*, 35: 478~450.

Hacker B R, Kelemen P B and Rioux M. 2011. Thermochronology of the Talkeetna intraoceanic arc of Alaska: Ar/Ar, (U-Th)/He, Sm-Nd, and Lu-Hf dating [J]. *Tectonics*, 30, TC1011: 1~23.

Hourigan J K, Reiners P W and Brandon M T. 2005. U-Th zonation-dependent alpha-ejection in (U-Th)/He chronometry [J]. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 69: 3 349~3 365.

House M A, Wernicke B P and Farley K A. 1998. Dating topography of the Sierra Nevada, California, using apatite (U-Th)/He ages [J]. *Nature*, 396: 66~69.

Hurley P M, Larsen E S Jr and Gottfried D. 1956. Comparison of radiogenic helium and lead in zircon [J]. *Geochim Cosmoch in Acta*, 9: 98~102.

Hurley P M. 1954. The helium age method and the distribution and migration of helium in rock [A]. *Faul H. Nuclear Geology [C]*. New York: Wiley&Sons, 301~329.

Meesters A G C A and Dunai T J. 2002a. Solving the production diffusion equation for finite diffusion domains of various shapes Part I. Implications for low-temperature (U-Th)/He thermochronology [J]. *Chemical Geology*, 186: 333~344.

Meesters A G C A and Dunai T J. 2002b. Solving the production diffusion equation for finite diffusion domains of various shapes Part II. Application to cases with α -ejection and nonhomogeneous distribution of the source [J]. *Chemical Geology*, 186: 347~363.

Mitchell S G and Reiners P W. 2003. Influence of wildfire on apatite and zircon (U-Th)/He ages [J]. *Geology*, 31: 1 025~1 028.

Qiu Nansheng, Wang Jiyang and Mei Qinghua, *et al.* 2010. Constraints of (U-Th)/He ages on early Paleozoic tectono-thermal evolution of the Tarim Basin, China [J]. *Science China: Earth Sciences*, 40(12): 1 669~1 683 (in Chinese).

Reiners P W, Ehlers T A and Zeitler P K. 2005. Past, Present, and

- Future of Thermochronology[J]. *Reviews in Mineralogy & Geochemistry*, 58: 1~18.
- Reiners P W, Spell T L, Nicolescu S, *et al.* 2004. Zircon (U-Th)He thermochronometry: He diffusion and comparisons with $^{40}\text{Ar}/^{39}\text{Ar}$ dating[J]. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 68: 1 857~1 887.
- Shuster D L and Farley K A. 2005. Diffusion kinetics of proton-induced ^{21}Ne , ^3He , and ^4He in quartz[J]. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 69: 2 349~2 359.
- Shuster D L and Farley K A. 2009. The influence of artificial radiation damage and thermal annealing on helium diffusion kinetics in apatite[J]. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 73: 183~196.
- Shuster D L, Flowers R M and Farley K A. 2006. The influence of natural radiation damage on helium diffusion kinetics in apatite[J]. *Earth and Planetary Science Letters*, 249: 148~161.
- Wolf R A, Farley K A and Kass D M. 1998. Modeling of the temperature sensitivity of the apatite (U-Th)He thermochronometer[J]. *Chemical Geology*, 148: 105~114.
- Wolf R A, Farley K A and Silver L T. 1996. Helium diffusion and low-temperature thermochronometry of apatite[J]. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 60: 4 231~4 240.
- Wolf R A. 1997. *The Development of the (U-Th)He Thermochronometry*[D]. Pasadena: California Institute of Technology.
- Xu Changhai, Zhou Zuyi, Chang Yuan, *et al.* 2010. Genesis of Daba arcuate structural belt related to adjacent basement upheavals: Constraints from Fission-track and (U-Th)He thermochronology[J]. *Science China: Earth Sciences*, 40(12): 1 684~1 696 (in Chinese).
- Zeitler P K, Herczeg A L, McDougall I, *et al.* 1987. (U-Th)He dating of apatite: a potential thermochronometer[J]. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 51: 2 865~2 868.
- Zhang Yan, Chen Wen, Yong Yong, *et al.* 2008. Application Prospect of (U-Th)He Dating in Ore Deposit Geochronology[J]. *Gold Science and Technology*, 16(4): 1~3 (in Chinese).

附中文参考文献

- 保增宽,袁万明,王世成,等. 2005. 磷灰石(U-Th)He 定年技术及应用简介[J]. *岩石矿物学杂志*, 24(2): 126~132.
- 常远,刘锐,杨嘉. 2004. 磷灰石裂变径迹技术与地学应用综述[J]. *上海地质*, 1: 47~53.
- 常远,许长海,周祖翼. 2010a. (U-Th)He 测年技术:离子射出效应及其校正[J]. *地球科学进展*, 25(4): 418~427.
- 常远,周祖翼. 2010b. 利用低温热年代学数据计算剥露速率的基本方法[J]. *科技导报*, 28(21): 86~94.
- 邱楠生,汪集旻,梅庆华,等. 2010. (U-Th)He 年龄约束下的塔里木盆地早古生代构造-热演化[J]. *中国科学:地球科学*, 40(12): 1 669~1 683.
- 许长海,周祖翼,常远,等. 2010. 大巴山弧形构造带形成与两侧隆起的关系:FT 和(U-Th)He 低温热年代约束[J]. *中国科学:地球科学*, 40(12): 1 684~1 696.
- 张彦,陈文,雍拥,等. 2008. (U-Th)He 定年技术在矿床年代学研究中的应用前景[J]. *黄金科学技术*, 16(4): 1~3.