科学通报 2014 年 第 59 卷 第 27 期：2707 ~ 2713
论 文 www.scichina.com csb.scichina.com
《中国科学》杂志社
SCIENCE CHINA PRESS

宇宙成因 ^{21}Ne 暴露测年方法的初步建立及检验

马严*, 武颖, 庞建章, 张会平, 俞晶星, 郑德文

中国地震局地质研究所, 地震动力学国家重点实验室, 北京 100029
* 联系人, E-mail: mayan82634@sohu.com

2014-05-30 收稿, 2014-06-30 接受, 2014-08-29 网络版发表
中国地震局地质研究所基本科研业务专项(IGCEA1126)和国家自然科学基金(41202132)资助

摘要 宇宙成因核素 ^{21}Ne 测年方法在地表暴露测年方面具有测年范围宽、定年材料选择范围广、测试所需样品量少、前处理过程简单等优点, 是第四纪年代学领域中一种重要的测年方法. 然而, 由于受到稀有气体质谱仪分辨能力的制约, ^{21}Ne 测年方法在国内的应用尚处于起步阶段. 本文在对质谱仪纯化系统加装超低温冷泵的基础上, 初步建立了宇宙成因核素 ^{21}Ne 测年方法的测试流程, 并分别测试了标准样 CREU-1 的 Ne 同位素含量和龙首山阶地的 ^{21}Ne 年龄, 检验了该测试流程在石英样品暴露定年方面的可行性. 该测试流程的建立, 将为宇宙成因核素 ^{21}Ne 测年方法在第四纪地质、活动构造等研究领域的应用提供重要技术支撑.

关键词
宇宙成因核素
^{21}Ne
暴露年龄
石英标准样
CREU-1
^{10}Be

稳定宇宙成因核素 ^{21}Ne 测年方法是第四纪年代学领域中一种重要的测年方法[1~5], 可用于测定地表暴露年龄并定量计算地表侵蚀、构造运动、河流下切等反映气候及构造运动影响的地表过程速率, 为第四纪地质学、地貌演化和活动构造等方面的研究提供重要的年代学技术支撑. 与放射性宇宙成因核素相比, 稳定核素 ^{21}Ne 在地表暴露定年方面具有测年范围宽、定年材料选择范围广、测试所需样品量少、前处理过程简单等优点. 放射性核素的测年上限受核素半衰期制约, 在不考虑地表侵蚀的情况下, 放射性核素 ^{10}Be 的测年上限为 3~5 Ma, ^{26}Al 为 1~2 Ma[6], 对于更长的暴露历史, 由于核素的生成和衰减接近平衡, 核素积累量不再随时间改变, 因而无法记录更长的时间. ^{21}Ne 为稳定核素, 含量不随时间衰减, 是研究十几个百万年乃至更长的地表暴露历史的有效方法[7~12]. 而地表侵蚀作用决定了 ^{21}Ne 的测年上限, 在稳态侵蚀的情况下, ^{21}Ne 也会达到稳态浓度. 如在侵蚀速率为 10 m Ma^{-1} 时, ^{21}Ne 的积累量在几十万年后达到平衡状态[8,9], 测年上限降低. 在定年对象的选择上, 除石英外, 其他诸如橄榄石、辉石、角闪石、黑云母等硅酸盐类矿物也可作为 ^{21}Ne 测年方法的定年对象[9,12,13]. 此外, 在使用惰性气体质谱仪进行 ^{21}Ne 定年分析时, 所需纯石英样品量很少, 仅 0.2~1.0 g 即可. 因此, ^{21}Ne 在地质定年中具有更为广泛的应用空间, 在地表暴露测年、地表过程速率确定等方面有着其他核素及其他定年方法不可替代的重要作用.

近年来, 稳定宇宙成因核素 ^{21}Ne 测年方法由于具有上述诸多优点, 已在地表过程速率测定[14~16]、火山活动定年[17~19]、第四纪冰川地貌定年[20~22]等诸多领域得到了广泛的应用. 2010 年, 孔屏等人[11]在宇宙成因 ^{21}Ne 测年技术方面进行了探索性研究, 使用 GV Helix 多接收气体质谱仪, 在国内首次测定了南极格罗夫山地区典型冰原岛峰——哈丁山顶部的暴露年龄.

^{21}Ne 测年方法在国内的应用尚处于起步阶段. 制约 ^{21}Ne 测年方法发展的主要因素之一是惰性气体质谱仪的分辨率. 在进行 Ne 同位素含量测定时, 由于质谱分辨率的限制, ^{40}Ar^{2+}的信号峰尚无法与 ^{20}Ne^{+} 完全分开, 成为影响 ^{20}Ne 准确测定的主要干扰因素. 这一问题可通过测量前尽可能去除真空系统中残留

引用格式: 马严, 武颖, 庞建章, 等. 宇宙成因 ^{21}Ne 暴露测年方法的初步建立及检验. 科学通报, 2014, 59: 2707–2713
Ma Y, Wu Y, Pang J Z, et al. Establishment of a measurement procedure for the cosmogenic nuclide ^{21}Ne exposure dating method (in Chinese). Chin Sci Bull (Chin Ver), 2014, 59: 2707–2713, doi: 10.1360/N972014-00353

的 Ar 或测量后对 ^{20}Ne 测量值进行 $^{40}Ar^{2+}$校正这两种途径解决. 国际上 5 个著名宇宙成因核素测年实验室曾联合进行了石英标准样的宇宙成因 ^{21}Ne 含量测定[23], 对目前 ^{21}Ne 测量所能达到的最高精度进行了分析. 其中, Berkeley 的 BGC 实验室、Zürich 的 ETH 实验室、Potsdam 的 GFZ 实验室和 Glasgow 的 SUERC 实验室这 4 所实验室的标准测试流程中, 除使用液氮冷却下的活性炭冷阱吸附除去系统中的 Ar 外, 均在气体纯化步骤中引入低温冷泵对 Ne 进行进一步纯化. 通过调节低温冷泵温度, 依次释放 He, Ne 后, 对 Ne 进行测量, 排除了残余的 Ar 等大分子惰性气体的影响. SUERC 实验室的测试数据表明[23], 经纯化处理后, $^{40}Ar^{2+}$的信号峰对 $^{20}Ne^{+}$测量的影响小于 1%. 因此, 本文对所使用的稀有气体质谱仪的纯化系统进行了改进, 安装了活性炭冷阱和 8~320 K 超低温冷泵对体系中的 Ar 进行逐步吸附分离, 明显降低了 $^{40}Ar^{2+}$对测试的影响, 成功获得了样品的 ^{21}Ne 暴露年龄. 本文将介绍 ^{21}Ne 暴露测年方法的实验流程, 以及对标准样 CREU-1 的 Ne 同位素含量分析和对龙首山阶地样品的 ^{21}Ne 测年结果.

1 测年原理与样品选取

1.1 测年原理

样品暴露于地表的过程中, 宇宙成因核素的积累量 $N(t)$与样品的暴露时间 t 及地表侵蚀速率 ε 具有以下关系

$$N(t)=\frac{P(0)}{\lambda+\rho\varepsilon/\Lambda}[1-\mathrm{e}^{-(\lambda+\rho\varepsilon/\Lambda)t}]+N(0)\mathrm{e}^{-\lambda t}, \qquad (1)$$

式中, $N(t)$是 t 时刻样品中宇宙成因核素含量(atom g^{-1}); $P(0)$为核素的生成速率(atom g^{-1} a^{-1}); ρ为岩石密度(g cm^{-3}); Λ为宇宙射线粒子的吸收自由程(attenuation coefficient) (g cm^{-2}); ε 为地表剥蚀速率(cm a^{-1}); $N(0)$为样品初始暴露地表时原地生成宇宙成因核素含量(atom g^{-1}), 即继承性组分含量; λ 为宇宙成因核素的衰变常数(a^{-1}), 对于稳定核素 ^{21}Ne 而言, 衰变常数λ趋于 0.

1.2 样品选取

石英标准样 CREU-1(19°33′S, 70°7′W, 930 m)的地表暴露历史长达 12~14 Ma, 宇宙成因 ^{21}Ne 含量丰富[24]. 国际上 5 个著名宇宙成因核素测年实验室联合测定的该标准物 ^{21}Ne 含量的平均值为(348±10)×10^{6} atom g^{-1}, 数据离散度为 7.1%(2σ)[23]. 因此, 本文首先选用石英标准样 CREU-1 进行 Ne 含量测试, 通过与国际认可数据的对比, 验证测试的可行性.

另一方面, 由于 ^{10}Be 与 ^{21}Ne 同步生成于石英中, 同时测定石英样品的 ^{10}Be 暴露年龄和 ^{21}Ne 年龄, 可以进行相互验证, 提高测试结果的可靠性. 龙首山地处我国西北干旱地区, 风化速率慢, 样品易于保存. 郑文俊等人[25]曾在该地区进行活动断裂研究, 发现该地区具有发育良好的山前洪积阶地, 因此选择了龙首山背斜南翼一处保存较为完整的阶地, 采集其中 T4 阶地地表(LSH-12-008, 38°51′19″S, 101°50′23″E, 1593 m) 及现代河床 (LSH-12-011, 38°51′13″S, 101°50′25″E, 1584 m)样品进行 ^{21}Ne 年龄测定(采样位置描述及采样照片详见图 S1~S3), 并与其 ^{10}Be 年龄对比, 以验证测试结果的可靠性, 探讨 ^{21}Ne 应用于活动断裂研究的可能性.

采集龙首山阶地地表石英样品时, 选取阶地面中部平坦区域没有明显翻滚迹象、直径<3 cm 的石英砾石, 样品由大于 50 个的石英砾石组成. 由于阶地上的岩石样品通常存在早期暴露现象, 或是在剥露和搬运等过程中接受过宇宙射线辐射而产生宇宙成因核素的积累. 为了排除这部分继承性组分的干扰, 本文假设现代河床砾石经历的风化、剥蚀、搬运以及沉积过程与冲洪积扇沉积物经历的过程类似, 通过采集现代河床中的沉积物, 测定其 ^{21}Ne 含量, 以此作为阶地样品的继承性组分含量进行初始值校正[26], 来获得阶地面的暴露年龄.

2 分析方法与流程

2.1 不同成因 Ne 的判断

石英矿物中, 除宇宙成因的 Ne 同位素组分外, 还存在捕获性组分、核成因组分等非宇宙成因的 Ne 同位素[9,11]. 其中, 捕获性组分主要包括大气、地幔或地壳等来源的气体, 在石英晶格和流体包裹体中均可能存在. 核成因 Ne 主要是通过存在于石英包裹体中的 U, Th 等元素衰变产生的α 粒子与 O 原子的 $^{18}O(\alpha, n)^{21}Ne$反应产生的; 当包裹体中富含 F 元素时, 由 $^{19}F(\alpha, n)^{22}Na(\beta^{+})^{22}Ne$反应产生的核成因 ^{22}Ne 不可忽略; 此外, 核成因 ^{21}Ne, ^{22}Ne 也可由 U 的裂变及其他(α, n)-反应产生的中子与 Mg 原子发生的(n, α)-反

应生成, 然而, 由于中子的生成量远低于α粒子, 在贫 Mg 的石英矿物中通常可以忽略. 核成因组分通常主要存在于石英的流体包裹体中. 前人的研究结果表明[27~29], 石英中的宇宙成因 Ne 在较低温度阶段释放, 通常在 800℃之前释放完全; 位于石英流体包裹体中的捕获性与核成因组分需要在较高的温度下释放. 然而, 一部分核成因组分也会在较低温度阶段释放, 并且仅含有 ^{21}Ne, Niedermann 等人[27]指出这部分组分可能为 O 元素的(α, n)-反应产生的$(^{21}Ne)_n$, 位于石英的晶格中, 因此具有与宇宙成因的 Ne 同位素相似的活化能.

另一方面, 不同成因的 Ne 组分具有各自特征的同位素比值, 该比值也可作为判断不同成因 Ne 的依据. 大气 Ne 的同位素比值为 ^{21}Ne/^{20}Ne=0.002959 和 ^{22}Ne/^{20}Ne=0.1020[30]; 宇宙成因的 ^{22}Ne 和 ^{21}Ne 在石英中的生成速率比值恒定为 1.20~1.27[27], 因此, 在 Ne 同位素比值图中(^{22}Ne/^{20}Ne 对 ^{21}Ne/^{20}Ne 作图), 大气与宇宙成因 Ne 组成斜率为 1.10~1.14[26]的宇宙成因散裂线, 这一特征可作为检验样品中过剩 ^{21}Ne 和 ^{22}Ne 是否为宇宙成因组分的标准[1,11,26]. 地壳来源的 Ne 同位素比值随岩石的组成不同而变化, 其 ^{21}Ne/^{22}Ne 比值上限为 0.47±0.01[31]; 而地幔来源的 Ne 中 ^{21}Ne 含量很少, 其中, 大洋中脊玄武岩中的 Ne (MORB-type Ne)同位素比值 ^{21}Ne/^{22}Ne 最大值在 0.07 左右, ^{20}Ne/^{22}Ne 的最大值在 13 左右[32]. 两种不同释放温度的核成因 Ne 组分具有不同的同位素特征比值[28], 如前所述, 低温阶段释放的核成因 Ne 通常仅含有 ^{21}Ne, 在 ^{22}Ne/^{20}Ne 对 ^{21}Ne/^{20}Ne 的同位素比值图中为一条平行于横坐标轴的直线; 而在高温阶段释放的核成因 Ne 的同位素比值 ^{21}Ne/^{22}Ne 近似为 1. 依据不同的释放温度和特征同位素比值, 可以区分不同成因的 Ne 组分, 从而为准确计算矿物中宇宙成因 Ne 的含量提供重要基础.

2.2 分析流程

石英样品的前处理方法参照 Kohl 和 Nishiizumi[33]的流程, 并在其基础上进行了部分优化: (1) 粉碎至粒径小于 1 mm, 经磁选, 去除大部分磁性矿物; (2) 在显微镜下挑选出含流体包裹体较少的石英颗粒, 粉碎至颗粒粒径小于 500 μm, 进行蚀刻处理; (3) 在含有 0.03% H_2O_2 的 6 mol L^{-1} 的 HCl 溶液中, 于 85℃下加热蚀刻 6 h, 除去碳酸盐、铁氧化物等矿物及有机质, 用超纯水冲洗 3~4 次后, 置于烘箱中在 60~70℃烘干; (4) 在 80℃恒温超声水浴中, 使用 5% HF 和 5% HNO_3 的混合溶液对样品进行蚀刻, 去除样品中残留的长石类矿物、以及附着在石英颗粒表面的大气成因组分等杂质, 超纯水清洗 3~4 次后于 60~70℃烘干; (5) 重复上述 HF/HNO_3 蚀刻步骤 3~4 次, 直至得到纯净的石英颗粒; (6) 在提取的纯石英颗粒中加入 1 mol L^{-1} 的 HCl 溶液, 在 85℃水浴中加热 2 h, 用高纯水反复冲洗至中性; (7) 过筛选取粒径在 125~250 μm 范围内的石英颗粒.

样品分析使用 GV5400 稀有气体质谱仪, 质谱仪配置有法拉第接收器和电子倍增器, 电子倍增器质量分辨率~650. 对氦检测灵敏度>1.5×10^{-6} A Pa^{-1}, 对氖灵敏度>3.75×10^{-6} A Pa^{-1}; 静态 ^{4}He 本底<1×10^{-15} mol; 静态 ^{20}Ne 本底<2×10^{-16} mol. 纯化系统配置有 8~320 K 低温冷泵, 可实现 He, Ne, Ar, Kr, Xe 的低温有效分离.

样品在超高真空电阻炉中加热进行宇宙成因核素 Ne 的萃取. 萃取出的气体在进行 Ne 同位素含量测定前, 先进入纯化系统进行纯化. 样品中的活性气体先后经海绵钛和 Zr-Al 泵吸附去除. 为了排除 $^{40}Ar^{2+}$ 对 $^{20}Ne^{+}$测定的干扰, 在纯化系统中增置冷阱及冷泵对体系中的 Ar 进行有效吸附去除: 首先经液氮冷却的活性炭冷阱吸附去除体系中的大部分 Ar 及 Kr, Xe 等大分子惰性气体; 随后, 样品气体在 70 K 的低温冷泵中停留 30 min, 使残余的 Ar 液化并吸附于冷泵中, 未液化的 Ne 进入质谱检测系统. 气体在邻近离子源部分再次经常温 Zr-Al 泵纯化, 进一步降低 $^{44}CO_2^{2+}$等干扰组分的影响.

为了准确排除其他组分对宇宙成因 Ne 含量分析的影响, 使用阶段升温法对样品进行 Ne 同位素含量分析[9]. 标准样 CREU-1 选取 600, 800, 1200℃3 个温度阶段加热萃取样品中的 Ne[23], 加热时间分别为 45, 45 和 20 min. 龙首山阶地样品 LSH-12-008 及相应河床样品 LSH-12-011 选取 400, 600, 800, 1200℃4 个加热温度阶段[3,23], 每个阶段的加热时间均为 30 min. 测定阶段升温实验中每个温度区间逸出的 Ne 同位素含量及比值. 将各个温度阶段逸出的 Ne 同位素比值 ^{22}Ne/^{20}Ne 对 ^{21}Ne/^{20}Ne 作图(图 1(a)和 2), 若投影点落在由空气和宇宙成因 Ne 组成的散裂线上, 表示该温度区间逸出的过剩 Ne 为宇宙成因组分.

测得样品中宇宙成因 ^{21}Ne 的含量后, 使用 MS Excel calculator Cosmocalc 程序[34]计算样品的 ^{21}Ne 暴

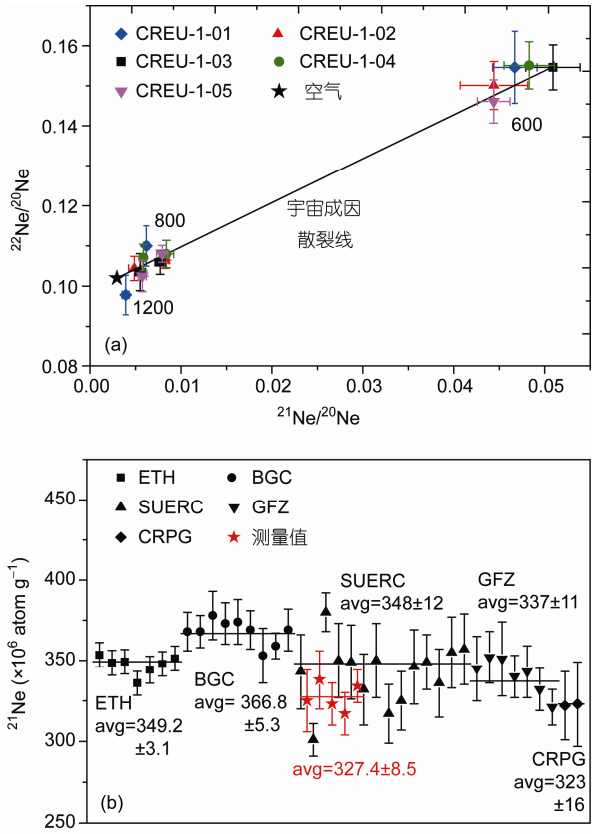


图 1 标准样 CREU-1 测量结果及其 Ne 同位素比值图

(a) 标准样 CREU-1 在不同温度阶段释放的 Ne 同位素比值. (b) 标准样 CREU-1 的测量值与 5 个宇宙成因核素测年实验室(BGC, CRPG, ETH, GFZ, SUERC)测量结果[23]的比较; avg, 平均值

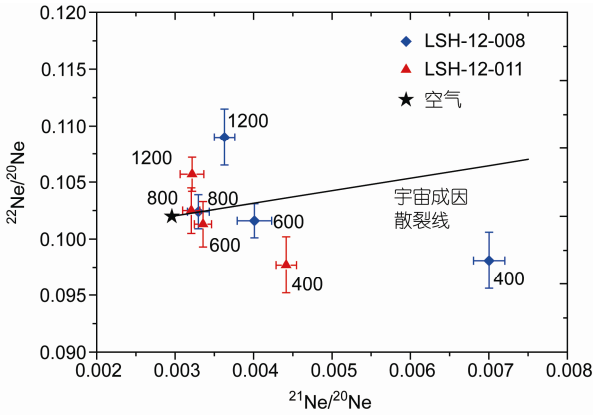


图 2 龙首山样品在各个加热温度阶段释放的 Ne 同位素比值图

露年龄. 其中, 龙首山阶地样品 LSH-12-008 中宇宙成因 ^{21}Ne 的生成速率根据 Stone[35]的生成速率换算模型进行计算, 高纬度地区海平面位置宇宙成因 ^{21}Ne 在石英中的生成速率采用 19.0±3.7 atom g^{-1} a^{-1}[36], 得到阶地石英中 ^{21}Ne 的生成速率为 63.5±3.7 atom g^{-1} a^{-1}.

3 结果与讨论

3.1 标准样 CREU-1 的 Ne 含量分析

表 1 列出了标准样 CREU-1 的多次平行测定结果, 数据均经仪器空白校正. 各个温度阶段的过剩 ^{21}Ne 含量(^{21}Ne*)按照(2)式计算得到[23]. 其中, ^{20}Ne$_m$ 是样品中 ^{20}Ne 含量的测量值; R_c 为宇宙成因 ^{21}Ne 与 ^{20}Ne 生成速率的比值, 石英中 R_c=0.8[9]; (^{21}Ne/^{20}Ne)$_m$ 为样品中 ^{21}Ne 与 ^{20}Ne 比值的测量值; R_a 为大气中的 ^{21}Ne 与 ^{20}Ne 含量比值, R_a=0.00296[30].

$$^{21}\mathrm{Ne}^* = R_c \times {}^{20}\mathrm{Ne}_m \times \left[\left(^{21}\mathrm{Ne}/^{20}\mathrm{Ne}\right)_m - R_a\right] \Big/ \left[R_c - R_a\right]. \quad (2)$$

CREU-1 在不同温度阶段逸出的 Ne 同位素比值(^{21}Ne/^{20}Ne, ^{22}Ne/^{20}Ne)如图 1(a)所示, 均落在宇宙成因散裂线上, 表明标准样释放的 Ne 除大气组分外, 均为宇宙成因组分. 计算得到的 CREU-1 宇宙成因 ^{21}Ne 含量列于表 1 中, 平均值为(327.4±8.5)×10^6 atom g^{-1}. 与国际上 5 个著名宇宙成因核素测年实验室的测定结果相比较(图 1(b))可见, 本文所得数据位于文献[23]报道的 5 组测定结果之间, 这表明了该测试流程在宇宙成因 ^{21}Ne 含量测定上的可行性.

3.2 龙首山阶地样品的 ^{21}Ne 暴露年龄测定

龙首山阶地样品 LSH-12-008 和河床样品 LSH-12-011 在不同加热温度阶段测量得到的 Ne 同位素含量及其比值见表 1. 图 2 为阶地与河床样品在各个温度阶段释放的 Ne 同位素比值投影图. 其中, 600 和 800℃温度阶段的数据在误差范围内, 基本落在宇宙成因散裂线上, 表明样品在这两个温度阶段释放的 Ne 仅由大气和宇宙成因 Ne 两种成分组成. 因此, 使用 600 和 800℃这 2 个温度阶段的数据计算样品中宇宙成因 ^{21}Ne 的含量.

样品在 400 和 1200℃温度阶段的数据均明显偏离宇宙成因散裂线. 其中, 400℃温度阶段中, 阶地与河床样品的 ^{22}Ne 与 ^{20}Ne 同位素比值 ^{22}Ne/^{20}Ne 明显低于大气中 Ne 的同位素比值((^{22}Ne/^{20}Ne)$_{air}$=0.1020)[30], 并且阶地与河床样品的 ^{22}Ne/^{20}Ne 值基本相同. 根据 Niedermann 等人[26,28]的研究结果, 造成这一现象的原因可能为石英晶体生长或重结晶过程中积累的某

表 1　样品在不同温度阶段的 Ne 同位素含量及阶地样品的 ^{21}Ne 暴露年龄

样品号	质量 (g)	温度(℃), 时间(min)	^{20}Ne ($\times10^{8}$ atom g^{-1})	^{21}Ne/^{20}Ne ($\times10^{-3}$)	^{22}Ne/^{20}Ne	过剩 ^{21}Ne[a] ($\times10^{6}$ atom g^{-1})	$^{21}Ne_{cos}$[b] ($\times10^{6}$ atom g^{-1})	$^{21}Ne_{cos\text{-}inh}$[d] ($\times10^{6}$ atom g^{-1})	^{21}Ne 暴露年龄(ka)
CREU-1-01	0.106	600, 45	61.1±2.9	46.71±2.45	0.1546±0.0140	268.3±18.9	325.3±19.1	–	–
		800, 45	152.8±5.5	6.19±0.30	0.1100±0.0052	49.5±2.9			
		1200, 20	78.2±3.9	3.92±0.39	0.0978±0.0081	7.5±0.8			
CREU-1-02	0.100	600, 45	60.0±1.3	44.42±3.71	0.1501±0.0060	248.6±20.8	337.9±21.2	–	–
		800, 45	139.1±2.5	8.27±0.42	0.1064±0.0029	73.9±3.8			
		1200, 20	81.1±2.8	4.86±0.63	0.1044±0.0038	15.4±2.0			
CREU-1-03	0.102	600, 45	49.6±0.7	50.90±3.05	0.1546±0.0056	237.8±14.7	322.8±15.7	–	–
		800, 45	145.6±2.3	7.72±0.58	0.1059±0.0030	69.3±5.2			
		1200, 20	61.4±1.5	5.51±0.58	0.1035±0.0046	15.7±1.7			
CREU-1-04	0.102	600, 45	49.3±0.6	48.29±2.77	0.1551±0.0059	223.5±13.1	316.8±14.9	–	–
		800, 45	141.0±1.9	8.39±0.79	0.1080±0.0034	76.6±7.2			
		1200, 20	57.6±0.5	5.86±0.11	0.1071±0.0033	16.7±0.3			
CREU-1-05	0.099	600, 45	58.8±1.0	44.39±1.80	0.1461±0.0054	243.7±10.7	334.0±12.1	–	–
		800, 45	147.7±1.3	7.93±0.59	0.1080±0.0021	73.4±5.5			
		1200, 20	60.6±0.6	5.75±0.44	0.1025±0.0039	16.9±1.3			
LSH-12-008	1.016	400, 30	10.13±0.07	7.00±0.20	0.0981±0.0025	4.09±0.22	14.96±0.43[c]	11.57±0.43	170.4±6.3
		600, 30	84.48±0.22	4.01±0.22	0.1016±0.0015	8.88±0.36			
		800, 30	180.47±5.37	3.29±0.14	0.1024±0.0015	6.08±0.23			
		1200, 30	31.85±0.90	3.63±0.13	0.1090±0.0025	2.14±0.08			
LSH-12-011	1.201	400, 30	4.72±0.04	4.42±0.13	0.0977±0.0025	0.69±0.03	3.39±0.04[c]	–	–
		600, 30	40.04±0.30	3.36±0.11	0.1013±0.0020	1.58±0.04			
		800, 30	73.62±0.43	3.21±0.11	0.1025±0.0020	1.81±0.02			
		1200, 30	12.57±0.06	3.22±0.15	0.1057±0.0015	0.32±0.01			

a) 过剩 ^{21}Ne 含量($^{21}Ne^{*}$), 按照(2)式计算得到; b) 宇宙成因 ^{21}Ne 的含量; c) LSH-12-008 和 LSH-12-011 样品使用 600 和 800℃两个温度阶段数据进行计算; d) 经继承性组分校正的宇宙成因 ^{21}Ne 含量

种捕获性组分, 例如地幔来源的 Ne[32]等, 使 ^{22}Ne 与 ^{20}Ne 同位素比值($^{22}Ne/^{20}Ne)_{tr}$小于大气 Ne 同位素比值($^{22}Ne/^{20}Ne)_{air}$. 阶地样品相对于河床样品的 ^{21}Ne 过剩量可能来源于位于石英晶格中的核成因($^{21}Ne)_{n}$, 该部分组分在低温阶段释放[9,28]. 另一方面, 由于样品在 400℃温度阶段 ^{21}Ne 的释放量较少(图 S5), 因此, 仪器本底以及灵敏度计算误差对该温度阶段数据的影响较其他温度阶段更为显著, 使该温度阶段数据具有较大的测量误差, 这可能也是 400℃温度阶段数据明显偏离宇宙成因散裂线的原因之一. 在 1200℃加热温度阶段中, 由于样品中宇宙成因的 Ne 同位素在 800℃之前已经基本释放完全, 样品在此温度阶段释放出的气体可能为存在于包裹体中的捕获性或核成因组分.

此外, 在计算阶地年龄前, 需对阶地样品中继承性 ^{21}Ne 组分进行校正. 如表 1 数据所示, 河床样品 LSH-12-011 中宇宙成因 ^{21}Ne 总量为$(3.39\pm0.04)\times10^{6}$ atom g^{-1}. 以河床样品中宇宙成因 ^{21}Ne 含量对阶地样品中继承性宇宙成因组分进行校正, 得到阶地样品中原地生成宇宙成因 ^{21}Ne 含量为$(11.57\pm0.43)\times10^{6}$ atom g^{-1}.

由于采样地区较为干旱, 阶地地表侵蚀速率较小, 在忽略地表侵蚀的情况下(ε=0), 得到龙首山山前洪积阶地的 ^{21}Ne 暴露年龄为 170.4±6.3 ka, 与郑文俊等人[25]测得的该阶地的 ^{10}Be 暴露年龄(142.9±13.7 ka)基本相符合(^{10}Be 暴露年龄经中国地震局地质研究所宇宙成因核素测年实验室完成制靶后, 送法国国家科学研究中心(National Center for Scientific Research)加速器质谱实验室进行 $^{9}Be/^{10}Be$ 比值测定后计算得到的. 结果尚未发表, 数据见表 S1). 这一结

果, 再次验证了该测试流程在进行 ^{21}Ne 暴露定年上的可行性.

4 结论

本文初步建立了宇宙成因核素 ^{21}Ne 定年方法的测试流程, 通过在稀有气体质谱仪 GV 5400 的纯化系统中增置活性炭冷阱和低温冷泵的方法, 明显降低了 $^{40}Ar^{2+}$对 $^{20}Ne^{+}$测定的干扰, 实现了石英样品 Ne 同位素含量的准确测定. 本文分别测定了宇宙成因 ^{21}Ne 浓度已知的石英标准样 CREU-1 和龙首山山前洪积阶地的 ^{21}Ne 年龄, 所得结果均验证了该测试流程在 Ne 同位素含量分析及 ^{21}Ne 暴露定年上的可行性.

致谢 感谢德国 Cologne 大学 Dunai T 教授提供石英标准样 CREU-1, 中国地震局地壳应力研究所吕延武老师在石英样品前处理阶段给予的指导以及评审专家提出的宝贵意见.

参考文献

1 Lal D. Cosmic ray labeling of erosion surface: *In situ* nuclide production rates and erosion models. Earth Planet Sci Lett, 1991, 104: 424–439
2 Balco G, Shuster D. Production rate of cosmogenic ^{21}Ne in quartz estimated from ^{10}Be, ^{26}Al, and ^{21}Ne concentrations in slowly eroding Antarctic bedrock surfaces. Earth Planet Sci Lett, 2009, 281: 48–58
3 Goethals M. Determining the impact of faulting on the rate of erosion in a low-relief landscape: A case study using *in situ* produced ^{21}Ne on active normal faults in the Bishop Tuff Cslifornia. Earth Planet Sci Lett, 2009, 103: 401–413
4 孔屏. 宇宙成因核素埋藏年龄法: 原理及应用. 第四纪研究, 2012, 32: 388–393
5 刘彧, 王世杰, 刘秀明. 宇宙成因核素在地质年代学研究中的新进展. 地球科学进展, 2012, 27: 386–397
6 Gosse J, Phillips F. Terrestrial *in situ* cosmogenic nuclides: Theory and application. Quat Sci Rev, 2001, 20: 1475–1560
7 Cerling T, Craig H. Geomorphology and *in-situ* cosmogenic isotopes. Auun Rev Earth Planet Sci, 1994, 22: 273–317
8 陈文寄, 计凤桔, 王非. 年轻地质体系的年代测定(续)——新方法、新进展. 北京: 地震出版社, 1999
9 Niedermann S. Cosmic-ray-produced noble gases in terrestrial rocks: Dating tools for surface processes. Rev Mineral Geochem, 2002, 47: 731–784
10 Fenton C, Niedermann S, Goethals M, et al. Evaluation of cosmogenic ^{3}He and ^{21}Ne production rates in olivine and pyroxene from two Pleistocene basalt flows, western Grand Canyon, AZ, USA. Quat Geochronol, 2009, 4: 475–492
11 孔屏, 丁林, 来庆州, 等. 南极格罗夫山地表岩石样品中宇宙成因 ^{21}Ne 的含量及暴露年龄. 中国科学: 地球科学, 2010, 40: 45–49
12 Amidon W, Farley K. Cosmogenic ^{3}He and ^{21}Ne dating of biotite and hornblende. Earth Planet Sci Lett, 2012, 313-314: 86–94
13 Kounov A, Niedermann S, Viola G, et al. Present denudation rates at selected sections of the South African escarpment and the elevated continental interior based on cosmogenic ^{3}He and ^{21}Ne. S Afr J Geol, 2007, 110: 235–248
14 Hetzel R, Niedermann S, Tao M, et al. Low slip rates and long-term preservation of geomorphic features in central Asia. Nature, 2002, 417: 428–432
15 Fujioka T, Chappell J, Honda M, et al. Global cooling initiated stony deserts in central Australia 2–4 Ma, dated by cosmogenic ^{21}Ne-^{10}Be. Geology, 2005, 33: 993–996
16 Rehak K, Niedermann S, Preusser F, et al. Late Pleistocene landscape evolution in south-central Chile constrained by luminescence and stable cosmogenic nuclide dating. Geol Soc Am Bull, 2010, 122: 1235–1247
17 Gillen D, Honda M, Chivas A, et al. Cosmogenic ^{21}Ne exposure dating of young basaltic lava flows from the Newer Volcanic Province, western Victoria, Australia. Quat Geochronol, 2010, 5: 1–9
18 Schimmelpfennig I, Williams A, Pik R, et al. Inter-comparison of cosmogenic *in-situ* ^{3}He, ^{21}Ne and ^{36}Cl at low latitude along an altitude transect on the SE slope of Kilimanjaro volcano (3°S, Tanzania). Quat Geochronol, 2011, 6: 425–436
19 Fenton C, Niedermann S. Surface exposure dating of young basalts (1–200 ka) in the San Francisco volcanic field (Arizona, USA) using cosmogenic ^{3}He and ^{21}Ne. Quat Geochronol, 2014, 19: 87–105
20 Nicola L, Strasky S, Schlüchter C, et al. Multiple cosmogenic nuclides document complex Pleistocene exposure history of glacial drifts in Terra Nova Bay (northern Victoria Land, Antarctica). Quat Res, 2009, 71: 83–92
21 Altmaier M, Herpers U, Delisle G, et al. Glaciation history of Queen Maud Land (Antarctica) reconstructed from *in-situ* produced cosmogenic ^{10}Be, ^{26}Al and ^{21}Ne. Polar Sci, 2010, 4: 42–61
22 Placzek C, Matmon A, Granger D, et al. Evidence for active landscape evolution in the hyperarid Atacama from multiple terrestrial cosmogenic nuclides. Earth Planet Sci Lett, 2010, 295: 12–20
23 Vermeesch P, Balco G, Blard P, et al. Interlaboratory comparison of cosmogenic ^{21}Ne in quartz. Quat Geochronol, 2012, doi: 10.1016/j.quageo.2012.11.009

24 Dunai T, González López G, Juez-Larré J. Oligocene-Miocene age of aridity in the Atacama Desert revealed by exposure dating of erosion-sensitive landforms. Geology, 2005, 33: 321–324
25 郑文俊, 张竹琪, 张培震, 等. 1954 年山丹 $7_{1/4}$ 级地震的孕震构造和发震机制探讨. 地球物理学报, 2013, 3: 916–928
26 Hetzel R, Niedermann S, Ivy-Ochs S, et al. ^{21}Ne versus ^{10}Be and ^{26}Al exposure ages of fluvial terraces: The influence of crustal Ne in quartz. Earth Planet Sci Lett, 2002, 201: 575–591
27 Niedermann S, Graf T, Marti K. Mass spectrometric identification of cosmic-ray-produced neon in terrestrial rocks with multiple neon components. Earth Planet Sci Lett, 1993, 118: 65–73
28 Niedermann S, Graf T, Kim J, et al. Cosmic-ray-produced ^{21}Ne in terrestrial quartz: The neon inventory of Sierra Nevada quartz separates. Earth Planet Sci Lett, 1994, 125: 341–355
29 Yatsevich I, Honda M. Production of nucleogenic neon in the Earth from natural radioactive decay. J Geophys Res, 1997, 102: 10291–10298
30 Eberhardt P, Eugster O, Marti K. A redetermination of the isotopic composition of atmospheric neon. Z Naturforsch, 1965, 20: 623–624
31 Kennedy B M, Hiyagon H, Reynolds J H. Crustal neon: A striking uniformity. Earth Planet Sci Lett, 1990, 98: 277–286
32 Sarda P, Staudacher T, Allègre C J. Neon isotopes in submarine basalts. Earth Planet Sci Lett, 1988, 91: 73–88
33 Kohl C P, Nishiizumi K. Chemical isolation of quartz for measurement of *in situ*-produced cosmogenic nuclides. Geochim Cosmochim Acta, 1992, 56: 3583–3587
34 Vermeesch P. CosmoCalc: An Excel add-in for cosmogenic nuclide calculations. Geochem Geophys Geosyst, 2007, 8: 1–14
35 Stone J. Air pressure and cosmogenic isotope production. J Geophys Res, 2000, 105: 23753–23759
36 Niedermann S. The ^{21}Ne production rate in quartz revisited. Earth Planet Sci Lett, 2000, 183: 361–364

Establishment of a measurement procedure for the cosmogenic nuclide ^{21}Ne exposure dating method

MA Yan, WU Ying, PANG JianZhang, ZHANG HuiPing, YU JingXing & ZHENG DeWen

State Key Laboratory of Earthquake Dynamics, Institute of Geology, China Earthquake Administration, Beijing 100029, China

The stable cosmogenic isotope ^{21}Ne provides an extremely powerful tool for surface exposure dating, because of its extremely wide exposure dating range, requirement for comparatively small samples (about 0.2–1.0 g), and relatively simple sample preparation process. Furthermore, in addition to quartz, ^{21}Ne analysis is applicable to many other types of silicate, such as pyroxene, olivine, and biotite. Cosmogenic ^{21}Ne has become a significant geochronological technique in Quaternary geology; however, because of the high resolution required to separate the $^{40}Ar^{2+}$ peak from that of $^{20}Ne^{+}$ in mass spectrometry, the development of the cosmogenic ^{21}Ne exposure dating technique in China is still in its early stages. A measurement procedure has been established in our laboratory for cosmogenic ^{21}Ne dating based on improvement of the purification system of the mass spectrometer by adding a cryogenic pump. A highly enriched ^{21}Ne standard material (CREU-1) and an alluvial fan surface sample from Longshou Shan, Inner Mongolia, China, were analyzed, and the data from these two samples have demonstrated the feasibility of our ^{21}Ne analytical procedure for quartz. The establishment of this neon analytical procedure provides a promising tool for the development of a cosmogenic ^{21}Ne dating method for use in many fields, such as Quaternary geology and active tectonics.

cosmogenic nuclides, ^{21}Ne, surface exposure dating, quartz standard CREU-1, ^{10}Be

doi: 10.1360/N972014-00353

补充材料

图 S1 青藏高原北部主要活动构造及龙首山断裂展布图

图 S2 阶地分布图

图 S3 阶地 T4, 现代河床 T0 地貌及 T4 阶地地表样品(LSH-12-008)采样照片

图 S4 标准物 CREU-1 在质量数 20 处的 GV 5400 惰性气体质谱仪谱图

图 S5 龙首山样品 LSH-12-008 和 LSH-12-011 在阶段升温过程中的 ^{21}Ne 释放特征图

表 S1 龙首山阶地(LSH-12-008)及河床(LSH-12-011)样品宇宙成因核素 ^{10}Be 含量及阶地样品暴露年龄

本文的以上补充材料见网络版 csb.scichina.com. 补充材料为作者提供的原始数据, 作者对其学术质量和内容负责.

1 样品采集

采样地点位于青藏高原东北部前缘与阿拉善板块交汇处的龙首山地区(图 S1). 冲沟在龙首山背斜南翼发育有至少 5 级阶地(图 S2), 其中, 较为完整的为 T1~T4. 在阶地及河床中采集粒径小于 3 cm 的地表石英砾石, 每个样品由大于 50 个的石英砾石组成. 本文中选取 T4 阶地(LSH-12-008)及河床(LSH-12-011)样品进行 ^{21}Ne 测年分析(图 S3).

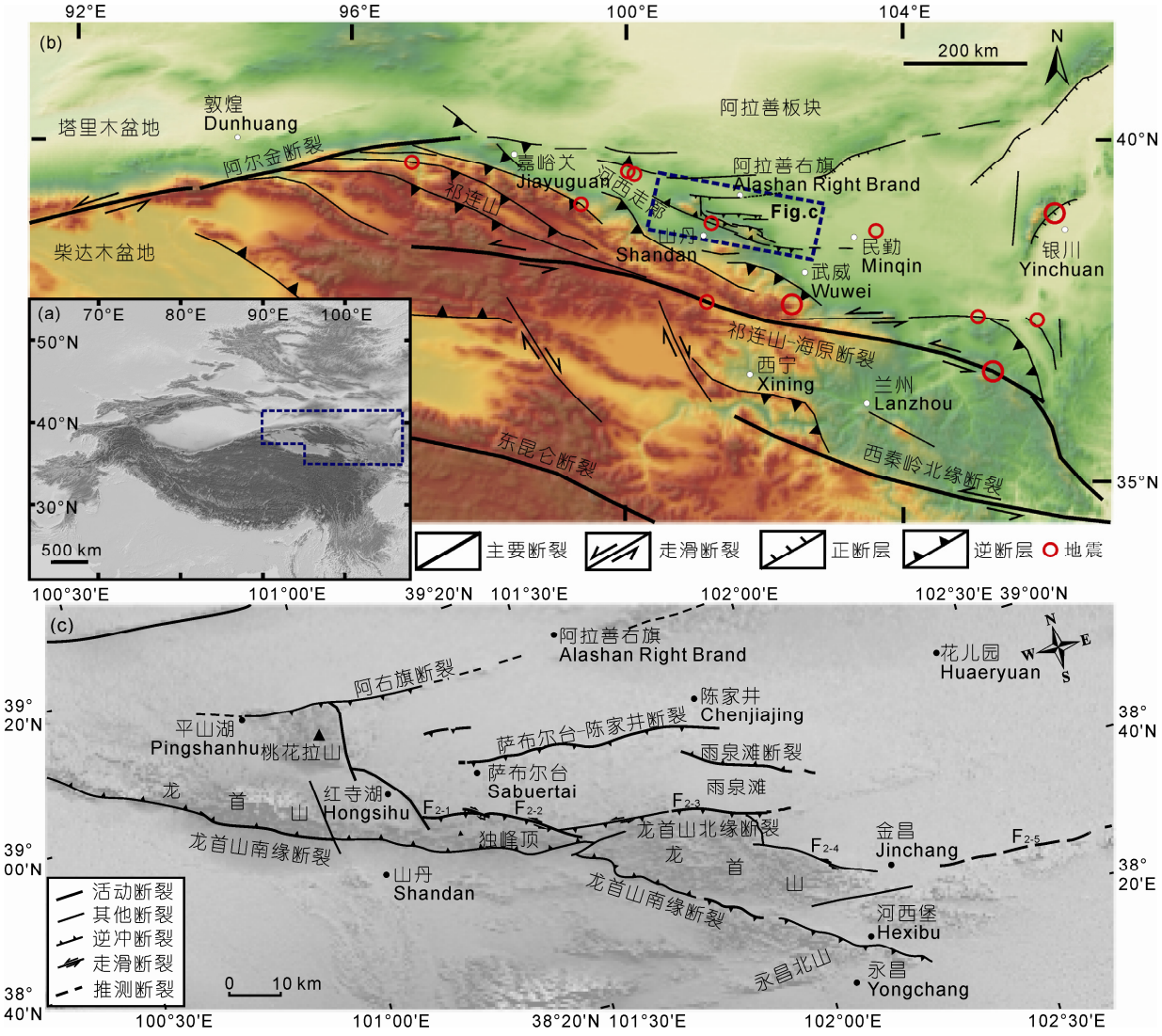


图 S1 青藏高原北部主要活动构造及龙首山断裂展布图[1]

(a) 青藏高原及周边地区地貌图, 图中蓝色短线框为图(b)的范围; (b) 青藏高原北部活动构造图像, 图中蓝色点短线框为图(c)的范围; (c) 龙首山断裂带主要断裂分布图

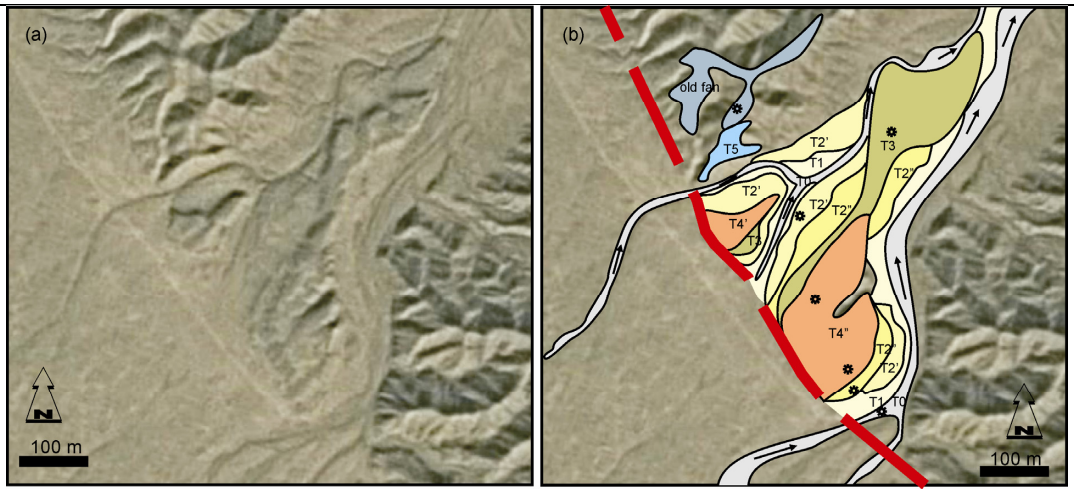


图 S2　阶地分布图

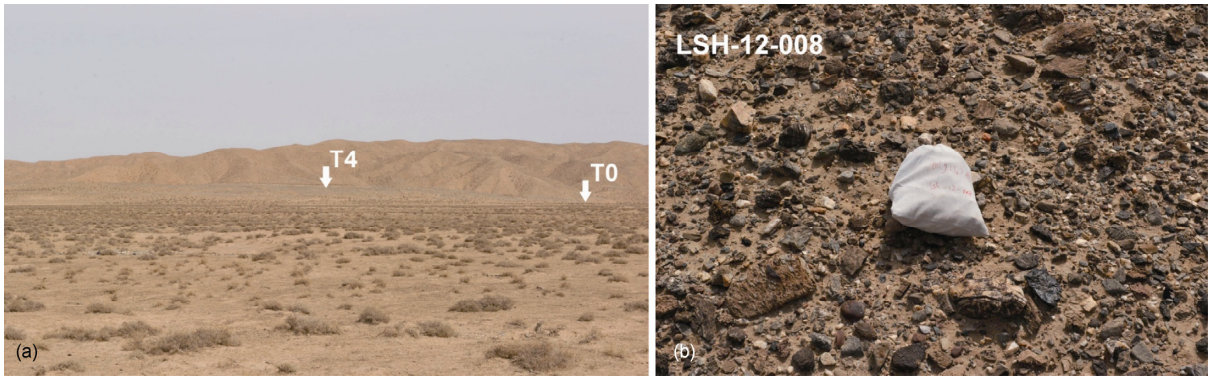


图 S3　阶地 T4, 现代河床 T0 地貌及 T4 阶地地表样品(LSH-12-008)采样照片

2　分析流程

气体在纯化系统中经活性炭冷阱和超低温冷泵纯化处理后, 明显降低了 $^{40}Ar^{2+}$对测试的影响, 图 S4 所示为标准物 CREU-1 在质量数 20 处的 GV 5400 惰性气体质谱仪谱图, 本文中所列 ^{20}Ne 计数均在谱峰高质量数一侧平台处箭头所标位置进行测量得到.

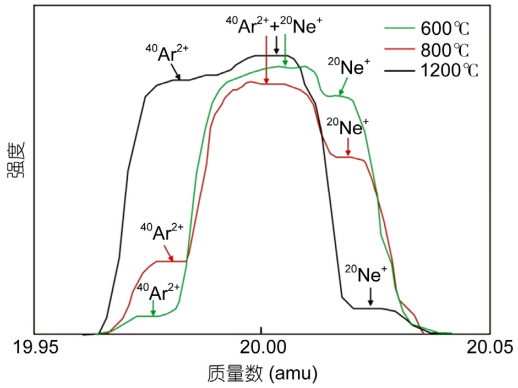


图 S4　标准物 CREU-1 在质量数 20 处的 GV 5400 惰性气体质谱仪谱图

叠加峰为 $^{40}Ar^{2+}$与 $^{20}Ne^{+}$谱峰的叠加, $^{40}Ar^{2+}$信号峰位于低质量数一侧, $^{20}Ne^{+}$信号峰位于高质量数一侧

3 测试结果与数据

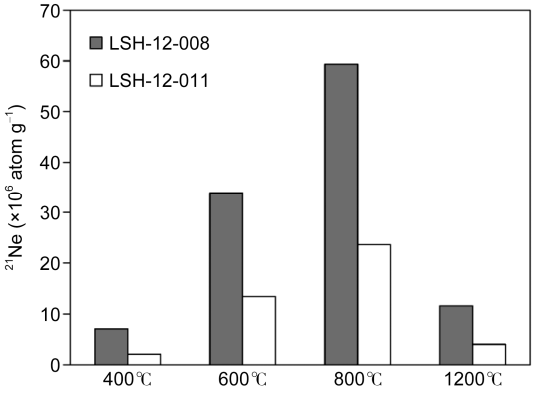


图 S5　龙首山样品 LSH-12-008 和 LSH-12-011 在阶段升温过程中的 ^{21}Ne 释放特征图

表 S1　龙首山阶地(LSH-12-008)及河床(LSH-12-011)样品宇宙成因核素 ^{10}Be 含量及阶地样品暴露年龄

样品号	海拔(m)	纬度(S)	经度(E)	质量(g)	宇宙成因 ^{10}Be 浓度 (×10^6 atom g^{-1})	宇宙成因 ^{10}Be 浓度 a) (×10^6 atom g^{-1})	^{10}Be 暴露年龄 b) (ka)
LSH-12-008	1593	38.8552°	101.8397°	33.3655	2.6460±0.0623	2.0885±0.0651	142.9±13.7
LSH-12-011	1584	38.8535°	101.8404°	22.5544	0.5575±0.0189	–	–

a) 扣除继承性组分后的样品宇宙成因 ^{10}Be 浓度. b) 使用 CRONUS-Earth online calculator[2] version 2.2 计算得到的 ^{10}Be 暴露年龄 (ε=0)

参考文献

1　郑文俊, 张竹琪, 张培震, 等. 1954 年山丹 $7_{1/4}$ 级地震的孕震构造和发震机制探讨. 地球物理学报, 2013, 3: 916–928

2　Balco G, Stone J, Lifton N, et al. A complete and easily accessible means of calculating surface exposure ages or erosion rates from ^{10}Be and ^{26}Al measurements. Quat Geochronol, 2008, 3: 174–195