“花岗岩造岩矿物⁴⁰Ar-³⁹Ar体系的 封闭温度 ≤ 500 °C”质疑

——基于角闪石-黑云母⁴⁰Ar-³⁹Ar年龄与锆石U-Pb年龄对比的 证据及Dodson's公式存在问题剖析

章邦桐, 凌洪飞, 吴俊奇

内生金属矿床成矿机制研究国家重点实验室, 南京大学 地球科学与工程学院, 南京 210093

摘要:通过国内外花岗岩体的412对角闪石-黑云母⁴⁰Ar-³⁹Ar年龄(t_{Ar})与锆石U-Pb年龄(t_{Zr})之间差值 $\Delta t_{Zr-Ar}(t_{Zr}-t_{Ar})$ 进行的频数统计分析表明: Δt_{Zr-Ar} 呈对称正态分布(偏度系数 $C_{SK}=-0.276$,峰度系数 $C_{KU}=16.52$); Δt_{Zr-Ar} 既呈正值又有负值,其众数值为0.70 Ma,均值为1.15 Ma。采用最小二乘法计算,花岗岩体锆石U-Pb年龄与花岗岩角闪石-黑云母⁴⁰Ar-³⁹Ar年龄拟合出相关系数很高($R=0.996$),回归系数接近1的线性回归方程($t_{Ar}=1.00453 \times t_{Zr}-1.932$)。这些统计特征表明花岗岩角闪石-黑云母⁴⁰Ar-³⁹Ar定年测定结果与锆石U-Pb定年测定结果在允许的误差范围内是一致的,不存在花岗岩锆石U-Pb年龄 $>$ 角闪石⁴⁰Ar-³⁹Ar年龄 $>$ 黑云母⁴⁰Ar-³⁹Ar年龄的规律。结合Dodson's矿物封闭温度计算公式中存在问题的剖析,本文得出结论,按Dodson's公式计算得出的花岗岩矿物⁴⁰Ar-³⁹Ar封闭温度不能代表从花岗岩浆晶出造岩矿物⁴⁰Ar-³⁹Ar体系的封闭温度。

关键词:花岗岩体;角闪石-黑云母⁴⁰Ar-³⁹Ar年龄;花岗岩锆石U-Pb年龄;封闭温度;Dodson's公式

中图分类号:P591 文章编号:1007-2802(2015)01-0093-08 doi:10.3969/j.issn.1007-2802.2015.01.011

Comments on “The Closure Temperature of ⁴⁰Ar-³⁹Ar Isotopic System of the Rock-Forming Minerals for Granite ≤ 500 °C”: Based on Evidence of Comparison Between the Hornblende-Biotite ⁴⁰Ar-³⁹Ar Ages and the Zircon U-Pb Ages of Granite Plutons and the Query for the Dodson's Formula

ZHANG Bang-tong, LING Hong-fei, WU Jun-qi

State Key Laboratory for Mineral Deposits Research, School of Earth Sciences,
Nanjing University, Nanjing 210093, China

Abstract: The frequency statistics analysis was conducted for 412 pairs of difference values Δt_{Zr-Ar} between the hornblende-biotite ⁴⁰Ar-³⁹Ar ages (t_{Ar}) and zircon U-Pb ages (t_{Zr}) of granite plutons worldwide. The result indicated that the $\Delta t_{Zr-Ar}(t_{Zr}-t_{Ar})$ displays a symmetrical normal distribution with a skewness coefficient of $C_{SK}=-0.267$ and a kurtosis coefficient of $C_{KU}=16.52$ in the histogram, both positive and negative t_{Zr-Ar} values were observed and their mode and mean are 0.70 Ma and 1.15 Ma, respectively. Using the least square regression procedure, a best liner regression equation ($t_{Ar}=1.00453 \times t_{Zr}-1.932$) was fitted for zircon U-Pb ages (t_{Zr}) and hornblende-biotite ⁴⁰Ar-³⁹Ar ages (t_{Ar}) of granite plutons with a correlation coefficient as high as $R=0.996$ and a regression coefficient closed to 1. These statistical analysis characteristics indicated that the hornblende-biotite ⁴⁰Ar-³⁹Ar dating results are consistent with zircon U-Pb dating results for granites within the permissible error, therefore the rule of hornblende ⁴⁰Ar-³⁹Ar dating ages $>$ biotite ⁴⁰Ar-³⁹Ar dating ages is not statistically correct. It implicated that the ⁴⁰Ar-³⁹Ar closure temperature of hornblende-biotite is same as the U-Pb closure temperature of zircon. Based on these statistic analyses and the query for Dodson's Formula, it is concluded that the closure temperature of ⁴⁰Ar-³⁹Ar isotope system estimated by the Dodson's formula cannot represent the closure temperature of ⁴⁰Ar-³⁹Ar isotope system in the rock-forming minerals crystallized from the granite magma.

Key words: granite pluton; hornblende-biotite ⁴⁰Ar-³⁹Ar age; zircon U-Pb age; closure temperature; Dodson's formula

收稿日期:2014-03-04 收到,2014-03-29 改回

基金项目:中国核工业地质局十二五科技项目(2011-D03);内生金属矿床成矿机制研究国家重点实验室开放项目(2008-I-04)

第一作者简介:章邦桐(1934-),教授,博士生导师,研究方向:核能地质及成矿理论. E-mail: Zhangbt304@163.com.

在花岗岩的各种同位素定年方法中,花岗岩造岩矿物(角闪石、黑云母、白云母、钾长石等)⁴⁰Ar-³⁹Ar法是当今应用得较广泛、可信度高的同位素定年方法之一。这是因为花岗岩造岩矿物⁴⁰Ar-³⁹Ar法的特点在于:①克服了K-Ar法由于样品受到后期热事件扰动发生Ar丢失而导致样品K-Ar年龄偏低的缺点;②通过分阶段加热技术不仅可以获得不同温度的年龄谱,而且所测得的坪年龄可以准确地给出所测矿物冷却至相应封闭温度时记录的(表面)年龄值(Mcdoughal and Harrison, 1999)。根据Dodson(1973)提出的关于同位素体系封闭温度的概念,不同的同位素体系(或同一同位素体系的不同矿物)具有相应的封闭温度。在研究花岗岩的热演化史时,可以根据花岗岩不同矿物同位素定年结果及对应的封闭温度计算出相应时段岩体的冷却速率。因此,花岗岩各种造岩矿物⁴⁰Ar-³⁹Ar体系的封闭温度是研究花岗岩热演化史的重要参数之一。

据国内外文献报道,花岗岩含钾造岩矿物⁴⁰Ar-³⁹Ar同位素体系的封闭温度分布范围很广(表1):角闪石⁴⁰Ar-³⁹Ar同位素体系的封闭温度为500±50℃;白云母为400±50℃,黑云母为300±25℃;斜长石为176±50℃;钾长石约为150℃。这表明存在花岗岩角闪石⁴⁰Ar-³⁹Ar封闭温度>白云母⁴⁰Ar-³⁹Ar封闭温度>黑云母⁴⁰Ar-³⁹Ar封闭温度>斜长石⁴⁰Ar-³⁹Ar封闭温度>钾长石⁴⁰Ar-³⁹Ar封闭温度的规律。这一规律现已在国内外花岗岩热年代学研究中得到广泛应用,成为当今花岗岩热年代学研究中计算花岗岩冷却速率的重要参数。可是笔者从实验岩石学研究了解到,花岗岩熔体的固相线温度一般为650℃左右(Luth *et al.*, 1964; Harrison and Armstrong, 1979),这表明在温度低于650℃条件下,角闪石、黑云母、钾长石等硅酸盐类造岩矿物已

全部结晶固结,意味着元素(或同位素)已基本停止交换,即处于封闭状态。与此同时,这些造岩矿物中由⁴⁰K通过K层电子俘获形成的⁴⁰Ar将随同K离子一起被封存在由硅-氧四面体组成的结晶格架之中。在化学成分方面,角闪石及黑云母含有OH⁻(结构水),而长石则为不含OH⁻。但从前人有关花岗岩造岩矿物⁴⁰Ar-³⁹Ar封闭温度的上述研究成果可知,花岗岩造岩矿物的⁴⁰Ar-³⁹Ar封闭温度均不超过500℃,而且斜长石、钾长石的⁴⁰Ar-³⁹Ar封闭温度(<200℃)远低于角闪石、黑云母的⁴⁰Ar-³⁹Ar封闭温度(500℃, 350℃)。这一现象使笔者对上述花岗岩含钾造岩矿物的⁴⁰Ar-³⁹Ar封闭温度,特别是长石的⁴⁰Ar-³⁹Ar封闭温度产生了严重的质疑。

目前国内外在花岗岩热年代学研究中一般采用花岗岩锆石U-Pb年龄与造岩矿物(角闪石、黑云母)年龄差值计算花岗岩高温阶段的冷却速率。因此,笔者认为有必要对上述花岗岩角闪石、黑云母⁴⁰Ar-³⁹Ar体系封闭温度的分布规律进行验证。为此,本文拟从两方面进行验证和分析讨论:①由放射性同位素年代学理论得知,花岗岩各种矿物同位素年龄实际上表征的是花岗岩浆冷却达到该矿物放射性同位素体系封闭温度时的冷却年龄。这意味着同一花岗岩体中放射性同位素封闭温度较高的造岩矿物应具有较高的冷却年龄。换言之,可以采用判明花岗岩体中是否存在锆石U-Pb年龄>角闪石⁴⁰Ar-³⁹Ar年龄>白云母⁴⁰Ar-³⁹Ar年龄>黑云母⁴⁰Ar-³⁹Ar年龄>斜长石⁴⁰Ar-³⁹Ar年龄>钾长石⁴⁰Ar-³⁹Ar年龄规律的方法,检验花岗岩角闪石、黑云母的⁴⁰Ar-³⁹Ar封闭温度不超过500℃的规律;②剖析讨论前人研究花岗岩造岩矿物⁴⁰Ar-³⁹Ar封闭温度时采用的Dodson's计算公式中存在的问题。

表1 花岗岩造岩矿物的⁴⁰Ar-³⁹Ar封闭温度及引用文献

Table 1 Closure temperatures of granite rock-forming mineral and their references

矿物	⁴⁰ Ar- ³⁹ Ar 封闭温度	引用文献
角闪石	5.00±50℃	Dallmeyer and VanBreman, 1981; Harrison, 1981; Farrar <i>et al.</i> , 1997; Moller <i>et al.</i> , 2000; Chakugal <i>et al.</i> , 2004; 王强等, 2005; Dahl and Foland, 2008; Wells and Hoisch, 2008; Wang and Li, 2008; 陈宣华和尹安, 2009; Betsi <i>et al.</i> , 2012; 陈刚等, 2012; Davis <i>et al.</i> , 2012; Deng <i>et al.</i> , 2012; 孙金凤等, 2012
白云母	400±50℃	Dallmeyer and VanBreman, 1981; Dunlap, 1997; Farrar <i>et al.</i> , 1997; Moller <i>et al.</i> , 2000; Chakugal <i>et al.</i> , 2004; Wang and Li, 2008; 陈宣华和尹安, 2009; Meinhold, 2010; 赵希林等, 2013
黑云母	3.00±25℃	Dallmeyer and VanBreman, 1981; Harrison <i>et al.</i> , 1985; Farrar <i>et al.</i> , 1997; Moller <i>et al.</i> , 2000; 马铁球等, 2006; Alleger, 2008; Emmel <i>et al.</i> , 2008; Wells and Hoisch, 2008; Wang and Li, 2008; 陈宣华和尹安, 2009; Meinhold, 2010; Mao <i>et al.</i> , 2010; Betsi <i>et al.</i> , 2012; 陈刚等, 2012; Davis <i>et al.</i> , 2012; Deng <i>et al.</i> , 2012; 孙金凤等, 2012
钾长石	150±25℃	Harrison and McDougall, 1982; McDougall and Harrison, 1999; Moller <i>et al.</i> , 2000; Alleger, 2008; Wang and Li, 2008; Mao <i>et al.</i> , 2010; 赵希林等, 2013
斜长石	176±54℃	Berger and York, 1981; Alleger, 2008; 王永磊等, 2012

1 花岗岩角闪石-黑云母 $^{40}\text{Ar}-^{39}\text{Ar}$ 年龄与锆石 U-Pb 年龄对比研究

鉴于近年来已积累了较多花岗岩体的锆石 U-Pb 年龄及角闪石-黑云母 $^{40}\text{Ar}-^{39}\text{Ar}$ 年龄的数据,这为采用数理统计分析方法判断是否存在花岗岩锆石 U-Pb 年龄大于角闪石-黑云母 $^{40}\text{Ar}-^{39}\text{Ar}$ 年龄的规律提供了条件。本文根据新收集的 412 对国内外花岗岩锆石 U-Pb 年龄、花岗岩角闪石-黑云母 $^{40}\text{Ar}-^{39}\text{Ar}$ 年龄数据,探讨是否存在“花岗岩锆石 U-Pb 同位素年龄大于花岗岩角闪石-黑云母 $^{40}\text{Ar}-^{39}\text{Ar}$ 年龄”及“花岗岩角闪石 $^{40}\text{Ar}-^{39}\text{Ar}$ 年龄 > 黑云母 $^{40}\text{Ar}-^{39}\text{Ar}$ 年龄”的规律?

1.1 412 对锆石 U-Pb 年龄及角闪石-黑云母 $^{40}\text{Ar}-^{39}\text{Ar}$ 年龄数据基本概况

为了探讨花岗岩体的锆石 U-Pb 年龄和角闪石-黑云母 $^{40}\text{Ar}-^{39}\text{Ar}$ 年龄的相关性,本文将对 412 对花岗岩锆石 U-Pb 年龄和角闪石-黑云母 $^{40}\text{Ar}-^{39}\text{Ar}$ 年龄数据进行数理统计分析。由于这些数据是所讨论问题的基础,现将它们的基本特征归纳于下:

(1) 这 412 对数据均为在国内外核心刊物上正式发表的同位素年龄数据,都是有关作者经过野外实地调研、选取有代表性的新鲜未蚀变的岩石样品,再经室内详细测试得出而且经过有关专家审核,因此是可信、可正式引用的。为保证引用数据的质量,本文引用的年龄数值误差未超出允许范围 ($\pm 10\%$)、相关性好 ($\text{MSWD} < 20$, 或 $R > 0.99$)。但为保证数据的客观性,笔者没有剔除那些锆石 U-Pb 年龄与矿物 $^{40}\text{Ar}-^{39}\text{Ar}$ 年龄相差较大或锆石 U-Pb 年龄小于矿物 $^{40}\text{Ar}-^{39}\text{Ar}$ 年龄的数据对,因为统计分析的前提是一定要客观收集所有的测试数据,否则就有人为挑选数据之嫌,不符合统计要求;

(2) 参加本文统计分析的 412 个数据对中,黑云母-锆石和角闪石-锆石分别为 247 对和 165 对,远大于统计学要求的最低样本数 ($n \geq 30$),因此本文得出的结论将是可信的;

(3) 从岩体的同位素年龄的时间分布来看,所对比的花岗岩体具多时代形成特征,有新生代、中生代、古生代及元古代的花岗岩体;

(4) 所对比花岗岩体分布范围很广,不仅遍及中国华南、华东、华北、西北、新疆、西藏等地区,而且包括了美国、俄罗斯、德国、加拿大、土耳其、南极、希腊等的花岗岩体;

(5) 花岗岩类型较齐全,有黑云母花岗岩、二云母花岗岩、二长花岗岩、石英闪长岩、花岗闪长

岩、正长岩、闪长岩、碱性花岗岩、斜长花岗岩等各种类型的花岗岩。

本文将这 412 对花岗岩锆石 U-Pb 年龄和角闪石-黑云母 $^{40}\text{Ar}-^{39}\text{Ar}$ 年龄数据、测试方法及岩体的相关地质简况一并列表,但由于该表所占篇幅很大,因此将该表及数据来源文献作为附录(附录:表 A 及参考文献)列出。该附录将刊于《岩石矿物地球化学通报》网络版。

1.2 花岗岩锆石 U-Pb 年龄与角闪石-黑云母 $^{40}\text{Ar}-^{39}\text{Ar}$ 年龄差值 ($\Delta t_{\text{Zr-Ar}}$) 的频数分析

为了验证前述关于花岗岩锆石 U-Pb 年龄大于角闪石-黑云母 $^{40}\text{Ar}-^{39}\text{Ar}$ 年龄的规律,笔者首先对花岗岩 412 对锆石 U-Pb 年龄 (t_{Zr}) 与角闪石-黑云母 $^{40}\text{Ar}-^{39}\text{Ar}$ 年龄 (t_{Ar}) 差值 ($\Delta t_{\text{Zr-Ar}}$) 进行频数分析。其思路是,如果花岗岩锆石 U-Pb 年龄确实大于花岗岩角闪石-黑云母 $^{40}\text{Ar}-^{39}\text{Ar}$ 年龄,那么两者之差 $\Delta t_{\text{Zr-Ar}} (t_{\text{Zr}} - t_{\text{Ar}})$ 应为正值,而且在频数分布曲线上出现明显的正偏差。

根据花岗岩 412 对锆石 U-Pb 年龄与角闪石-黑云母 $^{40}\text{Ar}-^{39}\text{Ar}$ 年龄差值 ($\Delta t_{\text{Zr-Ar}}$),以横坐标为 $\Delta t_{\text{Zr-Ar}}$,纵坐标为频数作出频数分布直方图及相应的概率密度函数曲线示于图 1,并将频数分析所得的有关参数列于表 2。从表 2 及图 1 我们得出以下几点重要的认识:

(1) 花岗岩 412 个 $\Delta t_{\text{Zr-Ar}}$ 值的变化范围从 +77 ~

图 1 412 个花岗岩锆石 U-Pb 年龄与角闪石-黑云母 $^{40}\text{Ar}-^{39}\text{Ar}$ 年龄差值 ($\Delta t_{\text{Zr-Ar}}$) 直方图及其概率密度函数曲线

Fig.1 Histogram and PDF (probability density function) curve for 412 age differences ($\Delta t_{\text{Zr-Ar}}$)

between the zircon U-Pb ages and the hornblend-biotite $^{40}\text{Ar}-^{39}\text{Ar}$ ages for granite plutons

表 2 412 个花岗岩 Δt_{Zr-Ar} 频数分析特征参数Table 2 Characteristic parameters of the frequency analysis of 412 age differences (Δt_{Zr-Ar}) for granite plutons

样本数 N	最小值 (Ma)	最大值 (Ma)	均值 (Ma)	众数 (Ma)	标准差 σ	偏度系 数 C_{SK}	峰度系 数 C_{KU}
412	-74.70	77	1.155	0.70	10.04	-0.276	16.52

-74.7 Ma, Δt_{Zr-Ar} 既存在表明锆石 U-Pb 年龄大于角闪石-黑云母 ⁴⁰Ar-³⁹Ar 年龄的正值 (+0.05 ~ +77.0 Ma), 也存在表明锆石 U-Pb 年龄小于角闪石-黑云母 ⁴⁰Ar-³⁹Ar 年龄的负值 (-0.1 ~ -74.7 Ma)。在同位素年代学中常将同一个岩体角闪石或黑云母的 ⁴⁰Ar-³⁹Ar 年龄大于锆石 U-Pb 年龄的结果, 解释为有过剩氩的存在。但 Δt_{Zr-Ar} 为负值的样本数为 173 个, 约占总样本数的 42%, 而且 Δt_{Zr-Ar} 的相对年龄差值 ($\Delta t_{Zr-Ar} / t_{Zr}$) < 10%, 因此用“过剩氩的存在”来解释是不合理的。

(2) 从频数分析中可以得到均值和众数 2 个重要的统计参数 (表 2)。均值即算术平均易受到“极端数值” (即非常大或非常小的变量值) 的影响。众数表征的是出现频数最多的 Δt_{Zr-Ar} 值, 它的特点是不受“极端数值”的影响, 可代表所统计样本的集中趋势。从表 2 可见, 412 个样本频数分析得到的众数为 0.7 Ma, 均值为 1.155 Ma, 两者的差值甚小, 仅为 0.455 Ma。

(3) 412 个花岗岩 Δt_{Zr-Ar} 值的频数分布直方图呈两端低、中间高, 两侧呈对称分布, 用于度量分布不对称程度的偏度系数 (C_{SK}) 为 -0.276, 低于标准正态分布曲线的临界值 $C_{SK} = \pm 0.4383$ 。这表明花岗岩体 Δt_{Zr-Ar} 值服从正态分布, 意味着 Δt_{Zr-Ar} 的变化属偶然因素支配, 不存在花岗岩锆石 U-Pb 年龄大于角闪石-黑云母 ⁴⁰Ar-³⁹Ar 年龄的正偏差。

1.3 花岗岩锆石 U-Pb 年龄与角闪石-黑云母 ⁴⁰Ar-³⁹Ar 年龄的线性回归分析

为了探讨花岗岩锆石 U-Pb 年龄值与角闪石-黑云母 ⁴⁰Ar-³⁹Ar 年龄值之间的相关性, 本文将花岗岩体 412 个成对的锆石 U-Pb 年龄值和角闪石-黑云母 ⁴⁰Ar-³⁹Ar 年龄值投影在 2 种年龄值的坐标图上 (图 2)。从该图可见以下特征: ① 投影点的分布呈良好的线性相关 ($R = 0.996$); ② 所统计花岗岩体的年龄值的时间分布区间很宽, 由新生代到晚元古代, 因而具有广泛的代表性; ③ 不存在偏离拟合直线较远的异常值, 这意味着在进行拟合分析时没有受到异常值的干扰。

将花岗岩 412 个成对的锆石 U-Pb 年龄值和角

图 2 412 对花岗岩锆石 U-Pb 年龄值与角闪石-黑云母 ⁴⁰Ar-³⁹Ar 年龄值的相关图Fig.2 Correlation diagram between 412 couples of zircon U-Pb ages and hornblende-biotite ⁴⁰Ar-³⁹Ar ages for granite plutons

闪石-黑云母 ⁴⁰Ar-³⁹Ar 年龄值拟合的线性回归参数列于表 3。所作的线性拟合具有以下特征:

表 3 412 对花岗岩体锆石 U-Pb 年龄及角闪石-黑云母 ⁴⁰Ar-³⁹Ar 年龄拟合的线性回归参数Table 3 Linear regression parameters fitted to 412 couples of zircon U-Pb ages and hornblende-biotite ⁴⁰Ar-³⁹Ar ages for granite plutons

拟合对象	斜率	截距	相关系数 R	95% 置信区间 (斜率)	
				下界	上界
花岗岩锆石 U-Pb 年龄及角闪石-黑云母 ⁴⁰ Ar- ³⁹ Ar 年龄	1.00453	-1.932	0.996	0.995	1.014

(1) 利用最小二乘法, 拟合出花岗岩锆石 U-Pb 年龄 (t_{Zr}) 对角闪石-黑云母 ⁴⁰Ar-³⁹Ar 年龄 (t_{Ar}) 的线性回归方程为:

$$t_{Ar} = 1.00453 \times t_{Zr} - 1.932 \quad (1)$$

(2) 所拟合的回归系数为 1.0045 即斜率接近 1, 这意味着花岗岩体角闪石-黑云母 ⁴⁰Ar-³⁹Ar 年龄与锆石 U-Pb 年龄是基本一致的。

(3) 拟合方程 (1) 的相关系数很高 ($R = 0.996$), 表明它们具有很好的相关性。

(4) 回归系数 T 检验表明, 95% 的置信区间为 0.995 ~ 1.014, 不包含 0 值, 这表明该回归的线性关系在总体水平上是成立、合理的。

从图 2 及表 3 可知,412 对花岗岩锆石 U-Pb 年龄及角闪石-黑云母 ⁴⁰Ar-³⁹Ar 年龄的线性回归分析表明它们之间存在斜率接近 1,而且该线性回归方程的常数项为-1.932 Ma,从而表明花岗岩体角闪石-黑云母 ⁴⁰Ar-³⁹Ar 年龄与锆石 U-Pb 年龄基本上是一致的。

2 Dodson's 封闭温度计算公式中存在的问题的剖析

Dodson(1973) 提出的有关地质年代学体系封闭温度 (T_c) 的计算公式为:

$$T_c = R/[E \ln(A\tau D_0/a^2)] \quad (2)$$

式中: R 为气体常数; E 为活化能; A 为矿物形状的几何系数; D_0 为扩散频率因子 (diffusion frequency factor); a 为有效扩散半径; T_c 为封闭温度 (K); τ 为时间常数 ($\tau = -RT^2/(EdT/dt)$)

Dodson's 公式(式 2) 中的扩散频率因子 D_0 是计算矿物样本封闭温度的关键参数。从物理化学得知, D_0 与扩散系数 (D) 与及温度 (T) 的关系一般遵循 Arrhenius 关系式:

$$D = D_0 \exp(-E/RT) \quad (3)$$

式中: D 为扩散系数; D_0 为频率因子; Q 为活化能; R 为气体常数; T 为温度。

由式(3)得知:①可以根据一定温度条件下实验测定的元素 D 值,代入 Arrhenius 关系式求得 D_0 ;②在 Arrhenius 图解(即 $\ln D - 1/T$ 图)中 $\ln D$ 与 $1/T$ 呈线性关系。由此可知,应用 Dodson's 公式的重要前提是花岗岩矿物 ⁴⁰Ar 扩散系数与温度的关系遵循 Arrhenius 关系式 ($D = D_0 \exp^{-E/RT}$),即在 Arrhenius 图解中 $\ln D$ 与 $1/T$ 呈线性关系。

2.1 花岗岩体的冷却速率与岩体尺度呈负相关关系

据现有花岗岩资料分析,花岗岩体是一个有限尺度的地质体。根据热物理学的冷却规律,即在同等热传导条件下,热物体体积愈大则其冷却所需的时间愈长,冷却速率也愈小。由此可见,花岗岩的冷却速率与其体积尺度密切相关。花岗岩浆侵位到地壳内部后的冷却-结晶过程实质上是花岗岩浆从初始温度 (T_m),通过热传导向周围地质体传递(散失)热量而逐渐降温的热动力学地质过程。因此花岗岩体的体积愈大则需要通过热交换散失的热量就愈大,其冷却的时间,即侵位结晶时差 (Δt_{ECTD}) 就愈长,相应的冷却速率就愈小。影响花岗岩浆冷却-结晶时间的因素虽然较多,但据现有花岗岩资料

分析,只有代表花岗岩体积的地表出露面积相差最为悬殊,可达 4 个数量级(从千余平方公里到不足 1 平方公里),而其余参数如花岗岩浆的初始温度、结晶温度、侵位深度、围岩温度等变化只在同一数量级内波动。为了比较花岗岩体积大小对花岗岩体冷却速率的影响,笔者采用与南岭地区骑田岭岩体同样的花岗岩热物理参数(章邦桐等,2010),对不同地表出露面积的花岗岩体,按立方体数学模型计算出岩体冷却结晶固结所需要的时间 (Δt_{ECTD}) 及冷却速率 (CR_{ECTD}) 列于表 4 并示于图 3。

表 4 不同面积花岗岩体的 $CR_{Zr-Ar}, \Delta t_{col}, \Delta t_L, \Delta t_A, \Delta t_{ECTD}$
Table 4 $CR_{Zr-Ar}, \Delta t_{col}, \Delta t_L, \Delta t_A, \Delta t_{ECTD}$ for granite plutons with different outcrop areas

岩体出露面积 (km ²)	Δt_{col}	Δt_L	Δt_{ECTD}	CR_{ECTD} (°C/Ma)
5000	39.2Ma	25.3Ma	64.5Ma	5.4
1000	7.83Ma	5.06Ma	12.9Ma	27.1
500	3.92Ma	2.53Ma	6.45Ma	54.3
100	0.783Ma	0.505Ma	1.28Ma	271.3
10	79200a	51119a	130319a	2713
1	7830a	5054a	12884a	27132

注: CR_{ECTD} 为冷却速率; Δt_{col} 为花岗岩岩浆由初始温度降至结晶温度所需的时间; Δt_L 为由于结晶潜热释放而延长的结晶时间; Δt_{ECTD} 为花岗岩的侵位结晶时差。

图 3 不同出露面积花岗岩体的 $D-CR_{ECTD}$ 关系图

Fig.3 $D-CR_{ECTD}$ diagram for granite plutons with different outcrop areas

从表 4 及图 3 可见,花岗岩体的冷却速率与岩体体积尺度(以 1/2 边长 D 为代表)呈明显的负相关,并拟合呈良好的幂函数关系,其函数方程为:

$$CR_{ECTD} = 6839.5 \times D^{-2.0027} \quad (4)$$

式中: CR_{ECTD} 为花岗岩体冷却速率; D 为 1/2 边长。

前述国内外花岗岩热年代学研究中引用的矿物封闭温度均为采用 Dodson's 公式计算的结果。但笔者注意到,国内外学者(表 1)在实际计算时,均将所研究花岗岩体的冷却速率设定为一固定值

(5℃/Ma, 10℃/Ma)。对照表4可见, 该冷却速率对应于地表出露面积在1000 km²以上的巨型花岗岩基, 但现有地质资料表明, 多数花岗岩体的地表出露面积均小于1000 km²。由此可见, 在按Dodson's公式计算花岗岩造岩矿物⁴⁰Ar封闭温度时设定花岗岩冷却速率为一固定值的做法不符合花岗岩体尺度的实际情况。因此, 前人计算的花岗岩造岩矿物⁴⁰Ar封闭温度有悖于花岗岩体冷却速率与岩体尺度呈负相关关系的客观规律。

2.2 花岗岩部分长石⁴⁰Ar的 $\ln(D/a^2)$ 与 $1/T$ 呈非线性关系

Berger等(1981)计算花岗岩造岩矿物⁴⁰Ar封闭温度(T_c)时, 将Dodson's公式改写为:

$$T_c = (E/R) / \ln[(ART_c^2 D_0/a^2)/(EdT/dt)] \quad (5)$$

式中: E 为活化能; R 为气体常数; A 为矿物形状的几何系数; D_0 为扩散频率因子; a 为有效扩散半径; dT/dt 为冷却速率; T 为温度(K)。

式(5)表达的物理意义为: 矿物样本⁴⁰Ar的封闭温度(T_c)是活化能(E)、有效扩散半径(a)、扩散频率因子(D_0)、矿物形状的几何系数(A)及冷却速率(dT/dt)的函数。

现将Berger和York(1981)对Bark Lake闪长岩中的角闪石及钾长石和Dudmon闪长岩中的黑云母所进行⁴⁰Ar扩散作用实验结果示于图4。从该图可见扩散频率因子(D/a^2)对数值与温度倒数呈良好的线性关系, 表明其遵循Arrhenius关系式。前述关于角闪石、白云母、黑云母、长石⁴⁰Ar-³⁹Ar同位素体系的封闭温度均为采用Dodson's公式(式5)计算得出的结果。这些数据现已成为国内外热年学者研究花岗岩热演化史, 计算其冷却速率的重要参数。可是Cassata和Renne(2013)通过对美国、加拿大等地区花岗岩闪长岩、花岗岩伟晶岩中24件长石样品(钾长石7件, 斜长石17件)⁴⁰Ar扩散参数详细研究, 发现部分长石⁴⁰Ar的 $\ln(D/a^2)$ 与 $1/T$ 呈非线性关系(图5)。这表明花岗岩长石中⁴⁰Ar扩散作用存在比Arrhenius式更为复杂的关系, 因而不宜采用上述Dodson's公式来计算长石⁴⁰Ar封闭温度。

2.3 矿物的次生破裂面及超微裂隙对Ar扩散系数的影响

从花岗岩浆冷却结晶过程中逐渐生长, 具有完整晶形的角闪石、黑云母等造岩矿物组合是一个较完整的集合体, 可以视为作为一个封闭体系。Ar属惰性元素, 不与其他元素原子键合, 因而能较好地封存在长石晶体格架中。

图4 Bark Lake闪长岩中角闪石, 黑云母及钾长石的Arrhenius图解(Berger et al., 1981)

Fig.4 An Arrhenius plots for hornblende, biotite and K-feldspar from the Bark Lake diorite (Berger et al., 1981)

图5 Alpine花岗岩中斜长石的Arrhenius图解(Cassata and Renne, 2013)

Fig.5 An Arrhenius plots for bytownite from an Alpine granitoid(Cassata and Renne, 2013)

Cassata等(2013)对花岗岩类长石(粒径为0.1~1 mm, E_0 为170~285kJ/mol)中Ar扩散作用及其封闭温度进行了系统研究和计算(设定冷却速率为10℃/Ma), 发现所研究长石Ar封闭温度变化幅度很大(400~200℃)。对这一现象, Cassata和Renne(2013)解释为在制样过程中的机械破碎、研磨等作用都能导致部分Ar的逸出(丢失), 从而造成长石Ar封闭温度呈大范围内波动(400~200℃)。这是因为在对长石样品进行机械破碎、分选提纯及研磨过程中矿物晶粒发生破裂或产生微裂隙, 使所研究测试矿物对Ar不再保持完全封闭, 成为一个开放(或半开放)体系, 导致保存在晶

体格架中的部分 Ar 发生不同程度的丢失,从而造成长石 Ar 封闭温度很大波动。但 Dodson's 计算公式未能预估这一因素对长石 Ar 封闭温度的影响。

3 讨论与结论

3.1 不存在花岗岩锆石 U-Pb 封闭温度 > 角闪石-黑云母 $^{40}\text{Ar}-^{39}\text{Ar}$ 封闭温度的规律

上述花岗岩 412 个成对锆石 U-Pb 年龄和角闪石-黑云母 $^{40}\text{Ar}-^{39}\text{Ar}$ 年龄(附表见本文电子版)的数理统计分析表明:①它们之间存在斜率接近 1,相关系数很高的线性回归关系;② $\Delta t_{\text{Zr-Ar}}$ 既有正值,也存在负值;③频数分布曲线呈典型的正态分布。这些特征充分表明:① $\Delta t_{\text{Zr-Ar}}$ 变化是由偶然因素引起的;②花岗岩体的角闪石-黑云母 $^{40}\text{Ar}-^{39}\text{Ar}$ 年龄与锆石 U-Pb 年龄在允许误差范围内是一致的,不存在花岗岩锆石 U-Pb 同位素年龄高于角闪石-黑云母 $^{40}\text{Ar}-^{39}\text{Ar}$ 年龄的规律。根据 Dodson (1973) 的关于同位素体系封闭温度的理论(即花岗岩矿物同位素年龄表征的是花岗岩浆冷却达到该矿物同位素体系封闭温度时的冷却年龄值)及上述研究结果,可以得出花岗岩角闪石-黑云母 $^{40}\text{Ar}-^{39}\text{Ar}$ 同位素体系封闭温度与花岗岩锆石 U-Pb 同位素体系封闭温度是基本一致的推论。

3.2 花岗岩中白云母、长石的 $^{40}\text{Ar}-^{39}\text{Ar}$ 年龄与锆石 U-Pb 年龄是基本一致的

国内外文献中发表的有关花岗岩体的白云母、斜长石、钾长石的 $^{40}\text{Ar}-^{39}\text{Ar}$ 年龄与锆石 U-Pb 年龄成对数据非常少。现将笔者收集到的有关数据列举如下:①据赵希林等(2013)研究,赣南九曲二云母花岗岩体白云母的 $^{40}\text{Ar}-^{39}\text{Ar}$ 年龄为 169.7 ± 1.2 Ma, 锆石 SHRIMP U-Pb 年龄为 169.6 ± 0.8 Ma; ②据 Mahoney 等(2009)研究,美国 Mesachie 白云母花岗岩体白云母的 $^{40}\text{Ar}-^{39}\text{Ar}$ 年龄为 51.9 ± 0.2 Ma, 锆石 U-Pb 年龄为 52.7 ± 1.5 Ma; ③据 Guo 等(2011)研究,赣南 Taoxikeng 二云母花岗岩体白云母的 $^{40}\text{Ar}-^{39}\text{Ar}$ 年龄为 153.4 ± 1.3 Ma, 锆石 SHRIMP U-Pb 年龄为 157.6 ± 3.5 Ma; ④据 Kuscu 等(2011)研究,土耳其 Hasancelebi 正长斑岩体钾长石 $^{40}\text{Ar}-^{39}\text{Ar}$ 年龄为 71.82 ± 0.48 Ma, 锆石 U-Pb 年龄为 71.27 ± 0.29 Ma; ⑤据 Yang 等(2005)研究,胶东甲子山正长岩体钾长石 $^{40}\text{Ar}-^{39}\text{Ar}$ 年龄为 214.4 ± 0.3 Ma, 锆石 SHRIMP U-Pb 年龄为 215 ± 5 Ma; ⑥据王永磊等(2012)研究,安徽铜陵凤凰山石英闪长岩体斜长石 $^{40}\text{Ar}-^{39}\text{Ar}$ 年龄为 140.4 ± 0.9 Ma, 锆石 SHRIMP U-Pb

年龄为 141 ± 1.1 Ma。从这些数据可以看出,上述所研究花岗岩中白云母、钾长石、斜长石的 $^{40}\text{Ar}-^{39}\text{Ar}$ 年龄与锆石 U-Pb 年龄的差值很小,均在测量允许的误差范围内,而且既有正值也有负值。这表明花岗岩中白云母、长石的 $^{40}\text{Ar}-^{39}\text{Ar}$ 年龄与锆石 U-Pb 年龄是基本一致的,不存在花岗岩锆石 U-Pb 年龄 > 白云母 $^{40}\text{Ar}-^{39}\text{Ar}$ 年龄 > 斜长石 $^{40}\text{Ar}-^{39}\text{Ar}$ 年龄 > 钾长石 $^{40}\text{Ar}-^{39}\text{Ar}$ 年龄的规律。据此,同样可以得出花岗岩白云母 $^{40}\text{Ar}-^{39}\text{Ar}$ 封闭温度及长石 $^{40}\text{Ar}-^{39}\text{Ar}$ 封闭温度与锆石 U-Pb 封闭温度基本相同的推论。

3.3 Dodson's 公式不适用于花岗岩造岩矿物 $^{40}\text{Ar}-^{39}\text{Ar}$ 封闭温度的计算

(1)按 Dodson's 公式计算矿物 Ar 体系封闭温度时,冷却速率设定为一固定值(5 $^{\circ}\text{C}/\text{Ma}$ 或 10 $^{\circ}\text{C}/\text{Ma}$),这有悖于花岗岩体为一尺度变化很大,其冷却结晶时间及冷却速率严格受岩体体积尺度制约的热物理学规律。

(2)Cassata 和 Renne (2013) 在对花岗岩长石中 Ar 扩散作用参数所作的实验研究发现,部分长石 Ar 扩散频率因子与温度呈非线性关系,偏离 Arrhenius 关系式。

(3)Cassata 和 Renne (2013) 所作的 Ar 扩散作用实验表明,保存在矿物晶体格架内的 Ar 易受样品制备过程中机械破碎、研磨等因素影响而发生变化。

综上所述,本文得出结论:①根据上述花岗岩含钾造岩矿物(角闪石、黑云母、白云母、长石) $^{40}\text{Ar}-^{39}\text{Ar}$ 年龄与锆石 U-Pb 年龄基本一致的规律,可以间接地得出从花岗岩浆晶出含钾造岩矿物 $^{40}\text{Ar}-^{39}\text{Ar}$ 体系的封闭温度接近于锆石 U-Pb 同位素体系的封闭温度(650 ± 50 $^{\circ}\text{C}$; 章邦桐等, 2013); ②按 Dodson's 公式计算得出的 ^{40}Ar 封闭温度不能代表花岗岩浆晶出造岩矿物 $^{40}\text{Ar}-^{39}\text{Ar}$ 同位素体系的封闭温度。

参考文献 (References):

- Alleger C J. 2008. Isotope geology. New York: Cambridge University Press, 1-78
- Berger G W, York D. 1981. Geothermometry from dating experiments. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 45: 795-811
- Betsi T B, Lentz D, McInnes B, Evans N J. 2012. Emplacement ages and exhumation rates for intrusion-hosted Cu-Mo-Sb-Au mineral systems at Freegold Mountain (Yukon, Canada): Assessment from U-Pb, Ar-Ar, and (U-Th)/He geochronometers. *Canadian Journal of Earth Sciences*, 49(5): 653-670
- Cassata W S, Renne P R. 2013. Systematic variations of argon in feldspars and implications for thermochronometry. *Geochimica et*

- Cosmochimica Acta, 49(112): 251-287
- Chakugal J, Reynolds P H, Jamieson R A and Corrigan D. 2004. Slow post-orogenic cooling in a deeply eroded orogen; Reindeer Zone, Trans-Hudson Orogen, Saskatchewan. Canadian Journal of Earth Sciences, 41(7): 867-880
- Dahl P S, Foland K. 2008. Concentric slow cooling of a low-P-high-T terrane: Evidence from 1600-1300 Ma mica dates in the 1780-1700 Ma Black Hill Orogen, South Dakota, USA. American Mineralogist, 93(8-9): 1215-1229
- Dallmeyer R D, VanBreman O. 1981. Rb-Sr whole-rock and ⁴⁰Ar-³⁹Ar mineral ages of the Togus and Hallowell quartz monzonite and three Mile Pond granodiorite plutons, South-Central Maine. Contribution to Mineralogy and Petrology, 78: 61-73
- Davis J W, Colemants, Gracely J T. 2012. Magma accumulation rates and thermal histories of plutons of the Sierra Nevada batholith, CA. Contribution to Mineralogy and Petrology, 163: 449-465
- Deng B, Liu S G, Li Z W, Cao J X. 2012. Late Cretaceous tectonic change of the eastern margin of the Tibetan plateau—Results from multisystem thermochronology. Journal Geological Society of India, 80(2): 240-254
- Dodson M H. 1973. Closure temperature in cooling geochronological and petrological system. Contribution to Mineralogy and Petrology, 40: 259-274
- Dunlap W J. 1997. Neocrystallization or cooling? ⁴⁰Ar/³⁹Ar ages of white micas from low-grad mylonites. Chemical Geology, 143: 181-203
- Emmel B, Johns N, Kroner A. 2008. From closure of the Mozambique ocean to Gondwana breakup: New evidence from geochemical data of the Vohibory Terrane, Southwest Madagascar. Journal of Geology, 116(1): 21-38
- Farrar E, Hanes J A, Archibald D A. 1997. Chronological constraints on the thermal and tilting history of the Sierra San Pedro Martir pluton, Baja California, Mexico, from U/Pb, ⁴⁰Ar / ³⁹Ar and fission-track geochronology. Geological Society of America Bulletin, 109(6): 728-745
- Guo C L, Mao J W, Frank B, Chen Z H. 2011. SHRIMP U-Pb (zircon), Ar-Ar (muscovite) and Re-Os (molybdenite) isotopic dating of the Taoxikeng deposit, South China Block. Ore Geology Review, 43: 26-39
- Harrison T M. 1981. Diffusion of ⁴⁰Ar in hornblende. Contrib. Contribution to Mineralogy and Petrology, 78(3): 324-33
- Harrison T M, Armstrong R L. 1979. Geochronology and thermal history of the Coast Plutonic Complex, near Prince Rupert, British Columbia. Canadian Journal of Earth Sciences, 16: 400-410
- Harrison T M, Duncan I, McDougal I. 1985. Diffusion of ⁴⁰Ar in biotite: Temperature, pressure and compositional effects. Geochimica et Cosmochimica Acta, 49(11): 2461-2468
- Harrison T M, McDougal I. 1982. The thermal significance of potassium feldspar K-Ar ages inferred from Ar⁴⁰-Ar³⁹ age spectrum results. Geochimica Cosmochimica Acta, 46(10): 1811-1820
- Kuscus I, Yilmazer E, Gulec N. 2011. U-Pb and ⁴⁰Ar-³⁹Ar geochronology and isotopic constraints on the genesis of copper-gold-bearing iron oxide deposits in the Hassnacelebi district, Eastern Turkey. Economic Geology, 106(2): 261-288
- Luth W C, Jahns R H, Tuttle O F. 1964. The granite system at pressures of 4 to 10 kilobars. Journal Geophys Research, 69: 759-773
- Mahoney J, Gordee S M, Haggart J W. 2009. Magmatic evolution of the eastern Coast Plutonic Complex, Bella Coola region, west-central British Columbia. Bulletin of Geological Society of America, 121(9-10): 1362-1380
- Mao J R, Li Z L, Zhao X L. 2010. Geochemical characteristics, cooling history and mineralization significance of Zhangqiantang pluton in south Jiangxi province, P. R. China. Chinese Journal of Geochemistry, 29(1): 53-56
- McDougal I, Harrison T M. 1999. Geochronology and thermochronology by the ⁴⁰Ar-³⁹Ar method. New York: Oxford University Press, 1-269
- Meinhold G. 2010. Rutile and its application in earth sciences. Earth Science Review, 102: 1-28
- Moller A, Mezger K, Schenk V. 2000. U-Pb dating of metamorphic minerals; Pan-African metamorphism and prolonged slow cooling of high pressure granulites in Tanzania, East Africa. Precambrian Research, 104: 123-146
- Wang Y, Li H M. 2008. Initial formation and Mesozoic tectonic exhumation of an intracontinental tectonic belt of the northern part of the Taihang Mountain Belt, Eastern Asia. Journal of Geology, 116(2): 153-172
- Wells M L, Hoisch T D. 2008. The role of mantle delamination in widespread Late Cretaceous extension and magmatism in the Cordilleran orogen, Western United States. Bulletin of Geological Society of America, 120(5-6): 515-530
- Yang J H, Zhong S L, Wilder S A. 2005. Petrogenesis of post-orogenic syenites in the Sulu orogenic belt, East China: Geochronology, geochemical and Nd-Sr isotopic evidence. Chemical Geology, 214: 99-125
- 陈刚, 丁超, 徐黎明, 章辉若, 胡延旭, 杨甫, 李楠, 毛小妮. 2012. 鄂尔多斯盆地东缘紫金山侵入岩热演化史与隆升过程分析. 地球物理学报, 55(11): 3731-3741
- 陈宣华, 尹安. 2009. 阿尔金山东段地质热年代学与构造演化. 地学前缘, 16(3): 213-219
- 马铁球, 柏道远, 邝军. 2006. 南岭大东山岩体北部 ⁴⁰Ar-³⁹Ar 定年及地球化学特征. 地球化学, 35(4): 346-358
- 孙金凤, 杨进辉, 吴福元. 2012. 榴石原位微区年龄测定. 科学通报, 57(18): 1603-1615
- 王强, 赵振华, 简平. 2005. 华南腹地白垩纪 A 型花岗岩类或碱性侵入岩年代学及其对华南晚中生代构造演化的制约. 岩石学报, 21(3): 795-808
- 王永磊, 裴荣富, 王浩琳, 瞿泓滢. 2012. 安徽铜陵新屋里岩体黑云母、斜长石 ⁴⁰Ar-³⁹Ar 年龄及其地质意义. 高校地质学报, 18(1): 150-157
- 赵希林, 毛建仁, 刘凯, 叶海敏, 王开虎. 2013. 赣南与钨锡矿化有关的九曲二云母花岗岩的形成时代及其岩石成因初探. 地质论评, 59(1): 83-96
- 章邦桐, 吴俊奇, 凌洪飞, 陈培荣. 2010. 花岗岩浆侵位与结晶固化时差的研究与构造意义: 以南岭骑花岗岩基为例. 高校地质学报, 16(1): 103-118
- 章邦桐, 吴俊奇, 凌洪飞, 陈培荣. 2013. “花岗岩浆结晶出锆石 U-Pb 体系封闭温度 ≥ 850” 质疑: 基于元素扩散理论、锆石 U-Pb 年龄与全岩 Rb-Sr 年龄对比的证据. 地质论评, 59(1): 63-70