

(U-Th)/He 연령측정법의 원리와 응용

민경원*
 플로리다대학교

(U-Th)/He Dating: Principles and Applications

Kyoung-Won Min*

Department of Geological Sciences, University of Florida, Gainesville, FL 32611, USA

요 약: (U-Th)/He 연령측정법은 자연상에 존재하는 ^{238}U , ^{235}U 및 ^{232}Th 이 붕괴할 때 알파 입자(^4He 원자)가 형성되는 현상을 이용한 연령측정법이다. 모 동위원소인 ^{238}U , ^{235}U 및 ^{232}Th 과 붕괴산물인 ^4He 의 양을 측정하여 (U-Th)/He 연령을 구할 수 있다. 이렇게 형성된 ^4He 원자는 대부분의 지질학적 시료내에서 비교적 저온에서도 빠르게 확산되는데, 이는 ^4He 가 불활성 기체이고 다른 원소에 비해 작기 때문이다. 따라서 방사성 붕괴에 의한 ^4He 의 형성(ingrowth)과 확산에 의한 ^4He 의 방출(diffusive loss)이 지질학적 시간동안 어떻게 진행되었느냐에 따라 현재 남아있는 ^4He 의 양이 결정된다. 예를 들어, 인회석내에서의 He 확산은 다른 광물에 비해 빨라서, 비교적 저온인 80°C에서도 He이 빠르게 인회석 밖으로 방출되는 것으로 알려져 있다. 자연상의 온도조건이 약 40°C 이하로 떨어졌을 때 비로소 인회석내 He 확산이 충분히 느려져서 대부분의 He이 인회석내에 보존된다. 따라서 (U-Th)/He 연령은 시료가 80-40°C를 통과한 시기를 지시한다. 자연상에서 이러한 온도범위에 해당하는 깊이를 “부분 보존대”(partial retention zone)이라 한다. 전통적으로 흔히 쓰이는 폐쇄온도(closure temperature)는 보통의 입자크기와 냉각속도에서, 인회석 경우 약 60-70°C, 저어콘 및 티탄석의 경우 약 200°C로 알려져 있다. 특히 인회석의 He 폐쇄온도는 다른 열역사 측정법에 비해 다소 낮기 때문에 비교적 최근의 열역사 또는 천부에서의 지각융기 현상을 기술하는데 매우 유용하게 쓰일 수 있다.

핵심어: (U-Th)/He 연령측정법, 인회석, 저어콘, 티탄석, 부분 보존대, 저온 열역사, 지각융기 현상

Abstract: The (U-Th)/He dating utilizes the production of alpha particles (^4He atoms) during natural radioactive decays of ^{238}U , ^{235}U and ^{232}Th . (U-Th)/He age can be determined from the abundances of the parent nuclides ^{238}U , ^{235}U and ^{232}Th and the radiogenic ^4He . Because helium is one of the noble gases (non-reactive) with a relatively small radius, it diffuses rapidly in many geological materials, even at low temperatures. Therefore, ingrowth of ^4He during radioactive decay competes with diffusive loss at elevated temperatures during the geologic time scale, determining the amount of ^4He existing today in natural samples. For example, He diffusion in apatite is known to be very rapid compared to that in most other minerals, causing a significant diffusive loss at $\sim 80^\circ\text{C}$ or higher. At $\sim 40^\circ\text{C}$, He diffusion in apatite becomes slow enough to preserve most ^4He in the sample. Thus, an apatite's (U-Th)/He age represents the timing when the sample passed through the temperature range of 80-40°C. The crustal depth corresponding to this temperature range is called a “partial retention zone.” Normal closure temperatures for a typical grain size and cooling rate are $\sim 60\text{-}70^\circ\text{C}$ for apatite and $\sim 200^\circ\text{C}$ for zircon and titanite. Because the apatite He closure temperature is lower than that of most other thermochronometers, it can provide critical constraints on relatively recent or shallow-crustal exhumation histories.

Keywords: (U-Th)/He dating, apatite, zircon, titanite, partial retention zone, low-T thermal history, exhumation history

*Corresponding author
 Tel: 1-352-392-2720
 E-mail: kmin@ufl.edu

(U-Th)/He 연령측정법의 원리

1905년 Rutherford에 의해 알파 입자(^4He 원자)가 발견된 후, 모원소인 U-Th과 방사성 붕괴의 산물인 알파 입자의 양을 측정하여 연령을 추정하는 방법이 지질학에 도입되었다. ^{238}U , ^{235}U 및 ^{232}Th 는 일련의 방사성 붕괴를 통해 안정동위원소인 ^{206}Pb , ^{207}Pb 및 ^{208}Pb 으로 변하는데, 이러한 과정에서 각 동위원소 1 원자는 8개, 7개, 6개의 알파 입자를 산출한다. 대부분의 ^4He 는 U과 Th으로부터 형성된다. ^{147}Sm 도 알파 붕괴에 의해 ^4He 를 형성하지만, 대부분의 지질학적 시료의 Sm의 함량이 작고, 하나의 ^{147}Sm 원자가 단 1개의 ^4He 원자만을 형성하며, 이 붕괴의 반감기가 비교적 길기 때문에 ^{147}Sm 효과는 대부분의 지질학적 시료에서 미미하다. 그러나 시료 내에 U-Th 함량이 작은 경우(예, 인회석), 혹은 Sm 함량이 많은 경우 이를 측정하여 연령계산시 반영하여야 보다 정확한 연령을 구할 수 있다. 또한 운석시료의 경우, 주로 인산염이 (U-Th)/He 연령측정에 사용되는데, 그 U-Th 함량이 작고 연령이 매우 높은 경우 Sm 효과를 무시할 수 없다. 연령 공식은 다음과 같다.

$$^4\text{He} = 8 \times ^{238}\text{U}[\exp(t \times \lambda_{238}) - 1] + 7 \times ^{235}\text{U}[\exp(t \times \lambda_{235}) - 1] + 6 \times ^{232}\text{Th}[\exp(t \times \lambda_{232}) - 1] + ^{147}\text{Sm}[\exp(t \times \lambda_{147}) - 1]$$

^4He , ^{235}U , ^{238}U , ^{232}Th , ^{147}Sm : 각 동위원소의 수(혹은 몰(mole) 수), t: 연령, λ_{238} , λ_{235} , λ_{232} , λ_{147} : 붕괴상수.

이 연령공식은 연령(t)에 대하여 표현되지 않기 때문에 iteration이나 수치적 방법을 사용하여 연령을 구하는 것이 일반적이다. 200 Ma 보다 젊은 연령의 근사치는 다음의 공식으로 보다 쉽게 구해질 수 있다 (McDowell *et al.*, 2005).

$$^4\text{He}[\text{atoms/g}] = (3.26 \times 10^6 \text{ U}[\text{ppm}] + 7.70 \times 10^5 \text{ Th}[\text{ppm}] + 4.02 \times 10^3 \text{ Sm}[\text{ppm}]) \times t[\text{Yr}]$$

알파 붕괴에 의해 형성된 ^4He 는 붕괴 당시의 강한 에너지로 인해 원래 모원자의 위치에서 이동하게 되는데, 이러한 현상을 되튀김(recoil) 현상이라 한다. 알파 입자는 딸원자에 비해 매우 가볍고, 결정 내에 결합되어 있지 않기 때문에 모원자의 위치로부터 보다 멀리 이동하게 된다. 이러한 되튀김 이동거리(recoil distance)는 U, Th 붕괴 과정의 각 단계에 의해 형성

된 알파 입자에 대해 모두 다르고, 또한 매질에 의해서도 영향을 받게 된다. 주 대상광물인 인회석 및 저어콘에서 ^4He 입자의 되튀김 이동거리는 대략 20 μm 정도인 것으로 알려져 있다(Farley *et al.*, 1996). 따라서 대상광물의 주변부(margin)에서 형성된 알파 입자의 일부는 대상광물 외부로 방출되며, 이러한 효과를 보정하여야 정확한 (U-Th)/He 연령을 구할 수 있다. 흔히 쓰는 보정방법은 대상광물의 모양 및 크기로부터 알파입자의 손실량을 추정하는 방법이다(Farley *et al.*, 1996). 또 다른 방법은 대상광물의 주변부 약 20 μm 이상을 물리적으로 제거하는 방법이다(Min *et al.*, 2006; Blackburn *et al.*, 2007). 이 두 방법은 대상 광물내에 모원자가 균일하게 분포하고 있다는 가정이 필요하다. 만일 실제 시료가 이러한 가정에서 벗어날 때 어떠한 결과를 초래하는지에 대한 연구(Hourigan *et al.*, 2005; Boyce and Hodges, 2005; Ault and Flowers, 2012), 그리고 시료내에 U-Th의 분포를 정량적으로 측정하는 연구(Farley *et al.*, 2011) 등이 보다 정확한 연령측정을 위해 이루어지고 있다.

(U-Th)/He 방법은 측정가능 연령이 비교적 넓다. 현재까지 보고된 의미 있는 연령 중 가장 젊은 연령은 1885 ± 188 년으로 이태리의 Mt. Vesuvius 화산암 내 석류석 반정 시료로부터 구한 것이다(Aciego *et al.*, 2003). 이렇게 젊은 시료는 방사성 ^4He 함량이 작아 많은 양의 시료가 필요하고(Aciego *et al.* (2003)는 하나의 연령을 구하기 위해 수백 mg 이상의 시료를 사용), U-Th 비평형(disequilibria) 보정이 필요하며(Farley *et al.*, 2002), 또한 U-Th 함량이 작은 시료의 경우 우주선에 의해 생기는(cosmogenic) ^4He 의 보정이 필요하기 때문에, 계산된 연령의 오차가 크다. 위의 연령방정식은 방사성 붕괴의 영년 평형(secular equilibrium)을 가정하였을 때에만 성립하기 때문에, 이러한 평형에 도달하지 못한 젊은(< 1 Ma) 암석에 대해서는 비평형 보정이 필요하다. 가장 오래된 (U-Th)/He 연령은 Acapulco 운석에서 구한 4.55 Ga이다(Min *et al.*, 2003). 우주공간에서 우주선에 오랜기간 노출된 운석의 경우, 역시 cosmogenic ^4He 의 보정이 필요하다(Min *et al.*, 2004, 2013; Min and Reiners, 2007).

시료의 선택, 준비 및 분석 과정

주 대상 암석은 인회석이나 저어콘을 함유한 암석

들(화강암, 화강섬록암 등)이다. 이러한 암체가 관입하여 주변암들과 열적 평형을 이룬 후, 구조지질학적 변형 없이 풍화되어 지각 표면에 노출된다면, 이 관입암의 열역사가 곧 광역적 연구지역의 열역사를 대표한다고 할 수 있다. 따라서 연구연령범위 이전에 관입하고, 관입후 구조지질학적 변형이 적은 암체를 선정하는 것이 광역 용기역사 연구에 중요하다.

(U-Th)/He 방법은 인회석, 석류석, 티탄석, 자철석, 모나자이트, 제노타임, 메릴라이트, 저어콘 등, U-Th를 함유한 어떠한 시료에 대해서도 적용될 수 있으나 주 대상광물은 인회석과 저어콘이다. 대상입자의 크기(폭)는 약 $65 \mu\text{m}$ 이상이 되어야 알파 되튀김 현상의 보정 오차를 줄일 수 있다. 또한 자형을 띠고 있는 대상입자의 3차원적 형태는 비교적 쉽게 규제할 수 있기 때문에 불규칙한 형태의 시료보다 되튀김 현상의 보정이 용이하다. 시료준비 과정에서 원래 입자의 일부가 손실되었을 경우, 그 (U-Th)/He 연령의 해석시 주의를 요한다(Brown *et al.*, 2013). 인회석은 U-Th 함량이 비교적 낮기 때문에, 인회석내 U-Th 함량이 높은 포유물(예를 들면, 저어콘 또는 티탄석)이 존재할 경우 그 (U-Th)/He 계가 포유물에 의해 큰 영향을 받게 된다. 이는 K/Ar 또는 $^{40}\text{Ar}/^{39}\text{Ar}$ 연령측정시 각섬석(낮은 K 함량) 내 흑운모(높은 K 함량) 포

유물이 결정적 영향을 미치는 것과 같은 원리이다. 또한 U-Th 정량을 위한 인회석의 용해는 약산을 쓰기 때문에, 만일 저어콘이나 티탄석과 같은 포유물이 존재할 경우, 이러한 포유물은 용해되지 않게 된다. 따라서 이러한 포유물은 상대적으로 많은 양의 ^4He 를 형성하지만, U-Th 정량에서는 제외되기 때문에 구해진 연령이 예상치 보다 높게 나오는 경우가 흔하다. 이러한 이유 등으로, 인회석 시료를 준비할 경우 포유물이 없는 입자를 선정하는 것이 중요하다. 저어콘의 경우 U-Th 함량이 높고, 용해시 여러 강산을 쓰기 때문에 인회석 포유물이 있다 하더라도 큰 영향은 미치지 못한다.

선정된 시료의 형태학적 특징 및 크기를 측정된 후, 단일자 혹은 다입자 시료를 Pt 또는 Nb 튜브에 담아 진공상에서 가열하여 시료내 모든 He 를 추출한다. 이때 시료내의 다른 기체상들도 함께 추출되는데, 이들을 제거하기 위해 극저온 트랩(cryogenic trap)이나 게터(getter)를 흔히 이용한다. Fig. 1은 University of Florida의 ^4He 분석 시스템을 도식적으로 보여준다. 인회석은 광물내 He 확산이 빠르기 때문에 비교적 짧은 시간 동안의 가열로도 거의 모든 ^4He 를 추출할 수 있는 반면, 저어콘이나 티탄석의 경우 보다 긴 가열과정이 필요하다. 추출된 기체에 그 양을 알고 있

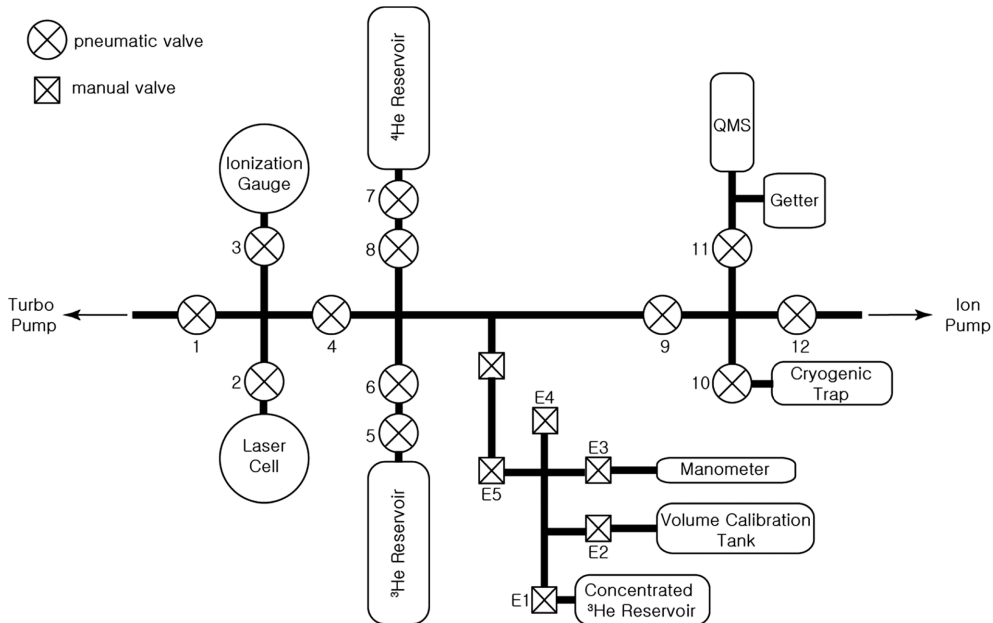


Fig. 1. Schematic diagram of He analysis system at University of Florida.

는 ^3He (spike)를 섞은 후 사중극자(Quadrupole) 질량 분석기로 $^4\text{He}/^3\text{He}$ 비율을 측정한다. 이러한 비율을 이용해서, 시료로부터 추출된 ^4He 의 양을 계산한다. 가열실험이 끝난 시료는 U-Th-Sm spike와 혼합한 후 다양한 종류의 산을 이용해 녹인다. 인회석의 경우 약한 질산(5% HNO_3)으로도 비교적 저온에서 (~100-120°C) 쉽게 용해가 가능한 반면, 저어콘과 티탄석의 경우 강한 질산, 불산(HF) 및 염산(HCl)등을 이용해 오븐내에서 고온으로(200-225°C) 수일간 용해한다. 용해된 액의 동위원소비를 유도결합플라즈마 질량분석기(ICP-MS)로 측정하여 U-Th-Sm 함량을 구할 수 있다. He 및 U-Th-Sm 정량은 기본적인 동위원소 희석 정량법(isotope dilution method)을 따른다.

최근에는 레이저를 이용한 in-situ 연령측정법도 개발중에 있다. 진공상태에서 excimer 혹은 UV 레이저를 분사하여 고정된 시료의 일부를 분리한 후, 위에서 설명한 불활성 기체 분석 방법을 통해 ^4He 의 양을 구한다. U-Th-Sm 정량을 위해서는, ^4He 분석에 이용된 시료에 레이저를 분사하여 시료를 분리한 후, ICP-MS를 이용하여 동위원소비를 측정하거나(LA-ICP-MS; 저어콘의 경우), 혹은 전자현미경(EPMA), 이차 이온 질량분석기(SIMS) 등을 통해 분석할 수 있다(모나자이트, 제노타임의 경우) (Boyce *et al.*, 2006, 2009). 레이저를 이용할 경우 주의하여야 할 점은, 레이저 분사로 분리된 시료의 양을 정확하게 알아야 한다는 점이다. 이를 위해 레이저 분사 후 시료내에 패인 부분(ablation pit)의 부피를 측정하는 작업이 필요하다(Boyce *et al.*, 2006, 2009; Tripathy-Lang *et al.*, 2013). 또 다른 방법은 시료의 stoichiometry가 일정하다고 가정 후 표준 시료와의 비교를 통해 레이저로 분리된 시료의 양을 추정하는 방법이다(Vermeesch *et al.*, 2012). 이 방법은 U-Th-He의 절대량을 측정하지 않고 상대적인 값만을 구하여 연령을 계산하기 때문에, 레이저 분사 후 시료내에 패인 부분의 부피를 측정하는 작업이 필요하지 않고, 따라서 보다 손쉽게 연령을 구할 수 있다. 이러한 in-situ 방법은 전통적인 전입자 측정에 비해 손쉽게 연령을 구할 수 있고 시료의 특정부위의 연령을 구할 수 있는 장점이 있으나, 구해진 연령의 정밀도(precision)가 떨어지는 단점이 있다. 또한, 이 방법은 인회석보다는 U-Th-Sm-He의 양이 많은 저어콘, 모나자이트, 제노타임 등에 보다 효과적으로 쓰일 수 있다. 이러한 이유로 위 방법은 많은 시료의 연령측정을 요하는 퇴적

쇄설 저어콘 연구에 주로 쓰인다(Tripathy-Lang *et al.*, 2013).

(U-Th)/He 연령측정법은 U-Th를 함유하고 있는 모든 암석 및 광물에 적용될 수 있으나, 구해진 연령의 해석을 위해서는 각 시료내 He 확산의 특성이 잘 규제되어야 한다. He 확산은 대상광물의 단계가열 실험으로부터 구할 수 있다. 전통적인 방법은 자연상의 시료에 대한 단계가열 실험으로 ^4He 의 확산계수를 구하는 방법이다. 이 방법은 가장 보편적으로 쓰이는 방법이지만, 대부분의 광물 시료는, 지질학적 시간동안 비교적 천천히 식었기 때문에 자연상에서 He 확산이 진행되어, 광물 입자의 주변부에서 He 양이 감소하는 경향을 보인다. 아울러 시료내의 초기 ^4He 분포가 균일하지 않기 때문에 단계가열 결과의 해석이 복잡해질 수 있다. 또한 모원소인 U-Th-Sm을 많이 포함하지 않은 시료의 경우(예를 들면, 석영, 휘석 등), 이들의 붕괴로 형성된 ^4He 양도 작아서 단계가열 실험에 많은 어려움이 따른다. 이러한 문제점을 극복하기 위해 $^4\text{He}/^3\text{He}$ 단계가열 방법이 고안되었는데, 이는 시료를 양성자 빔에 노출시켜 핵반응을 통해 인위적으로 ^3He 및 ^4He 를 만든 후, 단계가열 실험을 통해 ^3He 및 ^4He 의 확산계수를 구하는 방법이다(Shuster *et al.*, 2003). 핵반응을 거친 시료내의 ^3He 는 비교적 균일하게 분포하며, 또한 그 양도 조절할 수 있어 단계가열 실험이 용이하다. $^4\text{He}/^3\text{He}$ 단계가열 방법의 또다른 중요한 장점은 이를 통해 광물내 ^4He 의 분포를 유추할 수 있으며, 따라서 시료의 저온 열역사를 유추하는데 결정적인 정보를 제공한다는 점이다. 전통적인 전입자 (U-Th)/He 측정은 시료가 폐쇄온도를 통과하였을 연령에 대한 정보를 제공하는 반면, $^4\text{He}/^3\text{He}$ 방법은 보다 연속적인 온도-시간의 변화를 유추할 수 있다. 이는 마치 K/Ar 방법과 $^{40}\text{Ar}/^{39}\text{Ar}$ 방법의 차이점과 매우 유사하다.

He 확산 특성과 연령의 변화

인회석내 He 확산은 비교적 잘 알려져 있다. Zeitler *et al.* (1987)이 듀랑고(Durango) 인회석에 대해 진행한 단계가열 실험의 결과를 $\log(D/a^2)-1/T$ 도표에 도시하면, 그 결과가 직선상에 가깝게 분포하면서 Arrhenius 관계를 따른다($\ln(D_0/a^2)=2.80^{+0.16}_{-0.19} \ln(s)$, $E_a=161.1\pm 33.9 \text{ kJ/mol}$) (D_0 : 확산계수; D_0 : 빈도계수; a : 확산 도메인의 반경 혹은 절반폭; T : 온도; E_a : 활

성화 에너지). 이 연구 이후로 인회석내 He 확산 및 이의 열역사학적인(thermochronologic) 적용이 매우 활발히 진행되어 왔다. Wolf *et al.* (1996)은 듀랑고를 포함한 4종류의 인회석에 대해 다단계 가열 실험 및 (U-Th)/He 연령측정을 실시하였다. 4개의 인회석 시료에 대하여 매우 유사한 He 확산 결과를 구하였는데, 290°C이하의 다단계 실험 결과는 Arrhenius 관계를 지시하며, 이로부터 구한 Ea는 약 151 kJ/mol로 폐쇄온도는 약 75±7°C에 해당한다. 또한 (U-Th)/He 연령은 결정화 연령과 유사하거나 짧는데, 이러한 연구결과는 (U-Th)/He계가 저온 열역사를 밝히는데 유용하게 쓰일 수 있음을 지시한다. 이후 Wolf *et al.* (1998)은 이러한 결과를 이용하여 어떻게 지질학적 시료의 열역사를 밝힐 수 있는가에 대한 보다 정량적인 접근법을 제시하였다. Farley(2000)는 보다 자세한 단계가열 실험으로부터 (1) 듀랑고 인회석의 입자 자체가 He 확산 도메인이고, (2) 인회석내 He 확산은 결정축에 상관없이 균일하며, (3) 확산계수는 $E_a=138\pm 2$ kJ/mol, $\ln(D_0/a^2)=3.5\pm 1.4 \ln(\text{cm}^2/\text{s})$ 임을 밝혔다. 이는 입자반경 100 μm인 인회석이 10°C/Ma의 냉각속도로 식었을 경우 폐쇄온도가 약 68°C임을 의미한다. 이후 Shuster *et al.* (2003)는 듀랑고 인회석의 $^4\text{He}/^3\text{He}$ 단계가열 실험을 통해 $E_a=137\text{--}148$ kJ/mol, $\ln(D_0/a^2)=13.5\text{--}16 \ln(\text{s}^{-1})$ 의 값을 구하였다. 이는 이전에 구한 Farley (2000)의 결과와 매우 유사하다. Acapulco 운석에서 추출한 인회석에 대한 ^4He 다단계 확산실험으로 구한 확산계수는 $E_a=185$ kJ/mol, $\ln(D_0/a^2)=24.1 \ln(\text{s}^{-1})$ (Min *et al.*, 2003)인데, 이는 입자반경이 100 μm인 인회석이 10°C/Ma의 냉각속도로 식었을 때, 폐쇄온도가 약 106°C임을 의미한다. 하지만 St. Severin 콘드라이트 운석에서 추출한 인회석에 대한 $^4\text{He}/^3\text{He}$ 방법으로 구한 확산계수는 $E_a=109.3\pm 9.7$ kJ/mol, $\ln(D_0/a^2)=8.15\pm 1.93 \ln(\text{s}^{-1})$ (Min *et al.*, 2013)로 동일한 조건(입자반경=100 μm, 냉각속도=10°C/Ma)에서의 폐쇄온도는 약 60°C로 듀랑고 인회석과 유사하다. van Soest *et al.* (2011)는 in-situ 방법을 이용하여 듀랑고 인회석내 ^4He 분포를 연구하였다. 이 연구에 따르면 He 확산은 인회석의 결정축에 상관없이 동일하고, Arrhenius 관계를 따르며, 이로부터 계산된 확산계수는 $E_a=142.2\pm 5.0$ (2σ) kJ/mol, $\ln(D_0/a^2)=4.50\pm 0.94$ (2σ) $\ln(\text{cm}^2/\text{s})$ 로 74°C의 폐쇄온도에 해당한다(입자반경=50 μm, 냉각속도=10°C/Ma).

최근에 인회석내 He 확산이 인회석의 방사선 손상(radiation damage) 및 화학조성에 영향을 받는다는 연구결과가 발표되었다(Flowers and Kelly, 2011; Gautheron *et al.*, 2013). 몇몇 암체의 인회석에서 (U-Th)/He 연령이 핵분열 흔적(fission track) 연령보다 높은 결과가 확인되었는데(예, Green *et al.*, 2006) 이는 기존에 알려진 He 확산 및 fission track annealing 특성과 배치되는 결과이다. 즉, 인회석의 He 폐쇄온도는 약 60-80°C, fission track annealing 온도는 약 110°C로 알려져 있어 (U-Th)/He 연령이 fission track 연령보다 짧아야 함에도 불구하고 상반된 결과가 일부 암체에 대해 확인된 것이다. 이러한 역전 관계("inverted relationship")는 천천히 식은 암석에서 주로 발견되는데, 그 이유는 fission track annealing 보다는 He 확산 특성의 변화에서 기인한다는 사실이 일반적으로 받아들여지고 있다. 인회석내 He 확산 특성의 변화는 radiation damage와 밀접한 관계를 보이는 것으로 밝혀졌으며(Shuster *et al.*, 2006) 이러한 관계를 정량화하는 노력이 이루어졌다(Radiation Damage Accumulation and Annealing Model = "RDAAM": Flowers *et al.* 2009). 일반적으로 radiation damage가 많을수록 D_0 와 E_a 가 증가하여 인회석내 He 확산이 느려지며 높은 폐쇄온도를 가지게 되는 경향을 보인다. radiation damage의 정도는 입자의 열역사와 U-Th 함량에 의해 결정된다. 해당암석이 지각 천부의 저온조건에서 장기간 체류하였을 경우 많은 radiation damage가 보존되어 있을 가능성이 높다. 반대로, 해당암석이 최근에 고온에 노출되었다면 radiation damage는 어닐링 작용을 거쳐 상대적으로 작은 양의 radiation damage 만이 남아있을 것이다. 또한 높은 eU ("effective U" = $[U] + 0.235 \times [\text{Th}]$)를 가지고있는 인회석의 경우 낮은 eU 인회석에 비해 상대적으로 많은 radiation damage를 가지고 있을 것으로 기대할 수 있다. 퇴적암내의 인회석 입자들은 다양한 정도의 radiation damage를 가지고 있기 때문에, 그 He 확산 특성에 있어 큰 차이를 보일 수 있으며 따라서 (U-Th)/He 연령이 넓은 범위에 걸쳐 분포할 가능성이 많다(Flowers and Kelley, 2011). 이러한 연구결과는 듀랑고 인회석내 He 확산 특성이 다른 인회석에도 일반적으로 쓰이는 것에 대한 주의를 요한다. 단지 (U-Th)/He 연령의 분포를 설명하는 것에서 더 나아가, radiation damage와 He 확산의 관계를 이용해, 다양한 종류의

인회석이 동일암석에 존재할 경우 이들의 서로 다른 He 확산 특성과 (U-Th)/He 연령으로부터 해당 암석의 열역사도 유추할 수 있다(Flowers and Farley, 2012). 이는 해당 암석내 인회석 입자들이 각기 다른 폐쇄온도를 가지고 있을 때, 특히 그 폐쇄온도의 차이가 클 때 보다 효과적으로 열역사 유추가 가능하다.

동일한 암석에서 추출한 인회석의 (U-Th)/He 연령이 넓은 범위에 걸쳐 분포하는 현상을 입자의 형태와 원래 입자와의 관계에서 찾으려는 노력도 최근 이루어지고 있다(Beucher *et al.*, 2013; Brown *et al.*, 2013). 천천히 식은 입자내의 He 함량은 입자의 중심부에서 주변부로 갈수록 낮아지는 경향을 보이기 때문에(입자 자체가 확산 도메인이라 가정했을 경우), (U-Th)/He 연령측정에 쓰인 입자가 원래 입자의 어느 부분에 해당되느냐에 따라 그 (U-Th)/He 연령이 달라지게 된다. 이러한 절개 효과(fragmentation)가 eU 효과, 입자크기 효과, U-Th zonation 효과 등과 합쳐지면 이론적으로 2배 이상의 (U-Th)/He 연령 변화도 설명할 수 있다. 더 나아가, 모암의 열역사를 추정하기 위해서는 동일한 암석에서 약 20-30개의 입자에 대한 연령을 측정하는 것이 권장되며, 이러한 입자 규모 입자의 다양한 부분을 대표할 때 보다 효과적으로 열역사를 추정할 수 있다(Brown *et al.*, 2013). 따라서 이러한 모델링을 위해서는 형태가 유사한 입자를 고르기 보다는, 매우 긴 입자 및 매우 짧은 입자들을 포함시키는 것이 유리하다(Beucher *et al.*, 2013).

저어콘에 대한 다단계 가열실험으로부터 얻은 확산 계수는 $D_0=0.46+0.87-0.30 \text{ cm}^2/\text{s}$ 와 $E_a=169\pm 3.8 \text{ kJ/mol}$ 이다(Reiners *et al.*, 2002, 2004). 따라서 대부분의 자연상의 저어콘(half-width=40-100 μm)이 $10^\circ\text{C}/\text{Ma}$ 의 속도로 식었을 경우 폐쇄온도는 $175-193^\circ\text{C}$ 에 해당된다. 저어콘의 He 확산 역시 radiation damage 과 밀접한 관계가 있다고 알려져 있다. 이는 오래된 암석내에 존재하는 저어콘의 U 함량이 크게 변할 때, 이들의 (U-Th)/He 연령 역시 넓은 범위에 걸쳐 분포한다는 사실로부터 확인할 수 있다. 최근의 연구에 의하면(Guenther *et al.*, 2013), alpha dose 값이 $1.2 \times 10^{16} \text{ alpha/g}$ 에서 $1.4 \times 10^{18} \text{ alpha/g}$ 로 증가함에 따라 저어콘의 c-축 방향으로의 D_0 값이 약 4 배 감소하며, 따라서 He 확산이 느려지고 폐쇄온도는 증가하게 된다. 하지만 alpha dose 값이 $2 \times 10^{18} \text{ alpha/g}$ 에서 $8.2 \times 10^{18} \text{ alpha/g}$ 로 증가함에 따라 E_a 값은 약 4 배 감소하며, 따라서 He 확산이 빨라지고 폐쇄온도는

감소하게 된다. 이러한 관계를 이용하면, 연령-eU 관계로부터 열역사 추정이 가능하다.

적용 예

House *et al.* (1998)는 시에라 네바다 지역의 지형 형성이 이루어진 시기를 규제하기 위해 ~200 km의 직선상에 해당하며, 비교적 유사한 고도에서 36개의 저반(batholith)시료를 채취하였다. 이 지역은 과거 80-85 Ma 동안 6-8 km의 침식이 이루어 졌으며, 그 평균 침식속도는 0.10 mm/yr 로 알려져 있다. House *et al.* (1998)는 연령-고도의 관계(Age-Elevation Relationship = "AER")를 통해 75-65 Ma 동안 270°C 에서 100°C 로, 빠른 냉각을 겪었음을 밝혔다. 이 연구의 보다 중요한 발견은 유사한 고도에서 채집한 시료의 인회석 (U-Th)/He 연령(50-80 Ma)이 고도와 반대 상관관계를 가진다는 사실이다. 만일 이 지역의 지형이 제3기 초기 이후에 형성되었다면, 이 연구에 사용된 인회석 연령은 대체로 일치하여야 한다. 따라서 이 연구의 결과는 지형이 70-80 Ma 이전에(아마도 185 Ma 이후) 형성되었을 가능성을 시사한다. 이 연구는 (U-Th)/He 연령의 분포로부터 고지형(paleotopography)을 규제하는 좋은 예이다.

Stockli *et al.* (2000)는 실험실에서 짧은 시간 동안의 다단계 가열실험에 의해 밝혀진 인회석의 He 확산 특성이, 지질학적 시간 동안의 용기에 직접 적용될 수 있는지를 연구하였다. 이들은 White Mountain의 단층면에서 구한 인회석 fission track 연령과 (U-Th)/He 연령이 단층대로부터의 거리에 따라 체계적으로 변한다는 사실로부터, 인회석내 He의 부분보존대(Apatite He partial retention zone = "AHe PRZ")가 약 $40-80^\circ\text{C}$ 에, 인회석 fission track 부분 어닐링대(Apatite FT Partial Annealing Zone = "AFT PAZ")가 약 $60-110^\circ\text{C}$ 에 존재함을 밝혀냈다. 이는 실험실에서 다단계 가열 실험을 통해 구한 He 확산 및 어닐링 특성과 잘 일치하며, 이는 짧은 시간 동안의 실험결과가 지질학적 시간 동안의 느린 냉각역사에도 적용될 수 있음을 설명하고 있다.

Reiners *et al.* (2003)는 북중국판과 남중국판의 충돌에 의해 형성된 다비산 지역에 (U-Th)/He 연령측정을 실시하여 비교적 넓은 지역의 저온 열역사를 추정하였다. 이 지역은 삼척기의 충돌로 형성된 초고압(ultra-high pressure) 변성암이 빠른 속도로 용기되었

다는 것이 U-Pb, ^{40}Ar - ^{39}Ar 방법을 통해 알려져 있었다. 하지만 이러한 조산운동후 백악기에는 침식에 의해 비교적 천천히 융기한 것으로 알려져 있다. Reiners *et al.* (2003)는 인회석, 저어콘 (U-Th)/He 연령을 구한 후, 기존의 인회석 fission track 자료와 함께 저온 융기역사를 추정하였다. 이러한 열역사학 적(thermochronologic) 자료와 지형학적(topographic) 관계를 이용하여, 다비산 산맥의 중심부는 주변부보다 빠른 융기를 겪었음을 추정하였다. 이러한 연령-지형학적 관계는 이후 Braun and Robert (2005)에 의해 보다 정량적인 모델링이 이루어 졌다. 그들의 최적화 알고리즘에 따르면 산맥 중부의 경우 약 4 km의 침식을 약 0.07 km/Ma 침식 속도로 겪었는데, 약 1.6 km는 균일한 침식에 의해, 2 km는 relief 감소에 의해, 0.4 km는 isostatic rebound와 연관이 있음을 주장하였다. 이 연구의 또 다른 흥미로운 점은 모든 연령자료를 그 폐쇄온도 및 시료고도에 따라 pseudo-elevation을 계산하여, 기존에 흔히 쓰이던 동일 동위원소계에 대한 연령-고도 관계를 여러 계에 확장하여 융기역사를 보다 쉽게 표기할 수 있는 방법을 제안하였다는 점이다. 아울러 이러한 vertical profile 자료를 잘 설명할 수 있는 몇 가지 가능한 열역사에 대해 forward 모델링을 적용하여 약 100 Ma 까지는 빠른 침식을, 이후에는 비교적 단순한 침식이 이루어졌음을 주장하였다.

Shuster *et al.* (2005)는 $^4\text{He}/^3\text{He}$ 방법을 이용하여 British Colombia의 Coast Mountain내 빙하침식의 시기와 속도를 규제하였다. 빙하 계곡 내벽의 서로 다른 고도에서 5개의 시료를 채취하여 $^4\text{He}/^3\text{He}$ 방법을 적용하여, 이들의 He확산이 Arrhenius관계를 따른다는 사실을 밝히고, 이로부터 확산계수를 구하였다. 또한 계곡의 하부에서 채취한 시료의 다단계 가열실험 결과를 설명하기 위해서는, 약 1.8 Ma에 급격한 냉각을 동반한 열역사가 필요하다는 사실을 밝혀내었다. 계곡내의 고도가 증가할수록 급격한 냉각의 정도가 체계적으로 줄어드는 열역사가 추정되었는데, 이는 빙하가 침식을 야기할 때 우리가 기대할 수 있는 결과와 일치한다. 따라서, $^4\text{He}/^3\text{He}$ 방법이 지질학적 냉각속도의 변화를 잘 규제할 수 있음을 보여주었다.

사 사

이번 특별호 발간에 노고를 아끼지 않으신 정창식

박사님, 그리고 논문 초고에 대해 건설적인 조언을 해 주신 최성희 박사님과 익명의 심사위원께 감사의 말씀을 전합니다.

References

- Aciego, S., Kennedy, B.M., DePaolo, D.J., Christensen, J.N., and Hutcheon, I., 2003, U-Th/He age of phenocrystic garnet from the 79 AD eruption of Mt. Vesuvius. *Earth and Planetary Science Letters*, 216, 209-219.
- Ault, A.K. and Flowers, R.M., 2012, Is apatite U-Th zonation information necessary for accurate interpretation of apatite (U-Th)/He thermochronometry data? *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 79, 60-78.
- Beucher, R., Brown, R., Roper, S., Stuart, F., and Persano, C., 2013, Natural age dispersion arising from the analysis of broken crystals: Part II. Practical application to apatite (U-Th)/He thermochronometry. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 120, 395-416.
- Blackburn, T.J., Stockli, D.F., and Walker, J.D., 2007, Magnetite (U-Th)/He dating and its application to the geochronology of intermediate to mafic volcanic rocks. *Earth and Planetary Science Letters*, 259, 360-371.
- Boyce, J.W. and Hodges, K.V., 2005, U and Th zoning in Cerro de Mercado (Durango, Mexico) fluorapatite: Insights regarding the impact of recoil redistribution of radiogenic ^4He on (U-Th)/He thermochronology. *Chemical Geology*, 219, 261-274.
- Boyce, J.W., Hodges, K.V., King, D., Crowley, J.L., Jercinovic, M., Chatterjee, N., Bowring, S.A., and Searle, M., 2009, Improved confidence in (U-Th)/He thermochronology using the laser microprobe: An example from a Pleistocene leucogranite, Nanga Parbat, Pakistan. *Geochemistry, Geophysics, Geosystems*, 10.
- Boyce, J.W., Hodges, K.V., Olszewski, W.J., Jercinovic, M.J., Carpenter, B.D., and Reiners, P.W., 2006, Laser microprobe (U-Th)/He geochronology. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 70, 3031-3039.
- Braun, I. and Robert, X., 2005, Constraints on the rate of post-orogenic erosional decay from low-temperature thermochronological data: application to the Dabie Shan, China. *Earth Surface Processes and Landforms*, 30, 1203-1225.
- Brown, R.W., Beucher, R., Roper, S., Persano, C., Stuart, F., and Fitzgerald, P., 2013, Natural age dispersion arising from the analysis of broken crystals. Part I: Theoretical basis and implications for the apatite (U-Th)/He thermometer. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 122, 478-497.
- Farley, K.A., 2000, Helium diffusion from apatite: General behavior as illustrated by Durango fluorapatite. *Journal of Geophysical Research*, 105, 2903-2914.
- 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. *Earth and Planetary Science Letters*, 201, 117-125.
- Farley, K.A., Shuster, D.L., and Ketcham, R.A., 2011, U and Th zonation in apatite observed by laser ablation ICPMS, and implications for the (U-Th)/He system. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 75, 4515-4530.
- Farley, K.A., Wolf, R.A., and Silver, L.T., 1996, The effects of long alpha-stopping distances on (U-Th)/He dates. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 60, 4223-4229.
- Flowers, R.M. and Farley, K.A., 2012, Apatite $^4\text{He}/^3\text{He}$ and (U-Th)/He Evidence for an Ancient Grand Canyon. *Science*, 338, 1616-1619.
- Flowers, R.M. and Kelley, S.A., 2011, Interpreting data dispersion and "inverted" dates in apatite (U-Th)/He and fission-track datasets: An example from US midcontinent. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 73, 2347-2365.
- Flowers, R.M., Ketcham, R.A., Shuster, D.L., and Farley, K.A., 2009, Apatite (U-Th)/He thermochronometry using a radiation damage accumulation and annealing model. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 73, 2347-2365.
- Gautheron, C., Barbarand, J., Ketcham, R.A., Tassan-Got, L., van der Beek, P., Pagel, M., Pinna-Jamme, R., Couffignal, F., and Fialin, M., 2013, Chemical influence on α -recoil damage annealing in apatite: Implications for (U-Th)/He dating. *Chemical Geology*, 351, 257-267.
- Green, P.F., Crowhurst, P.V., Duddy, I.R., Japsen, P., and Holford, S.P., 2006, Conflicting (U-Th)/He and fission track ages in apatite: Enhanced He retention, not anomalous annealing behaviour. *Earth and Planetary Science Letters*, 250, 407-427.
- Guenther, W.R., Reiners, P.W., Ketcham, R.A., Nasdala, L., and Giester, G., 2013, Helium diffusion in natural zircon: Radiation damage, anisotropy, and the interpretation of zircon (U-Th)/He thermochronology. *American Journal of Science*, 313, 145-198.
- Hourigan, J.K., Reiners, P.W., Brandon, M.T. 2005, U-Th zonation-dependent alpha-ejection in (U-Th)/He chronometry. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 69, 3349-3365.
- House, M.A., Wernicke, B.P., and Farley, K.A., 1998, Dating topography of the Sierra Nevada, California, using apatite (U-Th)/He ages. *Science*, 396, 66-69.
- McDowell, F.W., McIntosh, W.C., and Farley, K.A., 2005, A precise $^{40}\text{Ar}/^{39}\text{Ar}$ reference age for the Durango apatite (U-Th)/He and fission-track dating standard, *Chemical Geology* 214, 249-263.
- Min, K., Farley, K.A., Renne, P.R., and Marti, K., 2003, Single grain (U-Th)/He ages from phosphates in Acapulco meteorite and implications for thermal history Earth and Planetary Science Letters, 209, 323-336.
- Min, K. and Reiners, P.W., 2007, High-temperature Mars-to-Earth transfer of meteorite ALH84001. *Earth and Planetary Science Letters*, 260, 72-85.
- Min, K., Reiners, P.W., Nicolescu, S., and Greenwood, J.P., 2004, Age and temperature of shock metamorphism of Martian meteorite Los Angeles from (U-Th)/He thermochronometry. *Geology*, 32, 677-680.
- Min, K., Reiners, P.W., and Shuster, D.L., 2013, (U-Th)/He ages of phosphates from St. Severin LL6 chondrite. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 100, 282-296.
- Min, K., Reiners, P.W., Wolff, J.A., Mundil, R., and Winters, R.L., 2006, (U-Th)/He dating of volcanic phenocrysts with high-U-Th inclusions, Jemez Volcanic Field, New Mexico. *Chemical Geology*, 227, 223-235.
- Reiners, P.W., Farley, K.A., and Hickey, H.J., 2002, He diffusion and (U-Th)/He thermochronometry of zircon: Initial results from Fish Canyon Tuff and Gold Butte, Nevada. *Tectonophysics*, 349, 297-308.
- Reiners, P.W., Spell, T.L., Nicolescu, S., and Zanetti, K.A., 2004, Zircon (U-Th)/He thermochronometry: He diffusion and comparisons with $^{40}\text{Ar}/^{39}\text{Ar}$ dating. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 68, 1857-1887.
- Reiners, P.W., Zhou, Z., Ehlers, T.A., Xu, C., Brandon, M.T., Donelick, R.A., and Nicolescu, S., 2003, Post-orogenic evolution of the Dabie Shan, eastern China, from (U-Th)/He and fission-track thermochronology. *American Journal of Science*, 303, 489-518.
- Shuster, D.L., Ehlers, T.A., Rusmore, M.E., and Farley, K.A., 2005, Rapid glacial erosion at 1.8 Ma revealed by $^4\text{He}/^3\text{He}$ thermochronometry. *Science*, 310, 1668-1670.
- Shuster, D.L. and Farley, K.A., 2004, $^4\text{He}/^3\text{He}$ thermochronometry. *Earth and Planetary Science Letters*, 217, 1-17.
- Shuster, D.L., Farley, K.A., Sistierson, J.M., and Burnett, D.S., 2003, Quantifying the diffusion kinetics and spatial distributions of radiogenic ^4He in minerals containing proton-induced ^3He . *Earth and Planetary Science Letters*, 217, 19-32.
- Shuster, D.L., Flowers, R.M., and Farley, K.A., 2006, The influence of natural radiation damage on helium diffusion kinetics in apatite. *Earth and Planetary Science Letters*, 249, 148-161.
- Stockli, D.F., Farley, K.A., and Dumitru, T.A., 2000, Calibration of the apatite (U-Th)/He thermochronometer on an exhumed fault block, White Mountains, California. *Geology*, 28, 983-986.
- Tripathy-Lang, A., Hodges, K.V., Monteleone, B.D., and van Soest, M.C., 2013, Laser (U-Th)/He thermochronology of detrital zircons as a tool for studying surface processes in modern catchments. *Journal of Geophysical Research*, 118, 1333-1341.
- van Soest, M.C., Monteleone, B.D., Hodges, K.V., and Boyce, J.W., 2011, Laser depth profiling studies of helium diffusion in Durango fluorapatite. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 75, 2409-2419.
- Vermeesch, P., Sherlock, S.C., Roberts, N.M.W., and Carter, A., 2012, A simple method for in-situ U-Th-He dating.

- Geochimica et Cosmochimica Acta, 79, 140-147.
- Wolf, R.A., Farley, K.A., and Kass, D.M., 1998, Modeling of the temperature sensitivity of the apatite (U-Th)/He thermochronometer. Chemical Geology, 148, 105-114.
- Wolf, R.A., Farley, K.A., and Silver, L.T., 1996, Helium diffusion and low-temperature thermochronometry of apatite. Geochimica et Cosmochimica Acta, 60, 4231-4240.
- Zeitler, P.K., Herczeg, A.L., McDougall, I., and Honda, M., 1987, U-Th-He dating of apatite: a potential thermochronometer. Geochimica et Cosmochimica Acta, 51, 2865-2868.
-
- 2014년 6월 27일 접수
2014년 7월 3일 심사개시
2014년 7월 14일 채택