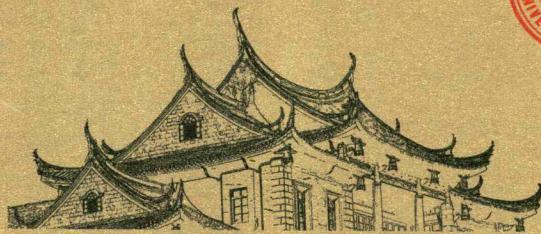


厦门大学南强丛书【第六辑】



Xiamendarue
Nanqiang Congshu



海洋放射年代学

刘广山◎著



厦门大学出版社 国家一级出版社
XIAMEN UNIVERSITY PRESS 全国百佳图书出版单位



厦门大学南强丛书
【第六辑】

海洋放射年代学

刘广山 ◎著



厦门大学出版社 | 国家一级出版社
XIAMEN UNIVERSITY PRESS | 全国百佳图书出版单位

图书在版编目(CIP)数据

海洋放射年代学/刘广山著. —厦门:厦门大学出版社, 2016. 3

(厦门大学南强丛书. 第 6 辑)

ISBN 978-7-5615-5953-6

I. ①海… II. ①刘… III. ①放射性同位素-应用-海洋地质学-地质年代学-研究

IV. ①P736

中国版本图书馆 CIP 数据核字(2016)第 041671 号

出版人 蒋东明

责任编辑 李峰伟

装帧设计 李夏凌

责任印制 许克华

出版发行 厦门大学出版社

社址 厦门市软件园二期望海路 39 号

邮政编码 361008

总编办 0592-2182177 0592-2181253(传真)

营销中心 0592-2184458 0592-2181365

网址 <http://www.xmupress.com>

邮箱 xmupress@126.com

印刷 厦门集大印刷厂印刷

开本 720mm×1000mm 1/16

印张 15

插页 4

字数 252 千字

版次 2016 年 3 月第 1 版

印次 2016 年 3 月第 1 次印刷

定价 51.00 元

本书如有印装质量问题请直接寄承印厂调换



厦门大学出版社
微信二维码



厦门大学出版社
微博二维码

“厦门大学南强丛书”（第六辑）编委会

主任委员：朱崇实

副主任委员：李建发 韩家淮

委员：（以姓氏笔画为序）

万惠霖 朱崇实 孙世刚 李建发 宋文艳

陈支平 陈武元 陈振明 周 宁 周涵韬

洪永森 蒋东明 韩家淮 谢素原 谭绍滨

作 者 简 介 刘广山，山西省灵丘县人，1959 年出生。1979 年到 1986 年在兰州大学现代物理系读书，1983 年获学士学位，1986 年获硕士学位。之后在中国辐射防护研究院从事环境辐射和辐射防护研究工作，到 1996 年，任助理研究员、副研究员。1996 年到厦门大学海洋与环境学院，从事同位素海洋学教学与研究工作，任副教授、教授。2011 年到厦门大学环境与生态学院，从事环境变化与年代学教学与研究工作，任教授。

已出版《海洋放射性核素测量方法》和《同位素海洋学》两部专著，本书是作者的第三部专著。在国内外各种期刊发表 130 余篇文章。与他人合作编著了《同位素海洋学文集》1 至 5 卷。曾经或正在独立承担“同位素海洋学”“应用数学”“环境变化”本科生课程的教学工作和“原子核物理学”“同位素海洋学研究方法”“环境变化研究方法”“同位素生态学应用”研究生课程的教学工作。从事的科学研究所方向主要为环境放射性、同位素示踪的海水混合和海洋中物质输运、放射年代学、环境变化和海洋放射性核素测量方法等。曾参加中国第 15 次南极科学考察和中国边缘海多次海上调查工作。

总序

厦门大学校长
“厦门大学南强丛书”编委会主任

朱崇实

厦门大学是由著名爱国华侨领袖陈嘉庚先生于1921年创办的，有着厚重的文化底蕴和光荣的传统，是中国近代教育史上第一所由华侨出资创办的高等学府。陈嘉庚先生所处的年代，是中国社会最贫穷、最落后、饱受外侮和欺凌的年代。陈嘉庚先生非常想改变这种状况，他明确提出：中国要变化，关键要提高国人素质，要提高国人素质，关键是要办好教育。基于教育救国的理念，陈嘉庚先生毅然个人倾资创办厦门大学，并明确提出要把厦大建成“南方之强”。陈嘉庚先生以此作为厦大的奋斗目标，蕴涵着他对厦门大学的殷切期望，代表着一代又一代厦门大学师生的志向。

1991年，在厦门大学建校70周年之际，厦门大学出版社出版了首辑“厦门大学南强丛书”，共15部优秀的学术专著，影响极佳，广受赞誉，为70周年校庆献上了一份厚礼。此后，逢五逢十校庆，“厦门大学南强丛书”又相继出版数辑，使得“厦门大学南强丛书”成为厦大的一个学术品牌。值此建校95周年之际，我们再次遴选一批优秀著作出版，这正是全校师生的愿望。入选这批“厦门大学南强丛书”的著作多为本校优势学科、特色学科的前沿研究成果。作者中有院士、资深教授，有全国重点学科的学术带头人，有新近在学界崭露头角的新秀，他们都在各自的学术领域中受到瞩目。这批学术著作的出版，为厦门大学95周年校庆增添了浓郁的学术风采。

至此，“厦门大学南强丛书”已出版了六辑。可以说，每一辑都从一个侧面反映了厦大学人奋斗的足迹和努力的成果，丛书的每一部著作都是厦大发展与进步的一个见证，都是厦大人探索未知、追

求真理、为民谋利、为国争光精神的一种体现。我想这样的一种精神一定会一辑又一辑地传承下去。

大学出版社对大学的教学科研可以起到很重要的推动作用，可以促进它所在大学的整体学术水平的提升。在 95 年前，厦门大学就把“研究高深学术，养成专门人才，阐扬世界文化”作为自己的三大任务。厦门大学出版社作为厦门大学的有机组成部分，它的目标与大学的发展目标是相一致的。学校一直把出版社作为教学科研的一个重要的支撑条件，在努力提高它的学术出版水平和影响力的过程中，真正使出版社成为厦门大学的一个窗口。“厦门大学南强丛书”的出版汇聚了著作者及厦门大学出版社全体同仁的心血与汗水，为实现厦门大学“两个百年”的奋斗目标做出了一份特有的贡献，我要借此机会表示我由衷的感谢。我不仅期望“厦门大学南强丛书”在国内学术界产生反响，而且更希望其影响被及海外，在世界各地都能看到它的身影。这是我，也是全校师生的共同心愿。

2016 年 3 月

前　言

1896 年,贝可勒尔(Becquerel)发现放射性现象,标志着核科学的开端。之后不久,卢瑟福(Rutherford)于 1904 年,提出可以用放射性衰变产生的累积氦数量测定铀矿物的形成年龄。之后人们开展了放射年代学的研究工作,经过 100 多年的发展,放射年代学的原理被探讨,方法被建立,并被应用于地球科学与环境变化研究。向最早将同位素技术应用于海洋学研究追溯,同位素海洋学也已有 100 年的历史,经过地球化学海洋剖面计划(Geochemical Ocean Sections Program, GEOSECS)及之后几十年的发展,海洋放射年代学形成了系统的知识体系,所以将其进行专门论述对学科发展和教学都具有重要意义。

本书是笔者继《海洋放射性核素测量方法》和《同位素海洋学》之后的第三本专著。利用放射性同位素时标特性的研究遍布海洋学各个领域,包括水体交换、水中物质运输、海洋环境变化等。同位素海洋学的内容大致可以分为水体海洋学过程的同位素示踪研究和海洋放射年代学两个主要方面。《同位素海洋学》一书主要论述水体海洋学过程的同位素示踪研究方面的内容,本书主要论述海洋放射年代学的内容。

本书以核素分组论述海洋放射年代学,除第一章综述外,全书可分为 3 组,第二、三、四章是天然放射系核素的测年,第五、六章是宇宙放射性核素的测年,第七章是人工放射性核素的测年。不同组的测年核素有多种,每一种有不同的适用范围,也就适合于不同的测年体系。比如 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 方法,在近海沉积年代学研究中得到广泛应用,经过 50 多年的研究,积累了大量的近海沉积物年代学数据,使近海沉积物成为一种体系,其年代学的基本轮廓已经呈现。第四章论述了 ^{210}Pb 测年方法之后对中国海的沉积年代进行了综述。 ^{230}Th 和 ^{231}Pa 适合于深海沉积物的测年。 ^{10}Be 和 ^{129}I 适合于铁锰结核、铁锰结壳和新生代沉积物的测年,人们利用 ^{10}Be 建立了铁锰结核和结壳的年代框架。笔者所在实验室用 ^{129}I 方法进行了铁锰结壳的年代

学研究。

本书从3个层次考虑写作内容,分别是原理、方法和体系年表。从原理到方法,再到体系的年代,构成一体化的内容。基础是原理和方法,在探明原理、建立方法的基础上,建立年表是海洋放射年代学的目的所在,可以从测年对象区分测年体系。海洋放射年代学的研究主体是海洋沉积物,本书论述的年代体系也主要是海洋沉积物。从沉积速率的差异可以将海洋沉积物分为3种体系——大洋或深海系统、边缘海沉积系统和近岸沉积系统,这3种沉积系统的沉积速率分别在mm/ka, cm~10 cm/ka和cm/a量级。见报的海洋测年介质还有海水、铁锰结核、铁锰结壳、珊瑚、热液硫化物、海洋生物遗核等。与海洋沉积物可以建立年代序列类似,铁锰结核、铁锰结壳、珊瑚是顺序生长介质,也可建立年代序列,是独立的测年体系。显然没有普适的测年介质,也没有普适的测年核素,一种核素只适合某种或某几种测年介质。

对每一种测年方法,在介绍了原理和方法之后,介绍了应用最多的测年体系,如在²¹⁰Pb测年一章,介绍了中国近海的沉积物测年;²³⁰Th和²³¹Pa过剩方法中介绍了深海沉积物的测年;¹⁰Be和¹²⁹I方法中介绍了铁锰结壳测年等。

目前发现的最老洋壳的年龄约 2×10^8 a,而洋壳的主体部分年龄在 1×10^8 a以下。海洋放射年代学的研究对象在洋壳形成之后形成,所以测年的时间尺度在亿年之内。按半衰期和事件发生时间分,人工放射性核素和²¹⁰Pb适合10~100 a时间尺度的测年;³²Si适合100~500 a时间尺度的测年;²²⁶Ra适合800~8 000 a时间尺度的测年;¹⁴C适合 $2 \times 10^3 \sim 5 \times 10^4$ a时间尺度的测年;²³⁰Th和²³¹Pa测年的时间尺度在 $10^4 \sim 10^5$ a;¹⁰Be的半衰期为 1.6×10^6 a,适合 $10^6 \sim 10^7$ a时间尺度的测年;¹²⁹I的半衰期为 1.57×10^7 a,适合 $10^7 \sim 10^8$ a时间尺度的测年。以上方法似乎涵盖了海洋测年介质的时间范围,但实际上并不完善,主要是因为一些测年体系没有合适的核素,一些时间尺度缺乏合适半衰期的核素。由于含量水平和测量技术的限制,³²Si测年方法并未得到很好应用,100~500 a时间尺度的测年仍需进一步发展。

核素地球化学是每一种测年方法的基础,所以在每一种测年方法之前尽可能对测年核素的地球化学进行介绍,尽管一些核素的地球化学性质可能是与测年关系不密切的。

环境放射性核素的测量有专门的出版物,常见核素的测量有国家和国际标准可用。本书所涉及的核素也可参照笔者的《海洋放射性核素测量方法》一书中的方法。在各个章节,本书对核素的测量方法选择与测量中可能出现的问题进行了讨论。

在海洋放射年代学发展中,人们类比同位素地质年代学,提出方法可行性的基础——前提条件或假设,即所谓封闭体系;海洋放射年代学最主要的测年介质——海洋沉积物;对测年的主要核素——天然放射系核素,并不存在封闭体系。之所以能应用这些核素进行测年,可能是因为测年核素在测年时间尺度内,在沉积物中的迁移和扩散对测年造成的影响是可忽略的。也有一些体系,如珊瑚、其他海洋生物遗骸,可能可以作为封闭体系处理,并有一些相关的报道。但从总体看,封闭体系假设前提的研究还不够充分,本书对这方面内容的论述也较少。

笔者的海洋放射年代学知识主要源于 *Uranium-Series Disequilibrium: Applications to Earth, Marine, and Environmental Sciences* (Edited by Ivanovich M and Harmon R S) 一书和各种期刊发表的有关海洋放射年代学的文章。

过刊和现刊的相关文献是笔者多年来的知识来源。参考文献是知识体系形成的重要来源之一,本书列出了笔者读过的相关文献,部分文献可能未在文中引用。笔者经常反复阅读同一篇文献,反复琢磨知识体系基础构成和还未达到的深度,也在思考也许可能在未来某一时刻会想到要再读某一篇已知的文献。另外也顾及,如果发现书中的错误,可以追溯原始文献,寻找正确的答案。

黄奕普教授开创和发展了厦门大学的同位素海洋学研究,在他的主持下,厦门大学引进了国际上先进的放射性与稳定同位素测量仪器设备,并利用其开展海洋学各个学科方向的研究工作。海洋放射年代学是研究方向之一,经过几十年的努力,成果颇丰,使厦门大学的同位素海洋学研究在国内处于领先水平,并在中国的海洋学研究中占有一席之地。黄教授之后虽然已没有独树一帜之感,但也群星灿烂。笔者不是黄教授的弟子,但也是在黄教授的帮助下走上同位素海洋学研究之路的。值此厦门大学 95 周年之际,又是黄教授 80 岁寿辰,以上数语谨表对黄教授的感谢和祝贺。

在本书的思路形成与写作过程中,笔者曾向许多学者讨教,特别是和同事进行了反复讨论,得到他们的支持与帮助,在此表示衷心感谢。

在写作与校对过程中,笔者发现数据的编辑是最费心的,也是最容易出错的,一组数据经常要通过反复阅读同一篇文献才能确认,但还是难免出错。尽管笔者想将本书写好,但由于水平有限,所掌握的海洋放射年代学知识还很不够,加上时间仓促,书中一定存在错误与不足之处,一些章节不够深入,希望读者不吝赐教,将发现的错误和有用的看法用各种方法告诉笔者。笔者的电子邮件地址:lgshan@xmu.edu.cn。

著者

2015.12.12

目 录

第一章 放射性核素测年基本原理与方法综述	001
第一节 放射性核素测年基本原理	001
第二节 铀系测年方法原理	007
第三节 放射性核素测年方法综述	012
第四节 沉积速率与生长速率测定原理	019
第五节 测年时间尺度与时间分辨率	021
第二章 铀系之子体累积法测年	026
第一节 ^{231}Pa 累积法测年	026
第二节 ^{230}Th 累积法测年	030
第三节 ^4He 累积法测年	034
第四节 ^{228}Th 累积法测年	037
第五节 珊瑚礁测年	041
第六节 海洋磷灰岩测年	049
第七节 海洋热液沉积测年	054
第八节 考古样品铀系法测年	059
第三章 铀系之子体过剩法测年	070
第一节 海洋沉积物天然放射系核素的地球化学	070
第二节 基于子体过剩的测年方法	080
第三节 $^{230}\text{Th}_{\text{ex}}/^{232}\text{Th}$ 和 $^{231}\text{Pa}_{\text{ex}}/^{230}\text{Th}_{\text{ex}}$ 比值法测年	089
第四节 深海沉积物测年	094
第五节 $^{231}\text{Pa}_{\text{ex}}/^{230}\text{Th}_{\text{ex}}$ 示踪的大洋环流和颗粒物输运过程	096

目
录

第四章 ^{210}Pb过剩法与中国海的现代沉积物测年	106
第一节 海洋沉积物中 ^{210}Pb 的来源和 ^{210}Pb 与 ^{226}Ra 的衰变	
不平衡	107
第二节 海洋沉积物 ^{210}Pb 测年方法	109
第三节 表层沉积物的混合过程	116
第四节 中国边缘海的现代沉积物测年	117
第五节 环厦门海域与胶州湾的沉积年代	124
第六节 关于 ^{210}Pb 测量方法的讨论	130
第五章 宇生放射性核素测年	137
第一节 ^{10}Be 测年方法	137
第二节 海洋铁锰结壳生长速率的 ^{10}Be 法测定	142
第三节 宇生 ^{129}I 测年	152
第四节 应用宇生 ^{129}I 的海洋铁锰结壳测年	156
第五节 应用宇生 ^{32}Si 的海洋沉积物测年	162
第六章 ^{14}C的海洋放射年代学	175
第一节 ^{14}C 测年方法原理	175
第二节 ^{14}C 测年校正与结果误差分析	178
第三节 ^{14}C 的海洋化学与大洋环流	182
第四节 海洋沉积物的 ^{14}C 测年	190
第五节 ^{14}C 测年样品处理方法与存在的问题	192
第七章 人工放射性核素测年	201
第一节 海洋环境中人工放射性核素的源项	201
第二节 人工放射性核素测年参考时间	206
第三节 应用 ^{137}Cs 的海洋沉积物测年	213
第四节 人工 ^{129}I 测年	215
第五节 中国湖泊的沉积物测年	220

第一章 放射性核素测年基本原理与方法综述

放射性核素测年方法通过测定体系中放射性核素的活度确定研究体系的形成年代。放射年代学要求体系是封闭的,即研究体系或用于测年部分——测年材料在体系形成后没有与外界发生物质交换。在海洋学研究中,人们并不能保证这种假设成立,实际上可能是测年核素的性质刚好能近似满足这种条件。

第一节 放射性核素测年基本原理

1 放射性核素测年基本原理

地表环境条件下,放射性核素衰变由于不受环境温度、压力、电磁场及自身化学形态的影响,因此封闭体系形成后,其中的放射性核素原子数和放射性活度将按自身的衰变规律变化。这就是通常所说的指数衰减规律。

$$N = N_0 e^{-\lambda t} \quad (1.1.1)$$

$$A = A_0 e^{-\lambda t} \quad (1.1.2)$$

我们将式(1.1.1)和式(1.1.2)称为测年方程。其中, N_0 和 A_0 分别是体系形成时测年材料中的母核原子数和活度; N 和 A 分别是测定时测年材料中该核素的原子数和活度; λ 是衰变常数,与半衰期 T 的关系为 $\lambda = \frac{\ln 2}{T}$; t 是体系形成至测定时刻的时间间隔。由式(1.1.1)和式(1.1.2)

可以看出,放射性核素的原子数和活度是时间的函数,因而可以得到体系形成至测定时历经的时间为

$$t = \frac{1}{\lambda} \ln \frac{N_0}{N} = \frac{T}{\ln 2} \ln \frac{N_0}{N} \quad (1.1.3)$$

或

$$t = \frac{1}{\lambda} \ln \frac{A_0}{A} = \frac{T}{\ln 2} \ln \frac{A_0}{A} \quad (1.1.4)$$

以上就是利用放射性核素测年的基本原理。所有放射性核素测年方法均建立在以上原理基础之上。由于所研究的体系被关注的大都是形成时至测定时的年代，所以通常在式(1.1.1)和式(1.1.2)中， N 和 A 是测定时测年材料中的测年核素的原子数和活度， t 是体系形成时至测定时的时间间隔——年代。当然也可以定义 N 和 A 为某个时间的原子数和活度，但这种定义将使计算复杂化。

原子数 N 和活度 A 之间有如下关系：

$$A = \lambda N = \frac{\ln 2}{T} N \quad (1.1.5)$$

纯物质的质量 m 和原子数 N 之间可以通过阿伏伽德罗常数 N_A 换算：

$$m = \frac{N}{N_A} M \quad (1.1.6)$$

式中， M 为原子量。

对于一项研究而言，式(1.1.1)~式(1.1.4)中， N 和 A 是研究时测定的， T 有表可查，或可以用核物理方法测定。为了进行测年，还必须知道 N_0 或 A_0 ，或者利用 N_0 或 A_0 与其他量的关系，对式(1.1.1)~式(1.1.4) 进行变量变换，达到计算 t 的目的。为此人们提出各种假设并建立了种种测年方法，其中的假设也就是测年依据的前提条件。

海洋学研究中直接利用式(1.1.3)和式(1.1.4)测年的核素并不多， ^{14}C 是一种，另一种可能是 ^{129}I 。这种方法以母核的半衰期作为参考时间，并假设体系形成时测年核素活度已知。 ^{129}I 和 ^{14}C 测年将分别在第五章和第六章中论述。

2 体系形成时子核数为零的测年方法

2.1 方法原理

不存在子体核素，则作为封闭体系有

$$N_{10} = N_1 + N_2 \quad (1.1.7)$$

式中，下标“1”表示母核，下标“2”表示子核； N_{10} 是 $t=0$ 时的母核原子数。式(1.1.7)与式(1.1.1)联立可得子体原子数随时间的变化，即测年方程为

$$N_2 = N_{10} (1 - e^{-\lambda_1 t}) \quad (1.1.8)$$

$$N_2 = N_1 (e^{\lambda_1 t} - 1) \quad (1.1.9)$$

由式(1.1.9)可以得到

$$t = \frac{1}{\lambda_1} \ln \left(\frac{N_2}{N_1} + 1 \right) = \frac{T_1}{\ln 2} \ln \left(\frac{N_2}{N_1} + 1 \right) \quad (1.1.10)$$

利用式(1.1.10)测年，由于假设体系形成时子核原子数为零，需要测定的是测量时测年材料中的母、子体核素含量，克服了需要假设体系形成时母核含量已知的困难。

2.2 ${}^3\text{H}-{}^3\text{He}$ 方法测定水体的年龄

海洋水团是源地和形成机制相同，具有相对均匀的物理、化学和生物学特征的大体一致变化趋势的宏大水体。世界大洋及其附属海的大多数水团都是先在海洋表层获得其初始特征，经混合下沉与扩散形成的。

表层水下沉之后与大气隔绝，下沉过程中也向远方运移，随时间推移，下沉水团远离源地，由于衰变，随时间，也随离源地的距离，其中的放射性核素浓度逐渐减小。 ${}^3\text{H}$ (tritium, 氚，用 T 表示)主要以水分子 HTO 结合的形式存在于环境中，HTO 与 H_2O 具有完全相同的化学性质，所以特别适合用来研究水交换与混合过程。 ${}^3\text{H}$ 衰变产生的 ${}^3\text{He}$ ，由于是惰性气体，因此被认为具有保守行为。在表层水中， ${}^3\text{He}$ 生成后会逸出到大气中，所以表层水中的 ${}^3\text{He}$ 浓度可以认为等于零。

追踪一个微水团，从表层起，向下、向远方运移，由于衰变， ${}^3\text{H}$ 浓度逐渐降低， ${}^3\text{He}$ 浓度从零起逐渐升高，可以用子核数为零的测年方法估算微水团下沉——向远方运移过程中历经的时间。用核素符号表示核素浓度，式(1.1.10)的形式如下：

$$t = \frac{T_1}{\ln 2} \ln \left(\frac{{}^3\text{He}}{{}^3\text{H}} + 1 \right) \quad (1.1.11)$$

式中, ${}^3\text{He}$ 和 ${}^3\text{H}$ 分别表示水样中 ${}^3\text{He}$ 和 ${}^3\text{H}$ 的浓度。图 1.1.1 所示是 ${}^3\text{H}$ - ${}^3\text{He}$ 方法得到的北大西洋水体的年龄分布。用 ${}^3\text{H}$ - ${}^3\text{He}$ 方法估算水体年龄时需要注意, 在海水团中, 除了 ${}^3\text{H}$ 衰变产生的 ${}^3\text{He}$, 还要考虑其他影响因素 (Doney et al., 1997)。

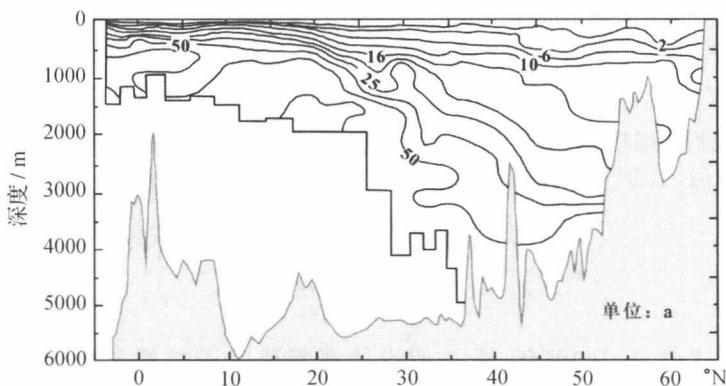


图 1.1.1 ${}^3\text{H}$ - ${}^3\text{He}$ 方法得到的北大西洋水体的年龄分布
(Doney et al., 1997)

2.3 钾-氩法测年

${}^{40}\text{K}$ 衰变时有两种子体核素, 所以钾-氩法测年计算公式中多出一个分支比因子, 式(1.1.10)变为

$$t = \frac{1}{\lambda_1} \ln \left(\frac{{}^{40}\text{Ar}}{Y {}^{40}\text{K}} + 1 \right) = \frac{T_1}{\ln 2} \ln \left(\frac{{}^{40}\text{Ar}}{Y {}^{40}\text{K}} + 1 \right) \quad (1.1.12)$$

式中, Y 为 ${}^{40}\text{K}$ 衰变至 ${}^{40}\text{Ar}$ 的分支比。由于子体是惰性气体核素, 因此体系形成时满足子核数为零的前提条件。

例如, 测得一矿样中的 ${}^{40}\text{K}$ 含量为 4.189%, ${}^{40}\text{Ar}$ 含量为 0.1653×10^{-6} , 该矿样满足钾-氩法测年条件, 计算该矿样的年龄。

计算公式即式(1.1.12), 设矿样重为 W , 则

$${}^{40}\text{Ar} = W \times \frac{0.1653 \times 10^{-6}}{39.948} \times N_A$$

39.948 是 ${}^{40}\text{Ar}$ 的原子量, N_A 是阿伏伽德罗常数。