

高等学校研究生试用教材

(中国地质大学(北京)“~~国家~~工程”资助出版)

同位素地质年代学与地球化学

陈岳龙摇杨忠芳摇赵志丹摇编著

地 质 出 版 社

· 摇北摇摇京摇 ·

内 容 提 要

本书由同位素地质年代学、同位素示踪地球化学两篇组成，完整、系统地介绍了同位素地球化学的基本理论及其实际应用和应用中需注意的问题。并对近十多年来国际上同位素地球化学的研究，尤其对区域构造及壳幔演化、成岩成矿作用、生态环境的演化及稀有气体同位素地球化学研究中的新成果作了系统的介绍。本书内容完整、新颖实用，对理论与实例的论述深入浅出，适合于地质、地球化学及相关专业的研究生及专业研究人员参考使用。

图书在版编目 (CIP) 数据

同位素地质年代学与地球化学 岳龙等编著 ①—北京：

地质出版社，2006

高等学校研究生试用教材

Ⅰ. 岳… Ⅱ. 岳… Ⅲ. 岳… Ⅳ. ①

Ⅰ 同位素地质学—研究生—教材 Ⅱ 援陈… Ⅲ 同位素地质年龄—研究生—教材 Ⅳ 同位素地质学—研究生—教材

中国版本图书馆 CIP 数据核字 (2006) 第 040000 号

责任编辑：白铁 李凯明

责任编辑：关风云

出版发行：地质出版社

社址邮编：北京市海淀区学院路 29 号，100029

电话：(010) 64631111 (邮购部)；(010) 64631112 (编辑室)

网 址：http://www.geopress.com.cn

电子邮箱：zhuangyue@geopress.com.cn

传真：(010) 64631111

印刷：北京科印印刷有限公司

开 本：787mm×1092mm 1/16

印 张：10

字 数：250 千字

印 数：1—5000 册

版 次：2006 年 1 月北京第一版·第一次印刷

定 价：28.00 元

ISBN 7-116-04000-0 地质出版社

摇 摇 (凡购买地质出版社的图书，如有缺页、倒页、脱页者，本社出版处负责调换)

前 言

在中国地质大学（北京）“~~圆~~工程”与中国地质大学（北京）研究生院资助下，编著者经过艰苦的努力，终于完成了本书的写作并交出版社出版。首先我们要感谢余钦范教授，学科群邓晋福教授、罗照华教授及研究生院岑况教授对编著者自始至终的关心与指导；同时感谢国家自然科学基金委员会（基金资助号 ~~源~~~~源~~~~源~~）、教育部高校青年骨干教师计划、教育部重点科研项目（重点 ~~园~~）的资助使编著者在编写本书时，有许多新的认识与结论融入到其中。

同位素地质年代学与地球化学经历了近一个世纪的发展，取得了许多重大的发现，同时创立了许多重要的理论，尤其是近年来高精尖仪器（如灵敏高分辨离子探针、多接收杯等离子体质谱、色质联用单分子质谱）引入到地球科学的研究中，可以毫不夸张地说，每天都有新的发现。由于编著者才疏学浅，许多新的发现与理论不能全部汇集到本书中，在此，对读者表示歉意，并期待着读者提出宝贵意见，以便作者更正其中的谬误。

作者在长期的教学、科研过程中，深感目前国内出版的有关同位素年代与地球化学的参考书有的过于专，有的过于简，还有的资料太陈旧。~~员~~年加拿大学者 ~~粤~~出版了“~~同~~”，书中主要汇集了年代学方面的主要理论与实际应用问题，该书可以说是当前国际同位素年代学研究者的主要参考书。但令人遗憾的是该书没有涉及到稳定同位素地球化学。为此，我们便尝试将该书的主体与稳定同位素地球化学相结合，编著一本包含同位素年代学与稳定同位素地球化学的研究生教学参考书。在编译与收集资料的过程中才感到这项任务非常繁重，一是由于科研与教学工作要持续不断地进行，编写工作就不得不时断时续；二是由于编译者的水平有限，对许多新理论缺乏深入的了解，资料的收集就非常缓慢。但是，教学过程中学生们支持与信赖给了我们动力，他们迫切希望我们尽早将讲稿整理后出版。因此，我们克服了重重困难，使此书最终能与读者见面。

在编译过程中，我们对原书中的一些错误进行了订正，补充了我国一些新的研究成果。愿本书的出版起到抛砖引玉的作用，使我国的同位素地质年代学与地球化学的研究在国际上取得一席之地，由地质大国转变为地质强国。愿我们年轻一代的地球科学家在国际地球科学的论坛上创造出新的理论，被国际同行引用，扩大我国地球科学研究的国际影响。

目摇摇录

前摇言

第一篇摇同位素地质年代学

第一章摇序摇论	(员)
第一节摇核衰变	(猿)
第二节摇实验技术	(员园)
第三节摇数据处理	(员园)
第二章摇砸晕测定法	(员缘)
第一节摇火成岩定年	(员缘)
第二节摇变质岩定年	(猿园)
第三节摇沉积岩定年	(猿园)
第四节摇海水演化	(猿圆)
第三章摇杂皂晕法	(源圆)
第一节摇杂皂晕等时线	(源圆)
第二节摇晕当同位素演化与模式年龄	(缘圆)
第三节摇模式年龄与地壳过程	(远圆)
第四节摇晕当模式年龄与地壳增长	(远圆)
第五节摇海水中的 晕当	(苑圆)
第四章摇哉藻孕法	(苑圆)
第一节摇锆石 哉藻孕定年	(苑圆)
第二节摇普通 孕定年	(愿圆)
第三节摇孕模式年龄	(愿圆)
第四节摇孕定年与地壳演化	(怨圆)
第五章摇运粤与粤粤定年	(怨圆)
第一节摇运粤定年法	(怨圆)
第二节摇粤粤定年技术	(员园圆)
第三节摇激光探针定年	(员园圆)
第六章摇砸晕系统	(员园圆)
第一节摇分析方法	(员园圆)
第二节摇韵泽标准化与 孕衰变图	(员园圆)
第三节摇地幔钷	(员园圆)
第四节摇钷的成岩作用示踪	(员园圆)

第五节 摇冲击坑中的铀	(页码)
第六节 摇海水铀演化	(页码)
第七章 摇铀矿床及其他长寿命母 原子体定年法	(页码)
第一节 摇铀矿床法	(页码)
第二节 摇铀矿床和铀矿床系统	(页码)
第三节 摇铀矿床系统	(页码)
第八章 摇铀系定年	(页码)
第一节 摇子体过剩	(页码)
第二节 摇子体不足法	(页码)
第九章 摇裂变径迹测年	(页码)
第一节 摇径迹蚀刻	(页码)
第二节 摇计数技术	(页码)
第三节 摇碎屑众数	(页码)
第四节 摇径迹退火	(页码)
第五节 摇抬升和沉降速率	(页码)
第六节 摇径迹长度测定	(页码)
第十章 摇铀及其他宇宙成因核素的定年应用	(页码)
第一节 摇碳铀	(页码)
第二节 摇铍铀	(页码)
第三节 摇氯铀	(页码)
第四节 摇碘铀	(页码)
第五节 摇铝铀	(页码)

第二篇 摇同位素地球化学示踪

第十一章 摇稳定同位素地球化学原理	(页码)
第一节 摇稳定同位素组成的表示法	(页码)
第二节 摇同位素分馏的热力学与量子力学原理	(页码)
第三节 摇同位素动力学分馏	(页码)
第四节 摇同位素地球化学	(页码)
第五节 摇水文系统中的同位素分馏	(页码)
第六节 摇生物系统中的同位素分馏	(页码)
第十二章 摇氢、氧同位素地球化学	(页码)
第一节 摇岩石中氢、氧同位素的变异	(页码)
第二节 摇水岩相互作用	(页码)
第三节 摇氧同位素与古气候学	(页码)
第四节 摇岩浆系统中的氢、氧同位素	(页码)
第十三章 摇碳同位素地球化学	(页码)
第一节 摇碳同位素分馏	(页码)

第二节 天然物质的碳同位素组成	(国缘)
第三节 碳同位素地层学与古气候学	(国缘)
第四节 有机矿物的碳同位素地球化学	(国缘)
第十四章 硫同位素地球化学	(国缘)
第一节 天然物质的硫同位素组成	(国缘)
第二节 硫同位素地层学	(国缘)
第三节 硫同位素现代环境地球化学	(国缘)
第四节 硫同位素矿床地球化学	(国缘)
第十五章 硅、氮、硼、锂同位素地球化学	(国缘)
第一节 硅同位素地球化学	(国缘)
第二节 氮同位素地球化学	(国缘)
第三节 硼、锂同位素地球化学	(国缘)
第十六章 稀有气体同位素地球化学	(国缘)
第一节 氦	(国缘)
第二节 氩	(猿缘)
第三节 氙	(猿缘)
第四节 氡	(猿缘)
第十七章 大洋火山岩同位素地球化学	(猿缘)
第一节 地幔结构的同位素示踪	(猿缘)
第二节 晕生同位素图	(猿缘)
第三节 孕同位素地球化学	(猿缘)
第四节 同位素多维空间中的地幔库	(猿缘)
第五节 富集地幔组分的识别	(猿缘)
第六节 岛弧与地幔演化	(猿缘)
第十八章 大陆岩石的同位素地球化学	(猿缘)
第一节 地幔包体	(猿缘)
第二节 地壳污染	(猿缘)
第三节 典型大陆岩浆成因	(猿缘)
第十九章 矿床同位素地球化学	(猿缘)
第一节 成矿时代	(猿缘)
第二节 成矿物质来源	(猿缘)
第三节 成矿流体性质与成矿物理化学条件	(猿缘)
参考文献	(源缘)

第一篇摇同位素地质年代学

第一章摇序摇摇论

我们居住的地球是什么时候形成的？我们所见到的矿物、岩石及我们祖先遗留下的物品是什么时候形成的？不同的矿物、岩石、矿床是怎么形成的？解决这些问题就是人类认识自然的过程。关于地球的年龄，在地质学成为独立的研究领域前，在 19 世纪中叶之前不过是神学的一类问题。1784 年大主教乌斯赫（1703-1788）宣布：世界是在公元前 4004 年创造出来的。大约在 1784 年以前，公认的观点是：所有的沉积岩都是在诺亚及其部族遇到的大洪水期间沉积的，并且，地球的所有表面形态都是由断断续续的突变事件造成的。

地质学作为独立学科后，首先苏格兰的詹姆斯·赫顿（1726-1797）强调了造成地球表面形态的缓慢而连续作用过程的重要性，并在 1785 年提出了均变论的概念。其主要观点是：现在所发生的地质过程造成了地球过去的历史，而且在将来还会继续下去。他认为：“……既没有开始的痕迹，也没有终止的征兆”。

1830 年，查理·莱伊尔（1797-1830）出版了他的《地质学原理》第一卷，肯定了均变原理。到了 19 世纪中叶，地质学家有把握地相信：地球确实是很古老的，野外填图填到的巨厚沉积岩，其沉积作用实际上要非常长的时间。

然而在 19 世纪后半叶，地质学家对地球年龄的估计受到威廉·汤姆逊（1824-1894）的意外攻击。他是当时英国最杰出的物理学家。在 1852-1859 年间，他根据太阳发光度、地球的冷却史和月亮潮汐对地球自转速度的影响，最初认为地球的年龄不可能大于 1 亿年。在他以后的文章中，地球的年龄进一步被减小。1862 年，汤姆逊把地球的年龄缩小至 1000-10000 年之间。这样导致一些人徒劳地去加快过去的地质作用，以便将地球历史缩短到汤姆逊所允许的年龄内。

1896 年，法国物理学家亨利·贝克勒尔（1852-1908）公布了放射性的发现。仅仅几年之后，人们就认识到放射性元素的衰变是一个放热过程。岩石的天然放射性产生热量，使地球不只是像汤姆逊所假定的是冷却的物体。于是地质学历史上的一段困难时期宣告结束。

以后的地质学家们，则根据各种动植物的进化来估计地质体所经历的时间，即古生物学方法。这种方法虽然只能给出相对的时间，但它为地壳演化史建立了一个相对时标。人们可根据这种时标，再结合地层的厚度、相变及沉积间断的研究，建立地史学和地史年表，从而将地球发展史由老到新分成古生代、中生代、新生代等。进一步结合岩层物质成分、岩石的剩余磁性、构造运动旋回、岩浆岩、岩脉出现的先后顺序、变质程度及其他后期地质作用对早期地质体的改造关系等来划分地质作用阶段。所有这些方法至今仍有实际

意义。但这些方法只能提供某地质事件的先后顺序，不能给出确定的时间值及延续的时间。此外，对不含化石的约占地球历史 $\frac{2}{3}$ 以上的前寒武纪更是无法确定其时间顺序。

19世纪初，放射性元素的发现以及居里、卢瑟福、索迪、汤姆逊、拉姆齐等人随后的工作，对地质学产生了深远的影响。1896年，索迪与卢瑟福一起从事钍的化合物研究，使得他们把放射性衰变与增长的理论系统化。他们指出：放射性元素的原子自发衰变形成另外元素的原子。这种衰变伴随着放出 α 粒子和 β 粒子，并且放出粒子的强度与放射性原子的数量成比例。其衰变速率为： $N = N_0 e^{-\lambda t}$ （ λ 为衰变常数，代表单位时间内一个原子可能衰变的几率， N_0 为现有的放射性原子的数目）。1903年，居里和拉博尔德证明放射性衰变是一个放热过程，这为地质学家测量岩石的放射性及计算热产率开拓了一条新的思路。1905年，斯特拉特（~~詹姆斯·查德威克~~）根据岩石中镭的含量首先做了这种计算。1906年，乔利（~~詹姆斯·查德威克~~）认识到由于放射性矿物的存在，使岩石中产生多色晕圈。放射性不仅引起岩石中产生热，而且也提供了测量岩石与矿物年龄的精确方法。1907年，卢瑟福在耶鲁大学讲学期间提出：铀矿物的年龄可以用它们中累积的氦的数量来测定。并且用这种方法实际测定了几个铀矿物的年龄，得到大约为 4.5 亿年。从而证明汤姆逊对地球年龄的估计是错误的。1908年，美国化学家博尔德伍德（~~詹姆斯·查德威克~~）得到大多数的铀矿物中 $\frac{\text{氦}}{\text{铀}}$ 比值是个常数。1909年，他又根据希勒布兰德（~~詹姆斯·查德威克~~）在 1905 年和 1906 年完成的沥青铀矿的精确化学分析，推测铅是铀衰变的稳定最终产物；1910年，博尔德伍德发表了根据 $\frac{\text{氦}}{\text{铀}}$ 比值作出的三个沥青铀矿样品的年龄测定，得到的年龄范围从 1.5 亿到 4.5 亿年（此结果与现代相同地点取得的类似样品所做的年龄测定相吻合）。博尔德伍德的年龄测定是在同位素被发现以前做的，那时还不知道铅也是由钍衰变产生的，并且不知道精确的铀衰变常数。

1913年，霍姆斯出版了他的著作——《地球的年龄》。该书明晰地评论了这门技术当时的状况，并根据堆积的沉积岩的厚度和含铀矿物中氦和铅的形成提出了第一个地质年代表。但当时的地质学家依然沿用汤姆逊的观点，抱怨根据放射性进行的年龄测定使地球的年龄太长。其原因是放射性计算的年龄远大于由剥蚀速率、大洋含盐量与沉积速度得到的年龄值。这种差别表明了或者是地质历史上的沉积速率比现在的慢，或者是大量的沉积物被剥蚀掉了。霍姆斯 1913 年发表的地质年代表将太古宙片麻岩的年龄定为 4.5 亿年，但是他推断最老的太古宙岩石必然有 4.5 亿年的年龄。

1919年阿斯顿和 1920年登普斯特设计出了质谱仪，发现了元素周期表中大部分元素的天然同位素，并且测量了它们的质量和丰度。20世纪 20年代末，在改进的质谱仪的帮助下，元素的天然同位素及测量其质量和丰度的工作已基本完成。1929年，尼尔设计的质谱仪已能测量并解释天然矿物中一些元素同位素组成的变化。20世纪 30~40年代初，质谱设计技术基本完善，形成了我们现在所见的现代质谱计。20世纪 40年代末，质谱分析技术有了新的突破，这就是用轻离子束对矿物微区表面的轰击产生二次离子进行质谱分析的二次离子质谱计（~~詹姆斯·查德威克~~），使得无需对样品进行繁琐的化学分离就可进行单矿物微区同位素组成分析。在此基础上，国立澳大利亚大学的康普斯顿等（~~詹姆斯·查德威克~~）制造出专门用于 ^{238}U 定年的灵敏高分辨离子探针计（~~詹姆斯·查德威克~~）。对于第四纪年龄的测定，随着加速器质谱计的研制成功，现在可以测到几千年前的精确年龄。在质谱计精确测量的同位素组成变化及放射性衰变元素衰变常数精确测定的条件下，地质 地球化学学家

已经认识到地球与球粒陨石基本是同时形成的，大约形成于 45.5 亿年前；目前记录的地壳岩石的最老年龄可达 40 亿年前，记录的太古宙的历史在 40 亿~38 亿年前期间；古生代始于 5.4 亿年前。

第一节 核素衰变

一、核素图

在同位素地质学领域，中子、质子和电子可认为是原子的基本组成部分。一个给定类型的原子（称为核素）成分由核中特定的质子数（原子序数， Z ）和中子数（ N ）来描述。它们的总数就是质量数（ A ）。对所有核素通过在质子数 Z 对 中子数 N 间存在的众所周知的关系图（至少瞬间存在），就可获得核素图（图 1-1）。在该图中，各核素的水平方向代表具有不同中子数（ N ）的同一个元素（即恒定的 Z ）。这些就是同位素。

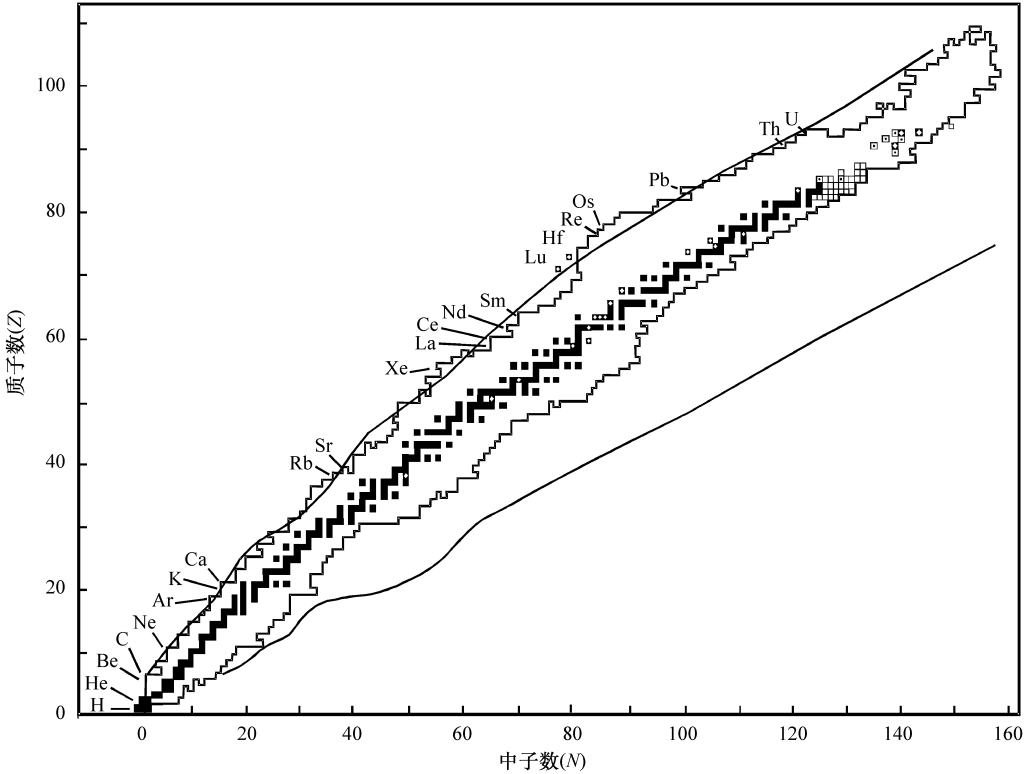


图 1-1 质子数 (Z) 对 中子数 (N) 坐标中的核素图

(据 1973 年, 1974 年)

■ 稳定核素；□ 不稳定核素；▣ 天然产出的长寿命不稳定核素；□ 天然产出的短寿命不稳定核素。

地质上有用的核素标示于图上；平滑的外部范围 理论上核素的稳定限

目前已知有 254 个稳定核素，也就是用可行的探测设备观测不到它们的衰变，它们构成了图 1-1 中黑色的稳定性的中央路径。在该路径的两边锯齿状的轮廓构成了实验上已知的不稳定核素（1973 年, 1974 年）。当某一同位素离开稳定性路径的边，其衰变更加迅速。

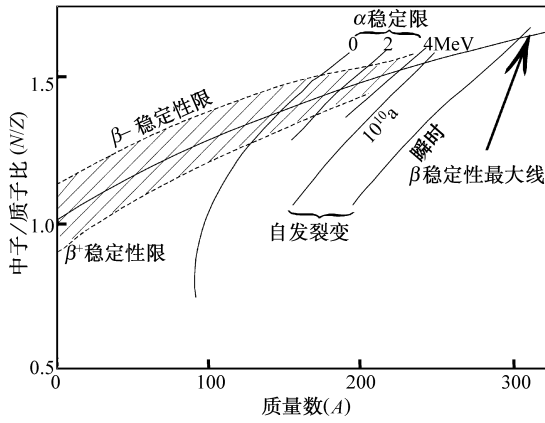


图 1 是在中子数与质量数 (A) 图上核素理论稳定极限示意图
(据 阅 读 社, 页 22)

下限是 α 能量为 0, 放出 α 粒子; 自发裂变的稳定限
表示于 10^{10} 年 (瞬间裂变) 的半衰期

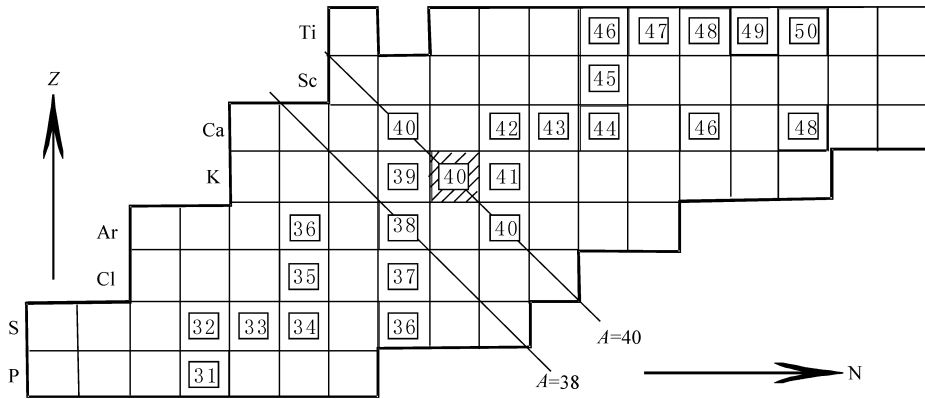


图 2 是在原子序数 (Z) 对中子数 (N) 坐标图上钾区域的部分核素数图
(据 阅 读 社, 页 22)

阴影区为稳定核素; 长寿命不稳定核素以斜线标出; 对角线为同量异位素

后面这种情形下, 以过量的电子结合能放出的核能作为动力能被转化成电子, 它作为线谱叠加于 β 粒子连续谱上。准稳态, 或产物核素的“异构体”被冠以上标“皂”, 其半衰期从小于 1 年到 10 年 (以 ^{90}Zr 为例)。许多 β 发射体具有包含基态产物和多于 1 个短寿命异构体的复杂能量谱。核能衰变产生 1 个或几个不同异构体 (见 阅 读 社, 页 22)。

中子不足的核素, 例如 ^{60}Co , 可通过两个不同的过程衰变: 放出正电子或电子捕获。两个过程都产生母体的同量异位的核素产物。放出正电子中, 带正电的电子 (β^+) 伴随着一个微子从核中放出。至于放出 β^+ , 衰变能在两个粒子动能间分享。与原子碰撞减速后, 正电子与轨道电子相互作用, 因此, 两者都湮灭, 产生两个 0.511 MeV 的 γ 射线 (这形成核转变的部分衰变能)。

电子捕获（ ϵ ）中，一个核中的质子通过捕获轨道上的一个电子（通常是内层中的一个，但也有可能从外层获得）转变成中子。从核中发出中微子，外面的轨道电子成为由电子捕获产生的空隙，发出特征的 X 射线。产物核可处于激发态，在这种情形下由放出 γ 射线而衰变到基态。

当一个衰变路径的过渡能小于正电子质量的相当能量（ $E_{\text{trans}} < m_e c^2$ ）时，衰变全部为电子捕获。其后， β^+ 衰变比例随过渡能的增加而迅速增加，但是少量电子捕获即使在高的过渡能下总是伴随着正电子的放出。

经验观察表明，相邻的同量异位素是不稳定的。由于 β^- 和 β^+ 两者都是稳定同位素， β^- 必定是不稳定的，并显示向两边的分支衰变形成同量异位素。

（二）重粒子衰变

铋以上的重原子在核素图上常常是放出由两个质子和两个中子组成的（ α ）粒子的衰变。子体产物并不是母体的同量异位素，并且原子质量减少 4。产物核素可能处于基态，或保持于激发态，随后放出 γ 射线发生衰变。衰变能被 α 粒子的动能和产物核素的反冲能分享。

铀和钍的衰变系列如图 1 所示。由于在核素图上这段的稳定质子/中子比值的能量谷具有小于 1 的斜率， α 衰变趋向驱使产生离开能量谷的富中子一侧，在那里经历 β^- 衰变。事实上，在相应的 α 衰变前，也可以出现 β^- 衰变。

在核素图的中等质量段，对于富质子的同位素，如 ^{130}Ba ，偶尔可发生正电子或电子捕获衰变。然而，在低原子序数段，由于在该区核稳定路径的斜率接近 1，不出现 α 衰变（图 1）。任何这样的衰变，将简单地驱使不稳定同位素沿着（平行于）能量谷演化。

在铀到钍的衰变系列中近来发现了一种新的放射性衰变，也就是 ^{223}Rn 通过放出 α 直接衰变到 ^{219}Po ，衰变能为 5.4 MeV。然而，这种衰变模式只占不到 1% 的衰变。

（三）核裂变与钍天然反应堆

^{235}U （原子序数 92）经过自发裂变成为两个不同原子序数的产物核，典型的大约为 ^{140}Xe 和 ^{94}Zr （和 ^{141}Ba 和 ^{93}Y ），伴随着其他粒子和大量的能量。由于重母体核素具高的中子/质子比，子体产物具过量的中子通过放出 β^- 射线发生同量异位衰变。尽管 ^{235}U 的自发裂变频率不到其 α 衰变的 1/1000，在较重的超铀元素中，自发裂变是主要的衰变模式。其他核素，如 ^{238}U ，如果经中子轰击，可能发生裂变。而且由于裂变释放中子又促使进一步的裂变反应，这样链式反应就建立起来了。如果易裂变核素的浓度足够高，将导致热中子爆炸，就像超新星或原子弹爆炸一样。

在特殊情况下，保持着中等重元素浓度，自维持但非爆炸链式反应也是可能的。这主要取决于“协调剂”的存在与否。由裂变产生的高能“快”中子与协调剂原子发生多次弹性碰撞。它们被减速为“热”中子，具介质热振动的速度特征，这种速度对增进周围重原子裂变反应是最优的。已知的这种现象的一个天然例子称为钍天然反应堆。

1972 年 1 月，在进入法国处理厂的铀矿石中发现了亏损 ^{235}U ，追踪到位于中非加蓬共和国钍的一个矿床。尽管表面上看明显不可能，但是大量的地质证据表明，这种 ^{235}U 亏损是由 20 亿年前的天然裂变反应堆引起的。看起来是在古元古代，要求产生天然裂变反应

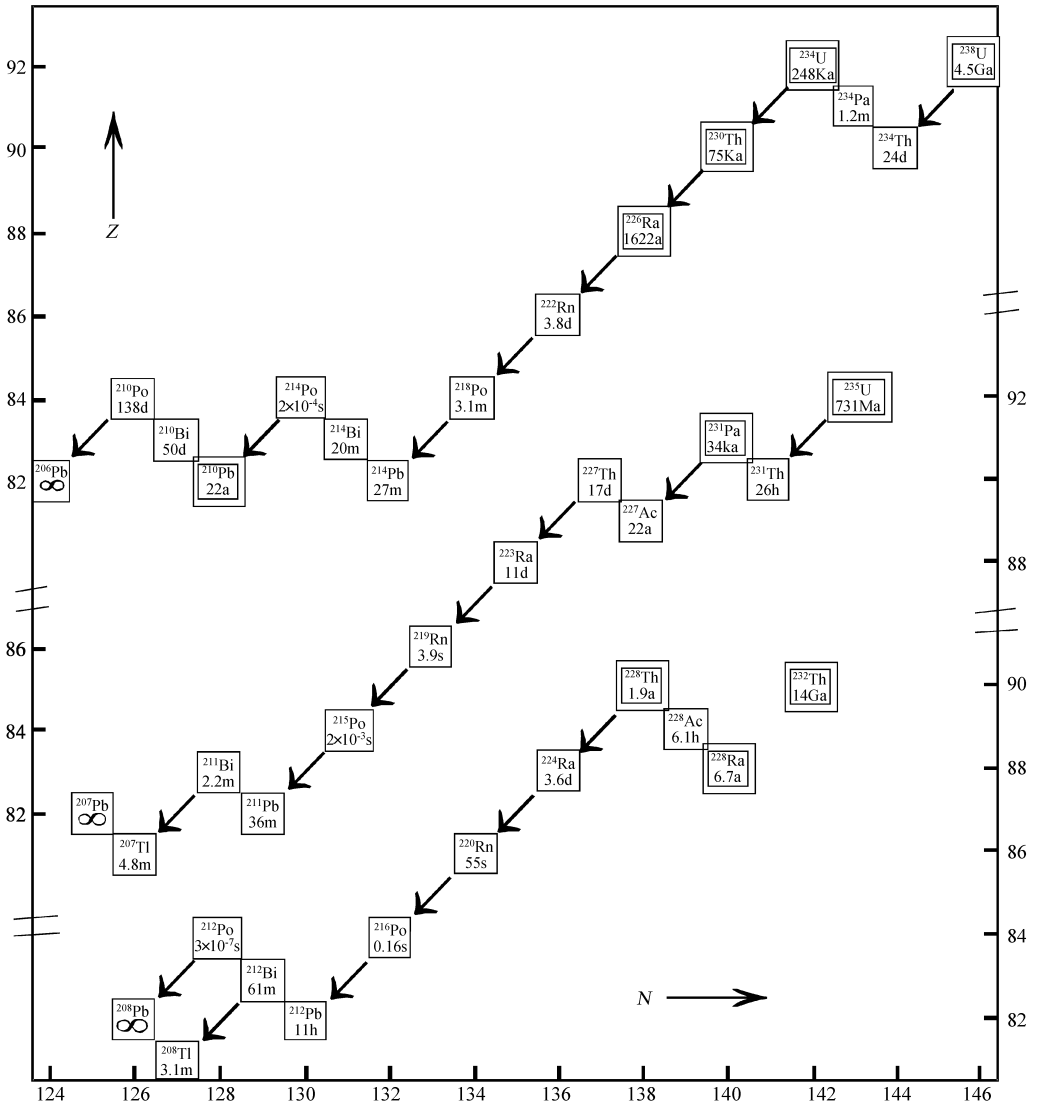


图 1 铀系在 衰变链中核素在 图上的部分核素图及其半衰期
 (据 有用核素用双框表示)

应堆的条件比现在更容易通过一系列的巧合达到。

分布于花岗岩质基底中的铀可能被剥蚀并集中于河床砂矿床中。在当时大气条件下，铀以不溶还原态形式在此环境中被固定下来。随着蓝原绿藻（第一种能发生光合作用的有机质）的出现，大气的氧浓度的增加，并且河水可能上升，将一些还原铀转化成为更可溶的氧化物形式。这些东西以溶液形式被带到下游。当可溶铀达到河流三角洲时，它必定遇到富有机质软泥的沉积物，产生缺氧环境，铀再次被还原和固定下来，但已达到非常高的浓度（高达 的铀）。

沉积物在埋藏和压实后，被抬升、褶皱与破裂，使得氧化性的地下水活化和浓缩，矿

石成为宽度超过 1 厘米的几乎纯铀氧化物的矿脉。因此，在元古宙获得的特殊氧逸度条件有助于产生特别富集的矿床。然而，作为反应堆运行，与现在的天然铀水平相比，在那时依赖于更高的 ^{235}U 浓度（约 3%），在终止时间内通过衰变，浓度减小了。

在天然铀这种情形下，轻水（ H_2O ）必定起到过协调剂的作用，核反应受控于对流加热或沸腾的热丢失与冷的地下水的流入取代之间的平衡。在这种方式下，估计的总能量输出（ $\text{MWt} \cdot \text{t}^{-1}$ ）相当于消耗 1 吨铀可能在大约 10 年内仅平均为 1000 吨。

这种裂变现象的地球化学证据首先来自裂变产生的元素丰度特征。如，观测过量的稀土元素和像钷这类的其他不活泼元素。碱金属和碱土金属可能也是富集的，但随后通过淋滤被消去。第二，一些元素的特征同位素丰度仅能由裂变加以解释。

天然铀矿床的钷同位素成分是非常特征的（图 10）。 ^{147}Sm 不受富中子裂变产物的同量异位素衰变影响。因此，它的丰度指示了正常钷的水平。校正了由 ^{147}Sm 和 ^{148}Sm 大截面核素因中子捕获而增高的 ^{147}Sm 和 ^{148}Sm 丰度后，天然铀的钷具有非常类似于正常反应堆裂变废物的同位素组成（图 10）。

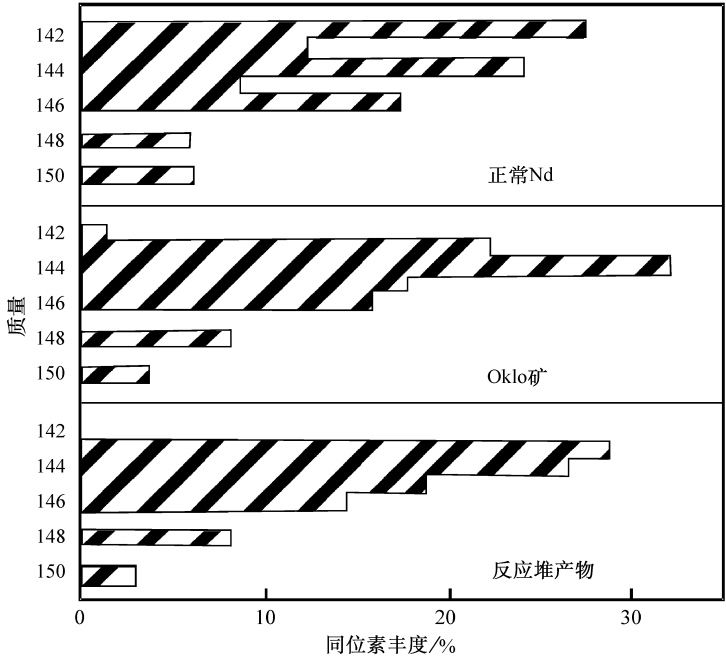


图 10 正常钷、天然铀矿、反应堆裂变废物同位素组成相对丰度图
(据 悦群社 (1974) 的数据成图)

明显的中子通量证据也由钷系元素的同位素特征得以说明。例如，丰富的 ^{235}U 易于捕获快中子产生大量的 ^{239}Pu ， ^{239}Pu 通过 β 衰变成为 ^{239}Am ，而后成为 ^{241}Am 。后者通过半衰期为 432 年的 α 粒子的衰变产生更多的 ^{239}Pu ，为反应堆贡献超过 1% 的“可燃”燃料，像“快”增殖反应堆（“快”指进入的中子速度）。因为 ^{241}Am 和 ^{239}Pu 的裂变产物具特征的同位素组成，决定了非常少量的 ^{241}Am 在衰变为 ^{239}Pu 之前发生过中子诱发裂变。因此，推断此天然反应堆具低的通量和长的寿命。

愿

三、放射性衰变定律

放射性母体核素衰变成稳定子体产生的速率与任一时刻的原子数成正比：

$$\frac{dN}{dt} = -\lambda N \quad (1)$$

这里 λ 是比例常数，它是每个放射性核素的特征值，称之为衰变常数（以时间的倒数单位表示）。衰变常数表示了一给定放射性原子在规定的时间内衰变的几率。 $\frac{dN}{dt}$ 是母体原子数的变化率，为负是因为此变化率随时间减小。整理式 (1)，我们得到

$$\frac{dN}{N} = -\lambda dt \quad (2)$$

上式从 $t=0$ 到 t 积分，假定 $t=0$ 时的原子数为 N_0 ：

$$\int_{N_0}^N \frac{dN}{N} = -\lambda \int_0^t dt \quad (3)$$

因此

$$\ln \frac{N}{N_0} = -\lambda t \quad (4)$$

改写为

$$N = N_0 e^{-\lambda t} \quad (5)$$

代表一个放射性核素衰变速率的有用方式是“半衰期”： $t_{1/2}$ ，它是母体原子衰变完一半所需要的时间。将 $N = \frac{1}{2}N_0$ 和 $t = t_{1/2}$ 代入方程 (4)，两边取自然对数，我们得到

$$\ln \frac{1}{2} = -\lambda t_{1/2} \quad (6)$$

放射成因子体原子数 N_d 等于消耗的母体原子数：

$$N_d = N_0 - N \quad (7)$$

但是， $N = N_0 e^{-\lambda t}$ （从方程 (5)），因此，将 N 代入方程 (7)，得到

$$N_d = N_0 (1 - e^{-\lambda t}) \quad (8)$$

也就是

$$\frac{N_d}{N_0} = 1 - e^{-\lambda t} \quad (9)$$

如果 $t=0$ 时，子体原子数为 N_{d0} ，时间 t 后子体原子总数为

$$N_d = N_{d0} + N_0 (1 - e^{-\lambda t}) \quad (10)$$

这个方程是地质年代学定年工具的根本。

在铀系衰变链中，放射性衰变的子体产物（不是三个铅同位素）本身都是放射性的。因此，这种子体产物衰变速率由其从母体的产生率与本身的衰变速率的差值决定：

$$\frac{dN_2}{dt} = \lambda_1 N_1 - \lambda_2 N_2 \quad (11)$$

式中： N_1 和 λ_1 是母体的丰度与衰变常数； N_2 和 λ_2 是子体的丰度与衰变常数。

但是，方程 (11) 可代入 (9) 中的 N_1 ，得到

$$\frac{dN_2}{dt} = \lambda_1 N_0 (1 - e^{-\lambda_1 t}) - \lambda_2 N_2 \quad (12)$$

选定一套初始条件对上式积分，最简单的是使 $t=0$ 时， $N_2=0$ ，得到

$$N_2 = \frac{\lambda_1 N_0}{\lambda_2 - \lambda_1} (e^{-\lambda_1 t} - e^{-\lambda_2 t}) \quad (13)$$

这种类型的方程解首先由 贝克莱 (1703) 给出，并以他的名字命名。近来，怀特曼

(员恩) 对这些方程考察了更一般的初始条件, 导出了更复杂的解。

四、均一性

当使用放射性衰变来测定岩石的年龄时, 我们必须应用均一性的经典原理, 即假定母体放射性核素的衰变常数在地球历史中保持恒定。因此, 重要的是总结一些证据来说明该假设是恰当的。

放射性核素的衰变常数取决于核常数, 如 葬(越元素电价 辖朗克常数 辖速)。杂(邰) 葬(邰) 认为, 一个核素的中子捕获截面非常灵敏地依赖核常数。因为, 中子吸收剂(如 晕性和 晕性) 在 员亿年老的 韵天然反应堆中、在产物同位素中产生了预期的丰度增加(图 员)。因此, 这也或多或少地限定了核常数在最近 员亿年内保持恒定。

物理条件(压力和温度)影响放射性核素衰变常数的可能性也必须考虑。由于放射性衰变是核的性质, 它不受外部轨道电子的影响, 物理条件要影响 α 和 β 衰变是极不可能的, 但是电子捕获衰变可能受到影响。匀(邰) 等(员) 证明 苑(邰) 的电子捕获衰变, 当 月(邰) 置于(圆(邰)) 伊(邰) 压力的金刚石砧中时, 衰变增加 员。这便引发了 源(邰) 的电子捕获衰变是否影响 运(邰) 定年的问题。事实上, 这是不可能的。在地球深部的高压 原高温下, 运(邰) 系统化学上是开放的, 并且根本就不能定年。而在地壳深部, λ 对压力的依赖性与实验误差相比是可以忽略的。

对于岩石(其化学系统保持封闭)一致性的 运(邰) 砸(邰) 哉(邰) 定年的成功证明了衰变常数不随时间发生变化。因为如果衰变常数发生变化, 不同的放射性核素应有不同的响应。对于衰变常数的不变性的最后一个证据来自于放射性定年与其他时间标志(沉积作用与演化速率、海底扩张磁异常, 放射性碳定年与树轮年龄的对应性, 铀系定年与珊瑚增长带(第八章)的对应性)相吻合。

第二节 摇 实 验 技 术

为了使用放射成因同位素作为定年工具与示踪剂, 在质谱计上它们在质量上必须与非放射成因同位素相分离。在扇形磁铁的仪器中, 要分离的核素在真空下离子化, 在通过磁铁的两极前通过高压(灾)加速。作用于离子束中粒子上的均一磁场, 根据下列方程将它们弯曲成不同半径的曲线:

$$r = \frac{mv}{ZeB} \quad (员原)$$

离子从离子源狭缝出来后被电场加速, 灾为加速电场的电位差; 皂(邰) 是有关离子的质 辖比; 匀为磁场强度; 则(邰) 为离子在磁场中作圆形轨道运动的半径。因为产生的离子大多是单电价的, 不同的核素将被分成简单的质量谱。每一个质量的相对丰度由其相应的离子电流(由法拉第筒或倍增器捕获)确定, 也可以用其他的质量分离方法(如四极杆、飞行时间分析器), 但这些对于精确的同位素比值测量很少广泛应用。

除了稀有气体 匀(邰) 晕(邰) 粤(邰) 运(邰) 辖(邰) 是以气相形式分析外, 同位素地质学家感兴趣的放射性元素, 通常由固体源质谱计分析。火花源质谱计中, 含有不同元素混合物的固体样品形成离子源。然而, 利用这种方法有四个因素共同使同位素比值测量中出现低的精度。这些因素包括: 具相同质量的原子和分子离子的干扰、主要元素基体中微量元素的稀释、 员

低的离子化效率、不稳定发射。因此，常规质谱计精确同位素测量的起始点应是被分析元素的化学分离，也就是首先将样品转化成溶液。

一、化学分离

地质样品通常是硅酸盐。尽管一些实验室也使用高氯酸溶解，但一般用浓的氢氟酸（ HF ）溶解。在大气压条件下，大多数造岩矿物在热的浓 HF 中溶解。然而，像锆石这类的难溶矿物，为了使其达到分解，温度要求高达 200°C ，必须在具有压力的密封溶样罐中溶解。用于溶样的密封溶样罐的衬和烧杯基本都是由聚氟乙烯制成的。

氢氟酸溶解后可能遇到的主要问题是在其他“矿物”酸（即盐酸）中不溶的氯化物的形成。再加入硝酸（ HNO_3 ）有助于将这些不溶物转换成可溶态形式。悦德岩（ UO_2 ）的实验表明，如果加入的硝酸在氢氟酸完全蒸发前加入，可促进该溶解过程。如果某阶段没有达到完全溶解，有必要将溶液轻轻倒出，将未溶部分返回到该过程的前一阶段进行第二次酸溶（ HNO_3 和 HF ）。当达到完全溶解后，溶液可能需称重分成几份，一部分用富集同位素的稀释剂作同位素稀释分析；另一部分不稀释用于精确的同位素比值分析。溶解后，样品常转换成氯化物进行元素分离，通常是由石英或 PVDF （聚氟乙烯）柱中固定相树脂与稀酸淋洗剂间的离子交换来完成。

（一）铀钍测年

铀和钍及初步的杂质分离，常常在阳离子交换柱上用稀 HNO_3 （大约 0.1M ）淋洗来完成。柱子通常在使用前用测试溶液进行校正。在样品分离前，柱子树脂由通过连续大量的 HNO_3 和水清洗。

小体积的岩石样品溶液加载到交换柱上，用淋洗剂仔细地洗进交换树脂床中，而后用更多的淋洗剂洗过，直到收集到从树脂上释放出所需的元素部分。将该收集部分蒸干，以备加载到质谱计中的热离子金属灯丝上。通过盐酸从阳离子柱上淋洗下来的元素粗略地按以下顺序排列： Ba 、 Sr 、 Ca 、 Th 、 U 、 Zr 、 Hf 、 Y 、 La 、 Ce 、 Pr 、 Nd 、 Sm 、 Eu 、 Gd 、 Dy 、 Er 、 Tm 、 Yb 、 Lu 。这种序列由元素在固相（树脂）上分配系数的增高所确定，对于后面元素的释放要增加淋洗剂的体积。

非常重要是要将岩石中的主要元素，如 Ca 、 Sr 、 Ba 接收部分去掉。为此，硝酸是无效的。因为它并不将 Ca 从 Th 中分离（图 10.10）。铀也必须从 Th 中除去，因为 Th 是对 U 的直接同量异位体的干扰。在分离出的纯样品中，低水平的 Th 不会成为问题，因为在 U 的数据采集前， Th 已经被烧掉了。然而，在收集的 Th 部分中大量 U 的存在将阻止 Th 的烧除，引出主要的干扰问题。

碳酸盐样品可两次过柱以适当降低 Ca 收集部分中 U 的水平。然而，对于纯碳酸盐，另一种分离方法是在浓硝酸溶液中沉淀 Ca 。在这种条件下，较高溶解度的 U 保持在溶液中。

（二）杂质分离和 钍钍测年

在阳离子交换树脂上用稀盐酸淋洗，稀土元素以一组状态被分离出来，但是由于单个稀土元素的化学性质如此相似，稀土内部的分离必须采用更精细的技术。由于有几个同量异位素（如 La 对 Ce ）的干扰，这种分离是必须的。由于它能抑制三价稀土离子的离子化，在 La 收集部分也必须保持在最低水平。这可以在 La 收集部分之后，转换成稀硝酸淋洗介质。于是，在稀土元素之前， La 被迅速地由柱上淋洗出来（悦德岩等，1970）。