何乐龙, 江云水, 贺行良, 等. 利用光释光和²³⁰Th、²³¹Pa 等放射性同位素对深海沉积物的年代测定[J]. 海洋地质前沿, 2022, 38(4): 80-84. HE Lelong, JIANG Yunshui, HE Xingliang, et al. Dating deep sea sediments by means of optically stimulated luminescence and ²³⁰Th, ²³¹Pa radionuclides[J]. Marine Geology Frontiers, 2022, 38(4): 80-84.

利用光释光和²³⁰Th、²³¹Pa 等放射性同位素 对深海沉积物的年代测定

何乐龙,江云水*,贺行良,常文博 (中国地质调查局青岛海洋地质研究所,青岛 266237)

摘 要:对2组来自孟加拉湾的深海钻孔柱样进行光释光(OSL)测年的放射性分析时发 现,所测深海样品具有较高的²³⁰Th、²³¹Pa等放射性核素活度浓度。利用²³⁰Thav、²³¹Paav和 ²³¹Pa_{av}/²³⁰Th_{av}等参数计算柱样沉积速率,发现3种计算方式得到的结果较为一致。其中,C3 钻孔的平均沉积速率介于 16.2~18.2 cm/ka, CB2 钻孔的平均沉积速率介于 10.3~12.3 cm/ka。 和光释光所得的年代数据相比,其平均值相互吻合。光释光的年代数据表明,这2组柱样可 能经历了沉积速率加快的沉积过程。

关键词:光释光;²³⁰Th;²³¹Pa; 深海沉积物; 孟加拉湾 中图分类号:P597 文献标识码:A DOI: 10.16028/j.1009-2722.2020.159

0 引言

利用γ能谱仪对2组来自印度洋孟加拉湾的 深海钻孔样品进行铀、钍和钾的放射性测试时(为 OSL 提供放射性剂量率数据)发现, 所测 2 组深海 钻孔样品中核素²³⁰Th 和²³¹Pa 发射的 γ 射线峰能够 被识别。这意味着这2组样品可以利用γ能谱仪 的全谱数据对²³⁰Th 等放射性核素进行分析。由于 海水中存在大量的放射性核素²³⁵U和²³⁴U,其衰变 产生的子体²³⁰Th 和²³¹Pa 较易被海水中产生的颗粒 物吸附从而进入海洋沉积物中[1],因此,可以利用沉 积物中过剩的核素²³⁰Th 和²³¹Pa(即²³⁰Th_{ex} 和²³¹Pa_{ex}) 进行地质年代研究。通常情况下,样品中痕量的 230 Th 和 231 Pa 难以用 y 能谱仪准确测量, 常常需要 用α能谱仪进行较长时间的测试,但是由于深海区

收稿日期: 2020-09-30

资助项目:中国地质调查局海洋区域地质调查项目"深海科学钻探井位 洗址调查"(DD20190236)

作者简介: 何乐龙(1989-), 男, 硕士, 工程师, 主要从事年轻地质年代学 测试技术方面的研究工作. E-mail: helelong@qq.com

* 通讯作者: 江云水(1985-), 男, 硕士, 高级工程师, 主要从事海洋地质 工程方面的研究工作. E-mail: yunshui888@163.com

域上覆水体较厚,沉降颗粒到达海底经过的时间和 过程都较长,因此,沉积物中富集的²³⁰Th和²³¹Pa的 活度浓度可以达到较高水平,使得利用γ能谱直接 测量其放射性活度成为可能^[2-3]。笔者在对上述 2 组样品进行光释光(OSL)年代测定的同时,尝试利 用²³⁰Th 和²³¹Pa 等放射性核素进行年代测试研究。

测试方法 1

本研究中2组样品来源于青岛海洋地质研究 所深海科学钻探井位选址调查项目,2个钻孔共9 件样品。样品采集信息见表1。

双 1 网络中面的木件 自志							
Table 1 Sampling information							
样品编号	中心深度/cm	采样水深/m	采样经纬度				
C3-OSL-1	100						
C3-OSL-2	180	3 539					
C3-OSL-3	260		86.11°E, 9.65°N				
C3-OSL-4	340						
C3-OSL-5	390						
CB2-OSL-1	90						
CB2-OSL-2	181	3 509	87.56°E, 9.49°N				
CB2-OSL-3	271						
CB2-OSL-4	371						

表 1	测试样品的采样信息
-----	-----------

样品的中心部分用于释光测试,其他部分用于 含水量和γ能谱测试。在避光条件下,取出样品中 心未曝光的核心部分,依次用双氧水去除有机质、 盐酸去除酸溶性矿物后,利用沉降法保留 4~11 μm 的细颗粒成分,再用氟硅酸去除长石矿物,得到较 为纯净的石英粉末。石英粉末利用有机溶剂镀片 的方法均匀分散到专用测量片中待测。

样品外围部分小心用小刀等工具削下并准确称量其质量。称重后的样品经 105 ℃ 烘干后再次 准确称重,得到样品的含水量。之后将其粉碎、碾 磨并过筛,筛分后的样品密封于专用塑料样品盒中, 放置 20 d 后于γ能谱仪上机测试。由于取样手法 差异,γ能谱所测样品代表的柱样岩心深度可能稍 稍偏离其中心深度,但基于整个柱样深度而言,误 差可以忽略,因此,依然用其柱样中心深度表示。

本研究中使用的 γ 能谱仪为堪培拉 BE3830 型 低本底高纯锗多道 γ 能谱仪,其 1 332 keV 射线峰 的分辨率<2.0 keV,相对效率约 35%,30~1 600 keV 本底积分计数<2.0 s⁻¹。测量释光样品使用的是弗 莱贝格 Lexsygresearch 型释光能谱仪,其人工辐照 源为环形纯 β 放射源,辐照误差<10%。

使用 γ 能谱仪测量和计算的数据包括样品中核 素²³⁸U、²³⁵U、²³²Th、⁴⁰K、²³⁰Th 和²¹³Pa 的活度浓度。其 中,²³⁸U的活度浓度采用测量其子体²³⁴Th(63.3 keV)、 ^{234m}Pa(1 001.0 keV)活度浓度的加权平均值计算得 出。²³²Th采用其子体²²⁸Ac(911.1 keV)的活度浓度 计算得出,⁴⁰K利用其发射的γ射线(1 460.8 keV)直 接测量^[3-5]。

²³⁰Th 仅发射一种能量为 67.7 keV 的 γ 射线, 且 不受其他核素干扰, 较易识别, 比较容易直接测得, 而²³¹Pa 的情况则较为复杂。根据文献^[2-3,6] 及上机 实测结果,²³¹Pa 及其子体中, 仅有 50.2、154.2、236.0、 256.3 和 401.8 keV 的射线峰易被识别且不易受到 其他常见放射性核素的干扰, 因此, 本研究中使用上述能 量的射线峰测量结果的加权平均值计算²³¹Pa 的 活度。

本研究中光释光样品的等效剂量测试采用单 片再生法(SAR)进行^[7-8],每个样品制作了 12~18 个 平行测片。样品的预热坪实验表明,测片预热温度 范围可以为 200~240 ℃,测试时选择了中间值 220 ℃ 作为预热温度。统计等效剂量结果时,剔除 恢复剂量测试中比值不在 0.9~1.1 范围内的测片, 剔除红外检测中红外信号比值>0.05 的测片,剔除 热转移剂量与等效剂量比值>0.05 的测片,并在最 终统计结果中使用均值统计法,剔除离群值较大的 测量结果,最终得到等效剂量统计结果(表 2)。

		-				
样品编号	铀/10 ⁻⁶	钍/10 ⁻⁶	钾/%	含水量/%	等效剂量/Gy	释光年龄/ka
C3-OSL-1	2.86	12.07	2.01	13.38	34.89	9.07
C3-OSL-2	2.67	11.65	1.95	21.71	43.54	12.83
C3-OSL-3	3.07	11.98	2.21	16.84	60.91	15.45
C3-OSL-4	2.71	10.54	1.97	19.50	70.30	20.65
C3-OSL-5	3.30	12.32	2.37	16.06	135.28	32.07
CB2-OSL-1	2.95	15.05	2.63	16.00	37.16	8.08
CB2-OSL-2	3.59	16.04	2.61	17.85	64.31	13.49
CB2-OSL-3	3.15	13.56	2.67	13.89	103.86	22.30
CB2-OSL-4	2.68	12.38	2.25	15.62	187.71	47.60

表 2 样品的光释光测试相关数据和结果 Table 2 The sample information and results of OSL dating

释光样品的环境剂量率采用样品中的 U、Th 和 K 含量及样品含水量按文献公式计算得出^[9-10]。 其中,样品中 U、Th 和 K 的含量使用 γ 能谱仪测量 样品中核素²³⁸U、²³²Th、⁴⁰K 的活度浓度, 然后通过 计算换算得出结果^[5]。

本研究中γ能谱仪使用 GBW04127、GBW40015 等标准物质对测试结果进行质量监控。释光能谱 仪采用仪器厂商提供的 Lexcal2014 标准样品对仪 器状况进行质量监控。

2 结果与讨论

光释光测年及相关数据结果见表 2。样品中核 素²³⁰Th、²³¹Pa、²³⁵U等的测试结果见表 3。²³⁰Th_{ex}、 ²³¹Pa_{ex}和²³¹Pa_{ex}/²³⁰Th_{ex}的深度分布如图 1 所示。 上述数据中,²³⁰Th_{ex} = ²³⁰Th⁻²³⁴U,²³¹Pa_{ex} = ²³¹Pa表 3 柱样中²³⁰Th、²³¹Pa 等核素测量相关数据和结果

Table 3Sample information and results of nuclides such as sas230Th, 231Pa etc.							
投口论口		活度浓度/(Bq/kg)					
杆品编号 ——	²³⁰ Th	²³⁴ U	²³¹ Pa	²³⁵ U	²³⁰ Th _{ex}	²³¹ Pa _{ex}	Pa_{ex}/In_{ex}
C3-OSL-1	166.22	40.08	69.20	1.84	126.14	67.36	0.534
C3-OSL-2	160.28	37.53	64.76	1.80	122.75	62.96	0.513
C3-OSL-3	161.11	43.07	59.50	2.02	118.04	57.48	0.487
C3-OSL-4	152.95	38.08	55.30	1.80	114.87	53.50	0.466
C3-OSL-5	151.37	46.29	49.08	2.17	105.08	46.91	0.446
CB2-OSL-1	167.38	41.41	66.21	1.98	125.97	64.23	0.510
CB2-OSL-2	172.15	50.37	60.30	2.37	121.78	57.93	0.476
CB2-OSL-3	153.76	44.26	50.89	2.06	109.50	48.83	0.446
CB2-OSL-4	140.38	37.59	41.62	1.72	102.79	39.90	0.388





²³⁵U。表中²³⁴U的活度是按照海水中²³⁴U/²³⁸U活度 比值为 1.14 计算得出的^[2]。 $N_H = N_0 e^{-\lambda t}$ 中: N_H 代表深度为 E

根据测量结果,²³¹Pa_{ex}、²³⁰Th_{ex}等处于指数衰减 阶段。若假设柱样初始活度基本不变,可用衰变方 程表示为: 式中: N_H代表深度为 H 时核素的活度; N₀ 为核素初始活度; λ 为核素衰变常数; t 为衰变时间。 假设平均沉积速率为 S, 深度为 H, 那么根据衰减方程可得:

 $N_H = N_0 \mathrm{e}^{(-\lambda H/S)}$

取对数整理后得出:

 $\mathrm{Ln}N_H = -\lambda/SH + \mathrm{Ln}N_0$

样品活度相对深度的曲线斜率 $K = -\lambda/S$,由于 衰变常数 $\lambda = \text{Ln2}/T_{1/2}$,那么可知柱样的平均沉积速 率 $S = -(\text{Ln2}/T_{1/2})/K_{\circ}$

式中:T_{1/2}为核素的半衰期。

根据以上公式计算得出的平均沉积速率结果 见表 4。

表 4 柱样的沉积速率 Table 4 Sedimentation rates of samples

计算方法	平均	匀沉积速	基率/(cm/ka)	由OSL年龄计算出的		
	²³⁰ Th _{ex}	²³¹ Pa _{ex}	$^{231}\text{Pa}_{ex}\!/^{230}\text{Th}_{ex}$	沉积速率/(cm/ka)		
C3-OSL	16.2	17.9	18.2	4.4~30.5(平均17.2)		
CB2-OSL	11.9	12.3	11.7	3.9~16.6(平均10.3)		

表4的数据中,OSL下方所列沉积速率,范围 值代表单个样品年龄与沉积深度所得沉积速率的 最小和最大值。括号中的数字表示上述沉积速率 的加权均值。其他3列分别是²³⁰Th_{ex}、²³¹Pa_{ex}和 ²³¹Pa_{ex} /²³⁰Th_{ex} 3 种方法按公式计算得出的平均沉积 速率。

根据计算结果,²³⁰Th_{ex}、²³¹Pa_{ex}和²³¹Pa_{ex}/²³⁰Th_{ex} 3种方法所得的平均沉积速率数值较为一致。 其中 C3 柱的平均沉积速率计算结果介于 16.2~ 18.2 cm/ka, 相差 2.0 cm/ka; CB2 柱介于 11.7~ 12.3 cm/ka, 相差仅 0.6 cm/ka。说明利用 γ 能谱仪 全谱数据对这 2 个深海样品的测量和计算不仅可 行,而且结果较为可靠。本研究中利用放射性核素 ²³⁰Th 和²³¹Pa 计算所得的柱样沉积速率和光释光测 试所得年代结果相比较,既存在吻合较好的部分, 也存在明显差别。释光测年所得样品的沉积年代 表明(图 2),这2个柱样很可能并不是匀速沉积的, 而是经历了一个沉积速率加快的过程。利用²³⁰Thex、 ²³¹Paex 和²³¹Paex /²³⁰Thex 等 3 种方式计算的结果都是 柱样的平均沉积速率,因此,用上述平均沉积速率 得到的样品年龄与 OSL 数据相对比, 肯定会存在一 定出入。虽然采用初始放射性和沉积通量恒定的 计算模型,只能算出平均沉积速率,但是从整体上 看,与利用 OSL 年代数据得到的沉积速率范围处于 同一水平,说明测年结果基本一致。



图 2 C3 柱 (左)与 CB2 柱 (右)的 OSL 年龄 Fig.2 OSL dating of C3 (left) and CB2 (right) samples

本研究中柱样的沉积年代和沉积速率与 LIU 等^[11] 在同一区域的相关报道相比,数量级相当,但所得 柱样的平均沉积速率稍慢。本研究的取样位置和 LIU 等^[11] 报道中 YDY09 孔的取样位置较为接近, 其 6 个深度在 169 cm 内的样品¹⁴C 年龄范围从数 千年到约 46 ka。该区域海底地形复杂,并且本研究中的测试手段及原理与 LIU 等^[11] 的研究存在很大不同,但是年代结果都表明该区域沉积速率在近万年来表现出了明显加快的趋势。虽然报道的数据数值上有一定差距,但是也能够相互参照。和其

他大洋深水区的钻孔相比,本研究中的钻孔柱样的 沉积速率较高,这可能是导致本研究中沉积样品的 ²³⁰Th 较其他大洋沉积样品活度浓度更低的因素^[12]。

3 结论

(1)对孟加拉湾 2 个钻孔样品的²³⁰Th_{ex}、²³¹Pa_{ex}、 ²³¹Pa_{ex}/²³⁰Th_{ex} 以及 OSL 测年结果表明,不同方法间 计算得到的平均沉积速率结果吻合较好。同时, OSL 测年的年代结果表明,这 2 个钻孔在所测范围 内可能都经历了沉积加速的过程。

(2)由于²³⁰Th 等放射性核素在沉积物中的活度 浓度依赖于水深,对于大洋深水区样品来说,可以 使用γ能谱仪对²³⁰Th_{ex}、²³¹Pa_{ex}和²³¹Pa_{ex}/²³⁰Th_{ex}等 放射性指标进行测量计算并得出柱样的沉积速率。 其优点为无损测量,不浪费珍贵的深海样品,并且 γ能谱仪能同时对所有发射γ射线的放射性核素进 行检测,便于同时开展其他放射性研究。但限于γ 能谱仪的检出限,利用²³⁰Th 等放射性核素测年的方 法可能难以在浅水沉积样品中应用。同时本研究 中样品取样密度较低,难以反映更小时间尺度上的 变化,需要更多样品和数据进行进一步研究。

致谢:感谢青岛海洋地质研究所胡刚老师提供的深海沉积物样品及相关海洋调查资料!

参考文献:

[1] ANDERSON R F, BACON M P, BREWER P G. Removal of

²³⁰Th and ²³¹Pa at ocean margins[J]. Earth and Planetary Science Letters, 1983, 66: 73-90.

- [2] 刘广山,黄奕普,彭安国,等.γ谱测定²³⁰Th和²³¹Pa的深海沉积物 沉积速率与古生产力研究[J].地质论评,2002,48(S1):153-160.
- [3] 林朝,张庆文,陈英强,等.γ能谱法测定铀矿样中的²³⁰Th和
 ²³¹Pa[J].铀矿地质,1992,8(6):374-378.
- [4] 李冬梅,门武,周鹏,等.海洋沉积物中放射性核素的测定γ能谱法:GB/T 30738-2014[S].广州:国家海洋局南海环境监测中心, 2014.
- [5] 何乐龙,辛文彩,张剑,等.海洋沉积物光释光测年中铀、钍、钾的y能谱法分析[J].海洋地质前沿,2018,34(12):68-76.
- [6] 刘广山,黄奕普,彭安国.深海沉积物岩心锕放射系核素的γ谱 测定[J].台湾海峡,2002,21(1):86-93.
- [7] 王旭龙, 卢演俦, 李晓妮. 细颗粒石英光释光测年: 简单多片再 生法[J]. 地震地质, 2005, 27(4): 615-623.
- [8] WINTLE A G, MURRAY A S. A review of quartz optically stimulated luminescence characteristics and their relevance in singlealiquot regeneration dating protocols[J]. Radiation Measurements, 2006, 41(4): 369-391.
- [9] 王维达. 中国热释光与电子自旋共振测定年代研究[M]. 北京: 中国计量出版社, 1997.
- [10] AITKEN M J. An introduction to optical dating [M]. London: Oxford University Press, 1998.
- [11] LIU J G, HE W, CAO LI, et al. Staged fine-grained sediment supply from the Himalayas to the Bengal Fan in response to climate change over the past 50, 000 years[J]. Quaternary Science Reviews, 2019, 212: 164-177.
- [12] WALTER H J, LOEFF M, FRANOIS R. Reliability of the ²³¹Pa / ²³⁰Th activity ratio as a tracer for bioproductivity of the ocean[C]//FISCHER G, WEFER G. Use of Proxies in Paleoceanography. Berlin: Springer, 1999: 393-408.

Dating deep sea sediments by means of optically stimulated luminescence and ²³⁰Th, ²³¹Pa radionuclides

HE Lelong, JIANG Yunshui^{*}, HE Xingliang, CHANG Wenbo (Qingdao Institute of Marine Geology, China Geological Survey, Qingdao 266237, China)

Abstract: When the two groups of deep-sea samples taking from the Bay of Bengal were analyzed for OSL dating, we found that the samples are high in ²³⁰Th, ²³¹Pa radionuclides levels. After calculating the sedimentation rate of the samples with ²³⁰th_{ex}, ²³¹pa_{ex} and ²³¹pa_{ex} / ²³⁰th_{ex}, it is found that the results obtained by the three methods are quite consistent. The average sedimentation rate of C3 is between 16.2 and 18.2 cm/ka and that of CB2 changes between 10.3 and 12.3 cm/ka. Compared with the OSL dating data, the average of the sedimentation rate values is consistent. The OSL dating suggest that the two groups of samples may have experienced a process of sedimentation rate acceleration.

Key words: OSL; ²³⁰Th; ²³¹Pa; deep sea sediments; Bay of Bengal