

厦门火烧屿裸露岩石的铀放射系不平衡

刘广山 徐茂泉 黄奕普

(厦门大学海洋系,亚热带海洋研究所,福建 厦门,361005)

摘要 用HPGe谱方法测定了厦门火烧屿裸露岩石天然放射性核素 ^{40}K 、 ^{228}Ra 、 ^{228}Th 、 ^{238}U 、 ^{226}Ra 和 ^{210}Pb 含量,对其铀系不平衡关系进行了讨论,发现钍系核素 ^{228}Ra 和 ^{228}Th 基本上是平衡的,而大部分样品 ^{226}Ra 相对于 ^{238}U 、 ^{210}Pb 相对于 ^{226}Ra 亏损。由此推论,水体作用下岸边岩石中 ^{226}Ra 直接进入水体,可以是海水中 ^{226}Ra 的一个来源;岸边岩石中 ^{222}Rn 逸出后,衰变为 ^{210}Pb 再进入水体,可以是海水中 ^{210}Pb 的一个来源。

关键词 谱分析 裸露岩石 铀系不平衡 火烧屿

Uranium Series Disequilibrium in Naked Rocks from Huoshaoyu Island, Xiamen

LIU Guangshan XU Maoquan HUANG Yipu

(Department of Oceanography/ Institute of Subtropical Oceanography, Xiamen University, Xiamen, Fujian, 361005)

Abstract The natural radionuclides in naked rocks from Huoshaoyu island of Xiamen were measured by means of HPGe (spectroscopy, and the ^{40}K , ^{228}Ra , ^{228}Th , ^{238}U , ^{226}Ra and ^{210}Pb were detected. Based on a discussion on the disequilibrium of uranium series, it is found that in most samples ^{226}Ra relative to ^{238}U and ^{210}Pb relative to ^{226}Ra are deficient. It can thus be concluded that the migration of ^{226}Ra from the coastal rocks into seawater by water leaching is a source of ^{226}Ra in seawater and that the ^{210}Pb formed by the decaying of ^{222}Rn escaped from rocks is a source of ^{210}Pb in seawater.

Key words spectrum analysis naked rock uranium series disequilibrium Huoshaoyu island

地球科学研究中,测定岩石、沉积物等的放射性核素含量,研究其中的天然放射系不平衡关系可以揭示其形成演变规律和环境的历史变迁。

铀系不平衡方法已广泛应用于地球科学研究中(Bourdon等,1994;Chabaux等,1994;Gascoyne等,2002;Ivanovich等,1992;Iwamori,1994;罗兴章等,1998;夏明,1989)。岩石中铀系不平衡研究主要应用于年轻火山岩和水-岩相互作用体系两方面(Bourdon等,1994;Chabaux等,1994;Gascoyne等,2002;Ivanovich等,1992;Iwamori,1994;罗兴章等,1998)。通过 ^{238}U - ^{230}Th - ^{226}Ra 之间的不平衡进行火山岩测年和岩石受水体作用的地球化学研究,其时间尺度为 $10^4 \sim 10^6$ a。

人们大多用质谱方法或谱方法测定岩石样品。也有用谱方法测定岩石中放射性核素的报道,但研究目的往往在岩石中的放射性水平,而不是

进行地球科学研究(Ajayi等,2001;Khater等,2001)。本文用谱方法测定了厦门火烧屿裸露岩石中的放射性核素含量,讨论了其铀系不平衡和相关的问题。

1 样品采集与测定

1.1 火烧屿

火烧屿位于中国福建省厦门西海域,四面环海,地理坐标为E118°04',N24°30'。该岛呈NE—WS向延伸,长约1 km,宽约0.2~0.5 km,面积约为0.3 km²,最高海拔25 m。岛上部分植被覆盖,出露地层为下侏罗统梨山组,主要由褐黄色、灰白色中-中细-细砂岩、长石石英砂岩夹薄层-中厚层状泥岩及片理化流纹岩、流纹质晶屑凝灰熔岩、流纹质凝灰岩组成。为一层湖相细碎屑岩夹陆相火山岩建造(福建省地质矿产局区域地质调查队,1988)。在该地层内可见发育的透镜状层理、微细水平层理,局部

本文由国家自然科学基金项目(40076024)资助。

责任编辑:宫月莹。

第一作者:刘广山,男,1959年生,研究员,从事同位素海洋学研究;E-mail:lgshan@public.xm.fj.cn。

可见微斜层理和交错层理。岩层内断裂构造和褶皱构造发育,其产状与厦门岛构造形迹相似。另外,在区域变质和动力变质作用的叠加作用下,该岛岩层形成的低绿片岩相主要为绢云母片岩-云母石英片岩和片理化火山岩 2 种岩石的自然共生组合。

尽管火烧屿面积不大,但其上有典型的地质剖面,丰富的地质现象,奇特的海蚀地貌,被称为厦门的地质博物馆。裸露岩石主要分布在周边潮间带和山脚下,受海水和雨水冲刷、侵蚀较为严重。

1.2 样品的采集与处理

所有样品在岩石裸露区域采取或从岩层上敲击得到。山脚或海边样品于低潮时间采集。样品 2-1 和样品 2-2 是采自同一地点而外观不同的 2 种岩石,其余样品均为在大块或大堆岩石上采集的有代表性的样品。样品外观特征如表 1 所列。采集到的样品用塑料袋封装,回实验室晾干后磨细、混匀、80 目过筛,然后用直径 75 mm,高度 50 mm,圆柱体的聚乙烯塑料盒封装。

表 1 样品外观特征
Table 1 The characteristics of the samples

样品编号	名称	采样位置	外观特征	粉碎后色别
1	铁锰质岩脉	东部潮间带	为沿裂隙充填的铁锰质岩脉,表面附着少量生物壳体,呈暗黄褐色	黄色
2-1	含铁锰质石英岩脉	西部山脚	原岩为泥质粉砂岩,呈淡褐色/灰白色,其间裂隙为含铁锰质石英岩脉充填	浅粉红色
2-2	泥质粉砂岩	西部山脚	为泥质粉砂岩,呈淡褐色/灰白色,含有火山凝灰物质	浅粉红色
3	含白云母的铁锰质石英岩脉	西部山顶	铁锰质石英岩脉,中间夹白云母层,表面为暗灰色,新断面为黄褐色	黄色
4	黄褐色铁质板岩	西部山顶	黄褐色,颗粒细小,为泥质、铁质板岩,隐晶质结构,板状构造	黄色
5	灰白色粉砂岩	东部海边海蚀崖	砂状结构,块状构造,一侧为石英脉壁,内见细小石英脉穿插其中	灰白色
6	暗褐色铁锰质岩脉	西部山腰	铁锰质脉,呈暗褐色,含少量石英脉,石英脉穿插其中	黄色
7	暗褐色含铁锰质石英岩脉	东部山坡	粉砂状结构,块状构造,沿裂隙充填呈球状壳体,其内充填灰白色/淡黄色砂页岩	黄色
8	铁质板岩	东部山脚	暗红褐色,内含大量赤铁矿,板状构造,鳞片粒状变晶结构	铁红色
9	砂页岩	东北部海蚀崖	灰白色,含凝灰质,页理、层理清晰可见,风化作用很强,具强烈高岭土化	白色

1.3 样品的 谱分析

用 HPGe 探测器 谱仪(美国 Canberra 公司)测量样品。探测器为 GX3020 型,晶体直径为 60 mm,高度为 54 mm,可测量(射线能量范围为 4 ~ 1 000 keV;在 25 cm 源距,对⁶⁰Co 点源 1 332 keV,射线峰分辨率为 1.91 keV,相对效率为 37.3%,峰康比为 60 1。系统使用 Canberra747 铅室,Accuspec 多道板与微机组成的计算机多道,ADC 变换增益和多道存储容量最大为 8 192 道。用 Genie-2000 谱分析软件分析谱数据。

将装好的样品气密封 20 d 后直接放置在探测器端帽上方收集谱数据,谱数据收集过程中观察感兴趣 射线峰面积,要求其相对误差小于 5%,谱数据收集最长时间限制在 86 400 s 以内。

全部样品中可探测到的放射性核素为成系天然放射系核素和⁴⁰K。测量⁴⁰K 用 1 460.5 keV(分支比 10.67%) 射线;测量²¹⁰Pb 用 46.5 keV(4.0%) 射线;测量²²⁶Ra 用²¹⁴Pb 的 351.9 keV(37.09%) 和²¹⁴Bi 的 609.3 keV(46.1%)、1 120.3 keV(15.0%) 射线;测量²²⁸Ra 用²²⁸Ac 的 338.7 keV(11.9%)、911.2 keV(27%) 和 968.8 keV(16.3%) 射线;测量²²⁸Th 用²¹²Pb 的 238.6 keV(43.6%) 和²⁰⁸Th 的 583.1 keV(30.96%) 射线;测量²³⁸U 用²³⁴Th 的 63.2 keV(分支比 3.826%) 和 92.6 keV(5.41%) 射线。

用 GBW 04124 铀矿渣标准物质掺入模拟基质,混匀、制成源物质,模拟基质由 SiO₂(71.2%)、Al₂O₃(20.5%) 和 Fe₂O₃(8.3%) 分析纯化学试剂混合、磨

细、120目过筛制成。制好的源物质与KCl试剂分别装入75 mm × 50 mm的聚乙烯塑料样品盒,制成与样品几何条件完全相同的刻度源。用源物质制作的刻度源密度为1.25 g/cm³,KCl试剂制作的刻度源密度为1.13 g/cm³。

在与测量样品完全一致的几何条件下收集刻度源谱、空白基质本底谱和样品容器本底谱,测量实验效率值,由实验效率值用双对数多项式拟合得到效率曲线方程。

样品与刻度源密度基本一致,所以不进行自吸收校正。

2 结果与讨论

2.1 火烧屿岩石中的放射性核素含量

全部样品用谱方法探测到的核素为⁴⁰K、²²⁸Ra、²²⁸Th、²³⁸U、²²⁶Ra和²¹⁰Pb,测定结果如表2所列。表中的²²⁸Th/²²⁸Ra、²²⁶Ra/²³⁸U和²¹⁰Pb/²²⁶Ra分别表示两种核素的活度比。

表2 火烧屿裸露岩石放射性核素含量

Table 2 The radionuclides contents in naked rocks of Huoshayü island

样品编号	⁴⁰ K	²²⁸ Ra	²²⁸ Th	²²⁸ Th/ ²²⁸ Ra	²³⁸ U	²²⁶ Ra	²²⁶ Ra/ ²³⁸ U	²¹⁰ Pb	²¹⁰ Pb/ ²²⁶ Ra
1	107 ±9	25.5 ±2.2	23.9 ±2.6	0.94	68.7 ±7.1	68.4 ±5.8	1.00	31.7 ±3.9	0.46
2-1	1070 ±88	59.2 ±5.0	56.3 ±5.9	0.95	60 ±12	39.7 ±3.6	0.66	33.2 ±6.6	0.84
2-2	1168 ±97	48.4 ±4.5	45.4 ±4.9	0.94	56 ±11	27.6 ±2.5	0.49	64 ±10	2.32
3	264 ±21	16.1 ±1.5	15.5 ±1.6	0.96	40.7 ±5.1	46.8 ±3.8	1.15	25.3 ±3.8	0.54
4	785 ±63	42.3 ±3.6	38.1 ±3.9	0.90	52.2 ±5.8	47.6 ±3.8	0.91	22.9 ±3.6	0.48
5	30.5 ±3.1	28.3 ±2.4	25.1 ±2.6	0.89	32.3 ±4.6	15.1 ±1.4	0.47	11.0 ±2.3	0.73
6	641 ±52	7.7 ±4.0	34.2 ±3.6	0.91	50.2 ±5.9	55.1 ±1.8	1.10	3.5 ±5.0	0.68
7	508 ±41	33.5 ±3.8	30.8 ±3.1	0.92	26.9 ±5.0	24.1 ±2.2	0.90	16.4 ±4.0	0.68
8	754 ±65	73.0 ±6.8	76.5 ±7.8	1.05	82.0 ±9.6	42.8 ±4.0	0.52	82.4 ±8.5	1.92
9	896 ±72	74.5 ±7.5	70.3 ±6.8	0.94	42.4 ±6.7	29.6 ±2.5	0.70	21.9 ±4.8	0.74
平均	622	43.9	41.6	0.94	51.2	39.7	0.77	35.6	0.98
范围	30.5~1168	16.1~74.5	15.5~76.5	0.89~1.05	26.9~82.0	15.1~68.4	0.47~1.15	11.0~82.4	0.46~2.68

由表2中数据可以看出,不同样品中⁴⁰K含量相差较大,以5号样品⁴⁰K含量为最低,仅30.5 Bq/kg;2-1和2-2号样品的⁴⁰K含量在同一水平,且为全部样品最高含量,其中2-2号样品含量达1168 Bq/kg。1号和3号样品中的⁴⁰K较5号样品含量稍高,但仍属偏低水平。全部样品⁴⁰K平均含量为622 Bq/kg。

不同样品中的²²⁸Ra和²²⁸Th含量有较大的差异,其中3号样品含量为最低,分别为16.1和15.5 Bq/kg,最高含量的9号样品分别为74.5 Bq/kg和70.3 Bq/kg,全部样品²²⁸Ra和²²⁸Th平均含量为43.9 Bq/kg和41.6 Bq/kg。

全部样品中的²³⁸U在26.9~82.0 Bq/kg范围内,平均为51.2 Bq/kg;²²⁶Ra含量为15.1~68.4 Bq/kg,平均为39.7 Bq/kg;²¹⁰Pb含量为11.0~82.4 Bq/kg,平均为35.6 Bq/kg。

样品中⁴⁰K和²³⁸U含量平均值与福建省土壤天然放射性水平平均值为609 Bq/kg和55.5 Bq/kg

接近,稍高于全国土壤⁴⁰K和²³⁸U含量平均值580 Bq/kg和39.5 Bq/kg(全国环境天然放射性水平调查总结报告编写小组,1992)。

2.2 铀系不平衡及其相关问题

2.2.1 ²²⁸Ra和²²⁸Th 全部样品中²²⁸Th和²²⁸Ra的活度比为0.89~1.05,在实验误差范围内²²⁸Ra和²²⁸Th的含量水平一致。在钍放射系中,除母体²³²Th外,只有²²⁸Ra和²²⁸Th半衰期较长,分别为5.75 a和1.91 a,其他核素半衰期较短,就地球科学意义而言,可以将钍系看作是由²³²Th和²²⁸Ra和²²⁸Th构成的三级衰变链;岩石中²²⁸Ra和²²⁸Th含量水平一致,说明所测样品中钍放射系是衰变平衡的。

2.2.2 ²³⁸U、²²⁶Ra和²¹⁰Pb ²³⁸U、²²⁶Ra和²¹⁰Pb均为铀放射系核素,通常,人们把铀系分为5个子系,各个子系的第一个核素分别为²³⁸U、²³⁰Th、²²⁶Ra、²²²Rn和²¹⁰Pb,半衰期分别为4.468 × 10⁹ a、7.7 × 10⁴ a、1.6 × 10³ a、3.82 d和22.26 a。很多情况下不能

用谱方法测定 ^{230}Th 、 ^{222}Rn 是惰性气体,半衰期又短,从采样到测量经历的时间较长时,所测的 ^{222}Rn 已不是采样时的活度;谱方法能测定的铀系核素为 ^{238}U 、 ^{226}Ra 和 ^{210}Pb 。

由表2数据可看出,所测样品铀系 ^{238}U 、 ^{226}Ra 和 ^{210}Pb 衰变不平衡。 ^{226}Ra 和 ^{238}U 的活度比在0.47~1.15之间,1、3、4、6、7样品中的 ^{238}U 和 ^{226}Ra 在实验误差范围内是衰变平衡的,其余样品 ^{226}Ra 相对于 ^{238}U 亏损。一般认为,由 ^{238}U 经级联衰变的 ^{226}Ra 比 ^{238}U 更易从矿物晶格逃逸,所以在海水与雨水冲刷侵蚀下,岩石中更可能出现 ^{226}Ra 相对于 ^{238}U 亏损。1、3、4、6和7号样品 ^{226}Ra 与 ^{238}U 在同一水平,一个很明显的特点是1、3、6、7号样品均为铁锰质岩脉,4号样品为铁质板岩,可能是其中的铁锰氧化物对镭的吸附作用阻滞了雨水或海水冲刷时镭的溶出。

大部分样品 ^{210}Pb 相对于 ^{226}Ra 亏损,由于 ^{226}Ra 通过中间惰性气体衰变为 ^{210}Pb ,所采集样品为裸露岩石, ^{222}Rn 易从其中逃逸,从而形成 ^{210}Pb 相对于 ^{226}Ra 亏损。2-2和8号样品 ^{210}Pb 相对于 ^{226}Ra 过剩,但并不明显相对于 ^{238}U 过剩,所以可以认为是近期 ^{226}Ra 的丢失造成的。

2.3 与海洋学相关的问题

(1) 长期以来,人们一直认为海洋中过剩的 ^{210}Pb 来自陆地土壤中 ^{226}Ra 衰变产生并释放进入大气的 ^{222}Rn ,经大气输运到海洋上空衰变产生的。从以上结果可知,沿岸表层岩石中的 ^{226}Ra 衰变产生的 ^{222}Rn 也可以释出到大气中并衰变产生 ^{210}Pb ,对海洋中过剩的 ^{210}Pb 产生贡献。

(2) 海底沉积物是 ^{226}Ra 的主要来源。另外,河流中的颗粒物在河水与海水的混合区解析出 ^{226}Ra 是海水中 ^{226}Ra 的另一个来源。由于岩石中的 ^{226}Ra 相对于 ^{238}U 亏损,所以海水的冲刷可以使沿岸岩石中的 ^{226}Ra 释出到海水中,对海水中的 ^{226}Ra 含量产生贡献。

参考文献

福建省地质矿产局区域地质调查队. 1988. 厦门地质图(1:50000)说明书. 北京:地质出版社.
罗兴章, 闵茂中. 1998. 水-岩反应的铀系不平衡判别. 地球科学——中国地质大学学报, 23(5): 537~541.

全国环境天然放射性水平调查总结报告编写小组. 1992. 全国土壤中天然放射性核素含量调查研究. 辐射防护, 12(2): 122~141.
王非, 陈文奇. 1997. 年青火山岩铀系不平衡研究的发展及其意义. 地震地质, 19(3): 269~276.
夏明等编著. 1989. 铀系年代学方法及实验技术. 兰州: 兰州大学出版社, 161.

Reference

Ajayi I R, Kuforiji. 2001. Natural radioactivity measurements in rock samples of Ondo and Ekiti states in Nigeria. Radiation measurements, 33: 13~16.
Bourdon B, Zindler A, Wörner G. 1994. Evolution of the Laacher See magma chamber: Evidence from SIMS and TIMS measurement of U-Th disequilibria in minerals and glasses. Earth and Planetary Science Letters, 126: 75~90.
Chabaux F, Allègre C J. 1994. ^{238}U - ^{230}Th - ^{226}Ra disequilibria in volcanics: A new insight into melting conditions. Earth and Planetary Science Letters, 126: 61~74.
Fujian Bureau of Geology and Mineral Resources. 1988. Directions for Xiamen geological maps (1:50000). Beijing: Geological Publishing House (in Chinese).
Gascoyne M, Miller N H, Neymark. 2002. Uranium-series disequilibrium in tuffs from Yucca Mountain, Nevada, as evidence of pore-fluid flow over the last million years. Applied Geochemistry, 17: 781~792.
Ivanovich M, Harmon R S. 1992. Uranium series disequilibrium: application earth, marine and environmental sciences. Second Edition. Oxford Clarendon Press. 909.
Iwamori H. 1994. ^{238}U - ^{230}Th - ^{226}Ra and ^{235}U - ^{231}Pa disequilibria produced by mantle melting with porous and channel flows. Earth and Planetary Science Letters, 125: 1~16.
Khater A E M, Higgy R H, Pimpl M. 2001. Radiological impacts of natural radioactivity in Abu Tartor phosphate deposits, Egypt. Journal of Environmental Radioactivity, 55: 255~267.
Luo Xingzhang, Min Maozhong. 1998. Judgment on water rock interaction in crystalline rocks using uranium series disequilibrium. Earth Science Journal of Chinese University of Geosciences, 23(5): 537~541 (in Chinese with English abstract).
The Writing Group of the Summary Report on Nationwide Survey of Environmental Radioactivity Level in China. 1992. Survey of natural radionuclides contents in soil in China (1983~1990). Radiation Protection, 12(2): 122~141 (in Chinese).
Wang Fei, Chen Wenji. 1997. Development and importance of U-series disequilibrium investigation on young volcanic rocks. Seismology and Geology, 19(3): 269~276 (in Chinese with English abstract).
Xia Min et al. 1989. Uranium series Chronology and experiment technology. Lanzhou: Lanzhou University Press, 161 (in Chinese).