

万国江, 吴丰昌, J Zheng, 等. 2011. $^{239+240}\text{Pu}$ 作为湖泊沉积物计年时标: 以云南程海为例[J]. 环境科学学报, 31(5): 979-986Wan G J, Wu F C, Zheng J, et al. 2011. $^{239+240}\text{Pu}$ as a dating marker in lake sediments: An example from Lake Chenghai, China[J]. Acta Scientiae Circumstantiae, 31(5): 979-986

$^{239+240}\text{Pu}$ 作为湖泊沉积物计年时标: 以云南程海为例

万国江^{1,*}, 吴丰昌², J Zheng³, 万恩源¹, 廖海清², Y Masatoshi³, 王长生¹

1. 中国科学院地球化学研究所 环境地球化学国家重点实验室, 贵阳 550002

2. 中国环境科学研究院 国家环境保护湖泊污染控制重点实验室, 北京 100012

3. Nakaminato Laboratory for Marine Radioecology, National Institute of Radiological Sciences, 3609 Isozaki-cho, Hitachinaka, Ibaraki, 311-1202 Japan

收稿日期: 2010-08-09

修回日期: 2010-09-08

录用日期: 2010-09-09

摘要: 在近代沉积作用领域 ^{137}Cs 时标与 ^{210}Pb 计年结合, 获得了广泛而有效的应用. 然而, ^{137}Cs 经过两个半衰期的衰变已难于辨识. 环境中的 Pu 核素具有相对较长的半衰期, 也随全球大气扩散而散落于地球表面, 可望作为沉积计年的时间标志. 通过程海沉积物柱芯中 $^{239+240}\text{Pu}$ 比活度、 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 原子比率及校正到沉积年代的 ^{137}Cs 比活度的对比研究表明: 二者比活度的垂直剖面基本相似. $^{239+240}\text{Pu}$ 比活度与北半球 ^{137}Cs 逐年沉降量之间也具有很好的对应关系, 显示出 $^{239+240}\text{Pu}$ 同样具有湖泊沉积计年的时标价值. 不同层节沉积物中, $^{239+240}\text{Pu}/^{137}\text{Cs}$ 的平均值为 0.016; $\sum^{239+240}\text{Pu}/\sum^{137}\text{Cs} = 0.012$, 与全球大气散落沉降的活度比相近. $^{239+240}\text{Pu}/^{137}\text{Cs}$ 活度比的垂直变化, 寓意出 $^{239+240}\text{Pu}$ 在沉积物中较 ^{137}Cs 具有更小的扩散迁移能力. $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 原子比率平均值为 0.195 ± 0.021 , 显示 $^{240+239}\text{Pu}$ 主要来自全球大气散落沉降; 沉积物 8 cm 深度出现的异常点, 显示出切尔诺贝利核事故影响的痕迹.

关键词: $^{239+240}\text{Pu}$; $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$; ^{137}Cs ; 湖泊沉积计年时标; 程海

文章编号: 0253-2468(2011)05-979-08

中图分类号: X142

文献标识码: A

$^{239+240}\text{Pu}$ as a dating marker in lake sediments: An example from Lake Chenghai, China

WAN Guojiang^{1,*}, WU Fengchang², ZHENG Jian³, WAN Enyuan¹, LIAO Haiqing², MASATOSHI Yamada³, WANG Changsheng¹

1. State Key Laboratory of Environmental Geochemistry, Institute of Geochemistry, Chinese Academy of Sciences, Guiyang 550002

2. State Environmental Protection Key Laboratory for Lake Pollution Control, Research Center of Lake Environment, Chinese Research Academy of Environment Sciences, Beijing 100012

3. Nakaminato Laboratory for Marine Radioecology, National Institute of Radiological Sciences, 3609 Isozaki-cho, Hitachinaka, Ibaraki, 311-1202 Japan

Received 9 August 2010;**received** in revised form 8 September 2010;**accepted** 9 September 2010

Abstract: ^{137}Cs time mark combined with ^{210}Pb dating has been widely applied to recent sedimentation. The ^{137}Cs specific activity is, however, hard to detect after decay for two half-lives. Due to its comparatively long-term half-life, plutonium from global fallout is expected to provide a dating mark for sedimentation. In the present work, we discuss the vertical distribution of $^{239+240}\text{Pu}$ and ^{137}Cs specific activities, and the $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ atom ratio in a sediment core of Lake Chenghai. The distribution pattern of $^{239+240}\text{Pu}$ was similar to those of ^{137}Cs specific activities (decay corrected to deposition time) in the sediment core, and also corresponded well with the annual deposition of ^{137}Cs in the northern hemisphere. These results demonstrate that the $^{239+240}\text{Pu}$ specific activity is available to construct recent chronology for lacustrine sediment. In the examined sediment core, the values of 0.016 for average $^{239+240}\text{Pu}/^{137}\text{Cs}$ activity ratio and 0.012 for $\sum^{239+240}\text{Pu}/\sum^{137}\text{Cs}$, are close to that of global fallout. The vertical variation of $^{239+240}\text{Pu}/^{137}\text{Cs}$ activity ratio indicated that the postdepositional transport of plutonium is much less than radiocesium. The average $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ atom ratio is 0.195 ± 0.021 , which means plutonium in Lake Chenghai originated from global fallout. The abnormal distribution of $^{239+240}\text{Pu}$ and ^{137}Cs at 8 cm in the sediment core may be explained by the influence of Chernobyl-source radionuclides.

Keywords: $^{239+240}\text{Pu}$; $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$; ^{137}Cs ; dating marker for lake sedimentation; Lake Chenghai**基金项目:** 国家自然科学基金(No. 40873086, 40773071)**Supported by** the National Natural Science Foundation of China(No. 40873086, 40773071)**作者简介:** 万国江(1940—) 男, 研究员, E-mail: wanguojiang@vip.skleg.cn; * 通讯作者(责任作者)**Biography:** WAN Guojiang(1940—) male, professor, E-mail: wanguojiang@vip.skleg.cn; * **Corresponding author**

1 引言(Introduction)

湖泊沉积物是挽近时期区域及全球环境变化的档案馆. 确定湖泊沉积速率对于揭示和利用这些信息是一个关键环节. 自 20 世纪 70 年代以来, 全球核试验大气散落核素 ^{137}Cs (半衰期 30.3 a) 在近代沉积作用领域与 ^{210}Pb 计年相结合, 获得了广泛而有效的应用. 北半球的湖泊和海湾沉积物中, ^{137}Cs 在 1954 年和 1964 年两个时间标志被广泛用作为沉积计年. 然而, ^{137}Cs 在 1954 年沉积层中的比活度低, 仅 1964 年沉积层具有实际意义(万国江等, 1985; 万国江, 1999). 它们经过近两个半衰期的衰变, 至今已难于辨识, 需探寻可供比较的新时标.

环境中的 ^{239}Pu 和 ^{240}Pu 主要源自核爆炸的感生产物(半衰期分别为 2.41×10^4 a、 6.56×10^3 a). 与 ^{137}Cs 相似, 它们也随大气放射尘而散落于地球表面. 1964 年美国一颗人造卫星的核辅助动力装置 (SNAP-9A) 在地球上空烧毁, 致使 17 千居里的 ^{238}Pu (半衰期为 87.7 a) 进入到大气并散落于地表. 基于 ^{238}Pu 、 ^{239}Pu 及 ^{240}Pu 具有相对较长的半衰期, 可望作为沉积计年的有效时间标志.

全球核试验总共向环境中释放了大于 10^3 kg 的 Pu, 但是自然环境中 Pu 的活度浓度很低. 在湖水中约为 $(0.37 \sim 1.85) \times 10^{-5} \text{ Bq} \cdot \text{L}^{-1}$, 湖泊沉积物中约为 $3.7 \text{ Bq} \cdot \text{kg}^{-1}$; 海水中约为 $3.7 \times 10^{-5} \text{ Bq} \cdot \text{L}^{-1}$, 海洋沉积物中约为 $1.85 \times 10^{-1} \text{ Bq} \cdot \text{kg}^{-1}$. Kelley 等综合报道了上世纪 70 年代美国环境测量实验室 (EML) 采自全球 54 个地区的土壤样品中确定的 Pu 同位素组成和累计值(Kelley *et al.*, 1999).

此外, 因来源不同而异, 环境中 $^{239+240}\text{Pu} / ^{137}\text{Cs}$ 的活度比值不尽相同(UNSCEAR, 1982), $^{240}\text{Pu} / ^{239}\text{Pu}$ 原子比率的变化范围也较大(Oughton *et al.*, 2004). Zheng 等通过日本 Sagami 海湾沉积物中 $^{240}\text{Pu} / ^{239}\text{Pu}$ 比值测量, 判断大约有 44% ~ 59% 的 Pu 是来自 Enewetak 和 Bikini 核试验基地(Zheng and Yamada, 2004). 一些文献中曾报道湖泊沉积物中核素 Pu 的分布(万国江等, 1986; Wan *et al.*, 1987; 林瑞芬等, 1992). 为认识大气散落于地表环境的核素 Pu 作为湖泊现代沉积计年时标的可能性, 需要考察: ①Pu 在湖泊沉积物中的垂直分布特征; ②Pu 在湖泊沉积和沉积后的迁移行为; ③ $^{240}\text{Pu} / ^{239}\text{Pu}$ 原子比率在湖泊沉积物中的来源指示; 基于上述目的, 我们以云南程海沉积物柱芯(CH970608-1)中 ^{210}Pb

和 ^{137}Cs 环境行为的研究为基础(万国江等, 2004; Wan *et al.*, 2005), 进一步考察该沉积物柱芯中 $^{239+240}\text{Pu}$ 比活度及 $^{240}\text{Pu} / ^{239}\text{Pu}$ 原子比率.

程海位于云南省西北部永胜县城西南约 20 km 处(N 26.459° ~ 26.631°, E 100.638° ~ 100.692°), 形成于更新世早期构造断陷作用, 是一个中度富营养湖泊. 前文中(万国江等, 2004; Wan *et al.*, 2005), 笔者以 ^{210}Pb 和 ^{137}Cs 结合的计年为基础, 报道了程海水体因营养盐积累或其它生态环境条件变化而导致湖泊初级生产力突发增高时, 出现藻类残骸沉积通量的增大, 相应地增大水体 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 被清洗而转入沉积物的通量. 这种突发性的清洗效应, 导致沉积物中 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 比活度垂直剖面的变异; $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 沉积通量的增大指示湖泊水体初级生产力的明显变化, 对湖泊水体富营养状态具有重要示踪价值. 尔后, Zheng 等根据该沉积物柱芯样品中 $^{239+240}\text{Pu}$ 比活度及 $^{240}\text{Pu} / ^{239}\text{Pu}$ 原子比率的测定, 已经进行了初步讨论(Zheng *et al.*, 2008). 然而, 作为湖泊沉积物中纪录的 ^{137}Cs , 因其仅仅具有数十年的半衰期, 需要恢复其沉降年代的比活度, 方可与 $^{239+240}\text{Pu}$ 进行对比讨论. 本文就校正到沉积年代的 ^{137}Cs 比活度, 并结合瑞士 Greifensee 沉积物柱芯(GR-8311)资料(万国江等, 1985; 1986; Wan *et al.*, 1987), 认识湖泊沉积物中 $^{239+240}\text{Pu}$ 与 ^{137}Cs 的关系、 $^{240}\text{Pu} / ^{239}\text{Pu}$ 原子比率变化, 以讨论 Pu 作为湖泊现代沉积计年时标的可能性.

2 样品及实验方法 (Samples and experimental methods)

沉积物柱芯(CH970608-1)系利用湖泊沉积物-水界面装置于 1997 年 6 月在程海深水湖区采集, 覆水深度约 30 m. 有关采样条件、样品处理及沉积物中 ^{210}Pb 和 ^{137}Cs 比活度测定等情况已在前文(万国江等, 2004; Wan *et al.*, 2005) 中详细说明. 其中 ^{137}Cs 的比活度是用 S-100 多道能谱仪进行 γ -谱测定, 经效率曲线校准所得. 沉积物中 $^{239+240}\text{Pu}$ 比活度和 $^{240}\text{Pu} / ^{239}\text{Pu}$ 原子比率的测定是在日本国立放射科学研究所海洋辐射生态实验室(Nakaminato Laboratory for Marine Radioecology, National Institute of Radiological Sciences, Japan) 完成. 沉积物样品以 $8 \text{ mol} \cdot \text{L}^{-1}$ 硝酸萃取出 Pu, 然后用 AG 1-X8 阴离子交换柱(10 cm \times 0.7 cm) 纯化萃取溶液, 采用 Element 2 高分辨率 ICP-MS 仪器测定(Zheng *et al.*, 2008).

3 结果与讨论(Results and discussion)

沉积物柱芯(CH970608-1) 中¹³⁷Cs及²³⁹⁺²⁴⁰Pu 等分析结果列于表 1 中, 其中¹³⁷Cs的比活度数据源自我们先前的工作(万国江等, 2004; Wan *et al.* , 2005) 并已经校正到沉积年代. 现就有关资料进行如下讨论.

3.1 沉积物柱芯中²³⁹⁺²⁴⁰Pu 与¹³⁷Cs比活度垂直剖面同步分布特征

由程海沉积物柱芯(CH970608-1) 中²³⁹⁺²⁴⁰Pu 及¹³⁷Cs比活度垂直剖面(图 1) 可见, 它们具有基本相似的分布图示, 主蓄积峰值同时存在于质量深度 14.3 g·cm⁻²(几何深度 35 cm); 其比活度分别为 (0.469 ± 0.046) Bq·kg⁻¹和 (45.6 ± 2.9) Bq·kg⁻¹. 如果以 1963 年作为全球散落高峰, 以 1 年作为沉积滞后期, 则该峰值位置标记了 1964 年的沉积层位, 同时还标记了该柱芯沉积物的平均堆积速率为 (0.433 ± 0.006) g·cm⁻²·a⁻¹. 其它辅助蓄积峰值也具有相应的较好对应关系.

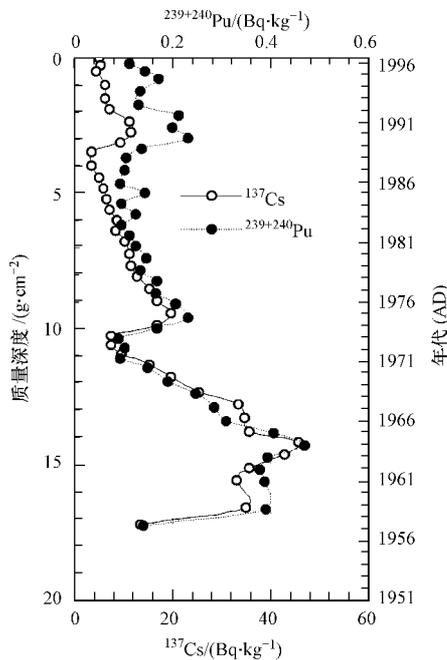


图 1 程海沉积物柱芯(CH970608-1) 中²³⁹⁺²⁴⁰Pu 与¹³⁷Cs比活度垂直剖面比较

Fig.1 Vertical profiles of ²³⁹⁺²⁴⁰Pu and ¹³⁷Cs specific activities in sediment core (CH970608-1) of Lake Chenghai

由程海沉积物柱芯(CH970608-1) 中²³⁹⁺²⁴⁰Pu 比活度与北半球¹³⁷Cs逐年沉降量(Agudo, 1998) 对

比(图 2) 可见, 它们之间也具有很好的对应关系. 因为 1986 年前苏联切尔诺贝利核反应堆的核泄漏事故主要影响北欧地区的¹³⁷Cs年度沉降通量, 自然地不可能在程海沉积物柱芯中形成定量的对应关系.

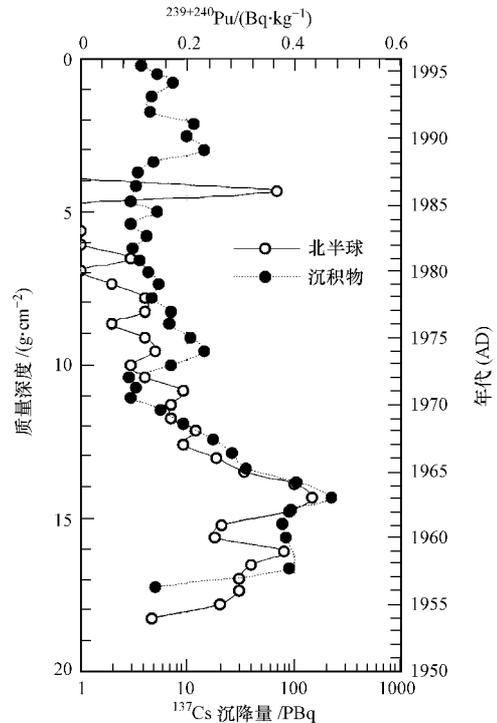


图 2 程海沉积物柱芯(CH970608-1) 中²³⁹⁺²⁴⁰Pu 比活度与北半球¹³⁷Cs逐年沉降量(据 Agudo, 1998 资料绘出) 比较

Fig.2 Annual deposition of ¹³⁷Cs in the northern hemisphere (by Agudo, 1998) with vertical profiles of ²³⁹⁺²⁴⁰Pu specific activities in sediment core (CH970608-1) of Lake Chenghai

在瑞士 Greifensee 也同样存在²³⁹⁺²⁴⁰Pu 与¹³⁷Cs 比活度主蓄积峰在同一沉积层位并存的现象. GR-8311 柱芯中, ²³⁹⁺²⁴⁰Pu 与¹³⁷Cs比活度主蓄积峰同时存在于质量深度 3.13 g·cm⁻²(几何深度 12 cm); 二者的峰值位置同样标记了沉积物平均堆积速率为 (0.17 ± 0.02) g·cm⁻²·a⁻¹(万国江等, 1985, 1986; Wan *et al.* , 1987) .

林瑞芬等对新疆博斯腾湖沉积物柱芯(B-2) 研究中发现²³⁹⁺²⁴⁰Pu 分布峰值出现在(1963 ± 2) 年(按照²¹⁰Pb 计年结果), 与 20 世纪 60 年代核试验高峰期相当吻合(林瑞芬等, 1992) .

上述结果说明²³⁹⁺²⁴⁰Pu 同样具有湖泊现代沉积计年的时标价值, 并且可能弥补¹³⁷Cs因半衰期较短而用于地表地球化学环境过程示踪剂的不足.

表 1 程海沉积物柱芯(CH970608-1)中散落核素²³⁹⁺²⁴⁰Pu与¹³⁷Cs比较*
Table 1 Comparisons between ²³⁹⁺²⁴⁰Pu and ¹³⁷Cs in sediment core(CH970608-1) of Lake Chenghai*

几何深度/ cm	质量深度/ /(g·cm ⁻²)	年代 (AD)	¹³⁷ Cs** /(Bq·kg ⁻¹)	¹³⁷ Cs累计值** /(Bq·m ⁻²)	²³⁹⁺²⁴⁰ Pu /(Bq·kg ⁻¹)	²³⁹⁺²⁴⁰ Pu 累计值 /(Bq·m ⁻²)	²³⁹⁺²⁴⁰ Pu/ ¹³⁷ Cs 活度比值	²⁴⁰ Pu/ ²³⁹ Pu 原子比率
1	0.25	1996.9	5.1±0.6	12.9±1.4	0.114±0.007	0.29±0.04	0.022±0.003	0.182±0.017
2	0.53	1996.3	5.3±0.6	14.8±1.8	0.143±0.016	0.40±0.03	0.027±0.004	0.206±0.019
3	0.78	1995.7	4.4±0.6	10.9±1.6	0.172±0.012	0.43±0.09	0.039±0.006	0.197±0.020
4	1.24	1994.6	6.2±0.8	28.5±3.7	0.134±0.019	0.62±0.07	0.022±0.004	0.165±0.020
5	1.73	1993.5	6.2±0.6	30.3±3.1	0.131±0.014	0.64±0.07	0.021±0.003	0.201±0.019
6	2.11	1992.6	7.3±0.7	27.9±2.8	0.212±0.019	0.81±0.10	0.029±0.004	0.195±0.011
7	2.55	1991.6	11.2±0.8	49.1±3.7	0.199±0.022	0.88±0.09	0.018±0.002	0.223±0.016
8	2.98	1990.6	11.6±0.9	49.8±4.0	0.231±0.020	0.99±0.06	0.020±0.002	0.271±0.011
9	3.36	1989.8	9.5±1.0	35.9±3.7	0.138±0.017	0.52±0.02	0.015±0.002	0.171±0.024
10	3.69	1989.0	3.5±0.6	11.7±1.9	0.106±0.007	0.35±0.06	0.030±0.005	0.203±0.021
11	4.15	1987.9	3.3±0.7	15.3±3.4	0.103±0.013	0.47±0.03	0.031±0.008	0.202±0.019
12	4.65	1986.8	4.9±0.5	24.5±2.7	0.095±0.006	0.48±0.04	0.019±0.002	0.164±0.018
13	5.00	1986.0	5.9±0.6	20.5±2.0	0.145±0.011	0.51±0.05	0.025±0.003	0.192±0.018
14	5.38	1985.1	6.5±0.6	24.6±2.3	0.096±0.012	0.36±0.03	0.015±0.002	0.195±0.011
15	5.77	1984.2	7.2±0.8	28.0±3.0	0.124±0.008	0.48±0.07	0.017±0.002	0.188±0.026
16	6.16	1983.3	8.7±0.7	33.7±2.8	0.097±0.018	0.38±0.05	0.011±0.002	0.202±0.027
17	6.55	1982.4	8.3±0.9	32.3±3.3	0.111±0.013	0.43±0.06	0.013±0.002	0.195±0.025
18	6.95	1981.5	10.5±0.9	41.8±3.5	0.126±0.014	0.50±0.09	0.012±0.002	0.199±0.020
19	7.38	1980.5	11.1±0.9	47.9±3.8	0.147±0.021	0.63±0.07	0.013±0.002	0.192±0.022
20	7.83	1979.5	11.7±1.0	52.5±4.5	0.134±0.015	0.60±0.11	0.011±0.002	0.203±0.019
21	8.25	1978.5	12.7±0.9	53.3±3.9	0.169±0.025	0.71±0.05	0.013±0.002	0.178±0.021
22	8.67	1977.5	15.4±1.2	64.8±5.0	0.166±0.012	0.70±0.15	0.011±0.001	0.181±0.029
23	9.10	1976.5	16.8±1.2	72.4±5.1	0.206±0.035	0.89±0.12	0.012±0.002	0.188±0.012
24	9.56	1975.5	19.6±1.4	90.3±6.3	0.232±0.027	1.07±0.06	0.012±0.002	0.210±0.011
25	10.00	1974.5	16.8±1.3	73.7±5.5	0.168±0.014	0.74±0.09	0.010±0.001	0.210±0.014
26	10.37	1973.6	7.6±1.0	28.1±3.6	0.092±0.023	0.34±0.06	0.012±0.003	数据丢失
27	10.72	1972.8	7.5±0.9	26.1±3.2	0.104±0.018	0.36±0.05	0.014±0.003	数据丢失
28	11.07	1972.0	9.7±1.0	33.8±3.5	0.093±0.015	0.33±0.07	0.010±0.002	0.184±0.014
29	11.45	1971.1	15.4±1.4	58.6±5.3	0.150±0.018	0.57±0.09	0.010±0.001	0.199±0.021
30	11.91	1970.1	19.6±1.4	90.2±6.3	0.192±0.019	0.88±0.17	0.010±0.001	0.195±0.022
31	12.40	1968.9	25.3±1.6	123.8±8.0	0.247±0.034	1.21±0.07	0.010±0.001	0.219±0.027
32	12.88	1967.8	33.3±2.2	159.9±10.7	0.283±0.015	1.36±0.13	0.008±0.001	0.193±0.022
33	13.37	1966.7	34.8±2.4	170.7±12.0	0.310±0.027	1.52±0.08	0.009±0.001	0.189±0.019
34	13.84	1965.6	35.6±2.1	167.5±9.9	0.405±0.016	1.90±0.21	0.011±0.001	0.175±0.016
35	14.30	1964.6	45.6±2.9	209.9±13.4	0.469±0.046	2.16±0.17	0.010±0.001	0.198±0.017
36	14.73	1963.6	42.9±2.6	184.5±11.3	0.395±0.039	1.70±0.13	0.009±0.001	0.186±0.019
37	15.18	1962.5	35.8±2.5	161.0±11.4	0.378±0.029	1.70±0.12	0.011±0.001	0.193±0.021
38	15.64	1961.5	33.1±2.7	152.1±12.3	0.386±0.025	1.78±0.31	0.012±0.001	0.174±0.023
39	16.62	1959.2	34.9±2.4	342.1±23.6	0.391±0.032	3.83±0.12	0.011±0.001	0.179±0.017
40	17.23	1957.8	13.5±2.1	82.0±12.8	0.141±0.019	0.86	0.010±0.002	0.202±0.026
累计值 2937					累计值 35.4		平均 0.016	平均 0.195

注: * 采样日期: 1997-06-08; ¹³⁷Cs测量时间: 1997-12—1998-06; ²³⁹⁺²⁴⁰Pu 测量时间: 2006-02.

** ¹³⁷Cs已校正到沉积年代.

3.2 沉积物柱芯中 $^{239+240}\text{Pu}/^{137}\text{Cs}$ 活度比值的垂直分布特征

不同来源的 $^{239+240}\text{Pu}/^{137}\text{Cs}$ 活度比率不尽相同。由表 1 可知, 程海沉积物柱芯 (CH970608-1) 中校正到沉积年代的 ^{137}Cs 比活度为 $3.3 \sim 45.6 \text{ Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ 、总累计值 ($\Sigma^{137}\text{Cs}$) 为 $2\,937 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-2}$, 较贵州红枫湖沉积物柱芯 (HF8801) 中 ^{137}Cs 的大气散落累计值 ($0.37 \pm 0.01 \text{ Bq}\cdot\text{cm}^{-2}$) (白占国等 2004) 略低; 而较联合国原子能辐射效应科学委员会 (UNSCEAR) ^{137}Cs 全球扩散散落累计值的区域分布给出的模拟图示中, 相同区域 ^{137}Cs 全球扩散散落累计值 (Agudo, 1998) 略高。 $^{239+240}\text{Pu}$ 比活度为 $0.092 \sim 0.469 \text{ Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$, 总累计值 ($\Sigma^{239+240}\text{Pu}$) 为 $35.4 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-2}$, 相 近于北半球 $20^\circ \sim 30^\circ$ 范围内大气散落沉降的平均值 $36 \text{ MBq}\cdot\text{km}^{-2}$ (UNSCEAR 2000)。 $^{239+240}\text{Pu}$ 与 ^{137}Cs 总累计值之比 $\Sigma^{239+240}\text{Pu}/\Sigma^{137}\text{Cs} = 0.012$ 。

由表 1 和图 3 可见, 程海沉积物柱芯 (CH970608-1) 不同沉积物层节中 $^{239+240}\text{Pu}$ 与 ^{137}Cs 的

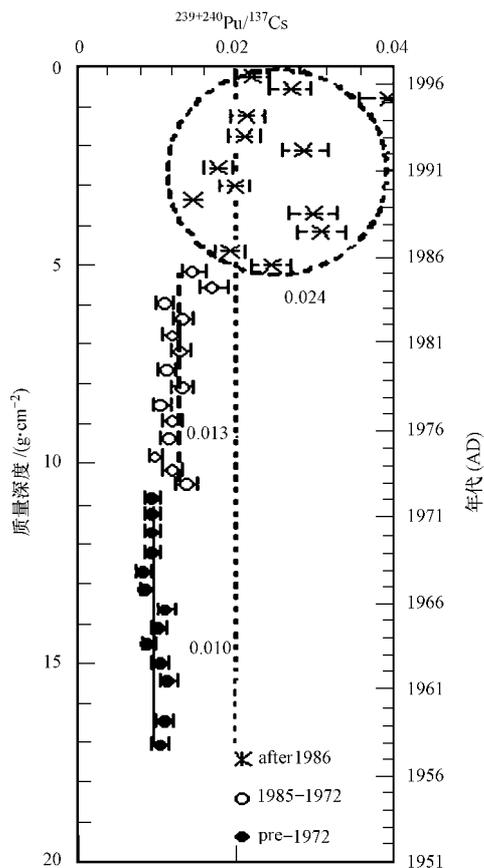


图 3 程海沉积物柱芯 (CH970608-1) 中 $^{239+240}\text{Pu}/^{137}\text{Cs}$ 活度比值随沉积物深度变化

Fig. 3 The activity ratios between $^{239+240}\text{Pu}$ and ^{137}Cs vs. sediment depth in sediment core (CH970608-1) of Lake Chenghai

活度比值为 $0.008 \sim 0.039$, 平均值为 0.016 , 相 近于全球大气散落沉降的 $^{239+240}\text{Pu}/^{137}\text{Cs}$ 活度比值 0.021 (UNSCEAR, 1982; 2000), 远大于切尔诺贝利反应堆核泄漏物中 $^{239+240}\text{Pu}/^{137}\text{Cs}$ 的活度比值 (0.001) (Muramatsu *et al.*, 2000)。程海沉积物柱芯 (CH970608-1) 中 $^{239+240}\text{Pu}$ 与 ^{137}Cs 比活度之间具有良好的线性相关关系 (图 4): $[^{239+240}\text{Pu}] = 0.011 \times [^{137}\text{Cs}]$ ($r = 0.85$), 即 $^{239+240}\text{Pu}/^{137}\text{Cs} = 0.011$ 。其中较低比活度部分的散点偏离相关曲线较大, 可能与它们在较低比活度下的测定误差有关, 也可能受它们自身迁移行为的影响。

瑞士 Greifen 湖沉积物柱芯 (GR-83-11) 中, $^{239+240}\text{Pu}/^{137}\text{Cs}$ 活度比值随沉积物深度虽然也具有一定的波动 ($0.018 \sim 0.023$), 但是总体变化不大, 平均值为 0.018 (万国江等, 1986; Wan *et al.*, 1987), 也接近于全球大气散落沉降的 $^{239+240}\text{Pu}/^{137}\text{Cs}$ 活度比值。

程海沉积物柱芯 (CH970608-1) 的垂直剖面上, $^{239+240}\text{Pu}/^{137}\text{Cs}$ 活度比具有一定的变化 (图 3), 似乎存在 3 个时段: ①1972 年前平均为 0.010 (其中 1964 年的主蓄积峰沉积物中 $^{239+240}\text{Pu}$ 与 ^{137}Cs 活度比值为 0.010 ± 0.001); ②1972 ~ 1985 年间平均为 0.013 ; ③1986 年之后较为离散, 平均为 0.024 。这一信息记录可能寓意: $^{239+240}\text{Pu}$ 和 ^{137}Cs 在湖泊沉积物中的扩散存在差异? 或者, $^{239+240}\text{Pu}$ 和 ^{137}Cs 在进入湖泊沉积物之前也存在迁移差异? 但是, 如果是它们仅仅在进入湖泊沉积物之前存在迁移差异, 则难以解释 1986 年之后沉积物层节中出现的较高比率!

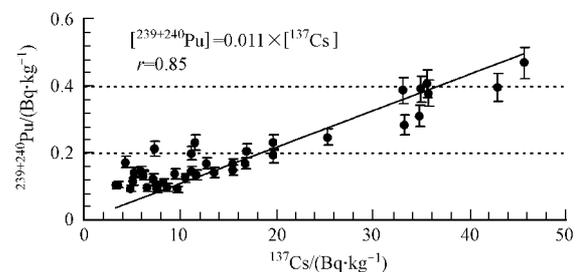


图 4 程海沉积物柱芯 (CH970608-1) 中 $^{239+240}\text{Pu}$ 与 ^{137}Cs 比活度相关关系

Fig. 4 The correlation of $^{239+240}\text{Pu}$ and ^{137}Cs specific activities in sediment core (CH970608-1) of Lake Chenghai

进一步认识沉积物中 Pu 的地球化学运移行为将具有重要意义。早期有人认为, 在海湾环境中 Pu 可优先地由生物干扰的氧化性沉积物中迁移并由

沉积物表面扩散进入到上覆水体. 通过模拟实验推断, 与其它核素 (如 ^{210}Pb 、 ^{228}Th 、 ^{234}Th 等) 一样, $^{239+240}\text{Pu}$ 的迁移率基本上受它们对微粒的亲合力及微粒自身的迁移性能所控制. 在缺氧的淡水和海洋沉积物中, Pu 是不迁移的, $\Sigma^{239+240}\text{Pu} / \Sigma^{137}\text{Cs}$ 的活度比值变化是由于 ^{137}Cs 在海洋环境中具较大的溶解度和迁移性所致 (Santschi *et al.*, 1983; 1990). 近 20 余年以来, 已有关于 $^{239+240}\text{Pu}$ 在河、湖、海洋水体及沉积物中浓度及分配关系的较多研究报道 (Crusius and Anderson, 1995; Gascó *et al.*, 2002; Yeager *et al.*, 2004). 看来, 较深部沉积物中 $^{239+240}\text{Pu} / \Sigma^{137}\text{Cs}$ 活度比值的降低可能与 ^{137}Cs 沉积后在沉积物中存在的较大扩散迁移有关. 我们将另文讨论 $^{239+240}\text{Pu}$ 、 ^{137}Cs 、 ^{210}Pb 等核素在湖泊沉积物中的地球化学赋存状态, 以对比认识它们在沉积物中的迁移能力.

3.3 沉积物柱芯中 $^{240}\text{Pu} / ^{239}\text{Pu}$ 原子比率的垂直变化特征示踪核素的全球大气散落

基于 $^{240}\text{Pu} / ^{239}\text{Pu}$ 原子比率与 Pu 的来源有关, 以及质谱测试技术的提高, $^{240}\text{Pu} / ^{239}\text{Pu}$ 原子比率可能作为 Pu 来源的有效示踪剂. 图 5 和图 6 分别展示出程海沉积物柱芯 (CH970608-1) 中 $^{240}\text{Pu} / ^{239}\text{Pu}$ 原子比率既不随沉积物深度而变, 也不随 $^{239+240}\text{Pu}$ 比活度而变. 沉积物柱芯 (CH970608-1) 中 $^{240}\text{Pu} / ^{239}\text{Pu}$ 原子比率为 0.164 ~ 0.271, 平均值为 0.195 ± 0.021 (表 1) 与 Kelley 等报道的北半球 $20^\circ \sim 30^\circ$ 范围内大气散落沉降的 $^{240}\text{Pu} / ^{239}\text{Pu}$ 原子比率 0.178 ± 0.019 相吻合 (Kelley *et al.*, 1999). 根据 Koide 等报道 20 世纪 60 年代以前全球大气散落沉降核素 Pu 的原子比率高于 0.18, 约为 0.22 ~ 0.20 (Koide *et al.*, 1985). Mitchell 等发现图勒 (格陵兰岛西北部城镇) 沉积物中 $^{240}\text{Pu} / ^{239}\text{Pu}$ 原子比率低于 0.033 ± 0.004 , 明显呈现核试验的 Pu 来源 (Mitchell *et al.*, 1997). 可见, 程海沉积物柱芯 (CH970608-1) 中的 $^{240+239}\text{Pu}$ 主要来自全球大气散落沉降.

图 5 和图 6 中, 对应于几何深度 8 cm (质量深度为 $2.98 \text{ g} \cdot \text{cm}^{-2}$, 年代为 (1990 ± 2) 年), $^{239+240}\text{Pu}$ 比活度为 $(0.231 \pm 0.020) \text{ Bq} \cdot \text{kg}^{-1}$, $^{240}\text{Pu} / ^{239}\text{Pu}$ 原子比率为 0.27, 显得偏大而出现一个异常值. 切尔诺贝利核事故附近土壤中 Pu 的同位素比率高达 0.408 (Muramatsu *et al.*, 2000). 可以认为: 该时段沉积物层节中可能存在非全球大气散落沉降源, 可能是受切尔诺贝利核事故泄漏的影响. 虽然根据沉积计年结果为 1990 年, 但是应该知道沉积计年是一

个平均值概念; 从沉积层节的时序上与 1986 年的切尔诺贝利核事故是一致的; 当然, 还可以认为是切尔诺贝利核事故的二次影响. 即被切尔诺贝利核事故直接影响区域中, 吸附有 Pu 和 Cs 的颗粒物再次悬浮, 经对流层大气传送, 进而沉降并沉积显示在程海沉积物中. 这一现象同样显示出程海沉积物中存在切尔诺贝利核事故影响的痕迹.

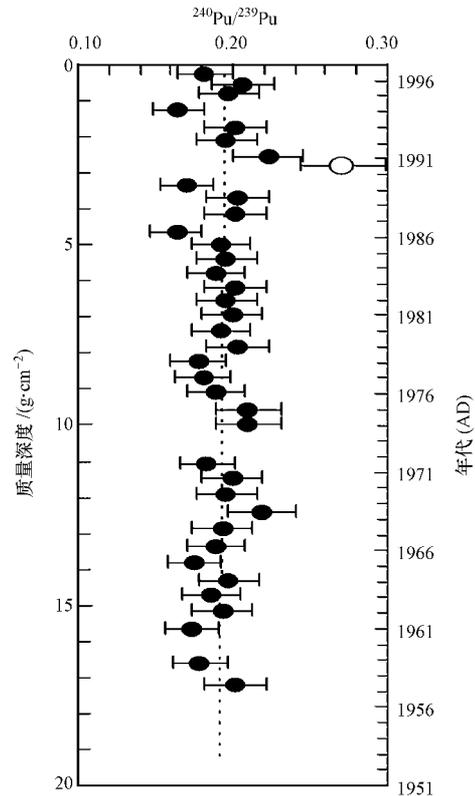


图 5 程海沉积物柱芯 (CH970608-1) 中 $^{240}\text{Pu} / ^{239}\text{Pu}$ 原子比率随深度变化

Fig. 5 The $^{240}\text{Pu} / ^{239}\text{Pu}$ atom ratio vs. sediment depth in core (CH970608-1) of Lake Chenghai

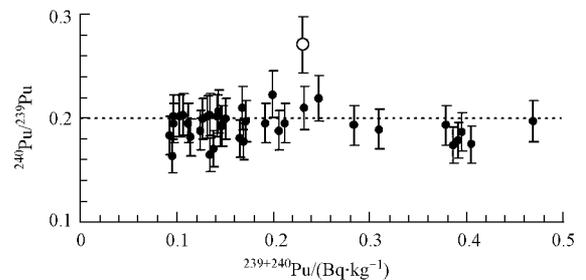


图 6 程海沉积物柱芯 (CH970608-1) 中 $^{240}\text{Pu} / ^{239}\text{Pu}$ 原子比率与 $^{239+240}\text{Pu}$ 比活度相关关系

Fig. 6 The correlation of $^{240}\text{Pu} / ^{239}\text{Pu}$ atom ratio with $^{239+240}\text{Pu}$ specific activities in sediment core (CH970608-1) of Lake Chenghai

4 结论(Conclusions)

程海沉积物柱芯(CH970608-1)中:

1) $^{239+240}\text{Pu}$ 及 ^{137}Cs 比活度的垂直剖面分布基本相似,主蓄积峰值同时标记了1964年沉积层位及沉积物平均堆积速率为 $(0.433 \pm 0.006) \text{ g} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{a}^{-1}$; $^{239+240}\text{Pu}$ 比活度与北半球 ^{137}Cs 逐年沉降量之间具很好的对应关系,显示 $^{239+240}\text{Pu}$ 具有湖泊现代沉积计年的时标价值。

2) 不同层节沉积物的 $^{239+240}\text{Pu}/^{137}\text{Cs}$ 活度比值与全球大气散落沉降相近;沉积物中二者的总累计值 ($\sum^{239+240}\text{Pu}/\sum^{137}\text{Cs}$) 也与大气沉降相近。

3) $^{239+240}\text{Pu}/^{137}\text{Cs}$ 活度比值总体稳定,但具有一定的垂直变化,寓意 $^{239+240}\text{Pu}$ 在湖泊沉积物中较 ^{137}Cs 具有更小的扩散迁移能力。

4) $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 原子比率显示 $^{240+239}\text{Pu}$ 主要来自全球大气散落沉降;在几何深度 8 cm, $^{239+240}\text{Pu}$ 比活度及 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 原子比率显示出程海沉积物物中存在切尔诺贝利核事故影响的痕迹。

责任作者简介:万国江,中国科学院地球化学研究所研究员、中国科学院研究生院教授、博士生导师,环境地球化学国家重点实验室首任主任,1963年毕业于中国科学技术大学,曾先后在瑞士 EAWAG、美国 TEXAS A&M 大学、奥地利湖沼研究所及英国伦敦大学皇家 Holloway 学院客座研究。长期从事环境质量目标的地球化学研究,在区域环境质量及环境界面生物地球化学过程领域主持完成国家及中科院重点项目 26 个,发表论著 338 篇(部)。曾获国家科技进步二等奖、贵州省科技进步一等奖及“竺可桢野外科学工作奖”。

参考文献(References):

Agudo E G. 1998. Global distribution of ^{137}Cs inputs for soil erosion and sedimentation studies [R]. In: Use of ^{137}Cs in the study of soil erosion and sedimentation. IAEA-TECDOC-1028, July, 1998. 117-121

白占国,万国江,刘东生,等. 2002. 散落核素 ^7Be 和 ^{137}Cs 在洱海和红枫湖沉积物中蓄积对比 [J]. 地球化学, 31(2): 113-118

Bai Z G, Wan G J, Liu D S, et al. 2002. A comparative study on accumulation characteristics of ^7Be and ^{137}Cs in sediments of Lake Erhai and Lake Hongfeng, China [J]. Geochimica, 31(2): 113-118 (in Chinese)

Crusius J, Anderson R F. 1995. Evaluating the mobility of ^{137}Cs , $^{239+240}\text{Pu}$ and ^{210}Pb from their distributions in laminated lake sediments [J]. J Paleolimnol, 13: 119-141

Gascó C, Antón M P, Delfanti R, et al. 2002. Variation of the activity concentrations and fluxes of natural (^{210}Po , ^{210}Pb) and anthropogenic ($^{239+240}\text{Pu}$, ^{137}Cs) radionuclides in the Strait of

Gibraltar (Spain) [J]. Journal of Environmental Radioactivity 62 (3): 241-262

Kelley J M, Bond L A, Beasley T M. 1999. Global distribution of Pu isotopes and ^{237}Np [J]. The Science of the Total Environment, 237/238: 483-500

Koide M, Bertine K K, Chow T J, et al. 1985. The $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ ratio, a potential geochronometer [J]. Earth Planet, Sci Lett, 72: 1-8

林瑞芬, 卫克勤, 程致远, 等. 1992. 新疆博斯腾湖沉积岩心的 ^{210}Pb 、 ^{228}Th 、 $^{239+240}\text{Pu}$ 和 ^3H 的分布及意义 [J]. 地球化学, 21(1): 63-69

Lin R F, Wei K Q, Cheng Z Y, et al. 1992. Distributions of ^{210}Pb , ^{228}Th , $^{239+240}\text{Pu}$ and ^3H and their implication in sediment core from Bosten Lake, Xinjiang, China [J]. Geochimica, 21(1): 63-69 (in Chinese)

Mitchell P I, Vintro L L, Dahlgaard H, et al. 1997. Perturbation in the $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ global fallout ratio in local sediments following the nuclear accidents at Thule (Greenland) and Palomares (Spain) [J]. The Science of the Total Environment 202: 147-153

Muramatsu Y, Ruhm W, Yoshida S, et al. 2000. Concentrations of ^{239}Pu and ^{240}Pu and their isotopic ratios determined by ICP-MS in soils collected from the Chernobyl 30-km zone [J]. Environmental Science and Technology, 34: 2913-2917

Oughton D H, Skipperud L, Fiedl L K, et al. 2004. Accelerator mass spectrometry measurement of $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ isotope ratios in Novaya Zemlya and Kara Sea sediments [J]. Applied Radiation and Isotopes, 61: 249-253

Santschi P H, Höhener P, Benoit G, et al. 1990. Chemical processes at the sediment-water interface [J]. Marine Chemistry, 30: 269-315

Santschi P H, Li Y H, Adler D M, et al. 1983. The relative mobility of natural (Th, Pb, Po) and fallout (Pu, Am, Cs) radionuclides in the coastal marine environments: results from model ecosystems (MERL) and Narragansett Bay [J]. Geochim Cosmochim Acta, 47: 201-210

UNSCEAR (United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation). 1982. Sources and biological effects of ionizing radiation [R]. Report to the General Assembly, United Nations, New York, 211

UNSCEAR (United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation). 2000. Sources and effects of ionizing radiation [R]. Exposures to the public from man-made sources of radiation, Report to General Assembly, United Nations, New York. 654

万国江. 1999. 现代沉积年分辨的 ^{137}Cs 计年——以云南洱海和贵州红枫湖为例 [J]. 第四纪研究, 19(1): 73-80

Wan G J. 1999. ^{137}Cs dating by annual distinguish for recent sedimentation: Samples from Erhai Lake and Hongfeng Lake [J]. Quaternary Sciences, 19(1): 73-80 (in Chinese)

万国江, 陈敬安, 吴丰昌, 等. 2004. $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 沉积通量突发增大对湖泊生产力的指示——以程海为例 [J]. 中国科学 D 辑: 地球科学, 34(2): 154-162

Wan G J, Chen J A, Wu F C, et al. 2004. Sudden enhancement of sedimentation flux of $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ as an indicator of lake productivity as exemplified by Lake Chenghai [J]. Science in China (Series D),

- 34(2): 154-162
- Wan G J, Chen J A, Wu F C *et al.* 2005. Coupling between $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ and organic matter in sediments of a nutrient-enriched lake: An example from Lake Chenghai, China [J]. *Chemical Geology*, 224(4): 223-236
- Wan G J, Santschi P, Sturm M *et al.* 1987. Natural (^{210}Pb , ^7Be) and fallout (^{137}Cs , $^{239,240}\text{Pu}$, ^{90}Sr) radionuclides as geochemical tracers of sedimentation in Greifensee, Switzerland [J]. *Chemical Geology*, 63: 181-196
- 万国江, P, 桑季, K, 法任库忍, 等. 1985. 瑞士 Greifen 湖新近沉积物中的 ^{137}Cs 分布及其计年 [J]. *环境科学学报*, 5(3): 360-365
- Wan G J, Santschi P, Farrenkothan K, *et al.* 1985. The distribution and dating of ^{137}Cs for recent sediments in Lake Greifen, Switzerland [J]. *Acta Scientiae Circumstantiate*, 5(3): 360-365 (in Chinese)
- 万国江, Santschi P H, Sturm M, 等. 1986. 放射性核素和纹理工计年对比研究瑞士格莱芬湖近代沉积速率 [J]. *地球化学*, 15(3): 259-270
- Wan G J, Santschi P H, Sturm M, *et al.* 1986. The comparative study using varve counting and radionuclide dating for recent sedimentation rate of Lake Greifen, Switzerland [J]. *Geochimica*, 15(3): 259-270 (in Chinese)
- Yeager K M, Santschi P H, Rowe G T. 2004. Sediment accumulation and radionuclide inventories ($^{239,240}\text{Pu}$, ^{210}Pb and ^{234}Th) in the northern Gulf of Mexico, as influenced by organic matter and macrofaunal density [J]. *Marine Chemistry* 91: 1-14
- Zheng J, Yamada M. 2004. Sediment core record of global fallout and Bikini close-in fallout Pu in Sagami Bay, Western Northwest Pacific Margin [J]. *Environmental Science and Technology*, 38: 3498-3504
- Zheng J, Liao H Q, Wu F C, *et al.* 2008. Vertical distributions of $^{239+240}\text{Pu}$ activity and $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ atom ratio in sediment core of Lake Chenghai, SW China [J]. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* 275(1): 37-42