

· 环境污染及其控制原理与技术 ·

$^{239+240}\text{Pu}$ ——湖泊近代沉积计年的重要时标

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

湖泊沉积物是挽近时期区域及全球环境变化的重要档案馆。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。在近代沉积作用领域 ^{137}Cs (半衰期 30.3 a) 时标与 ^{210}Pb 计年结合, 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。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。全球核试验总共同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 $(0.37 \sim 1.85) \times 10^{-5}$ Bq L⁻¹, 湖泊沉积物中约为 3.7 Bq kg⁻¹; 海水中约为 3.7×10^{-5} Bq L⁻¹, 海洋沉积物中约为 1.85×10^{-1} Bq 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。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, 可望作为近代沉积计年的有效时间标志。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, $^{240}\text{Pu} / ^{239}\text{Pu}$ 原子比率的变化范围也较大。我们曾报道瑞士 Greifensee 沉积物柱芯 (GR-8311) 中核素 Pu 的分布。为认识大气散落于地表环境的核素 Pu 作为现代沉积计年时标的可能性, 需要进一步考察: ① Pu 在沉积物中的垂直分布特征? ② Pu 在沉积和沉积后的迁移行为? ③ $^{240}\text{Pu} / ^{239}\text{Pu}$ 原子比率在沉积物

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, 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。

研究表明: ① $^{239+240}\text{Pu}$ 及 ^{137}Cs 比活度的垂直剖面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), 比活度分别为 $0.47 \pm 0.05 \text{ Bq kg}^{-1}$ 和 $45.64 \pm 2.92 \text{ Bq kg}^{-1}$ 。该峰值位置标记了 1964 年的沉积层位, 以及沉积物的平均堆积速率为 $0.433 \pm 0.006 \text{ g cm}^{-2} \text{ a}^{-1}$ 。 $^{239+240}\text{Pu}$ 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 $^{239+240}\text{Pu}$ 同样具有湖泊现代沉积计年的时标价值。② 不同层节沉积物中, $^{239+240}\text{Pu}$ 与 ^{137}Cs 活度比的平均值为 0.016 (0.008~0.039), 与全球大气散落沉降的 $^{239+240}\text{Pu} / ^{137}\text{Cs}$ 活度比值(0.021)相近。 ^{137}Cs 总累计值为 2.937 Bq m^{-2} ; $^{239+240}\text{Pu}$ 总累计值为 35.4 Bq m^{-2} , 与北半球 $20^\circ \sim 30^\circ$ 范围内 $^{239+240}\text{Pu}$ 的大气沉降量相近; $\Sigma^{239+240}\text{Pu} / \Sigma^{137}\text{Cs} = 0.012$ 。③ $^{239+240}\text{Pu} / ^{137}\text{Cs}$ 活度比具有一定的垂直变化: 1972 年前平均为 0.010 (其中 1964 年的主蓄积峰沉积物中 $^{239+240}\text{Pu} / ^{137}\text{Cs}$ 活度比为 0.010 ± 0.001); 1972~1985 年间平均为 0.013; 1986 年之后较为离散, 平均为 0.024。这一信息记录可能寓意: ^{137}Cs 在湖泊沉积物中较 $^{239+240}\text{Pu}$ 具有较大的扩散迁移能力。④ $^{240}\text{Pu} / ^{239}\text{Pu}$ 原子比率为 0.164~0.271, 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; 在几何深度 8 cm (质量深度为 2.98 g cm^{-2} , 年代为 $1990 \pm 2 \text{ a}$), $^{239+240}\text{Pu}$ 比活度为 $0.231 \pm 0.020 \text{ Bq kg}^{-1}$, $^{240}\text{Pu} / ^{239}\text{Pu}$ 原子比率为 0.271, 显示程海沉积物中存在切尔诺贝利核事故影响的痕迹。

基金项目: 国家自然科学基金 (40873086, 40773071)