

^{137}Cs 和 ^{241}Am 在滇池、剑湖沉积孔柱中的蓄积分布及时标意义

项 亮 吴瑞金 吉·磊

(中国科学院南京地理与湖泊研究所湖泊沉积与环境开放实验室, 南京 210008)

提要 自70年代以来,对湖泊沉积物中核试验散落核素的研究已成为研究现代湖泊沉积过程和沉积年代及沉积速率的一个重要方面,本文通过对分别采自云南省滇池、剑湖的两个沉积孔柱中 ^{137}Cs 和 ^{241}Am 蓄积分布的研究,测定了它们60、70年代以来的沉积速率分别是42.1和28.7 $\text{mg}/(\text{cm}^2 \cdot \text{a})$ 。研究发现,虽然 ^{241}Am 的含量远低于 ^{137}Cs ,但 ^{241}Am 具有沉积后迁移能力较小,半衰期长等特点,因而随着时间的推移,在未来湖泊现代沉积作用的研究中将会显示出越来越重要的作用。

关键词 ^{137}Cs ^{241}Am 时标 湖泊沉积 滇池 剑湖

^{137}Cs 是一种人为产生的放射性核素,半衰期30.2年。自然环境中的 ^{137}Cs 大部分是核试验的直接散落物质。而 ^{241}Am 则是核试验散落核素 ^{241}Pu (半衰期14.4年)的衰变产物,半衰期432.7年。目前两种核素都被用于湖泊现代沉积作用和沉积年代学的研究^[1~3]。

通过对在云南省滇池、剑湖采集的两个沉积孔柱中放射性核素的分析研究发现, ^{137}Cs 和 ^{241}Am 在两湖的沉积物中都有明显的聚集,同时讨论了两核素在沉积孔柱中所提供的时标及特征,并用 ^{137}Cs 、 ^{241}Am 时标分析了沉积孔柱采集处湖泊沉积物的沉积速率,并比较了两核素在湖泊沉积物中的迁移能力。

1 方法原理

因核试验散落核素有明确的沉降量的时序分布,所以自70年代以来,对湖泊沉积物中核试验散落核素的研究已成为研究现代湖泊沉积过程、年代及速率的一个重要方面^[4,5]。

核试验散落核素随核爆炸而进入大气层,再逐步散落到地球表面。因大气层核试验主要集中于1961~1962年^[6],而通常大多数核素自大气层散落到沉积物约需6~12个月,所以核试验散落核素在湖泊沉积中的最大沉降高峰发生于1963年,以后逐步减少。其中 ^{137}Cs 因具有较长的半衰期和较大的散落量而最早受到注意,成为应用最广的放射性示踪核素^[4]。

Rowan J. S.等^[7]对 ^{137}Cs 在北半球的年度散落沉积量分布进行了研究,其结果表明:开始出现大量沉降的是1954年,最大沉降峰值出现在1963年,而1986年出现又一个沉降峰,

• 中国科学院“中国湖沼的系统调查与分类研究”专项支持项目。

收稿日期:1994-08-12;接受日期:1995-04-03。

作者简介:项亮,男,1960年生,副研究员。1984年中国科技大学地球化学专业毕业,1990年在该校获硕士学位,主要从事湖泊沉积年代学、同位素地球化学和湖泊沉积与环境演化过程等分析研究。

该峰是切尔诺贝利核事故的产物,该事故沉降的 ^{137}Cs 是唯一一次与核试验无关的 ^{137}Cs 在自然环境中的大规模散落,但散落量大小有明显的区域性特点^[8]。而沉积孔柱中 ^{137}Cs 比度的垂直分布与 ^{137}Cs 散落量分布特征的一致性就构成了 ^{137}Cs 时标法的基础^[1]。

与 ^{137}Cs 不同, ^{241}Am 不是核试验的直接散落核素,而是作为核试验散落核素 Pu 的衰变产物。因此,自然环境中的 ^{241}Am 会随着已散落在自然环境中的 ^{241}Pu 的衰减而逐步增多。根据环境监测资料,在核试验进行时,散落的 ^{241}Pu 与 ^{137}Cs 的比值约为 0.177,而散落的 ^{241}Am 基本为零^[2,5]。因此由以上比值,根据 ^{137}Cs 的环境监测量可以得到 ^{241}Pu 的年沉降量分布。再由衰变公式就可以计算出不同年份 ^{241}Am 的放射比度。

在未来半个世纪中, ^{241}Am 在自然环境中的蓄积量还会随着 ^{241}Pu 的不断衰减而进一步增加。图 1 绘出北半球核试验散落核素衰变产生的 ^{241}Am 在 1990 年时的含量百分分布^[2],从中可看出 ^{241}Am 的蓄积时段十分集中。其中,近 90% 的量集中于 1954~1965 年散落物中,而在 1962~1964 年中就集中了近 50%。故 ^{241}Am 比度在沉积孔柱中的垂直分布也反映出核试验散落核素的沉降时序,由此提供了测定湖泊沉积年代和速率的时间标志。

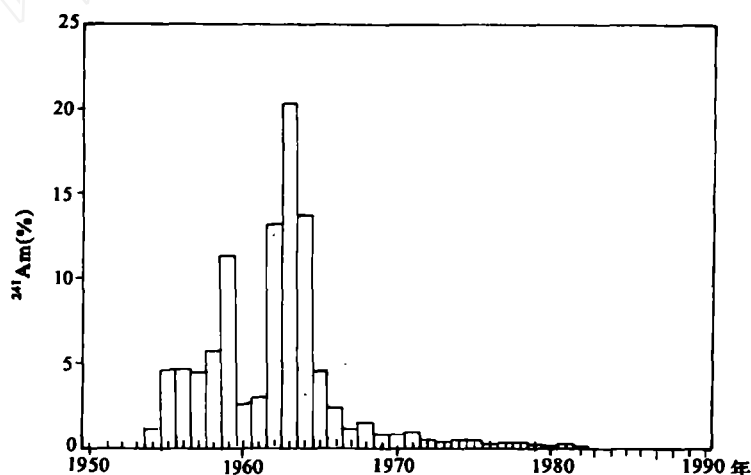


图 1 北半球年沉降核素产生 ^{241}Am 在 1990 年时分布百分比(据参考文献[2])

Fig. 1 Distribution functions of ^{241}Am (1990) in the northern hemisphere

2 研究地区和样品采集

用于本项研究的样品是用重力式采样器于 1993 年 11 月分别采自滇池的 DC9301 孔柱和剑湖的 JL9301 孔柱。

滇池位于滇中高原昆明盆地西侧,海拔 1886m,最大水深 6.0m。DC9301 孔柱采样点水深 5.83m,位于北部近湖心处($24^{\circ}51'\text{N}$, $102^{\circ}42'\text{E}$)。沉积物为富含有机质的深灰—黑色淤泥。剑湖处在剑川盆地上,海拔 2187.3m,平均水深 4.5m,最大水深约 9m, JL9301 孔柱采样点水深 3.22m,位于西侧湖湾内($26^{\circ}30'\text{N}$, $99^{\circ}56'\text{E}$),沉积物为灰色含有机质淤泥。样品采集后,在现场以 0.5 或 1.0cm 的间隔分取样品。

3 实验方法

^{137}Cs 和 ^{241}Am 的放射比度是通过 γ 谱分析系统对样品进行无损坏直接测量的方法, 由直接分析 662keV 和 59.5keV 处 γ 射线能谱得到^[9]。分析用样品为 3~5g 研磨至过 100 目筛孔的干沉积物样品。分析仪器为美国 EG & G Ortec 公司生产的由高纯锗井型探测器(Ortec HPGGe GWL)与 Ortec 919 型谱控制器和 IBM 微机构成的 16K 道多道分析器所组成的 γ 谱分析系统。低环境本底通过由 110mm 厚老铅、2mm 厚钢板和 5mm 厚有机玻璃组成的全封闭屏蔽室保证^[10]。实验中, 用中国原子能科学院提供的与测量样品几何构形完全一致的标准体源标定, 并用液体源配制的同比重粉末模拟样品进行了自吸收校正。为保证足够的计数, 测量时间一般 24 小时左右, 个别达 40 多个小时。

4 结果和讨论

DC9301 和 JL9301 孔柱中 ^{241}Am 和 ^{137}Cs 的放射比度分析结果分别列于表 1 和表 2。其中 DC9301 和 JL9301 孔柱中样品放射性比度分析时间分别为 1994 年 4 月和 5 月。

表 1 DC9301 沉积孔柱中 ^{137}Cs 、 ^{241}Am 比度分析结果*
Tab. 1 ^{137}Cs ^{241}Am in the sediment samples of core DC9301

深度间隔(cm)	质量深度(g/cm ²)	^{137}Cs 比度(Bq/kg)	^{241}Am 比度(Bq/kg)
0.0~1.0	0.032	9.0±2.7	<0.05
1.0~1.5	0.086	9.5±2.5	<0.05
1.5~2.0	0.130	5.3±2.6	<0.05
2.0~2.5	0.193	6.0±2.4	<0.05
2.5~3.0	0.278	7.1±1.5	<0.05
3.0~3.5	0.370	9.1±2.3	<0.05
3.5~4.0	0.495	8.5±2.0	<0.05
4.0~4.5	0.635	8.6±2.3	<0.05
4.5~5.0	0.748	15.2±2.3	0.28±0.36
5.0~5.5	0.889	13.7±1.5	<0.05
5.5~6.0	1.140	14.0±2.1	0.12±0.17
6.0~6.5	1.317	15.4±1.7	0.52±0.32
6.5~7.0	1.487	16.6±2.2	0.28±0.24
7.0~7.5	1.645	12.6±1.4	<0.05
7.5~8.0	1.841	6.7±1.5	<0.05
8.0~8.5	2.019	4.4±1.5	<0.05
8.5~9.0	2.272	2.4±1.4	<0.05
9.0~9.5	2.577	1.8±1.8	<0.05
9.5~10.0	2.832	<0.5	<0.05
累积值(mBq/cm ²)		22.69±1.20	0.191±0.087

* 采样时间:1993 年 11 月;测量时间:1994 年 4 月。

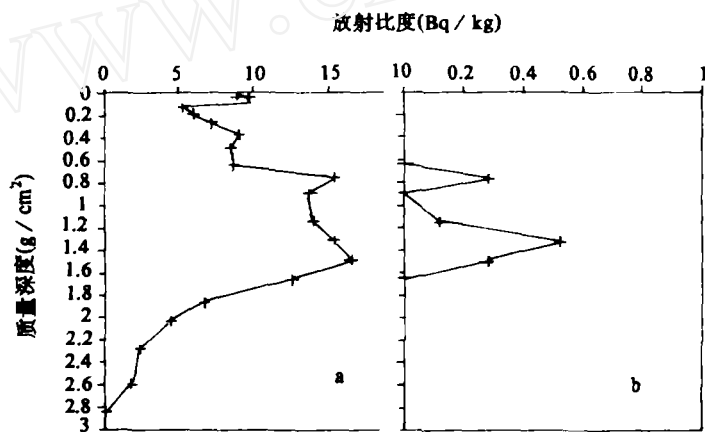
4.1 1963 年 ^{137}Cs 和 ^{241}Am 最大蓄积散落量时标的一致性

图 2、3 分别绘出 DC9301 和 JL9301 两个沉积孔柱中 ^{137}Cs 和 ^{241}Am 比度的垂直分布。可以看出, 两个沉积孔柱中两种核素最大蓄积峰出现层位基本相同, 再以该最大峰值位置与

表 2 JL9301 沉积孔柱中¹³⁷Cs、²⁴¹Am 比度分析结果Tab. 2 ¹³⁷Cs、²⁴¹Am in the sediment samples of Core JK9301

深度间隔(cm)	质量深度(g/cm ²)	¹³⁷ Cs 比度(Bq/kg)	²⁴¹ Am 比度(Bq/kg)
0.0~1.0	0.193	6.6±1.2	<0.05
1.0~2.0	0.527	6.3±1.2	<0.05
2.0~3.0	0.893	7.8±1.0	0.16±0.13
3.0~4.0	1.382	5.4±1.1	<0.05
4.0~5.0	1.885	1.9±1.1	<0.05
5.0~6.0	2.397	<0.5	<0.05
6.0~7.0	2.947	<0.5	<0.05
累积值(mBq/cm ²)		11.59±1.07	0.072±0.058

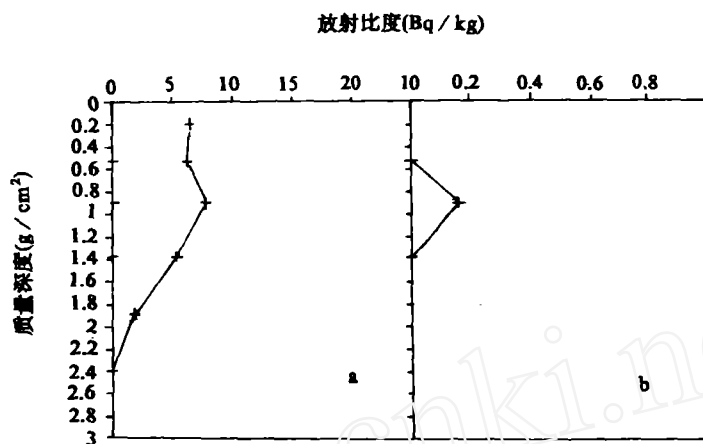
* 采样时间:1993 年 11 月;测量时间:1994 年 5 月。

图 2 DC9301 孔柱中¹³⁷Cs(a)和²⁴¹Am(b)比度的垂直分布Fig. 2 Distribution of ¹³⁷Cs (a) and ²⁴¹Am (b) in Core DC9301

¹³⁷Cs和²⁴¹Am 最大年散落沉降量相比较,可以明显看出两个孔柱中两种核素的垂直剖面与逐年散落沉降量的变化特征也一致。所以两核素最大蓄积峰值所在层位应指示 1963 年沉积。即 DC9301 孔柱中¹³⁷Cs 的 6.5~7.0cm 层位和²⁴¹Am 的 6.0~6.5cm 层位,及 L9301 沉积孔柱中¹³⁷Cs 和²⁴¹Am 的 2.0~3.0cm 层位,两沉积孔柱中¹³⁷Cs 和²⁴¹Am 垂直分布的上述特征反映了核试验产生的两种核素散落时序的一致性。但与¹³⁷Cs 相比,²⁴¹Am 的含量较小,在许多出现¹³⁷Cs 的层位,都没有检测到²⁴¹Am 的存在,因此,用²⁴¹Am 无法确定核试验散落核素开始在湖泊沉积物中蓄积的时间。在 DC9301 和 JL9301 两个沉积孔柱中²⁴¹Am 和¹³⁷Cs 总蓄积通量之比,分别是 0.84% 和 0.62%,与英国湖泊沉积物中²⁴¹Am 与核试验散落¹³⁷Cs 的平均比值 0.66% 基本一致^[2]。说明云南湖泊中蓄积的¹³⁷Cs 绝大部分还是来自核试验的散落物。

4.2 1986 年切尔诺贝利核事故散落¹³⁷Cs 的蓄积

从两个沉积孔柱中¹³⁷Cs 比度的垂直分布中可看出,在较接近表层的层位(DC9301 的

图3 JL9301 孔柱中 ^{137}Cs (a) 和 ^{241}Am (b) 比度的垂直分布Fig. 3 Distribution of ^{137}Cs (a) and ^{241}Am (b) in Core JL9301

3.0~3.5cm 层位, JL9301 的 0.0~1.0cm 层位) 有一较小的 ^{137}Cs 蓄积峰出现。对比文献[7]的结果及相应的沉积速率分析, 该层位对应年代在 1986 年附近, 即蓄积 ^{137}Cs 应来源于切尔诺贝利核事故散落物。在 DC9301 孔柱中, 该峰值所在层位 ^{137}Cs 的蓄积量约为 0.88m Bq/cm^2 , 占 ^{137}Cs 总蓄积量的 3.88%, 如加上该层位以后沉降的 ^{137}Cs , 蓄积量为 3.23m Bq/cm^2 , 占总蓄积量的 14.2%。所以在 DC9301 孔柱中, 切尔诺贝利核事故来源的 ^{137}Cs 约为 4%~15% 左右。而 JL9301 孔柱中 0~1cm 层位 ^{137}Cs 的蓄积量为 2.54m Bq/cm^2 , 约占该孔柱总蓄积量的 21.9%。因核事故发生于 1986 年 4 月, 而采样是 1993 年 11 月, 所以该层位时标仍定为 1986 年, 沉积年龄为 7 年。

4.3 1974 年核试验辅助时标

在 1963 年大规模的大气层核试验停止以后, 70 年代初又进行了几次大气层核试验^[6]。因时间是在 1963 年停止大规模大气层核试验近 10 年以后, 所以在部分地区产生了一个可辨别的 ^{137}Cs 沉降峰, 如在日本东京 ($35^{\circ}42'\text{N}$, $139^{\circ}30'\text{E}$) 监测的 ^{137}Cs 大气沉降中, 1974 年出现了一个较明显的沉降峰值, 而在贵州红枫湖 ($26^{\circ}25'\sim 26^{\circ}34'\text{N}$, $106^{\circ}20'\sim 106^{\circ}26'\text{E}$) 的沉积孔柱中也有这一蓄积峰的出现^[11]。在分辨较高的 DC9301 孔柱 4.5~5.0cm 层位 ^{137}Cs 和 ^{241}Am 都给出了一个明显的较小的蓄积峰, 说明该蓄积峰与核武器试验散落核素有关, 沉积时序上也可与 1974 年的沉降峰相对应, 所以定为 1974 年时标。距采样时间定为 19.5 年。

4.4 沉积速率分析

根据以上讨论分别确定了两种核素在沉积孔柱中的相应时标层位, 其中 DC9301 孔柱中 ^{137}Cs 和 ^{241}Am 的 1963 年时标有一个层位的差别, 而 JL9301 孔柱中两者一致。相应的平均沉积速率分析结果列入表 3, 其中沉积年龄指沉积层位距采样时堆积的时间间隔。

计算表明, 两个孔柱中除 ^{137}Cs 的 1954 年时标给出的沉积速率均较其它时标大许多外, 其余时标给出的结果确都很相近。一般导致不同时标给出的沉积速率有显著差别的原因有两个, 一是湖泊沉积速率发生了变化, 二是用作时标的核素沉积后发生迁移。研究显示, 当沉

表 3 DC9301 和 JL9301 沉积孔柱中沉积速率分析结果

Tab. 3 Sediment accumulation rates of Core DC9301 and JL9301

时标核素	时标年代	沉积年龄 (a)	DC9301 孔柱		JL9301 孔柱		平均沉积速率(mg/(cm ² ·a))	
			实际深度 (cm)	质量深度 (mg/cm ²)	实际深度 (cm)	质量深度 (mg/cm ²)	DC9301 孔柱	JL9301 孔柱
¹³⁷ Cs	1963	30.5	6.5~7.0	1487±60	2.0~3.0	893±224	48.8±2.0	29.3±7.3
	1974	19.5	4.5~5.0	748±49	~	—	38.4±2.5	—
	1986	7.5	3.0~3.5	370±48	0.0~1.0	193±193	52.9±6.9	27.6±27.6
²⁴¹ Am	1963	30.5	6.0~6.5	1317±111	2.0~3.0	893±224	43.2±3.6	29.3±7.3
	1974	19.5	4.5~5.0	748±49	—	—	38.4±2.5	—

积孔柱中间隙水含量较大时,¹³⁷Cs 以分子扩散的形式发生沉积后迁移现象十分明显,所以常常导致 1954 年时标移向深部,而给出较大的沉积速率结果^[12]。在 DC9301 孔柱和 JL9301 孔柱中,如除去¹³⁷Cs 1954 年时标的结果,其 60、70 年代以来的平均沉积速率分别为 42.1±0.3 和 28.7±0.4mg/cm²·a。而 1954 年分别为 65.2±0.8 和 47.7±0.6mg/(cm²·a),与其它时标结果相差较大,这一情况与许多其它湖泊的研究结果类似,应该是¹³⁷Cs 沉积后迁移所致^[12]。因此,在这两个孔柱中¹³⁷Cs 1954 年时标给出的结果是不正确的,其它时标给出结果列入表 3。

4.5 ²⁴¹Am 和¹³⁷Cs 迁移能力比较

在所研究的两个沉积孔柱中都有¹³⁷Cs 向表层富集的现象。因而在 JL9301 孔柱中,1986 年以来的蓄积量在总蓄积量中占有较大比例。而在 DC9301 孔柱中,由于¹³⁷Cs 向表层的富集,导致切尔诺贝利核事故泄漏¹³⁷Cs 的蓄积峰产生的时标难以辨认。同时,两个沉积孔柱中¹³⁷Cs 开始出现的层位都明显较深,因此导致 1954 年时标结果的不可靠。以上特征都说明在所研究的两个沉积孔柱中¹³⁷Cs 沉积后迁移是明显的。而²⁴¹Am 的蓄积层位确极为集中,尤其在生物活动性较大的表层沉积物中也没有发现²⁴¹Am 存在的痕迹。如以核素蓄积峰值与总蓄积量之比作为比较核素间相对迁移性能大小的参考,可比较核素在沉积后的迁移能力。当比值较大时,说明蓄积集中,峰值明显,扩散迁移较小。表 4 列出两沉积孔柱中¹³⁷Cs 与²⁴¹Am 最大蓄积峰值与总蓄积通量的比值。

表 4 DC9301 和 JL9301 沉积孔柱中¹³⁷Cs、²⁴¹Am 相对迁移性能比较Tab. 4 Comparisons of the relative mobility of ¹³⁷Cs, ²⁴¹Am in Core DC9301 and JL9301

孔 号	¹³⁷ Cs			²⁴¹ Am		
	蓄积峰值 (Bq/kg)	蓄积通量 (mBq/cm ²)	比值	蓄积峰值 (Bq/kg)	蓄积通量 (mBq/cm ²)	比值
DC9301 孔柱	16.6±2.2	22.69±1.20	0.732	0.52±0.32	0.191±0.087	2.72
JL9301 孔柱	7.8±1.0	11.59±1.07	0.673	0.16±0.13	0.072±0.058	2.22

从表 4 中可以看出,两个孔柱中相同核素的迁移能力没有明显差别,但¹³⁷Cs 与²⁴¹Am 的比值之间有较大差异。虽然²⁴¹Am 的比值远小于¹³⁷Cs,但相对于总沉积通量,¹³⁷Cs 的峰值远

没有 ^{241}Am 大, ^{241}Am 表现为相对较小的沉积后迁移能力。因此, 当 ^{137}Cs 因沉积后迁移等因素影响而无法给出正确的时标结果时, 使用 ^{241}Am 作为指示湖泊沉积年代的时标核素来测定或检验湖泊沉积年代和速率的结果就又提供了一个重要的手段。

致谢 本文经王苏民研究员审阅并提出修改意见, 云南省地矿局地质科学研究所宋学良高级工程师为野外采样给予大力帮助, 王云飞、李江、潘红玺协助野外工作, 剑川县水利局给予大力支持, 谨此一并致谢。

参 考 文 献

- 1 Pennington W *et al.* Observations on lake sediments using fallout ^{137}Cs as a tracer. *Nature*, 1973, **242**:324~326
- 2 Appleby P G *et al.* ^{241}Am dating of lake sediments. *Hydrobiologia*, 1991, **214**:35~42
- 3 项 亮, 王苏民. 放射性核素在近代湖泊环境历史研究中的应用. 江苏省首届青年学术年会论文集(理科分部). 北京: 中国科学技术出版社, 1992. 340~346
- 4 Krishnaswami Lal D. Radionuclide limnology. In: Lerman A *et al.* eds. Lakes, chemistry, geology & physics. New York: Springer-Verlag, 1978. 153~177
- 5 Appleby P G *et al.* Radiometric dating of the United Kingdom SWAP sites. *Phil R Soc Lond*, 1990, **327**:233~238
- 6 Carter Melvin W & Moghissi A Alan. Three decades of nuclear testing. *Health Physics*, 1977, **33**(July):55~71
- 7 Rowan J S *et al.* Incorporation of chernobyl-derived radiocaesium into reservoir sedimentary sequences. In: McManus J & Duck R W eds. Geomorphology and sedimentology of lakes and reservoirs. Chichester: Wiley, 1993. 55~71
- 8 Canbray R S *et al.* Observation on radioactivity from the Chernobyl accident. *Nuclear Energy*, 1987, **26**:77~101
- 9 项 亮, 王苏民. 高纯锗井型探头 γ 谱分析系统在年轻湖泊沉积年代学研究中的应用, 见: 中国第四纪南北对比与全球变化. 广州: 广东高等教育出版社, 1993. 181~182
- 10 Appleby P G *et al.* Self-absorption corrections for well-type germanium detectors. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*, 1992, (B71):228~233
- 11 万国江等. 红枫湖沉积物 ^{137}Cs 垂直剖面的计年特征及侵蚀示踪. 科学通报, 1990, (19):1487~1490
- 12 项 亮等. ^{137}Cs 湖泊沉积年代学方法应用的局限——以 Crawford 湖为例. 湖泊科学, 1995, **7**(4):307~313

¹³⁷Cs AND ²⁴¹Am PROFILES AND DATING OF SEDIMENTS FROM TWO LAKES IN YUNNAN PROVINCE, CHINA

Xiang Liang Wu Ruijin Ji Lei

(Lake Sediment and Environment Lab., Nanjing Institute of Geography & Limnology, CAS, Nanjing 210008)

Abstract

Atmospheric nuclear weapons testing produced global radioactive fallout that has been widely studied for dating recent lacustrine sediments over the past 20 years. This paper describes the use of ¹³⁷Cs and ²⁴¹Am radioactivity measurements to determine the accumulation rates of sediments from two lake cores, one is Core DC9301 from Dianchi Lake, the other is Core JL9301 from Jianhu Lake, in Yunnan Province, China. The vertical distributions of ¹³⁷Cs and ²⁴¹Am in the sediment cores are markedly similar to the expectations based on estimated and measured temporal variation of the two radioisotopes fallout in this area.

The variation of the ¹³⁷Cs activity with depth in cores provides four distinct chronological markers with the onset of fallout in 1954, the peak fallouts from the atmospheric testing of nuclear weapons in 1963 and two lower peaks occurred in 1974 by nuclear tests and in 1986 from Chernobyl accident. The variation of ²⁴¹Am proves two chronological markers from the atmospheric testing of nuclear weapons in 1963 and 1974. According to the ¹³⁷Cs and ²⁴¹Am results, the dry mass accumulation rates of Core DC9301 and JL9301 are 42.2 and 28.7mg/(cm² · a), respectively.

• Because of the post-depositional mobility of ¹³⁷Cs in lake sediments, the ¹³⁷Cs chronological marker results of 1954 for these two cores were of no chronological value. Although the ²⁴¹Am activities are extremely lower than those of ¹³⁷Cs in these two cores, the former is significantly less mobile in lake sediments and longer half-life than the latter. So ²⁴¹Am is likely to play an increasingly important role in dating recent lacustrine sediments.

Key Words ¹³⁷Cs, ²⁴¹Am, chronological marker, sediment, Dianchi Lake, Jianhu Lake