

黄亚楠, 潘少明, 刘志勇. 中国湖泊柱样沉积物中 $^{239+240}\text{Pu}$ 的来源与分布特征[J]. 地理科学, 2018, 38(3): 437-447. [Huang Yanan, Pan Shaoming, Liu Zhiyong. The Source and Distribution Characteristic of $^{239+240}\text{Pu}$ in Sediment Cores of Chinese Lakes. Scientia Geographica Sinica, 2018, 38(3): 437-447.] doi: 10.13249/j.cnki.sgs.2018.03.014

中国湖泊柱样沉积物中 $^{239+240}\text{Pu}$ 的来源与分布特征

黄亚楠¹, 潘少明¹, 刘志勇²

(1. 南京大学海岸与海岛开发教育部重点实验室, 江苏 南京 210023; 2. 苏州大学放射医学与防护学院, 江苏 苏州 215123)

摘要: 针对当前中国湖泊柱样沉积物中 $^{239+240}\text{Pu}$ 的研究现状, 对中国湖泊 $^{239+240}\text{Pu}$ 的来源、 $^{239+240}\text{Pu}$ 最大蓄积峰的年代以及 $^{239+240}\text{Pu}$ 在湖泊沉积物中的迁移行为进行了研究总结。结果表明: 中国湖泊 $^{239+240}\text{Pu}$ 的主要来源于全球大气核试验沉降, 湖泊沉积柱样中表层沉积物 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 均值为 0.177 ± 0.019 ; 柱样 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 均值为 0.177 ± 0.008 ; 柱样 $^{239+240}\text{Pu}$ 的沉积通量范围在 $7.45\sim 240.6\text{ MBq/km}^2$ 之间, 因湖泊所处沉积环境及纬度的差异而变化。湖泊柱样剖面中的 $^{239+240}\text{Pu}$ 的分布多呈单峰分布, 湖泊沉积物中 $^{239+240}\text{Pu}$ 的最大蓄积峰位置改变可以忽略不计, $^{239+240}\text{Pu}$ 最大蓄积峰具有时标价值。

关键词: 湖泊; 柱样沉积物; $^{239+240}\text{Pu}$; $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$; 沉积通量

中图分类号: P597.41

文献标识码: A

文章编号: 1000-0690(2018)03-0437-11

湖泊是地表物质运移的主要宿体, 湖泊沉积物中赋存着流域环境变化、湖泊水体环境以及人类活动的信息。放射性核素示踪(^{137}Cs 和 $^{239+240}\text{Pu}$ 等)是提取沉积环境变化信息的一种有效手段。利用同位素示踪能够有效的识别物源, 确定沉积物的沉积年代, 计算不同沉积环境的沉积速率等。由于 ^{137}Cs 样品制备简单且易于测量, ^{137}Cs 被广泛应用在湖泊沉积过程及定年的研究中^[1,2]。然而, ^{137}Cs 的半衰期只有30.2 a, 目前源于全球大气核试验的 ^{137}Cs 已经衰减掉全球释放总量的70%左右, 随着时间的推移, 沉积物中的 ^{137}Cs 活度越来越难被检测到^[3,4]。 $^{239+240}\text{Pu}$ 与 ^{137}Cs 具有相同来源, 都是全球大气核试验的产物。据统计全球大气核试验释放出 $^{239+240}\text{Pu}$ 总量约是 ^{137}Cs 的6倍^[5], ^{239}Pu 和 ^{240}Pu 的半衰期比 ^{137}Cs 更长, 分别为24 110 a和6 561 a。随着分析设备性能和技术提高, 通过热电离质谱(TIMS)、共振电离质谱(RIMS)、电感耦合等离子质谱(ICP-MS)和加速器质谱(AMS)等^[6,7]质谱技术能够精确分析出环境样品中 $^{239+240}\text{Pu}$ 活度和 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 比值, 这为 $^{239+240}\text{Pu}$ 同位素

的示踪提供了有利的条件, 并得到了广泛的关注和应用。虽然已有学者对于中国一些湖泊钚同位素的示踪进行了研究, 但是目前仍然缺乏较系统的全面的认识。针对当前中国湖泊柱样沉积物中 $^{239+240}\text{Pu}$ 的研究现状, 本文对中国湖泊 $^{239+240}\text{Pu}$ 的来源、 $^{239+240}\text{Pu}$ 最大蓄积峰的年代以及 $^{239+240}\text{Pu}$ 在湖泊沉积物中的迁移行为进行归纳总结, 以期为中国湖泊沉积物钚同位素的示踪应用研究提供一些科学的参考。

1 中国湖泊柱样沉积物中 $^{239+240}\text{Pu}$ 的来源与沉积通量

1.1 湖泊柱样沉积物中 $^{239+240}\text{Pu}$ 的来源

环境中 ^{239}Pu 和 ^{240}Pu 主要有4个来源, 除了大气核试验大量释放外, 还有核反应堆、核事故以及核燃料后处理厂等^[8-10], 不同来源的 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 比值有差异(表1), 因此利用 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 比值特征可以示踪物质的来源。例如武器级 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 比值较低在0.01~0.07之间, 而反应堆的比值较高在0.24~0.80之间, 这是因为 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 比值的高低取决于 ^{239}Pu 转

收稿日期: 2017-07-09; 修订日期: 2017-10-08

基金项目: 国家重点研发计划项目(2016YFA0600502)、国家自然科学基金项目(41671466)资助。[Foundation: National Key Research and Development Program(2016YFA0600502), National Natural Science Foundation of China(41671466).]

作者简介: 黄亚楠(1986-), 男, 河南正阳人, 博士研究生, 主要研究方向为同位素地球化学与年代学。E-mail: highttee@163.com

通讯作者: 潘少明, 教授。E-mail: span@nju.edu.cn

化成 ^{240}Pu 的比例,在核反应堆密闭的环境中核反应材料的辐照时间或者停留时间越长, ^{239}Pu 捕获中子转化为 ^{240}Pu 的比例也就越大,测出的 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 比值就高,例如前苏联切尔诺贝利核事故(1986年) $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 比值为0.31~0.40^[11],而大气核试验中核武器在开放的环境中瞬间爆炸,核爆中 ^{239}Pu 捕获中子时间较短,产生 ^{240}Pu 的比例较低, $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 的比值也低。由于世界各国核武器发展水平以及技术参数的差异,核武器试验所产生的 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 比值也在较大的范围(0.10~0.36)波动,例如美国马绍尔群岛核试验(1946~1958年) $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 的比值在0.306~0.360之间。大气核试验释放到平流层的钚同位素经过几十年的混合,而后沉降到不同纬度带的 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 比值虽然略有差异。但比值集中在0.18左右(0.18±0.014)^[12]。因此,沉积物中 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 比值在0.18左右,可以成为 $^{239+240}\text{Pu}$ 直接来源于全球大气核试验的判据。另外,中国罗布泊核试验(1964~1980年)对下风向区域的湖泊也可能产生影响,但 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 比值特征目前仍不清楚^[13, 14]。

表1 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 比值特征

Table 1 The characteristic of $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$

主要来源	$^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 原子比	参考文献
武器级	0.01~0.35	[8]
反应堆	0.24~0.80	[8]
全球大气核试验沉降	0.18±0.014	[12]
马绍尔群岛核试验场(美国, 1946~1958)	0.306~0.360	[9]

中国是一个湖泊众多的国家,根据湖泊所处区域位置的差异,可以将中国分为东部平原湖区、青藏高原湖区、云贵高原湖区、蒙新高原湖区以及东北平原与山地等五大湖区^[15]。湖泊沉积物柱样中 $^{239+240}\text{Pu}$ 的研究可以示踪放射性核素不同的来源;在陆地土壤层环境中,受到水土流失、风沙侵蚀或者人为耕种等环境条件的影响, $^{390+240}\text{Pu}$ 来源受到干扰, $^{239+240}\text{Pu}$ 来源的时间信息难以判断^[13, 14]。根据已有的研究,中国已对14个湖泊^[4, 13, 16~23]开展了钚同位素的研究,从低纬度到高纬度汇总了这14个湖泊(图1a,表2)19根柱样的 $^{239+240}\text{Pu}$ 沉积通量、 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 比值范围以及 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 均值、仪器、测试方法和测试单位等信息。测试仪器主要为德国生产的Element 2(Finnigan),测试方法为扇形磁场电感耦合等离子体质谱法(SF-ICP-MS)。测试样品

$^{239+240}\text{Pu}$ 活度和 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 比值,利用IAEA-368(海洋沉积物标准,IAEA)、SRM-4354(淡水湖泊沉积物标准,ANSIT)^[19, 20]和NBS-974^[16]等标准物质进行质量控制。从图1b可知9个湖泊14个表层样品中 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 比值在0.152~0.229之间,均值为0.177±0.019;13个湖泊15根柱样样品(图1c) $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 的平均值为0.177±0.008,这与全球大气沉降的 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 比值(0.18±0.014)^[12]较为吻合,这表明中国湖泊柱样 $^{239+240}\text{Pu}$ 主要来源全球大气核试验沉降。然而地理位置靠近罗布泊的湖泊,可能会受到中国核试验的影响,但影响较小。

目前已有的研究表明:离中国核试验区由近及远的博斯腾湖^[13]、苏干湖^[19]、程海湖^[18]和草海^[4]柱样中都发现 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 异常值,但是对于这些湖泊柱样中某层位中偶然出现的 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 异常值解释为受到中国大气核试验的影响需要进一步的讨论。例如,在距罗布泊核试验区较近(约250 km)的蒙新高原湖区内,苏干湖、博斯腾湖以及青海湖^[20]共5个柱样某层位出现了远低于0.18的 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 比值,分别为0.103、0.080、0.125、0.051和0.038。但博斯腾湖4根柱样^[13, 24]中为何只有一根柱样(07BS10-2)一个层位出现了异常 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 比值的信号,有研究认为这个异常比值可能与罗布泊核试验产生的可溶性气溶胶颗粒和热核颗粒沉降后再悬浮造成的偶然性污染有关。然而,中国核试验对博斯腾湖的影响状况仍需进一步研究。距罗布泊核试验区较远(约1 000 km)的青海湖3根柱样也出现 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 的异常低值,与中国早期在原子城(原子城位于青海省海晏县金银滩草原,距青海湖直线距离约有20 km)进行核武器的研发活动有关。青海湖沉积物中检测出了 $^{239+240}\text{Pu}$ 的异常信号, $^{239+240}\text{Pu}/^{137}\text{Cs}$ 比值增大主要是因为原子城核实验活动排放含 $^{239+240}\text{Pu}$ 废水引起的;柱样中 ^{137}Cs 的沉积通量值与同纬度大气沉降值(1 923 MBq/km²)较为吻合^[20],这说明青海湖的 ^{137}Cs 主要来源于大气核试验沉降, ^{137}Cs 没有出现异常。然而,距罗布泊核试验区更远(约1 800 km)的云贵高原湖区程海湖和草海沉积物出现异常高的 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 比值(0.197),解释为可能源于罗布泊大气核试验产生的 $^{239+240}\text{Pu}$ 的信号,是值得商榷的。上述的湖泊柱样中出现的 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 的异常值显然不是受1986年前苏联切尔诺贝利核事故的影响,这是因为异常值出现的年代和 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 比值大小都与这次

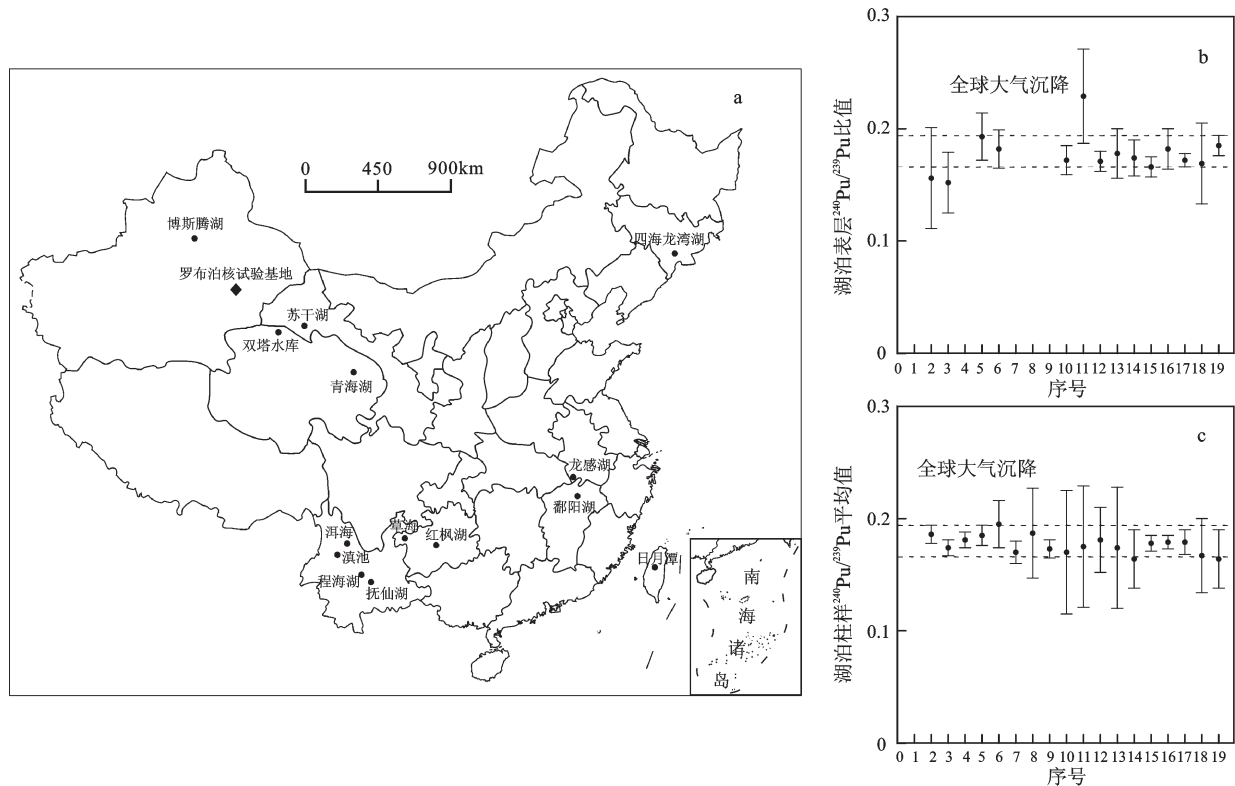


图1 中国湖泊柱样分布图(a)以及表层 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 比值(b)和柱样 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 平均值(c)

Fig.1 Distribution of lake sediment cores in China (a) and Surface $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ (b) and average $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ (c) values in sediment cores of Chinese lakes

核事故特征比值($^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 比值为 0.31~0.40)不一致。

另外,利用 $^{137}\text{Cs}/^{239+240}\text{Pu}$ 或者 $^{239+240}\text{Pu}/^{137}\text{Cs}$ 的活度比值也可以判断 $^{239+240}\text{Pu}$ 的来源,全球大气核试验沉降的 $^{239+240}\text{Pu}/^{137}\text{Cs}$ 活度比值为0.028,区别于前苏联切尔诺贝利核事故产生的 $^{239+240}\text{Pu}/^{137}\text{Cs}$ 低活度比值(0.001)^[3]。从表3可知:红枫湖、程海湖、苏干湖、双塔水库、四海龙湾湖和博斯腾湖柱样沉积物中 $^{239+240}\text{Pu}/^{137}\text{Cs}$ 活度比值与全球大气沉降的比值较为吻合,这证明这6个湖泊的 $^{239+240}\text{Pu}$ 与 ^{137}Cs 主要来源于全球大气沉降。从这6个湖泊的 $^{239+240}\text{Pu}$ 与 ^{137}Cs 的比活度之间的显著正相关关系(r^2)来看,这也说明 $^{239+240}\text{Pu}$ 与 ^{137}Cs 具有相同的来源。需要说明的是 $^{239+240}\text{Pu}/^{137}\text{Cs}$ 的活度比值判断 $^{239+240}\text{Pu}$ 的来源,需要把 ^{137}Cs 活度校正到沉降年代再讨论 $^{137}\text{Cs}/^{239+240}\text{Pu}$ 或者 $^{239+240}\text{Pu}/^{137}\text{Cs}$ 的活度比值才有意义^[3]。

1.2 湖泊沉积柱样 $^{239+240}\text{Pu}$ 的沉积通量

湖泊柱样沉积物中 $^{239+240}\text{Pu}$ 的沉积通量与 $^{239+240}\text{Pu}$ 的输入有关。湖泊中 $^{239+240}\text{Pu}$ 的输入方式通常有2种,一种是通过流域的输入,二种是通过大

气的直接沉降^[25](干沉降或者湿沉降)。不同纬度带内大气 $^{239+240}\text{Pu}$ 的沉降通量,与各个国家进行大气核武器次数,当量以及地理位置密切相关。据统计,截止到1996年全球共进行了2 047次核试验;其中美国进行了1 032次,前苏联715次,法国210次,英国和中国各45次。全球核试验中543次为大气核试验,其他为水下核试验或者地下核试验^[7]。全球大部分核试验场主要分布在北半球,例如前苏联的新地岛核试验基地,美国的内华达核试验场,这也使得 $^{239+240}\text{Pu}$ 在北半球的沉降量约占释放总量的80%^[26];由于受到地球风带和气压带的影响, $^{239+240}\text{Pu}$ 的全球分布呈现出随纬度变化的特征。联合国原子辐射效应科学委员会(UNSCEAR)^[27]发布了研究报告,计算出了全球各纬度带(以10个纬度为间隔) $^{239+240}\text{Pu}$ 沉降通量国际标准的平均参考值,其中北半球 $^{239+240}\text{Pu}$ 沉降通量的平均参考值如图2所示。在10°N到50°N范围内, $^{239+240}\text{Pu}$ 沉降通量有随纬度增大的趋势:10°~20°N为22 MBq/km²,20°~30°N为36 MBq/km²,30°~40°N为42 MBq/km²,40°~50°N为58 MBq/km²。湖泊柱

表2 中国湖泊柱样沉积物中²³⁹⁺²⁴⁰Pu

Table 2 The ²³⁹⁺²⁴⁰Pu in sediment cores of Chinese lakes

序号	湖名	面积 (km ²)	纬度 (°N)	²³⁹⁺²⁴⁰ Pu 沉积通 量(MBq/km ²)	²⁴⁰ Pu/ ²³⁹ Pu 范围	²⁴⁰ Pu/ ²³⁹ Pu 均值	仪器	测试方法	测试单位	参考 文献
1	日月潭	8.8	23.87	35.9	n.a.	n.a.	n.a.	Silicon-SB-D	IOES(中国)	[22]
2	抚仙湖	216	24.30	n.a.	0.173~0.201	0.186±0.008	n.a.	SF-ICP-MS	GZU(中国)	[16]
3	滇池	306	24.85	Error	0.164~0.187	0.174±0.007	n.a.	SF-ICP-MS	GZU(中国)	[16]
4	洱海	256.5	25.80	9.545±0.51	n.a.	0.181±0.007	Element 2, Finnigan(德国)	SF-ICP-MS	NIRS(日本)	[23]
5	红枫湖	32	26.49	50.7	0.162~0.213	0.185±0.009	Element 2, Finnigan(德国)	SF-ICP-MS	NIRS(日本)	[17]
6	程海湖	76	26.54	35.4	0.166~0.271	0.195±0.021	Element 2, Finnigan(德国)	SF-ICP-MS	NIRS(日本)	[18]
7	草海	46.5	27.01	7.45±0.17	n.a.	0.170±0.010	Element 2, Finnigan(德国)	SF-ICP-MS	NIRS(日本)	[4]
8	鄱阳湖	4125	29.13	n.a.	n.a.	0.187±0.04	Element 2, Finnigan(德国)	SF-ICP-MS	NIRS(日本)	[21]
9	龙感湖	223	29.92	n.a.	n.a.	0.173±0.008	Element 2, Finnigan(德国)	SF-ICP-MS	NIRS(日本)	[4]
10	青海湖1	4278	36.63	42.8±0.9	0.038~0.174	0.170±0.055	Element 2, Finnigan(德国)	SF-ICP-MS	NIRS(日本)	[20]
11	青海湖2	4278	36.75	31.9±0.9	0.051~0.176	0.175±0.054	Element 2, Finnigan(德国)	SF-ICP-MS	NIRS(日本)	[20]
12	青海湖3	4278	36.82	68.4±2.7	0.125~0.229	0.181±0.029	Element 2, Finnigan(德国)	SF-ICP-MS	NIRS(日本)	[20]
13	苏干湖1	120	38.86	20.2±0.8	0.159~0.183	0.174±0.054	Element 2, Finnigan(德国)	SF-ICP-MS	NIRS(日本)	[19]
14	苏干湖2	120	38.86	24.2±0.7	0.103~0.195	0.164±0.026	Element 2, Finnigan(德国)	SF-ICP-MS	NIRS(日本)	[19]
15	双塔水库	40	40.55	240.6±5.3	0.160~0.192	0.178±0.007	Element 2, Finnigan(德国)	SF-ICP-MS	NIRS(日本)	[19]
16	博斯腾湖1	1000	41.93	46.6±2.1	0.167~0.193	0.179±0.006	Element 2, Finnigan(德国)	SF-ICP-MS	NIRS(日本)	[13]
17	博斯腾湖3	1000	41.93	56.4±2.0	0.166~0.216	0.179±0.011	Element 2, Finnigan(德国)	SF-ICP-MS	NIRS(日本)	[13]
18	博斯腾湖2	1000	41.98	51.6±4.3	0.080~0.219	0.167±0.033	Element 2, Finnigan(德国)	SF-ICP-MS	NIRS(日本)	[13]
19	四海龙湾湖	0.5	42.29	62.7±3.2	0.157~0.193	0.164±0.026	Element 2, Finnigan(德国)	SF-ICP-MS	NIRS(日本)	[19]

注：① IOES:中国台湾地球科学研究所;GZU:贵州大学;NIRS:日本国立放射线医学综合研究所。Silicon-SB-D:硅基表面势垒探测器;SF-ICP-MS:扇形磁场电感耦合等离子体质谱仪。② n.a.:无法得到;③ Error:数据有误。

表3 ²³⁹⁺²⁴⁰Pu与¹³⁷Cs的相关关系^[13,17-19]

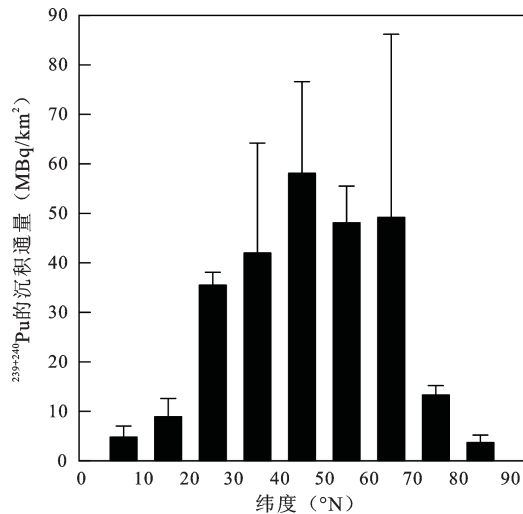
Table 3 The relationship between ²³⁹⁺²⁴⁰Pu activity and ¹³⁷Cs activity^[13,17-19]

湖名	柱样名称	²³⁹⁺²⁴⁰ Pu与 ¹³⁷ Cs的线性关系	r ²	²³⁹⁺²⁴⁰ Pu/ ¹³⁷ Cs	¹³⁷ Cs校正时间
红枫湖	HF20040709S	¹³⁷ Cs=63.766× ²³⁹⁺²⁴⁰ Pu+5.220	0.878	0.027~0.032	2004年7月
程海湖	CH970608-1	¹³⁷ Cs=122.175× ²³⁹⁺²⁴⁰ Pu-8.096	0.881	0.008~0.039	1997年12月
苏干湖	2007SG2-1/2	¹³⁷ Cs=17.668× ²³⁹⁺²⁴⁰ Pu+2.368	0.944	0.042±0.002	1998年7月
双塔水库	2007ST1-3	¹³⁷ Cs=71.429× ²³⁹⁺²⁴⁰ Pu-11.407	0.967	0.033~0.039	1998年7月
四海龙湾湖	2006SHLW-4	¹³⁷ Cs=72.993× ²³⁹⁺²⁴⁰ Pu+15.292	0.908	0.025±0.003	1998年7月
博斯腾湖	06BS2-1	¹³⁷ Cs=20.071× ²³⁹⁺²⁴⁰ Pu+2.559	0.868	0.036	1998年7月
博斯腾湖	07BS10-2	¹³⁷ Cs=8.455× ²³⁹⁺²⁴⁰ Pu+9.158	0.535	0.053	1998年7月

样沉积物的沉积通量是单位面积上²³⁹⁺²⁴⁰Pu的活度,通过各层²³⁹⁺²⁴⁰Pu的活度、分样层厚度与相应层的干密度三者之间乘积再累加求和得到的,²³⁹⁺²⁴⁰Pu的沉积通量大小能够判断柱样中钚同位素的相对输入或者输出。²³⁹⁺²⁴⁰Pu的沉积通量与湖泊所处的纬度以及降雨等环境条件有关,图2展示了北半球9个纬度带UNSCEAR的推荐值,可以看出不同纬度带内²³⁹⁺²⁴⁰Pu的沉积通量有差异。

从表2可知中国已研究的14个湖泊纬度在

20°~50°N之间,其中滇池、抚仙湖、红枫湖、程海湖、鄱阳湖、日月潭、草海、洱海和龙感湖这9个湖泊的纬度介于20°~30°N之间,²³⁹⁺²⁴⁰Pu的沉积通量推荐值为36 MBq/km²;双塔水库、苏干湖和青海湖纬度介于30°~40°N之间,²³⁹⁺²⁴⁰Pu的沉积通量推荐值为42 MBq/km²;而博斯腾湖和四海龙湾湖纬度介于40°~50°N之间,²³⁹⁺²⁴⁰Pu的沉积通量推荐值为58 MBq/km²。这11个湖泊除去滇池DC-3柱样沉积通量值的数据有异常外,其他湖泊的15根柱样

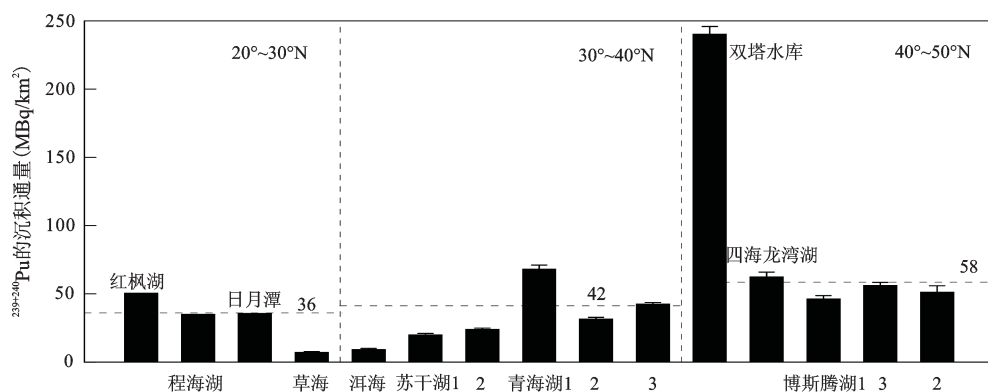
图2 北半球不同纬度带 $^{239+240}\text{Pu}$ 的沉降通量^[28]Fig.2 $^{239+240}\text{Pu}$ fallout flux of the Northern Hemisphere^[28]

$^{239+240}\text{Pu}$ 的沉积通量的范围在 7.45~240.6 MBq/km² 之间, 博斯腾湖(06BS2-1、06BS2-3 和 07BS10-2)、程海湖、四海龙湾湖和日月潭^[17,22]柱样的 $^{239+240}\text{Pu}$ 沉积通量与 UNSCEAR 推荐值吻合(图3虚线表示); 而青海湖3根柱样 $^{239+240}\text{Pu}$ 的沉积通量的平均值为 $47.7 \pm 18.7 \text{ MBq/km}^2$, 略高于 UNSCEAR 推荐值 (42 MBq/km^2); 去掉核试验活动对青海湖 $^{239+240}\text{Pu}$ 的输入, 沉积通量也基本与 UNSCEAR 推荐值一致。

除了大气直接的沉降外, 入湖径流和泥沙是湖泊沉积物中 $^{239+240}\text{Pu}$ 的另一重要来源。虽然湖泊沉积物中的 $^{239+240}\text{Pu}$ 沉积通量的空间分布是由大气沉降与流域内输入 $^{239+240}\text{Pu}$ 的总量所决定的; 但是目前有关 $^{239+240}\text{Pu}$ 沉积通量与湖泊沉积定量关系的研究仍甚少。由于 $^{239+240}\text{Pu}$ 与 ^{137}Cs 具有相同的来源, 在柱样较少受到外界扰动的前提下, 柱样沉积

物中的 $^{239+240}\text{Pu}$ 与 ^{137}Cs 具有显著的正相关关系(表3)。研究发现高纬度的青海湖沉积物中 ^{137}Cs 的沉积通量与质量累积率或沉积速率均有显著 ($r^2=0.97$) 的正相关关系^[29,30]。即在河口岸边区域沉积速率高, ^{137}Cs 沉积通量也高; 湖泊中心区域沉积速率低, ^{137}Cs 沉积通量也低。同样的, 在低纬度的鄱阳湖也发现沉积速率与 ^{137}Cs 沉积通量显著正相关^[31]; 这说明 $^{239+240}\text{Pu}$ 的沉积通量与沉积速率可能也存在正相关的关系。但是有研究表明 Erie 湖^[32](美国), 1991 年采样 ($r^2=0.09$) 与 2013 年采样 ($r^2=0.61$), 计算出 ^{137}Cs 的沉积通量与沉积速率正相关的显著性并不一致。Matisoff^[32]推测沉积物中 ^{137}Cs 的解析脱附作用, 使得 ^{137}Cs 的沉积通量变小。再者推测湖泊的面积, 也是影响 ^{137}Cs 的沉积通量与沉积速率的两者之间的线性关系显著性的重要因素。因此, 沉积通量与沉积速率之间的关系具有复杂性, 是受到多种因素的影响。目前研究的中国 14 个湖泊来看, 湖泊的面积各不相同(表2), 流域面积与湖泊面积的比值也各不相同, 导致来源泥沙的量也不一样。例如青海湖的流域面积约为湖泊面积的 7 倍, 而鄱阳湖的流域面积约为湖泊面积的 40 倍。有研究表明湖泊的集水面积与湖泊面积的比值与沉积速率成正相关^[31], 这说明湖泊接受外源物质越多, 相应泥沙含量越大, 沉积速率也增大, 导致放射性核素(例如 ^{137}Cs 和 $^{239+240}\text{Pu}$) 的沉积通量相应增大。

具体而言, 红枫湖与双塔水库的 $^{239+240}\text{Pu}$ 沉积通量出现了显著异于 UNSCEAR 推荐值的高值, 苏干湖、草海和洱海出现了低值(图3)。蒙新高原湖区的双塔湖是个用于农业灌溉的人工水库, 水域面积为 13.3 km^2 , 灌溉下游 120 km^2 的耕地。因

图3 中国湖泊 $^{239+240}\text{Pu}$ 的沉积通量Fig.3 The inventories of $^{239+240}\text{Pu}$ in Chinese lakes

此, $^{239+240}\text{Pu}$ 沉积通量的高值^[19]可能与长期农业活动导致湖泊沉积环境受到扰动以及流域内沉积物的输入有关。云贵高原湖区的红枫湖的高值, 主要是因为流域内喀斯特山地石漠化, 裸露的岩石表面对放射性核素吸附较弱, 降水侵蚀后再输入到湖泊所致。有研究表明红枫湖的沉积物的堆积速率是滇池的 3.7 倍^[33], 较多的泥沙来源以及较高的沉积速率导致了红枫湖 $^{239+240}\text{Pu}$ 的沉积通量变大。苏干湖低值可能与西北地区相对干旱的气候有关, 苏干湖区域的年降雨量^[19]只有 15.5 mm; 苏干湖水主要由大小哈尔腾河的地下潜流补给, 并非来自于流域内地表径流的输入。草海和洱海出现了低值, 虽然草海和洱海与红枫湖同处于云贵高原湖区, 但是洱海和草海是受人类活动干扰频繁的浅水湖。人类活动和强风扰动以及上层与底层水体的交互对流等使得采样处的沉积物再悬浮, 加剧了 $^{239+240}\text{Pu}$ 的扩散迁移, 造成浅水湖中 $^{239+240}\text{Pu}$ 在水体寄宿时间短而出现流失^[4]。再者, 滇池的沉积物的堆积速率也远远低于红枫湖^[33]。由于湖泊面积和取样密度的差异, 一根或少数几根柱样 $^{239+240}\text{Pu}$ 的沉积通量只能反映湖泊局部区域采样位置处沉积通量的变化, 对于整个湖泊沉积通量仍需进一步的观测和研究。然而, 对于云贵高原的滇西湖区放射性核素如 $^{239+240}\text{Pu}$ 等沉积通的出现异常现象, 是受到赤道印度洋水汽与太平洋水汽中放射性核素含量差异的影响^[34], 还是受到青藏隆起而产生的屏蔽效应的影响^[35], 目前还存在争议。

当前中国关于湖泊 $^{239+240}\text{Pu}$ 的研究多集中于蒙新高原湖区和云贵高原湖区, 对于东部平原湖区和东北平原与山地湖区研究甚少, 尤其是在青藏高原湖区关于 $^{239+240}\text{Pu}$ 的来源与沉降通量的研究还处于空白。青藏高原湖区环境特殊, 拥有中国海拔最高、数量最多和面积最大的高原内陆湖, 大于 1 km^2 的湖泊有 1 055 个, 面积约为 $41\ 832\text{ km}^2$ ^[36]。青藏高原的环境效应对于 $^{239+240}\text{Pu}$ 全球大气沉降影响的程度目前还不是十分清楚, 尤其是青藏高原冰川和积雪的融水是否对湖泊 $^{239+240}\text{Pu}$ 沉积存在影响。因此, 湖泊沉积柱样中 $^{239+240}\text{Pu}$ 来源与区域环境的关系仍需深入研究。

2 湖泊柱样沉积物中 $^{239+240}\text{Pu}$ 的迁移

全球沉降的 $^{239+240}\text{Pu}$ 的最大蓄积峰受到湖泊柱样中 $^{239+240}\text{Pu}$ 的迁移规律的影响。湖泊中沉积物中

的放射性核素(例如 ^{137}Cs 和 $^{239+240}\text{Pu}$ 等)迁移方式通常有 2 种, 一种是横向迁移, 另一种是纵向迁移; 纵向迁移中有扩散(diffusion)和迁移(migration)2 种方式。通常认为只有湖泊沉积物中的 $^{239+240}\text{Pu}$ 的纵向迁移会对最大蓄积峰的位置产生影响。湖泊所处的海拔、纬度以及湖泊周围的地形地貌和植被分布, 以及区域降水量、底栖生物扰动和人类活动等也会对湖泊柱样 $^{239+240}\text{Pu}$ 最大蓄积峰产生一定的影响^[15]。前人通过数值模拟和实际观测对放射性核素如 ^{137}Cs 和 $^{239+240}\text{Pu}$ 等已经进行过深入的研究和探讨(表 2), 认为近现代环境未扰动湖泊沉积物中 $^{239+240}\text{Pu}$ 的迁移极小^[37,38], 柱样中 $^{239+240}\text{Pu}$ 最大蓄积峰位置的改变可以忽略不计。其中, Crusius 等^[38]以美国-加拿大交界的 Ontario 湖和 Dark 湖 6 根柱样为例, 用一维扩散模型对理想沉积环境下, 即没有扰动沉积柱样中的 ^{137}Cs 和 $^{239+240}\text{Pu}$ 放射性核素迁移规律定量研究。

经典的模型中 K_d 表示分配系数, K_d 值通常与沉积物样品中的有机质含量以及黏土矿物含量成正相关, 即含量越大则 K_d 值越大, 意味着沉积物中放射性核素的被吸附越牢固, 反之亦然。有机质的含量越多不仅可以减少 $^{239+240}\text{Pu}$ 的迁移, 还能够影响 $^{239+240}\text{Pu}$ 的价态^[39]。在给定不同的 K_d 值分别与实测的 ^{137}Cs 和 $^{239+240}\text{Pu}$ 比活度值进行拟合, 发现给定的 K_d 值较小时与实测的 ^{137}Cs 拟合较为一致, 这表明沉积物中 ^{137}Cs 主要以可交换态的形式存在; 另外, 模型中 $^{239+240}\text{Pu}$ 分子扩散系数(D_m)相较于 ^{137}Cs 也更低, 即湖泊柱样的 ^{137}Cs 迁移能力更大; 这 2 个参数说明 $^{239+240}\text{Pu}$ 的迁移性远弱于 ^{137}Cs 。在非理想的情况下, 湖泊柱样中的 $^{239+240}\text{Pu}$ 会受到生物扰动以及人为混合影响而发生迁移^[40]。沉积物中 $^{239+240}\text{Pu}$ 的迁移速率同时还受到其他因素的影响, 比如沉积物的质地、pH、盐度和孔隙度等。虽然在不同湖泊中影响 $^{239+240}\text{Pu}$ 迁移的因素不同, 但是由于钚的特殊性质使得 $^{239+240}\text{Pu}$ 在湖泊柱样沉积物中的迁移速率极低, 认为 $^{239+240}\text{Pu}$ 纵向的迁移可以忽略不计。因此, 湖泊沉积柱样中 $^{239+240}\text{Pu}$ 的最大蓄积峰位置比 ^{137}Cs 更稳定, 更适合于柱样沉积物定年及沉积速率的计算。

3 湖泊柱样沉积物中 $^{239+240}\text{Pu}$ 的分布特征

湖泊柱样沉积物中 $^{239+240}\text{Pu}$ 的分布特征与全球

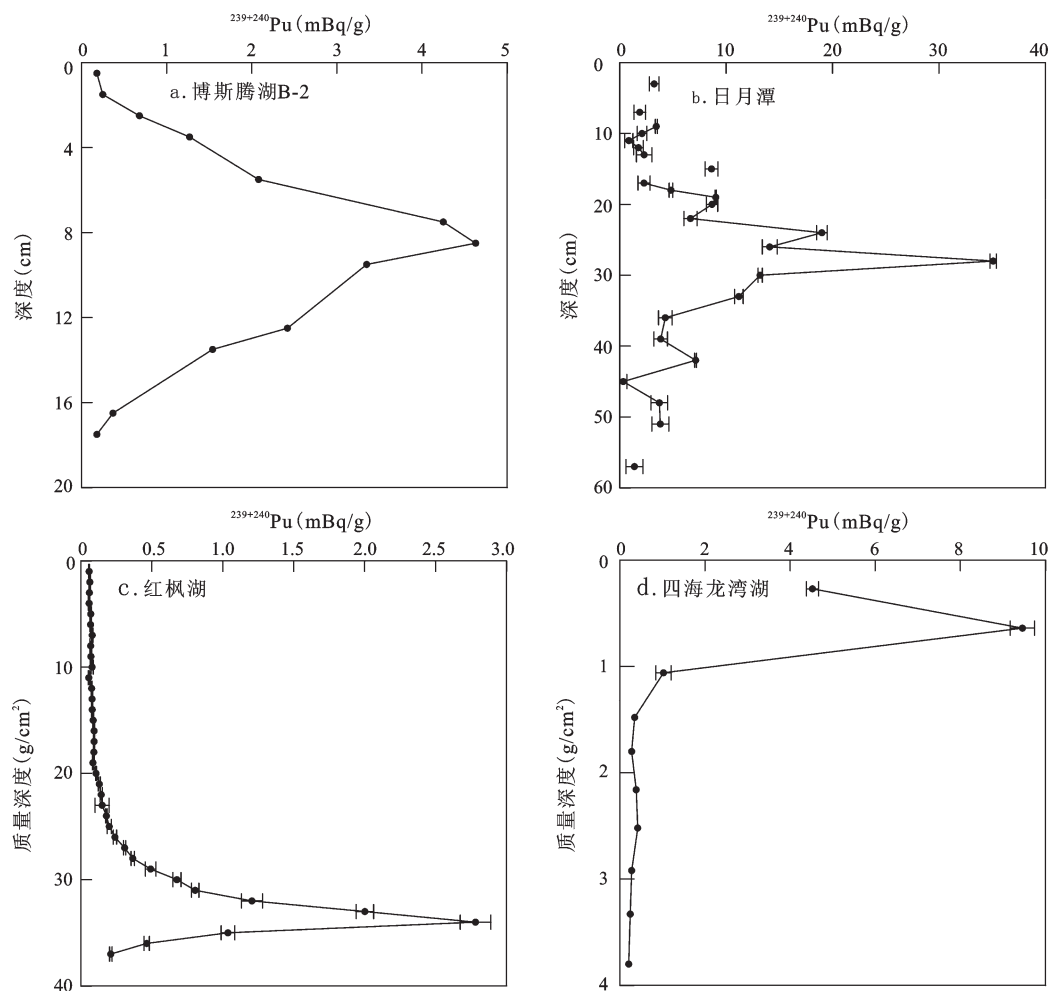
大气核试验放射性核素(如 ^{137}Cs 和 $^{239+240}\text{Pu}$ 等)的沉降过程密切相关。1961年9月至1962年12月,是全球大气核试验最密集时期,核爆产生大量的放射性核素沉降,由于沉降的滞后效应在1963年沉降达到高峰值;在日本东京地区连续50 a(1957~2005年)监测 $^{239+240}\text{Pu}$ 的大气沉降特征(沉降通量), $^{239+240}\text{Pu}$ 的沉降通量在1963年到达最大^[41]。如果放射性核素通过干沉降或者湿沉降的方式沉降到湖泊表面,然后被湖泊悬浮颗粒物吸附沉积到湖底而不发生迁移,沉积物剖面中放射性核素的含量变化可作为年代标志。20世纪50年代初的沉降起始年,1963年沉降的最大峰值年。考虑到放射尘沉降或沉积的滞后效应,湖泊柱样的 $^{239+240}\text{Pu}$ 时标年代可能会比1963年滞后1 a。1970年代法国和中国进行了少量核试验^[42],中国核试验当量较小,影响范围可能只是区域性的。1986年前苏联切尔诺贝利发生核事故,在核事故发生的10 d内,估计进入环境的 $^{239+240}\text{Pu}$ 大约有 $6.0 \times 10^{13} \text{ Bq}$ 。由于 ^{239}Pu 和 ^{240}Pu 为非挥发性的核素,并且此次核事故是地面核事故,进入平流层的核尘埃的量非常有限,其影响范围也是区域性的。例如在距离切尔诺贝利核事故区约8 000 km的日本东京地区,1986年 $^{239+240}\text{Pu}$ 沉积通量观测中并没有发现沉降峰值^[41, 42]。

3.1 典型单峰

从目前中国10个湖泊16根柱样 $^{239+240}\text{Pu}$ 分布特征的研究来看,中国湖泊柱样 $^{239+240}\text{Pu}$ 蓄积峰与 ^{137}Cs 单峰或者多重蓄积峰^[15]不同,目前只出现了典型单峰和非典型单峰2种模式。典型单峰的特征表现为从起始层位到 $^{239+240}\text{Pu}$ 活度急剧增加到1963年或1964年的层位时,然后再迅速降低,剖面中的 $^{239+240}\text{Pu}$ 的最大蓄积峰明显。例如图4所示中国的蒙新高原湖区的博斯腾湖柱样(a)、东部平原湖区的日月潭柱样(b)、云贵高原湖区的红枫湖柱样(c)和东北平原与山地湖区的四海龙湾湖柱样(d)都出现了典型的单峰模式。典型单峰的形成主要是因为 $^{239+240}\text{Pu}$ 沉降到湖泊中再被沉积物吸附,沉积到湖底后几乎不发生扩散和迁移^[7, 20, 37],且在沉积过程中较少受到环境扰动。中国湖泊柱样 $^{239+240}\text{Pu}$ 剖面中有14根呈现出典型的单峰,其中博斯腾湖BS2-1柱样虽然表层 $^{239+240}\text{Pu}$ 的活度较为均匀,但是仍能够判断蓄积峰的年代,并且通过 ^{210}Pb 和 ^{137}Cs 法辅助验证^[13]。考虑 $^{239+240}\text{Pu}$ 沉降或沉积的

滞后效应,最大蓄积峰年代被确定为1964年。然而对于湖泊的 $^{239+240}\text{Pu}$ 最大蓄积峰对应的年代不同学者有不同的认识,中国大多数学者研究认为是1964年,也有研究者认为对应年代为1963年,这个要根据湖泊所处的环境具体讨论。对于浅水湖泊中的 $^{239+240}\text{Pu}$ 可以快速从湖面沉积到湖底,沉积滞后时间可以忽略不计;而对于深水湖泊 $^{239+240}\text{Pu}$ 被悬浮颗粒物吸附后会出现沉积的滞后现象,其最大峰值年可能会滞后1~2 a。目前所研究的14个湖泊中,龙感湖最浅在3.8 m左右,抚仙湖最深大为87 m。沉积滞后时间的计算,以红枫湖(8 m)为例,基于地球化学质量平衡的箱式模型计算出 ^{137}Cs 滞后时间约为1 a。计算的公式^[40, 43]为 $\tau_s = h \times (C_d + 1/K_d) / s$,其中 τ_s 表示悬浮颗粒物的停留时间(a), h 表示平均水深(m), C_d 表示湖水中悬浮颗粒物的浓度(g/cm^3), K_d 表示 ^{137}Cs 在悬浮颗粒物与湖水中分配系数(cm^3/g),因此 ^{137}Cs 随着悬浮颗粒物沉降到湖底的半衰减时间 $T_{1/2} = \tau_s \times \ln 2$;计算 ^{137}Cs 沉积滞后时间约为1 a^[40],由于柱样中 $^{239+240}\text{Pu}$ 与 ^{137}Cs 具有相似分布且来源相同,确定 $^{239+240}\text{Pu}$ 最大蓄积峰的年代为1964年^[17]。因此,把 $^{239+240}\text{Pu}$ 的沉积滞后时间定为1 a是合理的。

对于 $^{239+240}\text{Pu}$ 最大蓄积峰的年代为1963年还是1964年,可以利用 ^{210}Pb 法验证 $^{239+240}\text{Pu}$ 时标的可靠性,例如博斯腾湖B-2^[24]柱样利用 ^{210}Pb 法验证 $^{239+240}\text{Pu}$ 最大蓄积峰的年代为 $1963 \pm 2 \text{ a}$,日月潭^[22]利用 ^{210}Pb 法验证该峰值年为1964~1966年。同样的也可利用 ^{137}Cs 时标验证 $^{239+240}\text{Pu}$ 时标的年代,青海湖、抚仙湖、四海龙湾湖、滇池和苏干湖柱样 $^{239+240}\text{Pu}$ 最大蓄积峰年代均被定为1964年(表2)。万国江等在程海湖^[3]的研究中明确指出 $^{239+240}\text{Pu}$ 最大蓄积峰可以作为湖泊沉积物定年的时标(1964年),这与 ^{137}Cs 时标在湖泊沉积柱样定年的应用类似。国外目前已研究的7个湖13根柱样同样也出现了典型的单峰,湖泊柱样中 $^{239+240}\text{Pu}$ 主要来源于全球大气沉降。例如澳大利亚的King湖、Victoria湖和Wellington湖^[44]等柱样发现 $^{239+240}\text{Pu}$ 最大蓄积峰年代为1964年,这是考虑到沉降的滞后效应,与 ^{137}Cs 时标和 ^{210}Pb 所推算的年代都吻合,认为蓄积峰在1964年是可靠的。芬兰的Päijänne湖^[39]4根柱样(水深为32~51 m)中 $^{239+240}\text{Pu}$ 最大沉积通量的年代定为1963~1965年,这是考虑了沉积的滞后效应。而日本的Tamogi湖、Ichiyana湖和Takahoko湖^[25]的6

图4 中国湖泊柱样 $^{239+240}\text{Pu}$ 剖面分布特征Fig.4 Distribution characteristics of the $^{239+240}\text{Pu}$ deposit profile in China

根柱样(采样水深 $<6\text{ m}$)中 $^{239+240}\text{Pu}$ 最大蓄积峰的年代均被定为1963年,放射性核素 $^{239+240}\text{Pu}$ 沉积滞后时间忽略不计。

3.2 非典型单峰

非典型单峰的特征是柱样 $^{239+240}\text{Pu}$ 活度从起始层位急剧增加到一定值后,转折处往上柱样中 $^{239+240}\text{Pu}$ 活度并没有再迅速降低。非典型单峰的形成,可能是因为所取柱样的湖水深度较浅,上层沉积物易受风浪或者人类活动的扰动而出现了沉积物的混合。中国湖泊已研究的 $^{239+240}\text{Pu}$ 柱样剖面中有1根呈现出非典型单峰,即博斯腾湖的BS2-3柱样^[13]。通过对博斯腾湖BS2-3柱样的 $^{239+240}\text{Pu}$ 活度和 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 比值分布的研究,发现在柱样质量深度 12 g/cm^2 以上 $^{239+240}\text{Pu}$ 活度均匀一致。这说明BS2-3柱样受到扰动,所以此柱样也不能利用 ^{137}Cs 和 ^{210}Pb 进行年代的比对。由于 $^{239+240}\text{Pu}$ 的均匀分布

深度取决于扰动深度,所以不能确定BS2-3柱样 $^{239+240}\text{Pu}$ 最大活度转折处的年代。

3.3 其他类型

虽然柱样中 $^{239+240}\text{Pu}$ 出现了典型的单峰,但是如果柱样受到局部区域大气核试验或核事故沉降的影响, $^{239+240}\text{Pu}$ 最大蓄积峰处的年代是仍需深入探讨。例如博斯腾湖柱样07BS10-2也出现典型单峰^[13],但是最大蓄积峰值处的年代并非1964年。这是因为最大蓄积峰处的 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 比值(0.080)明显低于0.180,表明 $^{239+240}\text{Pu}$ 并非来自于全球大气沉降。由于柱样的采集地博斯腾湖距罗布泊核试验区较近,只有 250 km 。研究表明07BS10-2柱样最有可能是受到罗布泊大气核试验影响^[13],而不是受到切尔诺贝利核事故($^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 在 $0.31\sim0.40$ 之间)的影响。研究发现由于新疆地区干燥的气候和低的年降雨量(70 mm)^[13],罗布泊再悬浮物中

使得柱样剖面 $^{239+240}\text{Pu}$ 的1964年蓄积峰被后期沉降的 $^{239+240}\text{Pu}$ 掩盖,而新的最大蓄积峰的相对于老的蓄积峰(1964年蓄积峰)“上移”,利用 ^{137}Cs 定年为1967~1973年间^[13],这个时段正是中国在罗布泊进行大气核试验的高峰期。07BS10-2柱样中 $^{239+240}\text{Pu}/^{137}\text{Cs}$ 比值(0.053)远远高于全球沉降的比值(0.028),这也说明此柱样受到局部区域核试验的影响。虽然利用 ^{137}Cs 已经给出了 $^{239+240}\text{Pu}$ 最大蓄积峰时间区间,但是缩小最大蓄积峰所指的特定年代仍需进一步的研究与探讨。

相似的研究表明国外湖泊中也发现了局部区域核试验或核事故 $^{239+240}\text{Pu}$ 的信号,对 $^{239+240}\text{Pu}$ 最大蓄积峰产生影响:例如哈萨克斯坦^[45]Alkat池和Korosteli池 $^{239+240}\text{Pu}$ 最大蓄积峰年代被提前到1950年代而非1963年,这是因为这2个湖泊位于前苏联塞米巴拉金斯克核试验基地的附近,受到早期(20世纪50年代)局部大规模核试验影响,导致放射性核素最大沉降年代不在1963年,而出现了 $^{239+240}\text{Pu}$ 最大蓄积峰的“下移”。另外,从哈萨克斯坦Alkat池(71 MBq/km²)和Korosteli池(221 MBq/km²)沉积通量可知明显高于50°~60°N的推荐参考值(48.1±7.4 MBq/km²)。所以湖泊柱样 $^{239+240}\text{Pu}$ 的最大蓄积峰的年代可能受到局部核试验沉降的干扰。同样的,对于芬兰^[39]的Päijänne湖除了全球大气沉降外,采用端元法计算表明有0.17±0.07%的 $^{239+240}\text{Pu}$ 是来自于1986年前苏联切尔诺核事故的局部沉降。需要说明的是2011年3月11日在日本发生了福岛核事故,事故中释放出了1.0~6.4×10⁹Bq^[10,46]的 $^{239+240}\text{Pu}$,然而这些钚同位素的释放对于日本湖泊沉积柱样的影响目前仍较少报道,需要持续的关注。

4 结论与展望

1) 中国湖泊 $^{239+240}\text{Pu}$ 的主要来源于全球大气核试验沉降,湖泊沉积柱样中表层沉积物的 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 均值为0.177±0.019;柱样 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 均值为0.177±0.008;柱样 $^{239+240}\text{Pu}$ 的沉积通量范围在7.45~240.6 MBq/km²之间,因湖泊所处沉积环境及纬度的差异而变化。湖泊柱样剖面中 $^{239+240}\text{Pu}$ 多呈单峰分布, $^{239+240}\text{Pu}$ 最大蓄积峰具有时标(1964年)价值。

2) 由于 ^{239}Pu 和 ^{240}Pu 的半衰期较长,未来可以替代活度渐微的 ^{137}Cs 作为湖泊示踪研究的有效核素。环境敏感的青藏高原湖区关于 $^{239+240}\text{Pu}$ 的示踪

研究目前还处于空白,罗布泊核试验对中国湖泊的影响仍需要深入的探讨。

致谢:感谢北京大学物理学院郭秋菊老师和南京大学地理与海洋科学学院肖智同学在论文写作中给予的帮助。

参考文献(References):

- [1] 万国江. ^{137}Cs 及 ^{210}Pb 方法湖泊沉积计年研究新进展[J]. 地球科学进展,1995,10(2):188-192.[Wan Guojiang. Progresses on ^{137}Cs and ^{210}Pb dating of lake sediments [J]. Advance in Earth Sciences,1995,10(2):188-192.]
- [2] 张信宝,龙翼,文安邦,等. 中国湖泊沉积物 ^{137}Cs 和 ^{210}Pb 断代的一些问题[J]. 第四纪研究,2012,32(3): 430-440.[Zhang Xinfao, Long Yi, Wen Anbang et al. Discussion on applying ^{137}Cs and ^{210}Pb for lake sediment dating in China. Quaternary Sciences,2012,32(3): 430-440.]
- [3] 万国江,吴丰昌,万恩源,等. $^{239+240}\text{Pu}$ 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,2011,31(5): 979-986.[Wan Guojiang, Wu Fengchang, Wan Enyuan et al. $^{239+240}\text{Pu}$ as a dating marker in lake sediments: An example from Lake Chenghai, China. Acta Scientiae Circumstantiae,2011,31(5): 979-986.]
- [4] 曾理. 放射性核素钚在湖泊沉积物中的分布特性及沉积年代学和流域侵蚀应用[D]. 北京: 中国科学院地球化学研究所, 2011. [Zeng Li. Distribution characteristics of radionuclide plutonium in lake sediments and their application in sedimentary chronology and watershed erosion. Beijing: Institute of Geochemistry Chinese Academy of Sciences, 2011.]
- [5] Tims S, Pan Shaoming, Zhang R et al. Plutonium AMS measurements in Yangtze River estuary sediment [J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms, 2010,268(7):1155-1158.
- [6] Cheol-Su Kim, Kim C, Martin P et al. Determination of Pu isotope concentrations and isotope ratio by inductively coupled plasma mass spectrometry: A review of analytical methodology [J]. Journal of Analytical Atomic Spectrometry,2007,22(7): 827-841.
- [7] Michael E Ketterer, Szechenyi S. Determination of plutonium and other transuranic elements by inductively coupled plasma mass spectrometry: A historical perspective and new frontiers in the environmental sciences [J]. Spectrochimica Acta Part B: Atomic Spectroscopy,2008,63(7):719-737.
- [8] 刘志勇. 长江口及苏北潮滩沉积物中放射性核素钚(Pu)的分布特征与环境意义[D]. 南京:南京大学,2011.[Liu Zhiyong. Distribution characteristics and environmental significance of the radionuclide Pu in the sediments of the Yangtze River estuary and the north Jiangsu tidal flat. Nanjing: Nanjing University, 2011.]
- [9] Lindahl P, Lee S, Worsfold P et al. Plutonium isotopes as tracers for ocean processes: a review [J]. Marine Environmental Research,2010,69(2):73-84.

- [10] Zheng Jian, Tagami K, Watanabe Y et al. Isotopic evidence of plutonium release into the environment from the Fukushima DNPP accident[J]. Scientific Reports, 2012, 2(3):1-8.
- [11] Boulyga S, Becker J. Isotopic analysis of uranium and plutonium using ICP-MS and estimation of burn-up of spent uranium in contaminated environmental samples [J]. Journal of Analytical Atomic Spectrometry, 2002, 17(9):1143-1147.
- [12] Kelley J, Bond L, Beasley T. Global distribution of Pu isotopes and ^{237}Np [J]. Science of the Total Environment, 1999, 237: 483-500.
- [13] Liao Haiqin, Bu Wenting, Zheng Jian et al. Vertical distributions of radionuclides $^{239+240}\text{Pu}$, $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$, and ^{137}Cs in sediment cores of Lake Bosten in Northwestern China[J]. Environmental Science Technology, 2014, 48(7):3840-3846.
- [14] Bu Wenting, Ni Youyi, Guo Qiuju et al. Pu isotopes in soils collected downwind from Lop Nor: Regional fallout vs. global fallout [J]. Scientific Reports, 2015, 5:1-10.
- [15] 曾理, 吴丰昌, 万国江, 等. 中国地区湖泊沉积物中 ^{137}Cs 分布特征和环境意义[J]. 湖泊科学, 2009, 21(1): 1-9. [Zeng Li, Wu Fengchang, Wan Guojiang et al. The distribution characteristic and environmental significance of Cesium-137 deposit profile in Chinese lacustrine sediment. J Lake Sci, 2009, 21(1):1-9.]
- [16] 石艳洁. 典型地区湖泊中 ^{210}Pb 、 ^{137}Cs 和 Pu 的剖面分布特征及其环境意义[D]. 贵州: 贵州大学, 2015. [Shi Yanjie. Spatial distribution of lead, radio-caesium and plutonium in typical lake sediments and their application for recent chronology. Guizhou: Guizhou University, 2015.]
- [17] Zheng Jian, Wu Fengchang, Yamada Masatoshi et al. Global fallout Pu recorded in lacustrine sediments in Lake Hong feng, SW China [J]. Environmental Pollution, 2008, 152(2):314-321.
- [18] Zheng Jian, Liao Haiqing, Wu Fengchang et al. 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, 2008, 275(1):37-42.
- [19] Wu Fengchang, Zheng Jian, Liao Haiqing et al. Vertical distributions of plutonium and ^{137}Cs in lacustrine sediments in northwestern China: Quantifying sediment accumulation rates and source identifications [J]. Environmental Science & Technology, 2010, 44(8):2911-2917.
- [20] Wu Fengchang, Zheng Jian, Liao Haiqing et al. Anomalous plutonium isotopic ratios in sediments of Lake Qinghai from the Qinghai-Tibetan Plateau, China [J]. Environmental Science Technology, 2011, 45(21): 9188-9194.
- [21] Haiqing Liao, Jian Zheng, Fengchang Wu et al. Determination of plutonium isotopes in freshwater lake sediments by sector-field ICP-MS after separation using ion-exchange chromatography [J]. Applied Radiation and Isotopes, 2008, 66(8):1138-1145.
- [22] Chih-An Huh, Chu K, Weit C et al. Lead-210 and plutonium fallout in Taiwan as recorded at a subalpine lake [J]. Journal of Southeast Asian Earth Sciences, 1996, 14(5):373-376.
- [23] 廖海清. 放射性铯和钡在湖泊中的时空分布特性及近期沉积年代学应用[D]. 北京: 中国科学院地球化学研究所, 2008. [Liao Haiqing. Temporal and spatial distribution of radioactive plutonium and cesium in lakes and recent depositional chronology applications. Beijing: Institute of Geochemistry Chinese Academy of Sciences, 2011.]
- [24] 林瑞芬, 卫克勤, 程致远, 等. 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, 1992, 21(1): 63-69. [Lin Ruifen, Wei Keqin, Cheng Zhiyaun et al. Distributions of ^{210}Pb , ^{228}Th , $^{239,240}\text{Pu}$ and ^3H and their implications in sediment core from Bosten lake, Xinjiang, China[J]. Geochemica, 1992, 21(1):63-69.]
- [25] Ueda S, Ohtsuka Y, Kondo K et al. Inventories of $^{239+240}\text{Pu}$, ^{137}Cs , and excess ^{210}Pb in sediments from freshwater and brackish lakes in Rokkasho, Japan, adjacent to a spent nuclear fuel reprocessing plant[J]. Journal of Environmental Radioactivity, 2009, 100(10): 835-840.
- [26] Gacutter, Bruland K, Risebrough R. Deposition and accumulation of plutonium isotopes in Antarctica [J]. Nature, 1979, 279 (5714): 628-629.
- [27] Charles M. Effects of Ionizing Radiation: United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation: UNSCEAR 2006 Report, Volume 1-Report to the General Assembly, with Scientific Annexes A and B[J]. Radiation Protection Dosimetry, 2010, 138(2): 187-189.
- [28] 卜文庭, 郭秋菊. 我国环境土壤和地表水沉积物中 Pu 的分布特征研究[J]. 辐射防护, 2013, 33(3):144-150, 157. [Bu Wenting, Guo Qiuju. Concentration and characterization of plutonium in soils and groundwater sediments in China. Radiation Protection, 2013, 33(3):144-150, 157.]
- [29] 张信宝, 曾奕, 龙翼. ^{137}Cs 质量平衡法测算青海湖现代沉积速率的尝试[J]. 湖泊科学, 2009, 21(6):827-833. [Zhang Xinbao, Zeng Yi, Long Yi. An attempt to use the ^{137}Cs mass balance model for assessment of recent deposition rates in Lake Qinghai, China. J. Lake Sci. 2009, 21(6):827-833.]
- [30] 徐海, 刘晓燕, 安芷生, 等. 青海湖现代沉积速率空间分布及沉积通量初步研究[J]. 科学通报, 2010, 55(4-5):384-390. [Xu Hai, Liu Xiaoyan, An Zhisheng et al. Spatial pattern of modern sedimentation rate of Qinghai Lake and a preliminary estimate of the sediment flux. Chinese Science Bulletin, 2010, 55(7): 384-390.]
- [31] Xiang L, LU X X, Higgitt D I et al. Recent lake sedimentation in the middle and lower Yangtze basin inferred from ^{137}Cs and ^{210}Pb measurements[J]. Journal of Asian Earth Sciences, 2002, 21: 77-86.
- [32] Matisoff G. Activities and geochronology of ^{137}Cs in lake sediments resulting from sediment resuspension[J]. Journal of Environmental Radioactivity, 2017, 167: 222-234.
- [33] 万国江. 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, 1999, 19(1):73-80. [Wan Guojiang. ^{137}Cs dating by annual distinguishes for recent sedimentation: Samples from Ehai lake and Hngfeng lake [J]. Quaternary Sci-

- ences, 1999, 19(1):73-80.]
- [34] 张信宝.有关湖泊沉积 ^{137}Cs 深度分布资料解译的探讨.山地学报,2005,23(3):294-299.[Zhang Xinbao. Discussion on interpretations of ^{137}Cs depth distribution profiles of lake deposits. Journal of Mountain Science, 2005, 23(3): 294-299.]
- [35] 万国江,白占国,刘东生,等. ^{137}Cs 在滇西与黔中地区散落的差异——青藏隆起对滇西地区全球性扩散大气污染物散落屏蔽效应的推断[J].第四纪研究,2001,21(5):407-415.[Wan Guojiang, Bai Zhanguo, Liu Dongsheng et al. The differentials of fallout ^{137}Cs Between western Yunnan and central Guizhou: Implication for the barrier erect of Qinghai-xizang uplift on global atmospheric pollutants in Yunan-Guizhou plateau. Quaternary Sciences, 2001,21(5):407-415.]
- [36] 杨桂山,马荣华,张路,等.中国湖泊现状及面临的重大问题与保护策略[J].湖泊科学,2010,22(6):799-810.[Yang Guishan, Ma Ronghua, Zhang Lu et al. Lake status, major problems and protection strategy in China. J Lake Sci,2010,22(6):799-810.]
- [37] John Crusius,Robert F. Anderson. Evaluating the mobility of ^{137}Cs , $^{239+240}\text{Pu}$ and ^{210}Pb from their distributions in laminated lake sediments[J]. Journal of Paleolimnology, 1995,13(2):119-141.
- [38] Crusius J R, F Anderson. Sediment focusing in six small lakes inferred from radionuclide profiles [J]. Journal of Paleolimnology, 1995, 13(2): 143-155.
- [39] Lusa M, Lehto J, Leskinen A et al. ^{137}Cs , $^{239+240}\text{Pu}$ and ^{241}Am in bottom sediments and surface water of Lake Paeijaenne, Finland[J]. Journal of Environmental Radioactivity, 2009, 100(6): 468-476.
- [40] Wan G, Chen J, Wu Fengchang et al. Coupling between ^{210}Pb and organic matter in sediments of a nutrient-enriched lake: An example from Lake Chenghai, China[J]. Chemical Geology, 2005,224(4):223-236.
- [41] K Hirose,Y Igarashi,M Aoyama. Analysis of the 50-year records of the atmospheric deposition of long-lived radionuclides in Japan [J]. Applied Radiation and Isotopes,2008,66(11):1675-1678.
- [42] 杨旭,潘少明,徐仪红,等. Pu 同位素比值在沉积物测年中的应用[J].海洋通报,2013,32(2):227-234.[Yang Xu, Pan Shaoming, Xu Yihong et al. Pu isotope ratios as the geochronometer for sediments. Marine Science Bulletin, 2013,32(2): 227-234.]
- [43] 张燕,潘少明,彭补拙.用 ^{137}Cs 计年法确定湖泊沉积物沉积速率研究进展[J].地球科学进展,2005,20(6):671-678.[Zhang Yan, Pan Shaoming,Peng Buzhuo.An overview on the evaluation of sediment accumulation rate of lake by ^{137}Cs dating. Advances in Earth Science,2005,20(6):671-678.]
- [44] Hancock G J, Leslie C, Everett S E et al. Plutonium as a chronometer in Australian and New Zealand sediments: a comparison with ^{137}Cs [J]. Journal of Environmental Radioactivity,2011, 102 (10): 919-929.
- [45] Yamamoto M, Hoshi M, Takada J et al. Plutonium, ^{137}Cs and U in some pond and lake sediments from areas surrounding the Semipalatinsk Nuclear Test Site: With emphasis on anomalously high U accumulation [J]. Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry,2004,262(3): 607-616.
- [46] Zheng Jian, Aono Tatsuo, Uchida Shigeo et al. Distribution of Pu isotopes in marine sediments in the Pacific 30 km off Fukushima after the Fukushima Daiichi nuclear power plant accident [J]. Geochemical Journal, 2012, 46, 361-369.

The Source and Distribution Characteristic of $^{239+240}\text{Pu}$ in Sediment Cores of Chinese Lakes

Huang Yanan¹, Pan Shaoming¹, Liu Zhiyong²

(1. The Key Laboratory of Ministry Education of Coastal and Island Development, Nanjing University, Nanjing 210023, Jiangsu, China; 2. School for Radiological and Interdisciplinary Sciences, Soochow University, Suzhou 215123, Jiangsu, China)

Abstract: China is a nation with numerous lakes; tracer studies of $^{239+240}\text{Pu}$ have been carried out in 14 lakes. According to the research status of $^{239+240}\text{Pu}$ in Chinese lakes, this article summarizes the source, the migration behavior of $^{239+240}\text{Pu}$ and the age of the maximum accumulation peaks of $^{239+240}\text{Pu}$. The results show that $^{239+240}\text{Pu}$ in lacustrine sediment cores of Chinese lakes are mainly derived from the global atmospheric nuclear tests, the mean value of $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ was 0.177 ± 0.019 in the surface sediments, the mean value $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ was 0.177 ± 0.008 in the all sediment cores. Because of the difference of lake sedimentary environment and latitude changes, the range of the $^{239+240}\text{Pu}$ inventories of was 7.45-240.6 MBq/km². The distribution characteristic of $^{239+240}\text{Pu}$ in lacustrine sediment cores of Chinese lakes are mostly unimodal, and the migration of $^{239+240}\text{Pu}$ in sediment cores can be neglected and the maximum accumulation peak of $^{239+240}\text{Pu}$ has time scale value.

Key words: lake; sediment cores; $^{239+240}\text{Pu}$ activity; $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$; $^{239+240}\text{Pu}$ inventory