

DOI: 10.7524/j.issn.0254-6108.2019112101

刘劲, 吴雨田, 邓爽, 等. 南沙海域沉积物岩心²²⁸Ra 和²²⁸Th 的深度变化[J]. 环境化学, 2020, 39(8): 2272-2278.

LIU Jing, WU Yutian, DENG Shuang, et al. Depth profiles of ²²⁸Ra and ²²⁸Th in sediment cores in Nansha sea area[J]. Environmental Chemistry, 2020, 39(8): 2272-2278.

南沙海域沉积物岩心²²⁸Ra 和²²⁸Th 的深度变化*

刘 劲¹ 吴雨田¹ 邓 爽¹ 刘 敏¹ 刘广山² 肖静水¹ 彭安国^{1**}

(1. 南华大学核科学技术学院, 衡阳, 421001; 2. 厦门大学海洋与生态学院, 厦门, 361005)

摘 要 用 HPGe γ 谱方法测定了 6 个来自南沙海域沉积物岩心的²²⁸Ra 和²²⁸Th. 测定结果如下: ²²⁸Ra 的放射性比活度变化范围为 (15.73 $\pm$ 1.00) Bq $\cdot$ kg⁻¹ 至 (44.35 $\pm$ 1.69) Bq $\cdot$ kg⁻¹, 平均值的变化范围为 (17.86 $\pm$ 0.98) Bq $\cdot$ kg⁻¹ 至 (39.78 $\pm$ 1.76) Bq $\cdot$ kg⁻¹; ²²⁸Th 的放射性比活度变化范围为 (13.62 $\pm$ 0.67) Bq $\cdot$ kg⁻¹ 至 (49.21 $\pm$ 1.05) Bq $\cdot$ kg⁻¹, 平均值的变化范围 (17.30 $\pm$ 0.55) Bq $\cdot$ kg⁻¹ 至 (42.89 $\pm$ 0.99) Bq $\cdot$ kg⁻¹. 与其他海域比较发现, 本研究海域的²²⁸Ra 和²²⁸Th 比活度及平均值比其他大部分海域稍低. 比较 6 个岩心的结果发现, ²²⁸Ra 和²²⁸Th 的变化范围基本相同, 同时深度变化趋势也非常一致, 表明在该研究海域, ²²⁸Ra 和²²⁸Th 在不同深度处都基本上达到了放射性平衡, 没有明显的过剩²²⁸Ra 存在. 这两个核素的深度变化趋势大致分为两种情况, 一是随深度的增加有一个微弱的增加趋势, 但在中间深度处有一个突然减小的变化; 二是随深度的增加呈现出逐渐减小的趋势, 但有两个岩心在最深层段出现较大的变化.

关键词 γ 能谱, 放射性核素, 沉积物岩心, 深度变化.

Depth profiles of ²²⁸Ra and ²²⁸Th in sediment cores in Nansha sea area

LIU Jing¹ WU Yutian¹ DENG Shuang¹ LIU Ming¹ LIU Guangshan²
XIAO Jingshui¹ PENG Anguo^{1**}

(1. School of Nuclear Science and Technology, University of South China, Hengyang, 421001, China;

2. College of Ocean and Ecology, Xiamen University, Xiamen, 361005, China)

Abstract: ²²⁸Ra and ²²⁸Th in six sediment cores in Nansha sea were measured by HPGe gamma spectrometry. The results showed that the activities of ²²⁸Ra in these cores ranged from (15.73 $\pm$ 1.00) Bq $\cdot$ kg⁻¹ to (44.35 $\pm$ 1.69) Bq $\cdot$ kg⁻¹ and the range of the average value was (17.86 $\pm$ 0.98) Bq $\cdot$ kg⁻¹ to (39.78 $\pm$ 1.76) Bq $\cdot$ kg⁻¹. As for ²²⁸Th, the activity ranged from (13.62 $\pm$ 0.67) Bq $\cdot$ kg⁻¹ to (49.21 $\pm$ 1.05) Bq $\cdot$ kg⁻¹ and the range of the average value was (17.30 $\pm$ 0.55) Bq $\cdot$ kg⁻¹ to (42.89 $\pm$ 0.99) Bq $\cdot$ kg⁻¹. Comparing with results in other sea areas, the content and average value of ²²⁸Ra and ²²⁸Th were slightly lower than those in most of other sea areas. After comparing the activities of the ²²⁸Ra and ²²⁸Th in the six cores, it was found that their changing ranges were basically the same, and the trends of depth profiles were very consistent, indicating that ²²⁸Ra and ²²⁸Th from the samples in the study area reached radioactive equilibrium, with no apparent excess ²²⁸Ra present. The depth profiles of the two nuclides could be roughly divided into two types, one was a slight increase with the increase of depth, but there was a sudden decrease in the middle

2019 年 11 月 21 日收稿 (Received: November 21, 2019).

* 核燃料循环技术与装备湖南省协同创新中心开放基金 (2019KFZ09) 和湖南省教育厅项目 (19A433, 12c0335) 资助.

Supported by Open Fund of Hunan Collaborative Innovation Center for Nuclear Fuel Cycle Technology and Equipment (2019KFZ09) and Hunan Department of Education Project (19A433, 12c0335).

** 通讯联系人, Tel: 15211363618, E-mail: 15211363618@ 163.com

Corresponding author, Tel: 15211363618, E-mail: 15211363618@ 163.com

depth; while the other was a gradual decrease with the increase of depth, but there were greater changes in the deepest segment in two cores.

Keywords: HPGe gamma spectrometry, radionuclide, sediment core, depth profile.

海洋沉积物是放射性核素进入海洋后的一个重要归宿,记录着海洋环境演变的历史,通过对其放射性核素含量分布的分析可以推算出海洋沉积物的沉积速率,从而建立年代变化序列和推演海洋环境的变化,因此受到海洋学家的重视^[1-2].南沙海域由大陆架、大陆坡和深海盘组成,依次从南到北形成逐级下降的3级阶梯地形^[3].其沉积物中放射性核素的变化记载着该海域过去几年甚至上百、上千年的演化历史,但近年来对南沙海域的研究主要集中在表层沉积物^[3-4],对该海域多个沉积物岩心的同时研究较少^[5],因此缺乏较为系统的海洋历史演化数据.

^{228}Ra 和 ^{228}Th 都是 ^{232}Th 的衰变核素, ^{232}Th 通过 α 衰变产生了 ^{228}Ra , ^{228}Ra 通过 β 衰变产生了 ^{228}Ac , ^{228}Ac 再通过 β 衰变产生了 ^{228}Th .因此可以说 ^{228}Ra 和 ^{228}Th 是一对母子体,假设 ^{228}Ra 和 ^{228}Th 没有额外的来源,那么 ^{228}Ra 通过两次衰变产生 ^{228}Th 后,经历十个 ^{228}Th 的半衰期(1.91 a)后, ^{228}Ra 和 ^{228}Th 应达到了平衡状态.若 ^{228}Ra 和 ^{228}Th 在某些沉积物深度层段出现较大差异,则可以大致反映出该深度层段的历史环境有较大变化.因此通过 ^{228}Ra 和 ^{228}Th 随深度的变化可以判断整个岩心在沉积过程中是否存在额外的侵扰,由此可以判断过去几十年来该海域发生的一些海洋环境变化事件.比如,贾成霞等^[6]的研究表明,胶州湾沉积物中 ^{228}Th 和 ^{228}Ra 的含量相差较小,接近衰变平衡状态,说明两种核素不存在额外的来源或者流失,陆源物质进入胶州湾后放射性核素的解析甚少.李冬梅等^[7]和赵峰等^[8]的研究表明,海域沉积物中 ^{228}Th 相对 ^{228}Ra 过剩,原因在于 ^{228}Th 是颗粒活性较强的一种核素,易于在沉积物中富集,而 ^{228}Ra 易于从颗粒物中释放入海水,所以导致表层沉积物中 ^{228}Th 相对 ^{228}Ra 过剩.Omokheyek等^[9]的研究表明, ^{228}Ra 和 ^{228}Th 的活度在沉淀物的每一层中几乎相等, $^{228}\text{Th}/^{228}\text{Ra}$ 的范围在0.86—1.02之间,这意味着两个核素在误差范围内基本达到平衡.在Pittauerová等^[10]的研究中,沉积物的表层存在着明显的 ^{228}Th 过剩,这是由于Ra在盐分环境下容易解析进入孔隙水中而流失.但随着沉积物的深度增加, ^{228}Th 与 ^{228}Ra 逐渐达到平衡.

γ 谱方法能同时测量多种放射性核素(^{238}U 、 ^{40}K 、 ^{226}Ra 、 ^{210}Pb 、 ^{228}Ra 、 ^{228}Th 等),且不必进行样品的化学分离.其中 ^{228}Ra 是通过子体 ^{228}Ac 发射的 γ 射线来测定, ^{228}Th 是通过子体 ^{212}Pb 和 ^{208}Tl 发射的 γ 射线来测定.

本文采用HPGe γ 谱方法测定了南沙海域6个沉积物岩心中的天然放射性核素 ^{228}Ra 和 ^{228}Th ,分析了它们的含量变化范围及随深度的变化情况,通过深度变化探讨了沉积过程中环境可能发生的变化,记录沉积物的形成历程和演化过程(如物质的来源及迁变规律),以期得到较为系统的该海域环境变化的历史数据.

1 实验部分(Experimental section)

1.1 研究海区与岩心

本研究中样品采集地点为南沙海域,采集时间为2014年5月,采样站位和采样信息如表1所示.表1列出了每个岩芯的采样站位、水深、岩芯长度、样品个数和表观性状.岩芯长度在21—29 cm,按5 cm间隔分割样品.该海区属于半深海钙质泥,沉积物多为灰色或灰棕色软泥和粉砂质粘土.

1.2 样品测量方法

本研究的样品均用箱式重力采泥器采集,将采集的样品切割后用塑料袋封装,回实验室晾干后磨细、混匀、80目过筛,然后用 $\Phi 75\text{ mm}\times 50\text{ mm}$ 的聚乙烯塑料样品盒密封封装,并称重.样品密封30 d后放在HPGe γ 谱仪探测器端帽上方测量,收集谱数据.观察感兴趣 γ 射线峰面积,谱数据收集要求相对误差小于5%.测量两种核素所用的 γ 特征峰分别为: ^{228}Ra 、 ^{228}Ac 的338.7 keV(分支比11.9%)、911.2 keV(分支比27%)和968.8 keV(分支比16.3%); ^{228}Th 、 ^{212}Pb 的238.6 keV(分支比43.6%)和 ^{208}Tl 的583.1 keV(分支比30.96%).

刻度源的制作方法同文献[5].使样品容器本底、刻度源、空白基质本底在收集 γ 能谱数据时和测量

样品的几何条件相同,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.

表 1 岩心与样品基本信息
Table 1 Basic information of the core and sample

	NS-1	NS-3	NS-2	NS-4	NS-5	NS-6
岩心编号	BKAS12	BKAS30	BKAS35	BKAS64	BKAS79	BKAS80
(采样站位)	(7°31'19"N, 113°28'7"E)	(4°59'58"N, 113°9'45"E)	(6°27'30"N, 113°0'16"E)	(5°14'41"N, 112°7'27"E)	(5°10'37"N, 110°20'14"E)	(4°50'15"N, 110°26'37"E)
水深/m	1335	119	1537	123	141	121
岩心长度/cm	24	29	21	25	26	25
取样层位/cm	0—24	0—29	0—21	0—25	0—26	0—25
样品个数	5	6	4	5	5	5
外观性状	灰色软泥	粉砂	灰棕色软泥	粉砂质泥	粉砂质泥	粉砂质泥

某个能量的 γ 射线源效率的计算公式为:

$$\varepsilon_c = \frac{(N_c/T_c - N_{bm}/T_{bm})}{A_c Y}$$

(1)

式中, ε_c 为效率, N_c 、 N_{bm} 分别为刻度源和基质本底 γ 能谱峰面积, T_c 、 T_{bm} 分别为刻度源和基质本底谱数据收集时间; A_c 为刻度源活度, Y 为 γ 射线分支比.

样品中核素活度的计算方法:谱数据收集时样品中核素的活度由下式子计算:

$$A = \frac{1}{m} \sum_1^m (N_i/t - n_{bi}) \times \frac{1}{\varepsilon_i} \times \frac{1}{Y_i}$$

(2)

式中, m 为计算某核素活度所用 γ 射线数, N_i 为 γ 射线的峰面积, t 为样品谱数据收集时间, n_{bi} 为本底峰计数, ε_i 为效率, Y_i 为 γ 射线的分支比.

2 结果与讨论 (Results and discussion)

2.1 ²²⁸Ra 活度分布

6个岩心样品中的²²⁸Ra和²²⁸Th的含量如表2所列.由于²²⁸Ra自身衰变发出的 γ 射线分支比很小,不适合用来测定样品中²²⁸Ra的活度,通常用其子体²²⁸Ac的 γ 射线测定²²⁸Ra的活度.

由表2可知,BKAS12,²²⁸Ra含量变化范围为(16.20±0.86) Bq·kg⁻¹至(20.85±0.94) Bq·kg⁻¹,平均为(17.86±0.98) Bq·kg⁻¹;BKAS30,含量变化范围为(15.73±1.00) Bq·kg⁻¹至(19.98±1.05) Bq·kg⁻¹,平均为(18.33±1.08) Bq·kg⁻¹;BKAS35,含量变化范围为(26.08±1.00) Bq·kg⁻¹至(33.88±1.24) Bq·kg⁻¹,平均为(28.98±1.16) Bq·kg⁻¹;BKAS64,含量变化范围为(21.00±0.85) Bq·kg⁻¹至(44.35±1.69) Bq·kg⁻¹,平均为(36.98±1.52) Bq·kg⁻¹;BKAS79,含量变化范围为(22.03±0.92) Bq·kg⁻¹至(26.63±1.00) Bq·kg⁻¹,平均为(23.71±0.96) Bq·kg⁻¹;BKAS80,含量变化范围为(37.27±1.71) Bq·kg⁻¹至(43.99±1.82) Bq·kg⁻¹,平均为(39.78±1.76) Bq·kg⁻¹.6个站位的比较发现,BKAS64和BKAS80的平均含量较高,BKAS35和BKAS79次之,BKAS12和BKAS30的平均含量最低,约低了1倍.对比各站位点的地理位置和平均值来看,沉积物中²²⁸Ra的含量随水力作用方向(由西往东)而减小,即:²²⁸Ra含量随着水流方向(BKAS64,BKAS80→BKAS35→BKAS12)逐渐减弱,表明了虽然该海区沉积物有陆源碎屑和生物碎屑等不同来源,但明显陆源碎屑在²²⁸Ra含量分布中是主要影响因素.同时,²²⁸Ra含量随各站位水深的变化趋势也有一定的规律,即水深较浅的4个站位(BKAS30,BKAS80,BKAS64,BKAS79)明显高于水深较深的另2个站位(BKAS35,BKAS12).此外,同为水深较浅区域,BKAS80和BKAS64比BKAS30和BKAS79高,说明陆源碎屑带入的²³²Th(可衰变产生²²⁸Ra)在到达BKAS30和BKAS79站位后,受到生物碎屑的稀释而减小了比活度.更深一步的原因还需要通过对沉积物的组成分析,包括陆源碎屑和生物碎屑所占的比例,不同碎屑的粒径和水动力学情况的分析等来详细探讨.

2.2 ²²⁸Th 活度分布

HPGe γ 谱仪测定²²⁸Th 是利用其子体²¹²Pb 和²⁰⁸Tl 的 γ 射线来计算²²⁸Th 的活度.由表 2 可知,BKAS12 含量变化范围为(13.62±0.67) Bq·kg⁻¹至(21.69±0.55) Bq·kg⁻¹,平均为(17.30±0.55) Bq·kg⁻¹;BKAS30 含量变化范围为(15.81±0.60)至(21.60±0.61) Bq·kg⁻¹,平均为(18.18±0.61) Bq·kg⁻¹;BKAS35 含量变化范围为(27.15±0.59) Bq·kg⁻¹至(33.40±0.66) Bq·kg⁻¹,平均为(30.03±0.64) Bq·kg⁻¹;BKAS64 含量变化范围为(24.74±0.52) Bq·kg⁻¹至(47.65±0.97) Bq·kg⁻¹,平均为(41.16±0.87) Bq·kg⁻¹;BKAS79 含量变化范围为(23.64±0.50) Bq·kg⁻¹至(28.61±0.58) Bq·kg⁻¹,平均为(24.95±0.53) Bq·kg⁻¹;BKAS80 含量变化范围为(37.86±0.94) Bq·kg⁻¹至(49.21±1.05) Bq·kg⁻¹,平均为(42.89±0.99) Bq·kg⁻¹;6 个岩心之间的比较发现,BKAS64 和 BKAS80 活度较大,BKAS35 和 BKAS79 次之,BKAS12 和 BKAS30 的含量平均最低,约低了1 倍左右;表明²²⁸Th 含量随站位变化的主要影响因素是水流方向和站位水深,即水流方向由西往东,逐渐减小,随水深的影响大致为较浅海域>较深海域.这与²²⁸Ra 含量随站位的影响是一致的.

表 2 六个岩石样品各核素含量(Bq·kg⁻¹)
Table 2 Nuclide contents of the six core samples

层数 Layer/cm	0—5	5—11	11—15	15—20	20—24	Average 平均值	
BKAS12	²²⁸ Ra	16.68±0.97	16.46±1.26	20.85±0.94	16.20±0.86	17.86±0.98	
	²²⁸ Th	16.58±0.56	13.62±0.67	21.69±0.55	17.59±0.46	17.30±0.55	
	²²⁸ Th/ ²²⁸ Ra	0.99	0.83	1.04	1.09	0.97	
层数 Layer/cm	0—6	6—10	10—15	15—20	20—25	25—29	Average 平均值
BKAS30	²²⁸ Ra	16.93±1.03	19.03±1.39	19.53±1.00	15.73±1.00	18.80±0.98	18.33±1.08
	²²⁸ Th	15.81±0.60	17.27±0.74	17.90±0.59	16.64±0.53	19.84±0.61	18.18±0.61
	²²⁸ Th/ ²²⁸ Ra	0.93	0.91	0.92	1.06	1.06	0.99
层数 Layer/cm	0—5	5—10	10—15	15—21	Average 平均值		
BKAS35	²²⁸ Ra	33.88±1.24	28.63±1.16	26.08±1.00	27.32±1.23	28.98±1.16	
	²²⁸ Th	33.40±0.66	27.35±0.61	27.15±0.59	32.20±0.69	30.03±0.64	
	²²⁸ Th/ ²²⁸ Ra	0.99	0.96	1.04	1.18	1.04	
层数 Layer/cm	0—5	5—10	10—15	15—20	20—25	Average 平均值	
BKAS64	²²⁸ Ra	44.35±1.69	40.15±1.71	40.03±1.67	39.35±1.67	21.00±0.85	36.98±1.52
	²²⁸ Th	47.65±0.97	45.18±0.96	43.53±0.96	44.69±0.93	24.74±0.52	41.16±0.87
	²²⁸ Th/ ²²⁸ Ra	1.07	1.13	1.09	1.14	1.18	1.12
层数 Layer/cm	0—5	5—10	10—15	15—20	20—26	Average 平均值	
BKAS79	²²⁸ Ra	23.83±0.92	23.47±1.02	22.03±0.92	22.61±0.95	26.63±1.00	23.71±0.96
	²²⁸ Th	28.61±0.58	23.83±0.52	23.64±0.50	24.21±0.54	24.46±0.52	24.95±0.53
	²²⁸ Th/ ²²⁸ Ra	1.20	1.02	1.07	1.07	0.92	1.06
层数 Layer/cm	0—5	5—10	10—15	15—20	20—25	Average 平均值	
BKAS80	²²⁸ Ra	43.99±1.82	40.70±1.71	39.40±1.76	37.27±1.71	37.54±1.78	39.78±1.76
	²²⁸ Th	49.21±1.05	42.29±0.95	42.00±0.99	37.86±0.94	43.09±1.01	42.89±0.99
	²²⁸ Th/ ²²⁸ Ra	1.12	1.04	1.07	1.02	1.15	1.08

2.3 ²²⁸Th 与²²⁸Ra 的比活度的比值

²²⁸Ra 与²²⁸Th 是来自同一放射系(钍系)的核素.由表 2 可知,本研究中²²⁸Ra/²²⁸Th 的比活度比值的范围在 0.83—1.20 之间,平均值为 1.04,可以认为²²⁸Ra 和²²⁸Th 的含量水平在实验误差的允许范围内是一致的.在整个钍放射系中,只有母体²³²Th 和子体²²⁸Ra(半衰期 5.75 a)、²²⁸Th(半衰期 1.91 a)半衰期较长,其他子体半衰期较短,所以可以认为钍系是由²³²Th、²²⁸Ra 和²²⁸Th 等 3 种核素组成的三级衰变链.所有样品中²²⁸Ra 和²²⁸Th 的含量基本一致,深度变化也大致相同,说明所测样品中²²⁸Ra 和²²⁸Th 基本达到了平衡状态,没有明显过剩的²²⁸Th 存在,个别样品中的个别层段出现的²²⁸Th/²²⁸Ra 比值偏离 1 较大的情况可能与这两个核素的化学性质的差异(如颗粒活性等)有关.即²²⁸Th 是颗粒活性核素,与颗粒物的亲和力较大,不容易通过沉积物间隙水扩散至上覆水体中,而²²⁸Ra 的颗粒物质亲和力较弱,如果受到水动力或者生物扰动的影响,部分沉积物中的²²⁸Ra 会通过间隙水扩散至上覆水体^[11-12].

2.4 与其他海域的比较

表 3 列出了本研究海域与其他海域岩心的²²⁸Ra 和²²⁸Th 的比活度水平与平均值.通过表 3 可以发

现,本研究海域沉积物中²²⁸Ra 的变化范围及平均值和南沙海区(大陆架)、Tema Harbour、Northwest Gulf of Kuwait 和 Mumbai Harbour Bay 较为接近^[3,18,20-21],略高于 Tinto Estuary^[16],比南海东北部、Serifos、Daya Bay、胶州湾、黄茅海—广海湾海域、北部湾白龙岛海域、Ribeira Bay 略低^[6,8,13-15,17,19];而²²⁸Th 的变化范围与平均值与南沙海区、Tinto Estuary、Tema Harbour 比较接近^[3,16,18],比其他海域要稍低^[6,8,13-15,17].

表 3 不同海域岩心²²⁸Ra 和²²⁸Th 的含量范围与平均值(Bq·kg⁻¹)

Table 3 The content and average value of ²²⁸Ra and ²²⁸Th in Core in different sea areas

站位 Sea areas	²²⁸ Ra		²²⁸ Th		参考文献 Reference
	范围 Content	平均值 Average	范围 Content	平均值 Average	
BKAS12	16.2—20.9	17.8	13.6—21.7	17.3	本文
BKAS30	15.7—20.0	18.3	15.8—21.6	18.2	本文
BKAS35	26.1—33.9	29.0	27.2—33.4	30.0	本文
BKAS64	21.0—44.4	37.0	24.7—47.7	41.2	本文
BKAS79	22.0—26.6	23.7	23.6—28.6	25.0	本文
BKAS80	37.3—44.0	39.8	37.9—49.2	42.9	本文
南沙海区(大陆架)	20.7—44.6	32.3	20.8—44.2	32.2	[3]
南海东北部	22.9—65.2	44.9	21.7—63.2	42	[13]
Serifos	20—120	44	20—118	44.7	[14]
Daya Bay	40.3—52.7	47.2	47.7—63.8	55.1	[15]
胶州湾	35.7—57.3	40.3	40.9—58.0	44.8	[6]
Tinto Estuary	12—21	17	13—42	25	[16]
黄茅海—广海湾及邻近海域	49.7—64.8	58.1	57.7—101.1	64.5	[8]
北部湾白龙半岛邻近海域	14.1—78.7	49.2	12.3—67.2	42.8	[17]
Tema Harbour	16—67	29	20—72	31	[18]
Ribeira Bay	10—93	44			[19]
Northwest Gulf of Kuwait	18.8—23.0	20.5			[20]
Mumbai Harbour Bay	20.8—33.6	27.2			[21]

2.5 核素比活度(Bq·kg⁻¹)的深度分布特征

6个不同站位的²²⁸Ra 和²²⁸Th 的含量随深度的变化规律如图 1 所示,变化趋势大致可以分为两种情况.

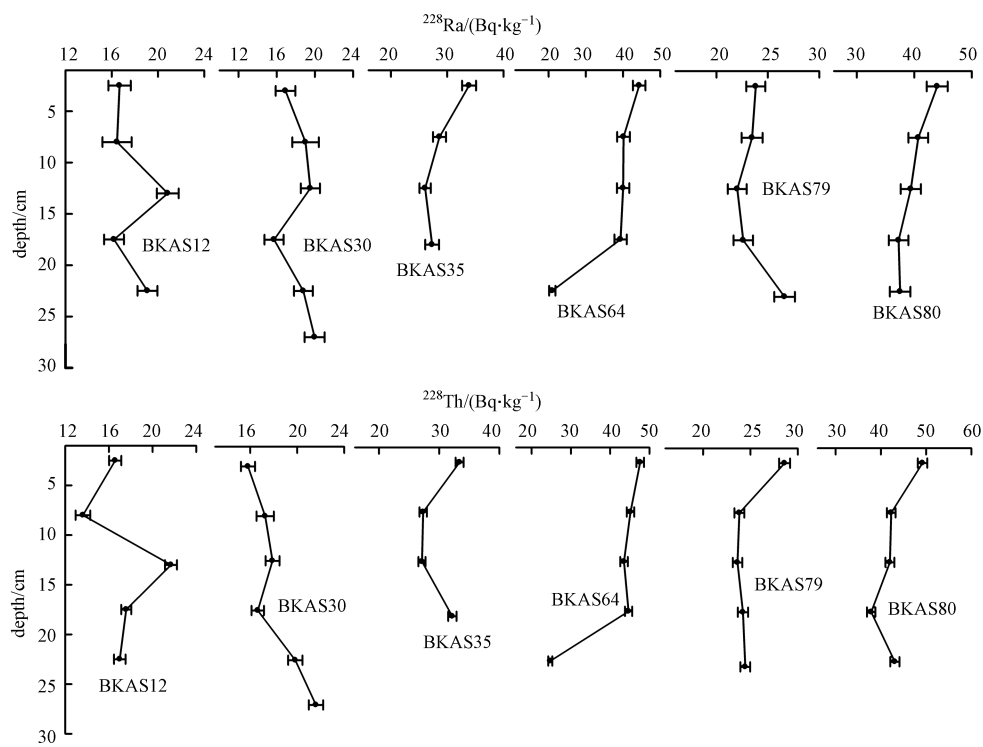


图 1 六个岩心的²²⁸Ra 和²²⁸Th 随深度的变化

Fig.1 Depth profile of the nuclides of ²²⁸Ra and ²²⁸Th

(1) 随深度的增加有一个微弱的增加趋势,但在中间深度处有一个突然减小的转折点的变化(BKAS12 和 BKAS30)。微弱的增加趋势可能反映出陆源碎屑和生物碎屑在不同深度沉积物中所占的比例发生了变化,沉积越早,生物碎屑有部分降解,对陆源碎屑带入的²²⁸Ra 和²²⁸Th 的稀释作用减弱^[3],造成了²²⁸Ra 和²²⁸Th 的比活度有微弱增加趋势,而中间深度处的突然减小则可能是该层段所对应的年代的水动力作用较活跃,从而造成沉积物²²⁸Ra 和²²⁸Th 的由沉积物向上覆水体扩散速率加快,导致沉积物中含量急剧减少^[22]。

(2) 随深度的增加呈现出逐渐减小的趋势,如 BKAS35、BKAS64、BKAS79 和 BKAS80 站位。但 BKAS64 和 BKAS79 两个岩心在最深层段出现较大的变化。两核素活度随深度的增加而逐渐减小,表明在沉积过程中,可能有少部分²²⁸Ra 通过间隙水进入水体,造成流失。而这活度在 BKAS64 第四层段有一个突然减小,可能是第四层段对应年代的水动力非常活跃,物理搅动加剧,同时低栖生物活动增大^[23],导致沉积物中的²²⁸Ra 通过再悬浮和扩散转移至上覆水体的量增大,因此²²⁸Ra 活度减少,其衰变产生的²²⁸Th 的含量也在该层段也随之减小;而 BKAS79 岩心中²²⁸Ra 活度在最深层段出现较大的增加趋势,可能是与该层沉积物中含有较多的铁锰等氢氧化物或有机物,使水体中的²²⁸Ra 被吸附后沉淀下来^[24],从而使得沉积物中²²⁸Ra 增加,但²²⁸Th 的含量没有增加,表明水体中的²²⁸Th 的含量本身比较低,铁锰等氢氧化物在沉淀过程中,载带²²⁸Th 的量较少,因此增加的趋势不明显。

3 结论(Conclusion)

(1) 用 γ 谱方法测定了南沙群岛及其邻近海域沉积物中放射性核素²²⁸Ra 和²²⁸Th 活度变化。²²⁸Ra 的放射性活度变化范围为(15.73±1.00) Bq·kg⁻¹至(44.35±1.69) Bq·kg⁻¹,平均值的变化范围为(17.86±0.98) Bq·kg⁻¹至(39.78±1.76) Bq·kg⁻¹; ²²⁸Th 的放射性活度变化范围为(13.62±0.67) Bq·kg⁻¹至(49.21±1.05) Bq·kg⁻¹,平均值的变化范围(17.30±0.55) — (42.89±0.99) Bq·kg⁻¹。

(2) 所测样品中²²⁸Ra 和²²⁸Th 基本达到了放射性平衡,没有明显的过剩²²⁸Th。

(3) 与其他海域比较,本研究海域的²²⁸Ra 和²²⁸Th 含量范围及平均值比其他大部分海域要稍低。

(4) ²²⁸Ra、²²⁸Th 的深度变化趋势为:一是随深度增加有 1 个微弱的增加趋势,但在中间深度处有 1 个突然减小的转折点(BKAS12 和 BKAS30);二是随深度的增加呈现出逐渐减小的趋势,但 BKAS64 和 BKAS79 两个岩心在最深层段出现较大的变化。

参考文献(References)

- [1] 刘广山,海洋放射年代学[M]. 厦门:厦门大学出版社,2016.
LIU G S. Marine geochronology. [M]. Xiamen: Xiamen University Press, 2016(in Chinese).
- [2] 王启栋,宋金明,李学刚,等. 昌邑滨海湿地沉积物的放射性核素水平与环境指示意义[J]. 环境科学, 2016, 37(8):3026-3033.
WANG Q D, SONG J M, LIU X G, et al. Distribution and environmental significances of radionuclides in the sediment of the Changyi Coastal Wetland[J]. Environmental Science, 2016, 37(8):3026-3033(in Chinese).
- [3] 刘广山,黄奕普,陈敏,等.南沙海区表层沉积物放射性核素分布特征[J]. 海洋科学, 2001, 25(8): 1-5.
LIU G S, HUANG Y P, CHEN M, et al. Distribution features of radionuclides in surface sediments of nansha sea areas[J]. Marine Sciences, 2001, 25(8): 1-5(in Chinese).
- [4] LIN W H, YU K F, WANG Y H, et al. Radioactive level of coral reefs in the South China Sea[J]. Marine Pollution Bulletin, 2019, 142: 43-53.
- [5] 陈俊畅,夏良树,麻卓然,等.南沙海域沉积物岩心中²³⁸U 和⁴⁰K 的测定及深度变化[J].环境化学,2018,37(5):968—973.
CHEN J C, XIA L S, MA Z R, et al. Determination of ²³⁸U and ⁴⁰K in sediment cores in Nansha sea area and their depth profiles[J]. Environmental Chemistry, 2018, 37(5):968-973(in Chinese).
- [6] 贾成霞,刘广山,徐茂泉,等.胶州湾表层沉积物放射性核素含量与矿物组成[J]. 海洋与湖沼,2003,34(5):490-498.
JIA C X, LIU G S, XU M Q, et al. Radionuclides and minerals in surface sediments of Jiaozhou Bay[J]. Oceanologia Et Limnologia Sinica, 2003, 34(5):490-498(in Chinese).
- [7] 李冬梅,刘广山,李超,等.厦海域沉积物放射性核素分布与沉积速率[J].台湾海峡, 2009, 28(3):336-342.
LI D M, LIU G S, LI C, et al. Radionuclide distribution in sediments and sedimentary rates in seas surrounding Xiamen[J]. Journal of Oceanography in Taiwan Strait, 2009, 28(3):336-342(in Chinese).

- [8] 赵峰,吴梅桂,周鹏,等.黄茅海-广海湾及其邻近海域表层沉积物中 γ 放射性核素含量水平[J].热带海洋学报,2015,34(4):77-82.
ZHAO F, WU M G, ZHOU P, et al. Radionuclides in surface sediments from Huangmaohai Estuary-Guanghai bay and its adjacent sea area, South China Sea of γ [J]. Journal of Tropical Oceanography, 2015, 34(4): 77-82 (in Chinese).
- [9] OMOKHEYEKE O, SIKOKI F, LAISSAOUI A, et al. Sediment geochronology and spatio-temporal and vertical distributions of radionuclides in the Upper Bonny Estuary (South Nigeria)[J]. Geochronometria, 2014, 41(4): 369-376.
- [10] PITTAUEROVÁ D, KIRCHNER G, GARBE-SCHÖNBERG D, et al. Radionuclides and recent sedimentation and mixing rates in Northern Gulf of Eilat/Aqaba, Red Sea[J]. Journal of Marine Systems, 2014, 139: 1-8.
- [11] 陈锦芳,刘广山,黄奕普,等.厦门潮间带表层沉积物天然放射系不平衡研究[J].台湾海峡,2005,24(3):274-282.
CHEN J F, LIU G A, HUANG Y P, et al. Disequilibrium of natural decay series in sediments of intertidal mudflats of Xiamen.[J]. Journal of Oceanography in Taiwan Strait, 2005, 24(3): 274-282 (in Chinese).
- [12] 李冬梅,徐茂泉,刘广山,等.福建兴化湾外近海沉积物岩石放射性核素分布[J].地球学报,2005,26(增刊):220-223.
LI D M, XU M Q, LIU G S, et al. The distribution of radionuclides in sediment cores from offshore area of Xinghua Bay[J]. Acta Geoscientia Sinica, 2005, 26(supplement): 220-223 (in Chinese).
- [13] 刘广山,黄奕普,陈敏,等.南海东北部表层沉积物天然放射性核素与 ^{137}Cs [J].海洋学报(中文版),2001,23(6):76-84.
LIU G S, HUANG Y P, CHEN M, et al. Specific activity and distribution of natural radionuclides and ^{137}Cs in surface sediments of the northeastern South China Sea [J]. Acta Oceanologica Sinica, 2001, 23(6): 76-84 (in Chinese).
- [14] PAPADOPOULOS A. $^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$ and $^{228}\text{Th}/^{228}\text{Ra}$ disequilibrium as weathering indices in beach sand sediments associated with granitoids from Cyclades, Greece[J]. Applied Geochemistry, 2019, 100: 223-233.
- [15] ZHOU P, LI D, LI H, et al. Distribution of radionuclides in a marine sediment core off the waterspout of the nuclear power plants in Daya Bay, northeastern South China Sea[J]. Journal of Environmental Radioactivity, 2015, 145: 102-112.
- [16] HIERRO A, BOLIVAR J P, VACA F, et al. Behavior of natural radionuclides in surficial sediments from an estuary impacted by acid mine discharge and industrial effluents in Southwest Spain[J]. Journal of Environmental Radioactivity, 2012, 110: 13-23.
- [17] 毛远意,林静,黄德坤,等.北部湾白龙半岛邻近海域沉积物中放射性核素含量水平[J].应用海洋学学报,2018,37(2):194-202.
MAO Y Y, LIN J, HUANG D K, et al. Radionuclides in the surface sediments along the coast of Bailong Peninsula in Beibu Gulf [J]. Journal of Applied Oceanography, 2018, 37(2): 194-202 (in Chinese).
- [18] BOTWE B O, SCHIRONE A, DELBONO I, et al. Radioactivity concentrations and their radiological significance in sediments of the Tema Harbour (Greater Accra, Ghana)[J]. Journal of Radiation Research and Applied Sciences, 2017, 10(1): 63-71.
- [19] DE CARVALHO F M, DA COSTA LAURIA D, RIBEIRO F C A, et al. Natural and man-made radionuclides in sediments of an inlet in Rio de Janeiro State, Brazil[J]. Marine Pollution Bulletin, 2016, 107(1): 269-276.
- [20] UDDIN S, BEHBEHANI M. Concentrations of selected radionuclides and their spatial distribution in marine sediments from the northwestern Gulf, Kuwait[J]. Marine Pollution Bulletin, 2018, 127: 73-81.
- [21] KUMAR A, KARPE R, ROUT S, et al. Spatial distribution and accumulation of ^{226}Ra , ^{228}Ra , ^{40}K and ^{137}Cs in bottom sediments of Mumbai Harbour Bay[J]. Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, 2013, 295(2): 835-839.
- [22] 陈敏,黄奕普,施文远,等.东沙群岛附近海域表层沉积物中的镭同位素[C]//台湾海峡及邻近海域海洋科学讨论会论文集.北京:海洋出版社,1995:208-216.
CHEN M, HUANG Y P, SHI W Y, et al. Radium isotopes in surface sediments of sea area near the Dongsha Islands[C]//Proceedings Of Symposium Of Marine Sciences In Taiwan Strait And Its Adjacent Waters. Beijing: China Ocean Press, 1995: 208-216 (in Chinese).
- [23] 黄奕普,施文远,林永革,等.中国近海沉积物中钍同位素的分布[J].台湾海峡,1991,10(4):302-314.
HUANG Y P, SHI W Y, LIN Y G, et al. Distribution of thorium isotopes in Chinese offshore sediments[J]. Journal of Oceanography in Taiwan Strait, 1991, 10(4): 302-314 (in Chinese).
- [24] 门武,刘广山,陈志刚,等.镭同位素在海洋学研究中的应用及进展[J].地球科学进展,2010,25(1):33-42.
WU M, LIU G S, CHEN Z G, et al. Progresses of radium isotopes applications to oceanography research [J]. Advances In earth Science, 2010, 25(1): 33-42 (in Chinese).