

DOI:10.7524/j.issn.0254-6108.2020040401

邓爽, 刘劲, 吴雨田, 等. 南沙海域沉积物²²⁶Ra和²¹⁰Pb的分布特征及环境意义[J]. 环境化学, 2021, 40(8): 2535-2543.

DENG Shuang, LIU Jing, WU Yutian, et al. Characteristics of distribution and environmental significance of ²²⁶Ra and ²¹⁰Pb in sediments in Nansha sea area[J]. Environmental Chemistry, 2021, 40 (8): 2535-2543.

南沙海域沉积物²²⁶Ra和²¹⁰Pb的分布特征及环境意义*

邓爽¹ 刘劲¹ 吴雨田¹ 肖静水¹ 刘广山² 李超² 彭安国¹**

(1. 南华大学核科学技术学院, 衡阳, 421001; 2. 厦门大学环境与生态学院, 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²²⁶Ra与²¹⁰Pb, 研究表明, ²²⁶Ra的活度变化范围为(8.81±0.96)—(38.51±0.73) Bq·kg⁻¹; ²¹⁰Pb的活度变化范围为(17.2±1.87) Bq·kg⁻¹至(143.28±3.31) Bq·kg⁻¹. ²²⁶Ra和²¹⁰Pb核素含量随岩心深度的增加总体上呈现不断减小的趋势, 但在其中两个站点, ²²⁶Ra的含量变化随着岩心深度增加先微弱增加, 然后再逐渐减小. 比较这6个岩心中²²⁶Ra与²¹⁰Pb的活度发现, ²²⁶Ra活度的变化范围相对较小, ²¹⁰Pb活度的变化范围相对较大, 且²²⁶Ra与²¹⁰Pb没有达到放射性平衡, 有着明显的过剩²¹⁰Pb(²¹⁰Pb_{ex}). 由岩心中²¹⁰Pb_{ex}的垂直分布计算了这6个岩心中的沉积速率, 其变化范围为0.270—0.652 cm·a⁻¹. 不同站位沉积速率的大小反映了陆源碎屑输入和生源碎屑输入对该海区沉积过程的影响. 同时, 在南沙海区复杂的生态系统中, 底栖生物的生物扰动和水流也是影响沉积环境特征的重要因素.

关键词 放射性核素, γ 能谱, 沉积物岩心, 沉积速率.

Characteristics of distribution and environmental significance of ²²⁶Ra and ²¹⁰Pb in sediments in Nansha sea area

DENG Shuang¹ LIU Jing¹ WU Yutian¹ XIAO Jingshui¹ LIU Guangshan²
LI Chao² PENG Anguo¹**

(1. School of Nuclear Science and Technology, University of South China, Hengyang, 421001, China; 2. College of the Environment and Ecology, Xiamen University, Xiamen, 361005, China)

Abstract The results of the determination of ²²⁶Ra and ²¹⁰Pb in six sediment cores from Nansha sea area by high-purity germanium (HPGe) γ spectrometry were as follows: the radioactivity of ²²⁶Ra ranged from(8.81±0.96)—(38.51±0.73) Bq·kg⁻¹; ²¹⁰Pb from(17.2±1.87)—(143.28±3.31) Bq·kg⁻¹. The activities of ²²⁶Ra and ²¹⁰Pb generally decreased with the depth. However, ²²⁶Ra activity was observed to increase with the depth in the upper sediment layer at two stations(BKAS12 and BKAS64). Comparing the activities of ²²⁶Ra and ²¹⁰Pb in these six cores, it was found that the range of ²²⁶Ra activity was relatively small and the range of ²¹⁰Pb activity was relatively large. At the same time, ²²⁶Ra and ²¹⁰Pb did not reach radioactivity balance, so there was obvious excess ²¹⁰Pb (²¹⁰Pb_{ex}). According to the vertical distribution of ²¹⁰Pb_{ex}, The sediment accumulation rate ranged from

2020年4月4日收稿(Received: April 4, 2020).

* 核燃料循环技术与装备湖南省协同创新中心开放基金(2019KFZ09), 湖南省教育厅项目(19A433, 12c0335)和湖南省大学生创新项目(S201910555097)资助.

Supported by Open Fund of Hunan Collaborative Innovation Center for Nuclear Fuel Cycle Technology and Equipment (2019KFZ09), Hunan Department of Education Project (19A433, 12c0335) and Innovation Project for College students in Hunan Province(S201910555097).

* * 通讯联系人 **Corresponding author**, Tel: 15211363618, E-mail: 12100858@qq.com

0.270—0.652 cm·a⁻¹ in the six cores. At different station, the magnitude of sediment accumulation rate could reflect the impact of terrestrial debris input or/and biogenic debris input during the sedimentation process. In addition, the bioturbation and water flow were also important factors affecting the characteristics of sedimentary environment in the complex ecosystem of Nansha sea area.

Keywords radionuclide, HPGe γ spectrometry, sediment core, sediment accumulation rate.

海底沉积物是记录海洋环境长期变迁、演化历史的档案馆. 通过对海底沉积物中放射性同位素的探究, 可以了解放射性核素在地球化学行为中扮演的角色. 比如: 通过放射性核素在沉积物岩心中的含量分布、深度变化, 可以了解洋流活动规律、沉积物的沉积速率和年代变迁^[1]. 同时以海底沉积物中的放射性同位素作为天然示踪剂, 也可研究海洋环境的化学演化过程和沉积物形成过程 (如物质的来源与迁移等)^[2]. 南沙海域地形特点为递次升高的 3 级阶梯, 由北向南走向依次可划分为深海盘、大陆坡、大陆架. 通过分析一些天然放射性核素在该海域沉积物中的变化规律, 可以对该海域的环境、地质、化学和生物等多方面的情况进行广泛而深入的探讨. 然而, 早期工作者对南沙海域的研究主要是围绕表层沉积物展开^[3-6], 对沉积物岩心的研究数据较为匮乏, 这导致了该海域的历史演化数据很难被系统描述.

²²⁶Ra 与 ²¹⁰Pb 都属于 ²³⁸U 衰变系列核素, 可以把 ²²⁶Ra 与 ²¹⁰Pb 看成一对母子体. 假定 ²²⁶Ra 与 ²¹⁰Pb 没有其他的输入和输出, 在两核素衰变达到了平衡后, 通过 ²²⁶Ra 与 ²¹⁰Pb 随深度的变化探知整个岩心在沉积过程中这 2 个核素是否存在额外的来源或者流失, 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. 沉积物岩心中的 ²¹⁰Pb 主要来源于两方面: 一个是沉积物自身含有的 ²²⁶Ra 衰变产生的 ²¹⁰Pb, 该部分 ²¹⁰Pb 经过一段时间后与沉积物中的 ²²⁶Ra 能够达到平衡; 二是沉积物自身之外的外部来源, 包括降水、尘埃沉降、海水中 ²¹⁰Pb 的清除等方式进入到沉积物中, 这部分 ²¹⁰Pb 称为过剩 ²¹⁰Pb (²¹⁰Pb_{ex})^[7-10]. 同时, 沉积物在沉降过程中, 部分 ²²⁶Ra 会通过沉积物间隙水进入水溶液中^[11]. 因此通过 ²²⁶Ra 与 ²¹⁰Pb 随岩心深度的变化, 可以探知这 2 个核素在整个岩心的沉积过程中是否存在额外的来源或者流失, 从而反映海洋环境的变迁和演化.

本实验用 HPGe γ 谱方法分别测定 6 个沉积物岩心不同层段中 ²²⁶Ra 和 ²¹⁰Pb 的含量, 阐明它们随深度变化的特征, 通过分析深度变化、²¹⁰Pb_{ex} 的沉积速率, 探讨岩心在沉积过程中的所在海域环境发生的变迁, 对南沙海域环境的变迁有着重要的指示意义.

1 实验部分 (Experimental section)

1.1 研究海域与岩心

本次实验在南沙海域取样 6 个岩心, 表 1 给出了每个取样岩心的详细信息. 该海区沉积物主要表现为钙质泥, 但在深海区沉积物和半深海区沉积物中, 岩心分别表现为灰色软泥与粉砂质泥. 本实验岩心长度在 21—29 cm 之间, 按间隔 4—6 cm 对每个样品进行切分, 用塑料袋封装.

表 1 岩心与样品基本信息

Table 1 Basic information of the core and sample

	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
表观性状	灰色软泥	粉砂	灰棕色软泥	粉砂质泥	粉砂质泥	粉砂质泥

1.2 样品测量方法

采集的样品用塑料袋封装, 在实验室晾干后磨细、混均、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 20 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, 测量时间根据相对误差小于 5% 的要求而定. 由于²²⁶Ra 发出的射线 186.2 keV(分支比 3.2%) 比较低, 且一般的 γ 谱仪不能将其与²³⁵U 发出的 γ 射线 185.7 keV(分支比 54%) 分开, 所以利用²²⁶Ra 子体²¹⁴Pb 和²¹⁴Bi 发出的 γ 射线. 其中, ²¹⁴Pb 的 γ 射线峰包括 241.9 keV(分支比 7.5%)、295.2 keV(分支比 19.1%)、351.9 keV(分支比 37.1%); ²¹⁴Bi 的 γ 射线峰包括 609.3 keV(分支比 46.1%)、1120.3 keV(分支比 15.0%)、1764.5 keV(分支比 15.9%)^[1]; 而²¹⁰Pb 利用其自身发出的 46.5 keV(分支比 4.0%) 的 γ 射线来测定. 本实验刻度源的制作方法同文献 [12].

2 结果与讨论 (Results and discussion)

2.1 ²²⁶Ra 活度分布

6 个岩心不同层位的样品中²²⁶Ra 的含量如表 2 所示, 变化范围为 $(8.81 \pm 0.96) \text{—}(38.51 \pm 0.73) \text{ Bq} \cdot \text{kg}^{-1}$. 从采样点的地理位置分布来看, 沉积物中²²⁶Ra 含量随着经纬度的变化没有明显的变化规律, 但随着采样点的水深变化而变化, 较深的海域含量较高, 较浅的海域含量较低. 并沿着水流方向 (即 BKAS80→BKAS64→BKAS35→BKAS12) 含量逐渐升高 (水流示意图如图 1^[13] 所示). 比较 4 个水深较浅的采样点 (BKAS30, BKAS64, BKAS79 和 BKAS80) 时发现: BKAS64 和 BKAS79 比 BKAS30 和 BKAS80 要略高, 说明 BKAS64 和 BKAS79 采集点可能会有其他的²²⁶Ra 来源, 且沿着洋流的方向对 BKAS64 和 BKAS79 采集点的²²⁶Ra 含量造成一定的影响, 而 BKAS30 和 BKAS80 可能没有来自大陆方向的额外输入来源, 或者相比之下没有像 BKAS64 和 BKAS79 站位的那种相对稍大的大陆额外输入来源, 同时水流方向对 BKAS64 和 BKAS79 的贡献相比 BKAS30 和 BKAS80 可能更大. 另外, 由于沉积物中²³⁰Th 的衰变是²²⁶Ra 的主要来源, 且海水中²²⁶Ra 很大部分是以溶解态存在, 在 BKAS30、BKAS64、BKAS79、BKAS80 采样点, 水越浅, 导致沉积物中溶解态的²²⁶Ra 迁移到上层水越多^[14], 更深层次的原因可能还需要分析沉积物组成、底层生物扰动及水动力变化过程等方面才能进一步得到结论.

表 2 六个岩心样品各核素含量 ($\text{Bq} \cdot \text{kg}^{-1}$)

Table 2 Nuclide contents of the six core samples ($\text{Bq} \cdot \text{kg}^{-1}$)

		层数(Interval)/cm					平均值 Mean
		0—5	5—11	11—15	15—20	20—24	
BKAS12	²²⁶ Ra	33.13±0.53	33.34±0.53	36.08±0.57	18.47±0.41	10.94±0.33	26.39±0.47
	²¹⁰ Pb	143.28±3.31	88.69±2.80	67.59±2.72	44.97±2.40	33.55±2.26	75.62±2.70
	²¹⁰ Pb _{ex}	110.15±3.84	55.35±3.33	31.50±3.29	26.50±2.81	22.61±2.59	49.22±3.17
	²¹⁰ Pb/ ²²⁶ Ra	4.32	2.66	1.87	2.43	3.07	2.87
		层数(Interval)/cm					平均值 Mean
		0—6	6—10	10—15	15—20	20—25	
BKAS30	²²⁶ Ra	15.19±0.733	13.23±0.74	12.41±0.57	12.95±0.58	13.57±0.58	13.27±0.64
	²¹⁰ Pb	87.38±3.17	77.68±2.68	65.96±2.46	46.83±2.24	41.87±2.01	59.75±2.42
	²¹⁰ Pb _{ex}	72.19±3.90	64.45±3.42	53.55±3.03	33.88±2.82	28.30±2.59	46.47±3.06
	²¹⁰ Pb/ ²²⁶ Ra	5.75	5.87	5.31	3.61	3.09	3.16
		层数(Interval)/cm				平均值 Mean	
		0—5	5—10	10—15	15—21		
BKAS35	²²⁶ Ra	38.51±0.73	24.40±0.93	21.49±0.57	21.24±0.92		26.41±0.79
	²¹⁰ Pb	133.54±3.37	71.10±2.84	54.20±2.71	45.62±2.83		76.12±2.94
	²¹⁰ Pb _{ex}	95.03±4.10	46.71±3.77	32.71±3.28	24.38±3.75		49.71±3.73
	²¹⁰ Pb/ ²²⁶ Ra	3.47	2.91	2.52	2.15		2.88

续表 2

		层数(Interval)/cm					平均值
		0—5	5—10	10—15	15—20	20—25	Mean
BKAS64	^{226}Ra	14.60±0.85	16.25±0.86	15.87±0.82	13.17±0.80	11.42±0.44	14.26±0.75
	^{210}Pb	72.33±4.03	43.22±3.55	30.14±3.46	26.78±3.19	18.05±1.81	38.10±3.21
	$^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$	57.72±4.88	26.96±4.41	14.27±4.28	13.61±3.99	6.63±2.25	23.84±3.96
	$^{210}\text{Pb}/^{226}\text{Ra}$	4.95	2.66	1.90	2.03	1.59	2.67
		层数(Interval)/cm					平均值
		0—5	5—10	10—15	15—20	20—26	Mean
BKAS79	^{226}Ra	22.20±0.53	14.44±0.50	13.48±0.50	10.65±0.47	9.38±0.49	14.03±0.50
	^{210}Pb	66.59±2.48	56.53±2.33	26.75±2.01	21.75±1.87	17.20±1.87	37.76±2.11
	$^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$	44.39±3.01	42.09±2.83	13.27±2.51	11.10±2.34	7.81±2.36	23.73±2.61
	$^{210}\text{Pb}/^{226}\text{Ra}$	3.0	3.9	1.98	2.04	1.83	2.69
		层数(Interval)/cm					平均值
		0—5	5—10	10—15	15—20	20—25	Mean
BKAS80	^{226}Ra	16.17±0.97	16.10±0.91	14.82±0.88	12.16±0.91	8.81±0.96	13.61±0.93
	^{210}Pb	93.69±4.34	50.71±3.72	34.83±3.75	21.29±3.52	17.30±3.59	43.56±3.78
	$^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$	77.52±5.31	34.61±4.63	20.01±4.63	9.12±4.43	8.48±4.55	29.95±4.71
	$^{210}\text{Pb}/^{226}\text{Ra}$	5.79	3.15	2.35	1.75	1.96	3.2

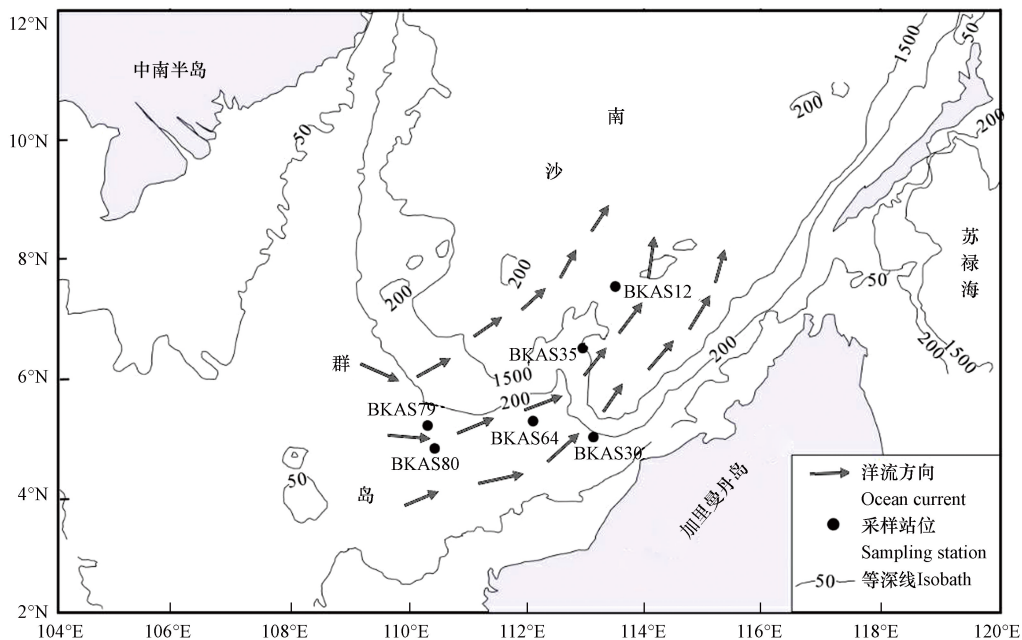


图 1 南沙群岛海区洋流示意图

Fig.1 Schematic diagram of ocean current in the sea area of Nansha Islands

在岩心中随深度变化特征如图 2 所示, 在 BKAS12, BKAS64 两个站位, ^{226}Ra 含量随着岩心深度的增加先是有个微弱的增加趋势, 但是在中间深度层段有一个减小的转折点, 随后含量逐渐减小; 在 BKAS30, BKAS35, BKAS79, BKAS80 站位, ^{226}Ra 核素含量随着深度的增加基本上呈现出不断减小的趋势. 微弱的增加趋势反映出 BKAS12, BKAS64 两个站位的沉积物在不同深度处, 陆源碎屑和生物碎屑所占份额存在有差别, 在沉积的某些层段, 有部分的生物碎屑可能流失, 导致了陆源碎屑输入的 ^{226}Ra 与 ^{210}Pb 的稀释作用变弱, 从而出现这两种核素的比活度有着些许的增加. 而逐渐减小的趋势除核素自身衰变外, 还需要进一步探讨水文学过程的影响, 在水动力过程较为活跃及生物扰动较强期间, 沉

积物中的²²⁶Ra 与²¹⁰Pb 核素向上覆水体扩散的速率加快, 损失较多, 也会是沉积物中核素含量逐渐减小的原因^[15].

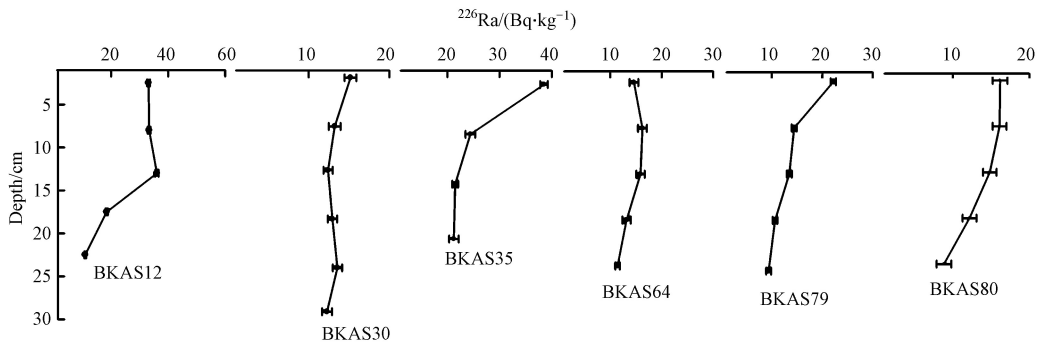


图 2 ²²⁶Ra 的深度变化

Fig.2 Vertical profiles of ²²⁶Ra

2.2 ²¹⁰Pb 活度分布

6 个不同站位的²¹⁰Pb 含量及随岩心深度的变化如表 2 和图 3, 其活度变化范围 (17.20 ± 1.87) — (143.28 ± 3.31) Bq·kg⁻¹. 比较 6 个岩心²¹⁰Pb 含量变化范围发现, BKAS12 与 BKAS35 变化范围比较大, BKAS30、BKAS64、BKAS79、BKAS80 变化范围相对较小. 从含量平均值来看, BKAS12、BKAS35 的²¹⁰Pb 含量平均值较高, 比 BKAS64、BKAS79 的²¹⁰Pb 含量平均值高出一倍左右. 由图 3 可知, 同一站位不同层位²¹⁰Pb 的活度随着岩心深度的增加, 呈现明显减小的梯度变化. 由于从大气中沉降的²¹⁰Pb_{ex} 伴随着降水与干湿沉降, 附着在悬浮颗粒中, 并随着悬浮颗粒逐渐沉积在水底, 本身已形成一个相对的封闭体系, 而非过剩的²¹⁰Pb(补偿²¹⁰Pb) 也会与其母体²²⁶Ra 到达平衡^[16]. 且沉降的²¹⁰Pb 与黏土矿物有着非常好的亲和力, 不会大量集中在有机物, 因此有机物中的分子扩散效应也不会引起²¹⁰Pb 的大量迁移^[17], 所以²¹⁰Pb 含量随着岩心深度增加而减少整体是由于²¹⁰Pb_{ex} 的衰变导致. 同时, 也要考虑到²¹⁰Pb 的化学迁移因素, 比如沉积物岩心中的非碳酸盐相 Pb 可能会转移到可溶性碳酸盐中, 再由空隙水产生了扩散迁移. 而且, 沉积物中的铁锰氧化物由于氧化还原反应而形成游离态, 导致依附在铁锰氧化物的²¹⁰Pb_{ex} 也会随着向上覆水体扩散^[18], 从而使得²¹⁰Pb 含量随岩心深度而减少. ²¹⁰Pb 的深度分布曲线表现为不稳定的沉积曲线, 这表明沉积物在沉积过程中, 该海域附近的沉积动力环境也发生了改变.

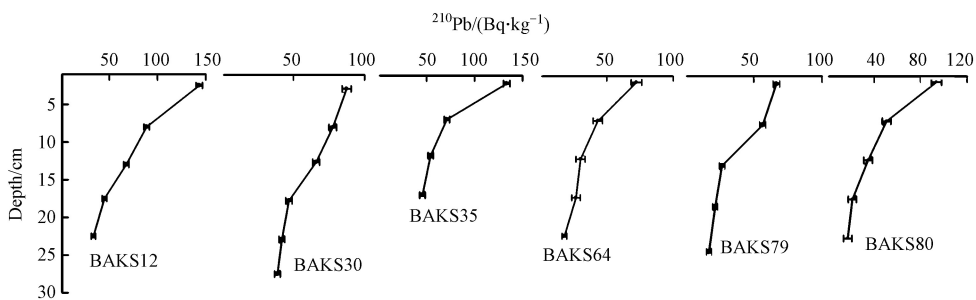


图 3 ²¹⁰Pb 的深度变化

Fig.3 Vertical profiles of ²¹⁰Pb

2.3 ²¹⁰Pb_{ex} 活度分布及沉积速率

除沉积物自身含有的²²⁶Ra 衰变产生的²¹⁰Pb 外, 大气沉降到水体中的²¹⁰Pb, 以及水体中²²⁶Ra 衰变产生的²¹⁰Pb, 与水体中的悬浮颗粒物质结合并随着颗粒物质沉积等额外来源, 共同构成了沉积物中过剩的²¹⁰Pb(²¹⁰Pb_{ex}). 比较 6 个岩心中²¹⁰Pb_{ex} 的含量发现(图 4), 较深水域下, BKAS12、BKAS35 两个岩心中²¹⁰Pb_{ex} 平均值较大; 较浅水域下, BKAS64、BKAS79、BKAS80 岩心²¹⁰Pb_{ex} 平均值相对较小. 但在较浅水域下的 BKAS30 站位, ²¹⁰Pb_{ex} 平均值却远高于接近深度下的 BKAS64、BKAS79、BKAS80 站位, 这与该站位靠

近加里曼丹岛沿岸,水深较浅,收到陆源输送的沉积物较多,导致了 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 的含量增加有关^[19].同时, $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 随站位的变化与 ^{210}Pb 随站位的变化基本一致,因此可以大致判断 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 含量随站位变化的主要影响因素是水流方向^[13]和站位的水深等.从同一岩心不同层位的变化来看,这6个站位的 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 含量随深度变化都是逐渐减小的,趋势非常明显,这和 ^{210}Pb 含量随深度的变化趋势基本一致,表明 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 主要是受到 ^{210}Pb 含量的影响而不是 ^{226}Ra 含量的影响.由于 ^{210}Pb 在沉积过程中,受到人类活动的干扰、底栖生物扰动和水动力学过程等很多因素的影响,沉积过程变得十分复杂,本实验通过沉积物在埋藏过程中压实作用的定量计算(压实校正),并利用多次迭代的方法^[20],计算出这6个岩心中的平均沉积速率($\text{cm}\cdot\text{a}^{-1}$)分别为0.385、0.652、0.357、0.306、0.326、0.270.比较这6个站位发现,BKAS30的沉积速率大于其他5个采样点,原因主要是该站位靠近加里曼丹岛,水深越浅,离岸越近, ^{210}Pb 经由河流、大气沉降最终进入到近岸沉积物的陆源输送越大,提高了沉积速率^[19].同时,我们利用CIC(恒定初始浓度模式),即假定 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 的比活度随着岩心深度的增加呈指数衰减模式,计算了6个岩心的沉积年代,得到如下结果:岩心BKAS12、BKAS30、BKAS35、BKAS64、BKAS79、BKAS80的沉积时间分别为62、44、59、82、80、93年.以本研究样品采集时间2014年作为时标,初步得到这6个岩心的沉积年代分别为1952年、1970年、1955年、1932年、1934年、1921年.

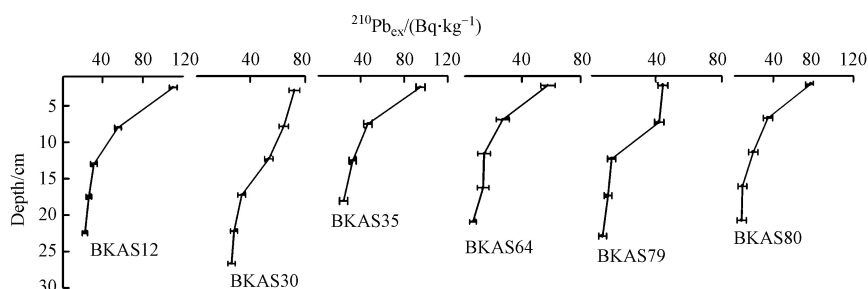


图4 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 的深度变化

Fig.4 Vertical profiles of $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$

2.4 $^{210}\text{Pb}/^{226}\text{Ra}$ 的比活度的比值

^{210}Pb 与 ^{226}Ra 都是来自于同一放射系(铀系)的核素,可以把 ^{210}Pb 与 ^{226}Ra 看成一对子母体,在整个铀系衰变链中, ^{226}Ra 的半衰期($T_{1/2}=1.6\times 10^3\text{a}$)远远大于 ^{210}Pb 的半衰期($T_{1/2}=22.26\text{a}$).由表2和图5中可知,本研究中 $^{210}\text{Pb}/^{226}\text{Ra}$ 的比活度比值的范围1.59—5.87之间,平均值为3.1.表明在实验误差允许范围内, ^{210}Pb 的含量远远高于 ^{226}Ra ,即所测的样品中,有着较高含量的 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 存在.样品中的一些层段出现 $^{210}\text{Pb}/^{226}\text{Ra}$ 的比活度的比值偏离平均值较大的情况,这与这两个核素化学性质的差异有关,同时,沉积物中 ^{210}Pb 与 ^{226}Ra 受到不同的物理过程、生物地球化学过程、生物扰动的影响,而且不同来源的 $^{210}\text{Pb}/^{226}\text{Ra}$ 活度比值本身也存在一定差别,因此 $^{210}\text{Pb}/^{226}\text{Ra}$ 活度比值可用于沉积物的物质来源判别和过程的示踪^[11,21-22].例如:生源沉积物和礁外陆源沉积物之间的差异,可用于指示人类活动引起的陆源物质输入增加(比如,河流输入、岛礁或者近岸的工程建设)对近岸珊瑚礁生态系统的影响^[23].

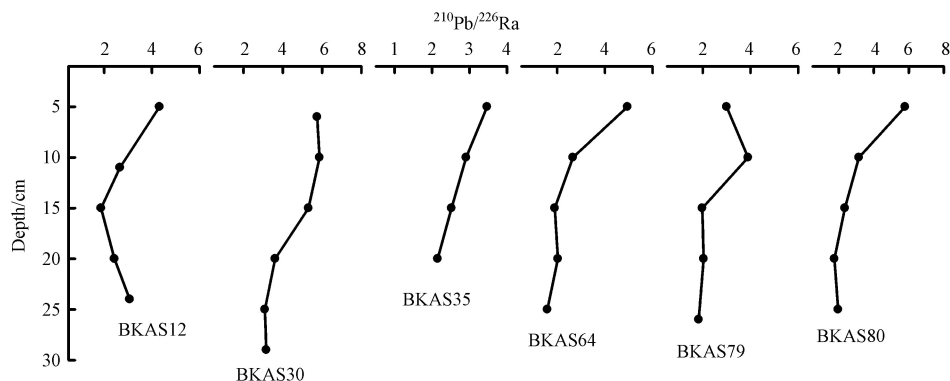


图5 垂直剖面的 $^{210}\text{Pb}/^{226}\text{Ra}$ 的比值

Fig.5 Vertical profiles of $^{210}\text{Pb}/^{226}\text{Ra}$ ratio.

2.5 ²²⁶Ra 与²¹⁰Pb 的活度与其他海域的比较

表 3 中列出了本研究海域²²⁶Ra 与²¹⁰Pb 的活度, 并与其他海域进行了对比. 发现本研究中, ²²⁶Ra 活度平均值接近于南海东北部^[25]、胶州湾表层^[27]、孟买港^[33] 等海域, 低于南沙海域表层^[24]、北部湾白龙半岛邻近海域^[29]、黄茅海广海湾^[28]、阳江核电站海域^[26], 高于红海海岸^[30]. 而²¹⁰Pb 活度平均值接近于南沙海区^[24]、胶州湾表层^[27], 低于南海东北部^[25]、阳江核电站^[26]、黄茅海广海湾海域^[29] 等, 高于孟买港^[33]、红海海岸^[30] 等海域.

表 3 不同海域岩心²²⁶Ra 和²¹⁰Pb 的含量范围与平均值 (Bq·kg⁻¹)

Table 3 The content and average value of ²²⁶Ra and ²¹⁰Pb in Core in different sea areas

站位Sea areas	²²⁶ Ra		²¹⁰ Pb		参考文献Reference
	范围Content	平均值Average	范围Content	平均值Average	
南沙海域	8.81—38.5	18.0	17.2—143	55.1	本文
南沙海区表层(海盆)	27.9—41.7	35.2	52.6—97.6	75.0	[24]
南海东北部	25.4—32.4	27.7	49.7—173	116	[25]
阳江核电站海域	32.6—38.6	35.2±2.0	86.9—148	127±14.0	[26]
胶州湾表层	20.6—44.1	26.5±3.30	50.0—70.0	61.0±13.0	[27]
黄茅海广海湾海域表层	32.0—48.7	36.6	96.2—147	123	[28]
北部湾白龙半岛邻近海域	10.3—51.8	32.4±9.4	10.4—184	89.2±41.2	[29]
The Red Sea coast(红海海岸)	2.10—5.08	3.03	3.50—16.3	8.60	[30]
Cubataˆo河口	28.0—80.0	56.0	84.0—213	160	[31]
The East Malaysia coastal	17.0—26.0	—	11.0—84.0	—	[32]
Mumbai Harbor Bay	16.3—26.3	22.2 ± 3.0	20.2—48.0	37.0±10.8	[33]

注: “—”代表没有数据.

Note: “—” means no data.

3 结论 (Conclusion)

(1) 用 HPGe 谱方法测定了 6 个来自南沙海域沉积物岩心的²²⁶Ra 与²¹⁰Pb, 并得到如下的结果:²²⁶Ra 的活度变化范围为 (8.81±0.96) Bq·kg⁻¹ 至 (38.5±0.73) Bq·kg⁻¹, 平均值的变化范围为 (13.2±0.64)—(26.4±0.79) Bq·kg⁻¹; ²¹⁰Pb 的活度变化范围为 (17.2±1.87)—(143±3.31) Bq·kg⁻¹, 平均值的变化范围为 (37.7±2.11)—(76.1±2.94) Bq·kg⁻¹. 通过²¹⁰Pb/²²⁶Ra 活度的比值发现, 所测样品中²²⁶Ra 与²¹⁰Pb 没有达到放射性平衡, 有着明显的过剩²¹⁰Pb(²¹⁰Pb_{ex}).

(2) 6 个岩心不同层位的²¹⁰Pb 与²²⁶Ra 活度随着岩心深度的增加而减小. 其中, 放射性核素衰变是主要原因, 此外, 由孔隙水产生的扩散转移、底层生物扰动以及水动力变化等也有影响. 需结合沉积物的来源和组成、沉积物沉积及再悬浮过程和水流方向及流速大小等诸多因素来做进一步的探讨.

(3) 利用²¹⁰Pb_{ex} 活度随着深度的下降趋势, 在压实校正的过程中使用多次迭代的方法, 并结合 CIC(恒定初始浓度模式), 由此计算出 6 个岩心的平均沉积速率和沉积年代, 1952—2014 年间, BKAS12 平均沉积速率为 0.385 cm·a⁻¹; 1970—2014 年间, BKAS30 平均沉积速率为 0.652 cm·a⁻¹; 1955—2014 年间, BKAS35 平均沉积速率为 0.357 cm·a⁻¹; 1932—2014 年间, BKAS64 平均沉积速率 0.306 cm·a⁻¹; 1934—2014 年间, BKAS79 平均沉积速率为 0.326 cm·a⁻¹; 1921—2014 年间, BKAS80 平均沉积速率为 0.27 cm·a⁻¹.

参考文献 (References)

[1] 刘广山, 黄奕普, 彭安国. 深海沉积物岩心铀放射系核素的γ谱测定 [J]. 台湾海峡, 2002(1): 86-93.

LIU G S, HUANG Y P, PENG A G. Measurement of actinium series radionuclides in deep sea sediment core using spectrometry [J].

- Journal of oceanography in Taiwan strait, 2002(1): 86-93(in Chinese).
- [2] 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).
- [3] 赵利, 蔡观强, 钟和贤, 等. 南海北部陆架海域表层沉积物地球化学特征及地质意义 [J]. 地质学刊, 2017, 41(1): 103-111.
ZHAO L, CAI G Q, ZHONG H X, et al. Geochemical characteristics and geological significance of surface sediments from the continental shelf waters of the northern South China Sea [J]. Journal of Geology, 2017, 41(1): 103-111(in Chinese).
- [4] 崔振昂, 林进清, 甘华阳, 等. 南海北部湾东部海域表层沉积物地球化学特征 [J]. 海洋科学, 2015, 39(7): 103-111.
CUI Z A, LIN J Q, GAN H Y, et al. Geochemical characteristics of surface sediments in the eastern Beibu Gulf of the South China Sea [J]. Marine Sciences, 2015, 39(7): 103-111(in Chinese).
- [5] 赵建如. 南海西北部表层沉积物元素地球化学空间多尺度变化与机制研究[D]. 武汉: 中国地质大学(武汉), 2016.
ZHAO J R. Study on spatial multi-scale variation and mechanism of element geochemistry of surface sediments in northwestern South China Sea[D]. Wuhan: China University of Geosciences (Wuhan), 2016(in Chinese).
- [6] 吴宗洋, 梁前勇, 蒋文敏, 等. 南海珠江口盆地西部海域海马冷泉区表层沉积物的生物标志物特征 [J]. 地球化学, 2019, 48(1): 88-99.
WU Z Y, LIANG Q Y, JIANG W M, et al. Biomarker characteristics of surface sediments in the hippocampal cold spring area in the western Pearl River Estuary Basin, South China Sea [J]. Geochemistry, 2019, 48(1): 88-99(in Chinese).
- [7] 胡春明, 李曜, 尤立, 等. 三门峡坝下河漫滩沉积物¹³⁷Cs、²¹⁰Pb计年研究 [J]. 人民黄河, 2017, 39(4): 62-65.
HU C M, LI Y, YOU L, et al. Study on ¹³⁷Cs and ²¹⁰Pb dating of floodplain sediments under Sanmenxia Dam [J]. Yellow River, 2017, 39(4): 62-65(in Chinese).
- [8] 王小雷, 杨浩, 顾祝军, 等. 不同营养湖泊沉积物中²¹⁰Pb_{ex}和营养盐垂向分布特征及相关性分析 [J]. 环境科学, 2014, 35(7): 2565-2571.
WANG X L, YANG H, GU Z J, et al. Vertical distribution characteristics and correlation analysis of ²¹⁰Pb_{ex} and nutrients in sediments of different nutrient lakes [J]. Environmental Science, 2014, 35(7): 2565-2571(in Chinese).
- [9] LI Y, LI J J, ARE K S, et al. Livestock grazing significantly accelerates soil erosion more than climate change in Qinghai-Tibet Plateau: Evidenced from ¹³⁷Cs and ²¹⁰Pb_{ex} measurements [J]. Agriculture, Ecosystems and Environment, 2019, 285(C): 1-8.
- [10] 胡菊芳, 沙占江, 马玉军, 等. ²¹⁰Pb_{ex}示踪法技术原理及其在土壤侵蚀中的应用 [J]. 盐湖研究, 2017, 25(1): 76-80.
HU J F, SHA Z J, MA Y J, et al. Technical principle of ²¹⁰Pb_{ex} Tracer method and its Application in soil erosion [J]. Journal of Salt Lake Research, 2017, 25(1): 76-80(in Chinese).
- [11] 林武辉, 余克服, 王英辉, 等. 海洋沉积过程的铀系放射性核素示踪技术: 物源识别、沉积、再悬浮 [J]. 海洋地质与第四纪地质, 2020, 40(1): 60-70.
LIN W H, YU K F, WANG Y H, et al. Tracer technique of uranium series radionuclides in marine sedimentary process: provenance identification, deposition and resuspension [J]. Marine geology and Quaternary Geology, 2020, 40(1): 60-70(in Chinese).
- [12] 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).
- [13] 蔡树群, 龙小敏, 陈荣裕, 等. 春季南沙群岛海区环流结构的探讨 [J]. 热带海洋学报, 2004, 23(2): 37-44.
CAI S Q, LONG X M, CHEN R Y, et al. A study on circulation structure in spring in Nansha islands sea area south China sea [J]. Journal of Tropical Oceanography, 2004, 23(2): 37-44(in Chinese).
- [14] 丁敏霞, 刘国卿, 苏玲玲, 等. 深圳近岸海域海水及沉积物中放射性核素水平 [J]. 核化学与放射化学, 2017, 39(6): 442-446.
DING M X, LIU G Q, SU L L, et al. Radionuclides in seawater and sediments from near-shore area of Shenzhen [J]. Journal of nuclear and radio chemistry, 2017, 39(6): 442-446(in Chinese).
- [15] 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//台湾海峡及邻近海域海洋科学讨论会论文集[C]. 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//Proceedings of Symposium of Marine Sciences in Taiwan Strait and its Adjacent Waters[C]. Beijing: China Ocean Press, 1995: 208-216(in Chinese).
- [16] 万国江. 现代沉积的²¹⁰Pb计年 [J]. 第四纪研究, 1997(3): 230-239.
WAN G J. ²¹⁰Pb dating of modern sediments [J]. Quaternary Sciences, 1997(3): 230-239(in Chinese).
- [17] 孙丽, 介冬梅, 濮励杰. ²¹⁰Pb、¹³⁷Cs计年法在现代海岸带沉积速率研究中的应用述评 [J]. 地理科学进展, 2007, 26(2): 67-76.
SUN L, JIE D M, PU L J. A Review of the Application of ²¹⁰Pb and ¹³⁷Cs dating methods in the study of sedimentation rate in Modern Coastal Zone [J]. Progress in Geography, 2007, 26(2): 67-76(in Chinese).
- [18] 徐经意, 万国江, 王长生, 等. 云南省泸沽湖、洱海现代沉积物中²¹⁰Pb、¹³⁷Cs的垂直分布及其计年 [J]. 湖泊科学, 1999, 11(2): 110-116.
XU J Y, WAN G J, WANG C S, et al. Vertical Distribution and dating of ²¹⁰Pb, ¹³⁷Cs in Modern sediments of Lugu Lake and Erhai Lake

- in Yunnan Province [J]. *Journal of Lake Sciences*, 1999, 11(2): 110-116(in Chinese).
- [19] 尹毅. 对海洋沉积物放射性调查工作的一点看法 [J]. 海洋通报, 1984, 3(1): 101-107.
YI Y. Some opinions on the radioactive investigation of marine sediments [J]. *Marine Science Bulletin*, 1984, 3(1): 101-107(in Chinese).
- [20] 许红昆, 林畅松. 沉积物压实的一种校正方法 [J]. *地学前缘*, 2000, 7(2): 366.
XU H K, LIN C S. A correction method for sediment compaction [J]. *Earth Science Frontiers*, 2000, 7(2): 366(in Chinese).
- [21] 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.
- [22] PAPAPOULOS A. ²²⁶Ra/²³⁸U and ²²⁸Th/²²⁸Ra disequilibrium as weathering indices in beach sand sediments associated with granitoids from Cyclades, Greece [J]. *Applied Geochemistry*, 2019, 100: 223-233.
- [23] 林武辉, 冯禹, 余克服, 等. 北部湾沉积物中放射性核素的分布特征与控制因素 [J]. 海洋学报, 2020, 42(2): 143-154.
LIN W H, FENG Y, YU K F, et al. Distribution characteristics and controlling factors of radionuclides in sediments of Beibu Gulf [J]. *Acta Oceanologica Sinica*, 2020, 42(2): 143-154(in Chinese).
- [24] 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).
- [25] 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¹³⁷Cs [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 ¹³⁷Cs in surface sediments of the northeastern South China Sea [J]. *Acta Oceanologica Sinica*, 2001, 23(6): 76-84(in Chinese).
- [26] 吴梅桂, 周鹏, 赵峰, 等. 阳江核电站附近海域表层沉积物中 γ 放射性核素含量水平 [J]. 海洋环境科学, 2018, 37(1): 43-47.
WU M G, ZHOU P, ZHAO F, et al. Content of γ radionuclides in surface sediments near Yangjiang Nuclear Power Station [J]. *Marine Environmental Science*, 2018, 37(1): 43-47(in Chinese).
- [27] 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).
- [28] 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).
- [29] 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).
- [30] SIRELKHATIM D A, SAM A K, HASSONA R K. Distribution of ²²⁶Ra-²¹⁰Pb-²¹⁰Po in marine biota and surface sediments of the Red Sea, Sudan [J]. *Journal of Environmental Radioactivity*, 2008, 99(12): 1825-1828.
- [31] SANDERS L M, SANDERS C J, LUIZ-SILVA W, et al. Patchineelam. Anthropogenic source assessment of ²²⁶Ra and ²¹⁰Pb in a sediment core from the Cubatão River estuary (SE Brazil) [J]. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 2011, 287(3): 729-732.
- [32] ZAL U'YUN WAN MAHMOOD, RAHIM MOHAMED C A, ISHAK A K, et al. Vertical distribution of ²¹⁰Pb and ²²⁶Ra and their activity ratio in marine sediment core of the East Malaysia coastal waters [J]. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 2011, 289(3): 953-959.
- [33] KUMAR A, ROUT S, KARPE R, et al. Inventory, fluxes and residence times from the depth profiles of naturally occurring ²¹⁰Pb in marine sediments of Mumbai Harbor Bay [J]. *Environmental Earth Sciences*, 2015, 73(8): 4019-4031.