

黄亚楠,刘志勇,管永精.中国典型柱样中 $^{239+240}\text{Pu}$ 的无峰分布与迁移模型[J].中国环境科学,2025,45(2):902-912.

Huang Y N, Liu Z Y, Guan Y J. Peakless distribution and migration model of $^{239+240}\text{Pu}$ in the typical Chinese core samples [J]. China Environmental Science, 2025,45(2):902-912.

中国典型柱样中 $^{239+240}\text{Pu}$ 的无峰分布与迁移模型

黄亚楠^{1,2*},刘志勇³,管永精⁴ (1. 南宁师范大学环境与生命科学学院, 广西 南宁 530001; 2. 中山大学海洋科学学院, 广东 珠海 519082; 3. 苏州大学放射医学与防护学院, 江苏 苏州 215123; 4. 广西大学物理科学与工程技术学院, 广西 南宁 530004)

摘要: 根据中国 45 根土壤柱样、35 根湖泊柱样和 32 根海洋柱样数据,发现土壤、湖泊和海洋环境中普遍存在一类典型的 $^{239+240}\text{Pu}$ 无峰分布的现象,并讨论了 $^{239+240}\text{Pu}$ 无峰分布的成因.结果表明:土壤柱样中 $^{239+240}\text{Pu}$ 的无峰分布主要有两种类型,第一种是 $^{239+240}\text{Pu}$ 比活度随着深度递增,第二种是 $^{239+240}\text{Pu}$ 比活度随着深度递减;利用对流扩散方程(CDE)模型模拟土壤柱样中 $^{239+240}\text{Pu}$ 的迁移行为时,表观对流速率与 $^{239+240}\text{Pu}$ 最大值深度呈现正相关关系($n=45$, $R^2=0.847$).湖泊和海洋沉积柱样中 $^{239+240}\text{Pu}$ 的无峰分布仅有一种类型: $^{239+240}\text{Pu}$ 比活度随着深度递减.同时,湖泊柱样沉积速率($n=35$, $R^2=0.921$)或海洋柱样中的最大表观对流速率($n=32$, $R^2=0.949$)与 $^{239+240}\text{Pu}$ 最大值深度也呈现正相关关系.无峰分布柱样中 $^{239+240}\text{Pu}$ 可交换态的最大表观对流速率(v_{max})在数值上与沉积速率(v)相当,并且最大表观对流速率不影响 $^{239+240}\text{Pu}$ 在柱样中的垂向分布特征.

关键词: $^{239+240}\text{Pu}$; 无峰分布; 对流扩散方程(CDE); 柱样; 中国

中图分类号: X142 文献标识码: A 文章编号: 1000-6923(2025)02-0902-11

Peakless distribution and migration model of $^{239+240}\text{Pu}$ in the typical Chinese core samples. HUANG Ya-nan^{1,2*}, LIU Zhi-yong³, GUAN Yong-jing⁴ (1.School of Environment and Life sciences, Nanning Normal University, Nanning 530001, China; 2.School of Marine Sciences, Sun Yat-sen University, Zhuhai 519082, China; 3.School of Radiation Medicine and protection, Soochow University, Suzhou 215123, China; 4.School of Physical Science and Technology, Guangxi University, Nanning 530004, China). *China Environmental Science*, 2025,45(2): 902-912

Abstract: Based on data from 45 soil cores, 35 lake sediment cores, and 32 sea sediment cores in China, this study found a type of $^{239+240}\text{Pu}$ peakless distribution cores in soil, lakes, and marine environments, and discussed their causes of $^{239+240}\text{Pu}$ peakless distribution. The results show that there were two main types of peakless distribution of $^{239+240}\text{Pu}$ in soil core samples: one that the $^{239+240}\text{Pu}$ specific activity increased with depth, and the other that the $^{239+240}\text{Pu}$ specific activity decreased with depth; when using a Convection Dispersion Equation (CDE) model to simulate the migration behavior of $^{239+240}\text{Pu}$ in soil cores, the apparent convection rate showed a positive correlation with the $^{239+240}\text{Pu}$ maximum depth ($n=45$, $R^2=0.847$). There was only one type of peakless distribution of $^{239+240}\text{Pu}$ in lake and ocean core samples: the $^{239+240}\text{Pu}$ specific activity decreased with depth. Meanwhile, the sedimentation rate of lake core samples ($n=35$, $R^2=0.921$) or the maximum apparent convection rate of marine core samples ($n=32$, $R^2=0.949$) also showed a positive correlation with the $^{239+240}\text{Pu}$ maximum depth. The maximum apparent convection rate of the exchangeable $^{239+240}\text{Pu}$ in the peakless distribution core sample was close to the sedimentation rate, and the maximum apparent convection rate didn't affect the vertical distribution of $^{239+240}\text{Pu}$ in the core sample.

Key words: $^{239+240}\text{Pu}$; peakless distribution; convection dispersion equation (CDE); core; China

自然环境中 $^{239+240}\text{Pu}$ 主要来源于20世纪全球大规模(543次)的大气核试验,核试验产生的放射性尘埃通过干湿沉降遍布于全球^[1]。 ^{239}Pu 和 ^{240}Pu 具有放射性毒性和长半衰期,可以通过食物链向生物体富集或者通过土壤向地下水中扩散迁移,对生物包括人类将构成潜在健康的危害.同时,放射性核素能够通过土壤向地下水中迁移^[2].利用柱样中 $^{239+240}\text{Pu}$ 的垂向分布特征,可以研究 $^{239+240}\text{Pu}$ 的迁移状况.目前,虽然中国土壤、湖泊和海洋等环境中已经较多研究

了 $^{239+240}\text{Pu}$ 柱样的垂向分布特征^[3-5],尤其是对沉积柱样中 $^{239+240}\text{Pu}$ 的有峰分布进行了深入的研究,这是湖泊和海洋中 $^{239+240}\text{Pu}$ 沉积定年的基础;但是对于不同环境柱样中一类典型的 $^{239+240}\text{Pu}$ 无峰垂向分布(图1)仍缺乏比较研究,尤其是应用 $^{239+240}\text{Pu}$ 迁移模型的探讨.所谓 $^{239+240}\text{Pu}$ 的无峰分布即 $^{239+240}\text{Pu}$ 的比

收稿日期: 2024-07-09

基金项目: 南宁师范大学博士科研启动项目(602021239517)

* 责任作者, 助理研究员, highttee@163.com

活度(mBq/g 或 mBq/m^3)随着柱样深度的增大而减少,或者随着柱样深度增大而增大的变化趋势^[5].理想状态下柱样中 $^{239+240}\text{Pu}$ 的无峰分布是符合指数分布的,例如,典型无扰动土壤柱样 $^{239+240}\text{Pu}$ 的垂向分布;但是实际环境中指数分布未必是 $^{239+240}\text{Pu}$ 的无扰动分布或者最优拟合分布模型^[6];如果分样过厚或者表层完全被侵蚀等,这些因素都将导致柱样中 $^{239+240}\text{Pu}$ 无峰分布的成因变得更加复杂.

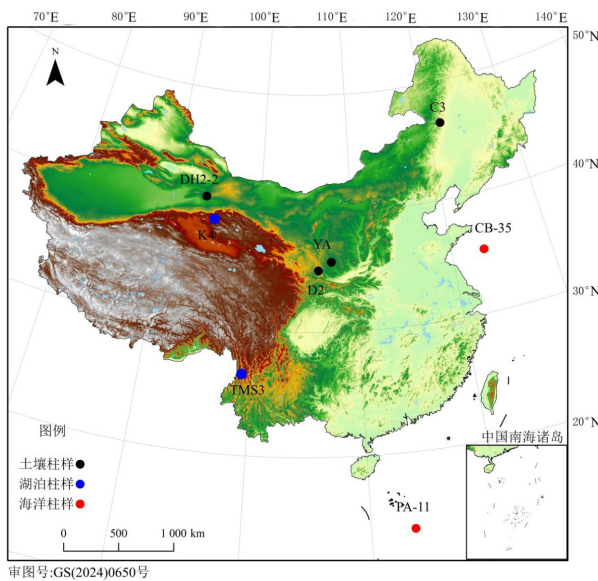


图1 中国环境中 $^{239+240}\text{Pu}$ 无峰分布的典型柱样站位
Fig.1 Peakless distribution of $^{239+240}\text{Pu}$ typical core in Chinese environment

全球大气沉降的 $^{239+240}\text{Pu}$ 进入土壤后,主要通过横向和垂向迁移.横向迁移主要是径流和侵蚀等作用的结果^[6].土壤柱样中 $^{239+240}\text{Pu}$ 的垂向分布与其在土壤中的垂向迁移密切相关. $^{239+240}\text{Pu}$ 的垂向迁移主要取决于土壤的物理和化学性质等^[6].表层有最大值的垂向分布表明土壤中 $^{239+240}\text{Pu}$ 无明显平流;表层下有最大值的垂向分布表明土壤中 $^{239+240}\text{Pu}$ 存在明显平流和扩散^[7].在 $^{239+240}\text{Pu}$ 横向迁移的研究中,未扰动土壤柱样中 $^{239+240}\text{Pu}$ 背景值是研究小区域内土壤侵蚀或迁移的重要参数^[8-9].在 $^{239+240}\text{Pu}$ 垂向迁移的研究中, $^{239+240}\text{Pu}$ 的无峰分布与对流扩散模型(CDE)的应用密切相关^[10].这是因为 $^{239+240}\text{Pu}$ 等核素沉降到地表后主要通过扩散和迁移的方式入渗到土壤中.扩散是浓度差导致的物质呈分子或离子态由高浓度处向低浓度处的自由运动.迁移是各种原因导致的物质在介质中的运移,如孔隙水、被吸

附的粘粒的迁移等^[11].对流扩散模型方程能够较好的描述非反应性溶质在多孔介质中的迁移规律^[7].假定全球大气核试验产生的 $^{239+240}\text{Pu}$ 瞬间沉降于无限厚且均质的土壤表面,其后垂直向下入渗(以扩散为主).均质和非均质的土壤垂向分布中,表层土壤中 $^{239+240}\text{Pu}$ 比活度(mBq/g)最大,或体积比活度(Bq/m^3)最大,向下呈指数衰减.由于这种较缓慢的迁移速率,模拟放射性核素在土壤中运动的模型通常不考虑非饱和带土壤水分的变化,而是通常假定平均含水量是恒定的^[12].再者,对于沉积过程大多用脉冲型输入函数来近似,并计算表观扩散系数和表观对流速率的有效值,通过将模型方程的解析解与放射性核素的实测深度分布拟合得到.假设柱样中放射性核素 $^{239+240}\text{Pu}$ 计算的沉积速率为 0,那么 $^{239+240}\text{Pu}$ 在柱样中的垂向分布完全由扩散或者下渗引起,并利用表观有效扩散系数(D_{eff})进行描述^[12].需要说明的是不同环境条件下(土壤、湖泊和海洋)不同核素(^{137}Cs 和 $^{239+240}\text{Pu}$)应用对流扩散模型的边界条件和参数存在一定差异.

虽然中国在新疆巴音郭楞^[13]、甘肃瓜州^[14]、内蒙古锡林郭勒^[15]、河北承德^[14]、浙江嘉兴^[16]和贵州贵阳^[14]等地利用 CDE 模型研究了土壤中 $^{239+240}\text{Pu}$ 核素的迁移,但是对于不同典型环境中 $^{239+240}\text{Pu}$ 无峰分布以及 CDE 模型应用仍缺乏比较研究.因此,本文以中国土壤、湖泊和海洋中典型柱样中 $^{239+240}\text{Pu}$ 无峰分布为例,集中探讨 $^{239+240}\text{Pu}$ 的无峰分布与其应用模型,厘清分别由扩散、淋溶或侵蚀等因素造成柱样中 $^{239+240}\text{Pu}$ 无峰分布的成因,以期为未来环境中放射性核素 $^{239+240}\text{Pu}$ 剖面分布与迁移的研究提供参考.

1 数据与模型

1.1 $^{239+240}\text{Pu}$ 的无峰分布柱样数据

根据中国 45 根土壤柱样、35 根湖泊柱样和 32 根海洋柱样数据,选取了 8 根 $^{239+240}\text{Pu}$ 无峰分布的典型柱样;这些柱样具有一定的随机性和代表性,符合抽样统计分析.首先是前人研究可知柱样所处的位置受到人为扰动的概率非常小^[8-9,17-22].其次是柱样表层的随机分样厚度为 0.5~2.5cm(表 1),表层的分样厚度不显著影响 $^{239+240}\text{Pu}$ 的垂向分布特征.最后是通过柱样中 $^{239+240}\text{Pu}$ 的存量或者沉积通量可以初步判断柱样受到扰动的情况.这 8 根典型 $^{239+240}\text{Pu}$ 无峰分布柱

样(图 1 和表 1),分别来自于中国陕西延安 YA 土壤柱样^[8]、甘肃庆阳 D2 土壤柱样^[9]、敦煌 DH2-2 土壤柱样^[17]、内蒙古兴安盟 C3 土壤柱样^[18]、云南黑农坡湖(云南省泸水县境内)TMS3 湖泊柱样沉积物^[19]、青海省海西蒙古族藏族自治州的克鲁克湖 K4 湖泊柱样沉积物^[20]、黄海陆架区的 CB-35 柱样沉积物^[21]以及

南海深海海盆区 PA-11 柱样沉积物^[22]。其中,只有 K4 和 CB-35 柱样同时研究了 ^{137}Cs 和 $^{239+240}\text{Pu}$ 两种放射性核素的垂向分布,其他柱样仅研究了 $^{239+240}\text{Pu}$ 的垂向分布。土壤柱样中 $^{239+240}\text{Pu}$ 分布通常主要由侵蚀、扩散与混合控制,在核试验以后假设新的 $^{239+240}\text{Pu}$ 在土壤沉积很少或者没有。

表 1 中国环境中 $^{239+240}\text{Pu}$ 无峰分布典型柱样数据信息

Table 1 Information of typical core samples with peakless distribution of $^{239+240}\text{Pu}$ in the Chinese environment

序号	柱样类型	站点	纬度(°N)	采样时间	柱长(cm)	分样间隔(cm)	$^{239+240}\text{Pu}$ (Bq/m ²)	参考文献
1	土壤柱样	YA	36.8	2017.7	38	2~5	66	[8]
2	土壤柱样	D2	35.7	n.a.	40	2~12	53.5±2.1	[9]
3	土壤柱样	DH2-2	40.1	2011.7	30	2~5	546±27	[17]
4	土壤柱样	C3	n.a.	2013~2016	35	2.5~5	n.a.	[18]
5	湖泊柱样	TMS3	26.1	2017	30	0.5~1	63.9±0.8	[19]
6	湖泊柱样	K4	37.3	2018.6	3g/cm ²	n.a.	2.5±0.2	[20]
7	海洋柱样	CB-35	33.5	n.a.	20	2	n.a.	[21]
8	海洋柱样	PA-11	15.5	1996~1997	14	1	3.75	[22]

注:n.a.表示无法获得。

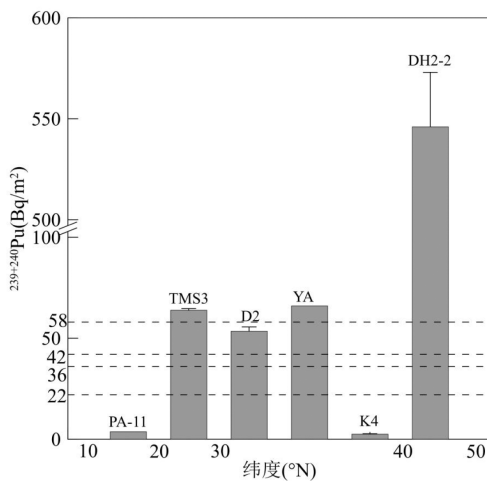


图 2 中国典型柱样中 $^{239+240}\text{Pu}$ 通量值与纬度沉降平均值的比较

Fig.2 Comparison of $^{239+240}\text{Pu}$ latitude flux values and measured inventories in typical Chinese core samples

没有受到侵蚀时的土壤柱样多数遵守自然地指数减小,可以用模型模拟。需要说明的是本文选取的湖泊和海洋柱样 $^{239+240}\text{Pu}$ 的无峰分布,因子样厚度没有达到分辨出 $^{239+240}\text{Pu}$ 峰值的概率极小,即使根据湖泊和海洋的沉积物堆积速率选取合适的子样时间分辨率进行分样,并发现接近沉积物表层的 $^{239+240}\text{Pu}$ 单峰分布,这种分布模式也与北半球 $^{239+240}\text{Pu}$ 的大气沉降特征相违背^[1]。因此,本文认为所

选取的湖泊和海洋典型柱样中 $^{239+240}\text{Pu}$ 的无峰分布不受当前子样分样厚度的影响。另外,如果分样厚度过大可能会导致 $^{239+240}\text{Pu}$ "伪无峰"分布现象的出现,这时 $^{239+240}\text{Pu}$ 的比活度与深度仍呈现出指数函数形式。例如,吉林长白山土壤(苔原带和草甸带)柱样发现了 $^{239+240}\text{Pu}$ 指数分布并且两者的相关性极其显著,推测可能与土壤分层厚度(10cm)过大有关^[23]。如果表层样品完全遭受侵蚀,也会出现上述的情况,但是柱样所处的环境与未扰动柱样的显著不同。例如,山西长治 3#土壤柱样中,土层中 $^{239+240}\text{Pu}$ 比活度是受到受山顶风力及雨水冲刷作用的影响^[24]。

具体而言,通过对全球大气核试验 $^{239+240}\text{Pu}$ 纬度沉降的平均值^[1,4]与典型柱样中 $^{239+240}\text{Pu}$ 的存量或者沉积通量(表 1)进行比较,可以初步判断所选取柱样受扰动的情况。本文选取的 8 根典型柱样所在纬度介于 10°~50°N,全球大气核试验 $^{239+240}\text{Pu}$ 纬度沉降的沉降平均值(图 2 中的横虚线)与不同纬度带柱样的个数分别为:10°~20°N(22Bq/m²)有 1 个柱样,20°~30°N(36Bq/m²)有 1 个柱样,在 30°~40°N(42Bq/m²)有 4 个柱样,在 40°~50°N (58Bq/m²)有 2 个柱样,其中 C3 柱样的具体纬度值并不清楚^[18]。土壤柱样 YA 和 D2 取样位置的土地利用类型分别为人迹罕至的草地和山坡林地,柱样中 $^{239+240}\text{Pu}$ 的存

量超出所在纬度大气沉降的平均值(42Bq/m^2),这两个柱样受到扰动的较小^[8-9].土壤柱样 DH2-2 取样位于林地土壤,柱样中 $^{239+240}\text{Pu}$ 的处于堆积且快速向下迁移的状态^[17],柱样中 $^{239+240}\text{Pu}$ 的存量是所在纬度大气沉降平均值(58Bq/m^2)的 9.4 倍(图 2).土壤柱样 C3 取样位置的土地利用类型为农用地,虽然不知道该柱样中 $^{239+240}\text{Pu}$ 存量的具体数值,但是通过柱样中 $^{239+240}\text{Pu}$ 的分布可知 $^{239+240}\text{Pu}$ 也处于快速向下迁移的状态,这与该柱样取样位置的土地利用类型是吻合的^[18].湖泊柱样 TMS3 和 K4 取样位置为天然成因湖泊.其中,TMS3 柱样由于受到雪山融水的补给,柱样中 $^{239+240}\text{Pu}$ 的沉积通量超出所在纬度大气沉降的平均值(36Bq/m^2),柱样受到人为扰动的影响较小;而 K4 柱样中 $^{239+240}\text{Pu}$ 的沉积通量远低于所在纬度大气沉降的平均值(42Bq/m^2).典型湖泊柱样沉积物中放射性核素的沉积通量大小受到取样位置的影响,通常越靠近湖泊中心其沉积通量值越低^[25].K4 取样时已经避开了人工渔业养殖区^[20],柱样受到人为扰动的概率较低,推测柱样中较低的 $^{239+240}\text{Pu}$ 沉积通量可能与取样位置离湖岸相对较远有关.对于海洋柱样 PA-11 取样位置位于南海海盆区,水深达 4234m,取样之前该柱样受到人为扰动的较小^[22].虽然该柱样中 $^{239+240}\text{Pu}$ 的沉积通量远低于该纬度带的平均值(22Bq/m^2),但是这仍与该区域的地球化学特征(寡营养盐且相对较低的悬浮颗粒

物)相吻合.另外,黄海 CB-35 虽然无法获取柱样中 $^{239+240}\text{Pu}$ 的沉积通量,但是从柱样中 $^{239+240}\text{Pu}$ 的分布来看,可以初步判断该柱样受到外界的扰动较小^[21].

假设放射性核素比活度随土壤深度呈简单的指数衰减,这仅适用于土壤没有平流迹象的情况.这种模型分布最早是研究加拿大魁北克北部区域土壤柱样中 ^{137}Cs 的分布^[6].对于土壤柱样中 ^{137}Cs 和 $^{239+240}\text{Pu}$,两者来源的一致性和分布相似,拟合方程(1)、(2)和(3)对于 $^{239+240}\text{Pu}$ 也是适用的.

$$C(z) = A \cdot e^{-B \cdot Z} \quad (1)$$

$$C(z) = A \cdot Z^{-B} \quad (2)$$

$$C(z) = A/(1 + B \cdot Z) \quad (3)$$

式中: C 表示土壤中 $^{239+240}\text{Pu}$ 的比活度, Bq/g ; Z 表示深度, cm ; A 和 B 表示拟合的参数.这 3 个方程只适用于表层土壤中地表以下无明显峰值的剖面^[6].因此,对中国典型环境(土壤、湖泊和海洋)样品中 $^{239+240}\text{Pu}$ 的无峰分布与深度的拟合,结果如表 2 所示.通过拟合发现 3 种分布模式都表现出一定的显著性,但是方程中的拟合优度并不一致,只有一种是最佳拟合.正是由于对流扩散等原因导致柱样中 $^{239+240}\text{Pu}$ 垂直分布的差异,才使得不同方程的拟合优度并不一致.需要说明的是在甘肃敦煌的 DH2-2 柱样和兴安盟农场 C3 柱样中指数模型中拟合出的参数 B 是小于 0 的,其他柱样的参数 B 是大于 0 的.

表 2 中国环境中 $^{239+240}\text{Pu}$ 与深度的相关关系

Table 2 The relationship between $^{239+240}\text{Pu}$ and depth in the Chinese environment

序号	名称	深度类型	$^{239+240}\text{Pu}$ 与深度的相关关系	R^2	n	分样间隔(cm)
1	YA	几何深度(cm)	$^{239+240}\text{Pu}=2.069/(1+1.615Z)$	0.963	15	2~5
2	D2	几何深度(cm)	$^{239+240}\text{Pu}=1.583Z^{-1.526}$	0.981	10	2~12
3	DH2-2	几何深度(cm)	$^{239+240}\text{Pu}=0.715/(1-0.026Z)$	0.955	9	2~5
4	C3	几何深度(cm)	$^{239+240}\text{Pu}=0.0676/(1+0.166Z)$	0.856	7	2.5~5
5	TMS3	几何深度(cm)	$^{239+240}\text{Pu}=60.372/(1+5.611Z)$	0.960	47	0.5~1
6	K4	质量深度(g/cm^2)	$^{239+240}\text{Pu}=0.540e^{-1.811Z}$	0.887	8	n.a.
7	CB-35	几何深度(cm)	$^{239+240}\text{Pu}=0.467e^{-0.198Z}$	0.948	10	2
8	PA-11	几何深度(cm)	$^{239+240}\text{Pu}=0.554/(1+1.251Z)$	0.861	13	1

1.2 对流扩散模型的应用

在利用 CDE 模型研究土壤柱样中 ^{137}Cs ($T_{1/2}=30.2\text{a}$)的垂向分布时,通常假设 ^{137}Cs 所在的土壤柱样是均匀分布的理想状态,其分布特征的模型方程和解析解分别为(4)和(5).首先是该模型仅适用于不

可渗透的上边界环境中(即只能从土壤表层向下扩散^[7]),这种模型在泥炭沼泽环境中 ^{137}Cs 的迁移研究中也得到了推广与应用^[26-27].该模型允许恒定的核素输入或与时间相关的核素输入,并允许通过沉积,生物扰动和扩散在沉积物中进行核素迁移.

$$\frac{\partial C}{\partial t} = D \frac{\partial^2 C}{\partial z^2} - v \frac{\partial C}{\partial z} - \lambda C \quad (4)$$

$$C(z,t) = \frac{C_0}{2\sqrt{\pi Dt}} \left[e^{-\frac{(z-vt)^2}{4Dt}} + e^{-\frac{(z+vt)^2}{4Dt}} \right] \quad (5)$$

式中: D 表示表观扩散系数或有效扩散系数, cm^2/a ; v 表示表观对流速率, cm/a ;分子扩散系数与有效扩散系数存在近似的换算关系^[7]; t 是放射性核素沉降到土壤中以来的时间; z 表示深度, cm ^[7].对流扩散模型的解析解(5)是一个近似解,这是因为式(4)代表了无限空间的模型溶液,在 $t=0$ 处输入的 $^{239+240}\text{Pu}$ 是在两个方向上移动^[2].

在利用 CDE 模型研究土壤柱样中 $^{239+240}\text{Pu}$ 的垂向分布时,由于放射性核素 ^{239}Pu 和 ^{240}Pu 的半衰期 ($T_{1/2}$) 分别为 24110a 和 6561a,其衰变常数趋近于 0,式(4)中的 λC 项是个极小项,所以方程为(6)和解析解(近似解)可以改写为(7). C 表示土壤中 $^{239+240}\text{Pu}$ 的浓度(Bq/cm^3); D 表示 $^{239+240}\text{Pu}$ 在土壤颗粒中的吸附强度;同样的, v 表示表观对流速率(cm/a).土壤中的放射性核素包含 2 个部分,可吸附态的 $^{239+240}\text{Pu}$ 与解析态的 $^{239+240}\text{Pu}$ ^[16].

$$\frac{\partial C}{\partial t} = D \frac{\partial^2 C}{\partial z^2} - v \frac{\partial C}{\partial z} \quad (6)$$

$$C(z,t) = \frac{C_0}{2\sqrt{\pi Dt}} e^{-\frac{(z-vt)^2}{4Dt}} \quad (7)$$

虽然在土壤中和泥沼中已经利用 CDE 模型研究 $^{239+240}\text{Pu}$ 的扩散和迁移,但是湖泊和海洋环境中不满足模型只在不透水的上边界应用的前提条件,在应用模型时要对于柱样中放射性核素的分布进行一些必要的理论假设^[19,27].沼泽土壤其性质仍为土壤而非沉积物^[28],可以利用 CDE 模型研究放射性核素的迁移.这时模型中的系数就变得更为复杂.然而,在研究湖泊柱样沉积物中 $^{239+240}\text{Pu}$ 等核素的迁移时,仍采用 CDE 模型(8)和解析解(9),该模型允许恒定的核素输入或随时间变化的输入,并允许放射性核素通过沉积、生物扰动和扩散在沉积物中进行迁移^[28].在湖泊沉积物的研究中利用 CDE 模型时,计算出的各参数的意义与土壤中的参数意义完全不同.

$$\frac{\partial C}{\partial t} = (D_{\text{eff}} \text{或} D_b) \frac{\partial^2 C}{\partial z^2} - s \frac{\partial C}{\partial z} \quad (8)$$

$$C(z,t) = \frac{C_0}{2\sqrt{\pi Dt}} e^{-\frac{(z-st)^2}{4Dt}} \quad (9)$$

2 结果与讨论

2.1 中国土壤柱样中 $^{239+240}\text{Pu}$ 的无峰分布

目前已经研究的土壤柱样中,陕西延安 YA 柱样^[8]和甘肃庆阳 D2 柱样^[9]表现出典型的 $^{239+240}\text{Pu}$ 无峰分布的特点(图 3).土壤样品中 $^{239+240}\text{Pu}$ 的比活度集中在 20cm 以浅的位置,在 20cm 以深 $^{239+240}\text{Pu}$ 的比活度趋近于 0.与之相反,甘肃敦煌 DH2-2 柱样^[17]和内蒙古兴安盟 C3 柱样^[18]也表现出非常特殊的无峰分布.柱样中 $^{239+240}\text{Pu}$ 的比活度集中在 20cm 以深的位置,表层土壤中 $^{239+240}\text{Pu}$ 的比活度相较于底层较低.需要说明的是 DH2-2 柱样和 C3 柱样 20cm 以深没有 $^{239+240}\text{Pu}$ 实测数据,根据现有的数据这两根柱样符合无峰分布的定义,但目前无法确定这两根柱样 $^{239+240}\text{Pu}$ 的最大值是否为峰值.

对于相同核素,利用相同模型(对流扩散迁移模型(CDE))研究迁移速率.首先,土壤柱样中 $^{239+240}\text{Pu}$ 的比活度随着深度的增大而减小.陕西延安 YA 柱样^[8]和甘肃庆阳 D2 柱样^[9]中 $^{239+240}\text{Pu}$ 无峰分布的主要成因是对流扩散引起的,利用 CDE 模型拟合 YA 柱样给出的表观扩散系数(D)值为 $(0.093 \pm 0.013) \text{cm}^2/\text{a}$;表观对流速率值(v)是 $(0.004 \pm 0.006) \text{cm}/\text{a}$ ^[8].D2 柱样由于缺少土壤样品中不同层位的容重(g/cm^3),可以将 $^{239+240}\text{Pu}$ 质量比活度(Bq/g)转化为 $^{239+240}\text{Pu}$ 体积比活度(Bq/cm^3)进行近似计算,然后根据模型拟合出表观对流速率(v),其值是 $(0.025 \pm 0.004) \text{cm}/\text{a}$ ^[30].其次,土壤柱样中 $^{239+240}\text{Pu}$ 的比活度随着深度的增大而增大, $^{239+240}\text{Pu}$ 呈现指数增大的变化趋势.例如,甘肃敦煌 DH2-2 柱样^[17]和内蒙古兴安盟农场 C3 柱样^[18].这种分布中没有发现 $^{239+240}\text{Pu}$ 底端,推测 $^{239+240}\text{Pu}$ 在柱样中的无峰分布可能与淋溶导致的 $^{239+240}\text{Pu}$ 快速迁移有关,根据 CDE 模型拟合出表观对流速率(v),其值为 $(0.447 \pm 0.066) \text{cm}/\text{a}$ ^[29];而 C3 柱样缺乏 $^{239+240}\text{Pu}$ 存量数据而无法计算.最后,对辽宁大连 DL-01 和 DL-02 土壤柱样中 $^{239+240}\text{Pu}$ 垂向分布的研究发现^[30],DL-01 柱样和 DL-02 柱样 $^{239+240}\text{Pu}$ 的表观对流速率值(v)分别是 $(0.106 \pm 0.013) \text{cm}/\text{a}$ 和 $(0.0281 \pm 0.0105) \text{cm}/\text{a}$.如果在同一小区内环境条件(降雨等因素)差异不大的情况下,且大连 DL-01 和 DL-02 柱样全部为未扰动的柱样,那么两个柱样中 $^{239+240}\text{Pu}$ 的垂向分布形态应该是基本一致

的,即 $^{239+240}\text{Pu}$ 的比活度与深度呈现指数分布并且最大值在表层.然而,DL-01 和 DL-02 柱样的 $^{239+240}\text{Pu}$ 分布与存量差异显著,并且 DL-01 柱样表观对流速率

率是 DL-02 柱样表观对流速率的 3.8 倍,这说明对流扩散与淋溶等因素在同一小区域环境中对土壤中 $^{239+240}\text{Pu}$ 核素的迁移影响的程度并不一致.

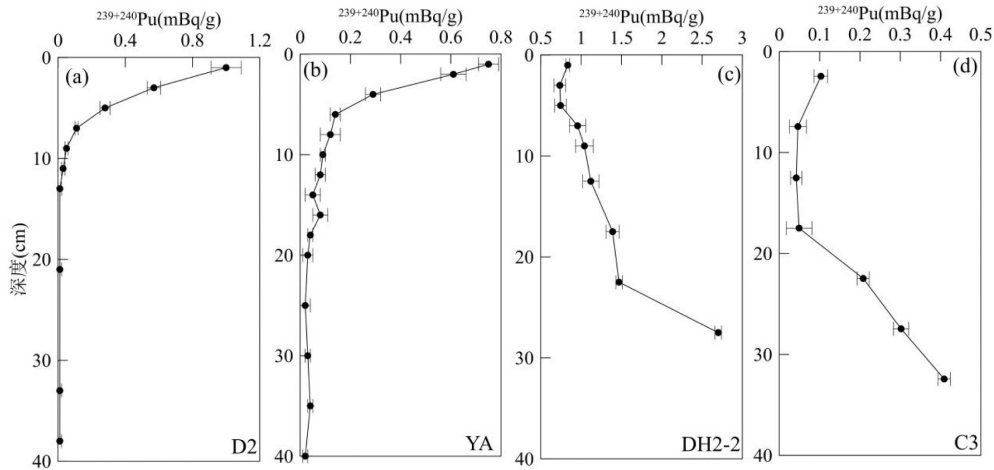


图3 土壤柱样中 $^{239+240}\text{Pu}$ 的无峰分布^[8-9,17-18]

Fig.3 Vertical distributions of $^{239+240}\text{Pu}$ in soil cores^[8-9,17-18]

目前中国土壤柱样中利用 CDE 模型研究了 ^{90}Sr 、 ^{137}Cs 、 $^{239+240}\text{Pu}$ 和 ^{237}Np 等核素的表观扩散系数和表观对流速率^[8,13-16,29].中国土壤样品中 $^{239+240}\text{Pu}$ 比活度峰值对流速率的范围是 $0.004\sim 0.473\text{cm/a}$ ^[13,29];最小值代表 $^{239+240}\text{Pu}$ 比活度最大值在表层,最大值代表 $^{239+240}\text{Pu}$ 比活度最大值在底层(图 4 虚线圆圈).整体上,中国已研究的 45 根土壤柱样中表观对流速率与 $^{239+240}\text{Pu}$ 比活度峰值深度呈现正相关的线性关系^[29],线性方程为 $Y=0.0152\times X+0.0304, n=45, R^2=0.847$.

对于相同核素,利用不同模型(隔室模型和对流扩散迁移模型(CDE))计算迁移速率的结果有差异.例如,贵州贵阳土壤柱样 $^{239+240}\text{Pu}$ 迁移速率分别为 0.23cm/a 和 0.104cm/a ;甘肃瓜州土壤柱样 $^{239+240}\text{Pu}$ 迁移速率分别为 0.23cm/a 和 0.187cm/a ^[13-14].同时,这两地 $^{239+240}\text{Pu}$ 迁移速率的差异也与土壤柱样的取样环境类型有关.贵阳柱样是森林土壤样品,土壤有机质含量为 11.3%;而瓜州柱样是沙漠土壤样品,土壤有机质含量为 5.8%.森林柱样是沙漠柱样有机质的 2 倍,鉴于有机质对于 $^{239+240}\text{Pu}$ 的吸附,理论上 $^{239+240}\text{Pu}$ 在森林柱样中的迁移速率要低于沙漠中的迁移速率.对于不同核素,利用相同模型计算出来的迁移速率也有差异.在对中国沿海核电厂周围某地土壤 ^{237}Np 和 $^{239+240}\text{Pu}$ 的研究中,发现 ^{237}Np 在土壤

中的迁移速率比 $^{239+240}\text{Pu}$ 快得多,部分 ^{237}Np 已经渗透到 30cm 以深的深层土壤层中^[16].

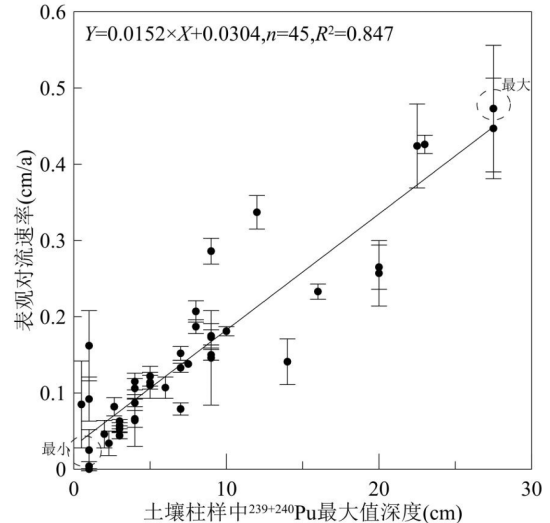


图4 土壤柱样中 $^{239+240}\text{Pu}$ 最大值深度与表观对流速率的关系^[29]

Fig.4 The relationship between depth of $^{239+240}\text{Pu}$ maximum value and v in Chinese soil cores^[29]

2.2 中国湖泊柱样中 $^{239+240}\text{Pu}$ 的无峰分布

目前中国湖泊样品中,云南黑农坡湖 TMS3 柱样沉积物^[19]和青海省德令哈地区克鲁克湖(柴达木盆地的东部,属于微咸性淡水湖)的 K4 柱样沉积物^[20]表现出典型的 $^{239+240}\text{Pu}$ 无峰分布特点(图 5).湖

泊沉积物中 ²³⁹⁺²⁴⁰Pu 的无峰分布不能利用其分布特点进行沉降定年.

利用放射性核素定年的一个最基本假设是,放射性核素一旦沉积在沉积物中就不可移动.在对加拿大安大略省肯诺拉区湖泊柱样沉积物中 ²³⁹⁺²⁴⁰Pu 的研究中发现,²³⁹⁺²⁴⁰Pu 是一种比 ¹³⁷Cs 更可靠的沉积物示踪剂,这是因为 ²³⁹⁺²⁴⁰Pu 的迁移能力要比 ¹³⁷Cs 小得多^[28].然而,放射性核素因为生物扰动而在柱样中发生移动,以及任何显著地扩散迁移都将违背其在湖泊沉积之后不可移动的假设.也有研究表明,在美国的新英格兰和斯堪的纳维亚的软水湖的沉积物中,利用 ¹³⁷Cs 定年是不可行的^[31].类似的研究表明青海湖和其他低沉积速率湖泊沉积物 ¹³⁷Cs 的垂向分布特征和一些无堆积非耕地土壤的非常相似.表层的扰动导致沉积物出现这种非正常的 ¹³⁷Cs 垂向分布特征,利用 ¹³⁷Cs 定年的断代价值不大^[11].同样的,邓彬彬等^[20]研究克鲁克湖明确指出 K4 柱样中 ²¹⁰Pb 的分布不能用于沉积定年.因此,K4 柱样中 ²³⁹⁺²⁴⁰Pu 和 ¹³⁷Cs 的分布并不属于沉积形成的分布,而对流扩散等因素是其分布的成因.

中国湖泊中发现的 ²³⁹⁺²⁴⁰Pu 无峰分布并非具有偶然性,相似地,²³⁹⁺²⁴⁰Pu 无峰分布在俄罗斯和法国的湖泊中也有发现^[32-33].例如,俄罗斯 Khuko 湖(43.94°N,39.80°E)^[32]以及法国的 Small 湖(44.12°N,

7.33°E)^[33],柱样中的分样间隔分别为 0.5cm 和 2cm.法国的 Small 湖柱样中 ²³⁹⁺²⁴⁰Pu 无峰分布与 TMS3 类似;俄罗斯 Khuko 湖柱样中 ²³⁹⁺²⁴⁰Pu 无峰分布与 K4 类似.如果是分样间隔过大导致了无峰分布,那么即使对表层样再进行细分,并发现了极表层所谓的"单峰",柱样中 ²³⁹⁺²⁴⁰Pu 分布模式与北半球 ²³⁹⁺²⁴⁰Pu 的沉降特征相违背.因此,湖泊柱样中 ²³⁹⁺²⁴⁰Pu 的无峰分布可能是一种普遍存在且特殊的现象.

湖泊沉积物中 ²³⁹⁺²⁴⁰Pu 无峰分布,本研究认为是湖泊极表层沉积物中 ²³⁹⁺²⁴⁰Pu 的对流扩散引起的(假设全球大气核试验沉降为脉冲式输入,仅在 1963 年沉降高峰期向湖泊输入绝大多数的 ²³⁹⁺²⁴⁰Pu 放射性尘).自然环境中,这种特殊的形成条件在高原高山湖泊或者雪溶性湖泊中易于发现.这是由于高海拔环境中大气稀薄,沉降到湖水中沉积物或者悬浮颗粒物极其稀少.理想状态下,全球大气核试验沉降的放射性核素直接全部富集于沉积底泥的极表层,这个极表层的厚度趋近于 0cm.例如,云南黑农坡湖是一个高山(海拔 3779m)狭窄的谷地形成的湖泊,除了降水的补给外,还有高山融雪水的补给^[19].沉积物中的 ²³⁹⁺²⁴⁰Pu 集中在最上层.该湖泊中 TMS3 柱样沉积物上部 4cm 层汇聚了 59% 的 ²³⁹⁺²⁴⁰Pu 沉积通量,尤其是 TMA 柱样沉积物上部 4cm 层集中了 94% 的 ²³⁹⁺²⁴⁰Pu 沉积通量^[19].

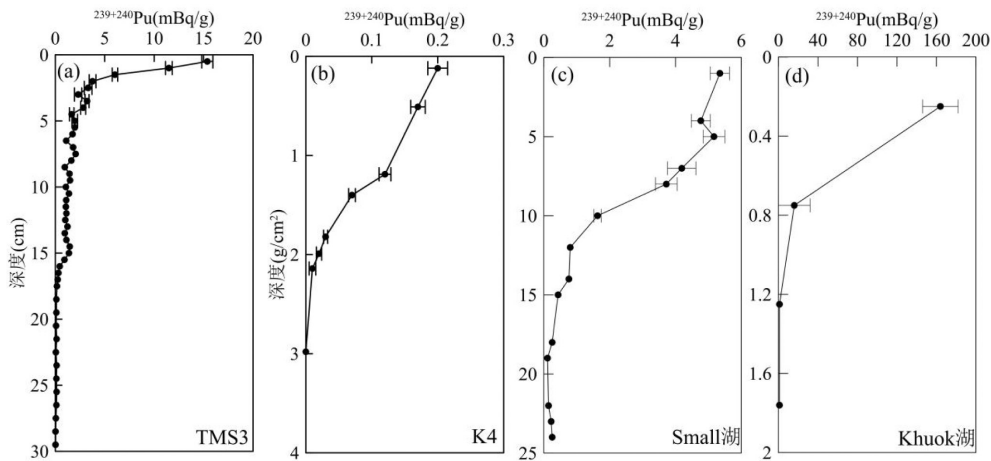


图 5 湖泊柱样中 ²³⁹⁺²⁴⁰Pu 的无峰分布^[19-20,32-33]

Fig.5 Vertical distributions of ²³⁹⁺²⁴⁰Pu in lake sediment cores^[19-20,32-33]

泥沙等物质裹挟放射性核素 ²³⁹⁺²⁴⁰Pu 的沉积速率与放射性核素 ²³⁹⁺²⁴⁰Pu 在泥沙中的迁移速率,虽然这两个速率的单位(cm/a)是一致的,但是其各自表示

的物理意义并不相同.Guo 等^[19]利用 CDE 模型(见公式(6)和(7))计算出的 TMA 和 TMS3 两个柱子中的 v 分别为 0.0315cm/a 和 0.059cm/a,而沉积速率分别为

0.03cm/a 和 "0"cm/a; 并不能与中国其他湖泊由于沉积形成的 $^{239+240}\text{Pu}$ 峰值计算的沉积速率相比较。再者, 计算 TMS3 柱样的 K_d 值为 $4.8 \times 10^3 \text{L/kg}$, 柱样中 K_d 的实测值比计算的 K_d 值小。沉积物中 $^{239+240}\text{Pu}$ 的 K_d 值越小, 放射性核素 $^{239+240}\text{Pu}$ 在沉积柱样中的流动性越大。然而, 文献[19]中指出 TMS3 柱样中 $^{239+240}\text{Pu}$ 的分布不是由对流扩散引起的, 进而推测是生物的扰动或者人为取样过程中导致的 $^{239+240}\text{Pu}$ 混合。显然, 这种解释是不合理的。相似地, Zhang 等^[35]利用 CDE 模型计算出 $^{239+240}\text{Pu}$ 在 XK08 柱样中的迁移速率为 $(0.22 \pm 0.02) \text{cm/a}$, 而沉积速率为 0.35cm/a 。本研究认为这两个湖泊柱样利用 CDE 模型是基于湖泊柱样中 $^{239+240}\text{Pu}$ 存在两种形态的假设, 一种是相对可交换态的 $^{239+240}\text{Pu}$, 另一种是相对不可交换态的 $^{239+240}\text{Pu}$ 。由于 $^{239+240}\text{Pu}$ 的相对可交换态只占 $^{239+240}\text{Pu}$ 形态的一部分, 所以利用 CDE 模型计算出来的表观对流速率 $v(\text{cm/a})$ 并不等价于相对可交换态 $^{239+240}\text{Pu}$ 的表观对流速率, 而是等同于最大表观对流速率 (v_{max})。目前, 数据表明在数值上最大表观对流速率不大于以 $^{239+240}\text{Pu}$ 为时标的沉积速率; 所以本文推测在湖泊柱样中 $^{239+240}\text{Pu}$ 的对流扩散, 不会影响 $^{239+240}\text{Pu}$ 在柱样中的分布特征或者峰值的位置深度, 有峰柱样中 $^{239+240}\text{Pu}$ 最大表观对流速率的理论计算完全可以忽略。

另外, 虽然吉林四海龙湾湖 SHLW 柱样 $^{239+240}\text{Pu}$ 中出现了单峰, 但是单峰呈现 "拖尾" 分布的现象^[35]。有研究表明 pH 值和氧化态的变化使得 $^{239+240}\text{Pu}$ 在某些沉积物中的流动性也相应产生变化^[36]。 $^{239+240}\text{Pu}$ 在沉积物中迁移会导致其再分配, 进而影响其在湖泊年代学中的应用。目前尚不清楚四海龙湾湖沉积物的地球化学性质, 很难估计 $^{239+240}\text{Pu}$ 在该湖泊沉积物中的再迁移程度。与 SHLW 柱样不同的是, 贵州红枫湖 HF20040709S 柱样^[37]和洞庭湖 E9 柱样^[38]中 $^{239+240}\text{Pu}$ 单峰呈现 "无尾" 分布的现象。红枫湖是个人工湖, 20 世纪 50 年代末期才蓄水成湖, 湖底沉积物在 1960 年前后才有 $^{239+240}\text{Pu}$ 的存在, 所以柱样中 $^{239+240}\text{Pu}$ 的分布出现以峰值为中心上下极不对称的现象。洞庭湖 E9 柱样位于河口通道, 受到泥沙快速淤积影响柱样中 $^{239+240}\text{Pu}$ 垂直分布未取到可探测的最大深度^[38]; 同时, E9 柱样与 E8 柱样有着相似的沉积环境和类似分布。整体上, 中国湖泊样品中 $^{239+240}\text{Pu}$

比活度峰值时标计算出的沉积速率的范围是 $0.00 \sim 2.18 \text{cm/a}$ ^[38-39], 需要说明的是湖泊柱样中 $^{239+240}\text{Pu}$ 比活度最大值在表层, 计算出的沉积速率定义为 "0"cm/a (图 6 虚线圆圈); 并且沉积速率与 $^{239+240}\text{Pu}$ 比活度峰值 (1963 ± 1) 深度呈现正相关的线性关系^[39], 线性方程为 $Y=0.0313 \times X-0.0774, n=35, R^2=0.921$ 。

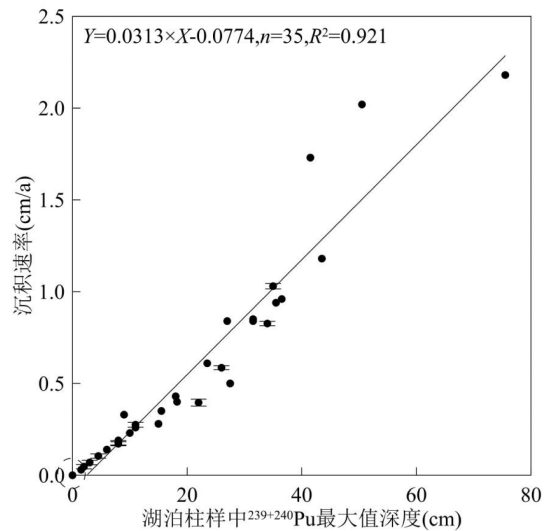


图 6 湖泊柱样中 $^{239+240}\text{Pu}$ 最大值深度与沉积速率的关系^[39]
Fig.6 The relationship between depth of $^{239+240}\text{Pu}$ maximum value and v in lake sediment cores^[39]

2.3 中国海洋柱样中 $^{239+240}\text{Pu}$ 的无峰分布

目前在中国海域中, 黄海 CB-35 柱样沉积物^[21]、东海 C67 柱样沉积物^[40]和南海 PA-11 柱样沉积物^[22]中发现了典型的 $^{239+240}\text{Pu}$ 无峰分布 (图 7)。中国近海不同海域中出现了相似分布, 这绝非偶然。研究发现 PA-11 柱样表观对流速率 v 是 $(0.00 \pm 0.10) \text{cm/a}$ ^[27] (图 8 虚线圆圈); 这表明沉积柱样中 $^{239+240}\text{Pu}$ 的对流扩散极为缓慢。本研究认为这也是基于海洋柱样中 $^{239+240}\text{Pu}$ 存在两种形态的假设, 与湖泊中 $^{239+240}\text{Pu}$ 的扩散理论分析基本一致 (2.2 节)。再者, 海洋沉积过程中伴随着扰动存在, 相较于土壤的扰动更加显著。因此, 海洋柱样中 $^{239+240}\text{Pu}$ 无峰分布应用 CDE 模型时受到限制, 模型中需要增加扰动项等^[41]。黄海 CB-35 柱样 (水深 64m) 和南海 PA-11 柱样 (水深 4234m) 中 $^{239+240}\text{Pu}$ 无峰分布推测是扩散成因, 或者是沉积混合成因, 也或者扩散与沉积混合的双重成因或多重成因^[5]。例如, 在对黄海柱样沉积物 CB-35 的研究中同时测定了 ^{210}Pb 的数据^[21], 在不同

的混合速率的条件下($S=0\text{cm/a}$ 和 $S=0.1\text{cm/a}$),分别计算出的混合扩散系数 D_b 值也不同,分别为 $1.4\text{cm}^2/\text{a}$ 和 $0.7\text{cm}^2/\text{a}$.在苏禄海 PA-1 柱样中, $^{239+240}\text{Pu}$ 在沉积物柱中的垂向迁移是受到“扩散型”混合机制控制,

这与苏禄海深海环境中的低生物活动性相一致.在南海 PA-11 柱样中的 $^{239+240}\text{Pu}$ 已被生物优先通过洞穴和“扩散型”混合运输至更深的埋藏深度,从而导致 $^{239+240}\text{Pu}$ 穿透深度比计算值更深^[21].

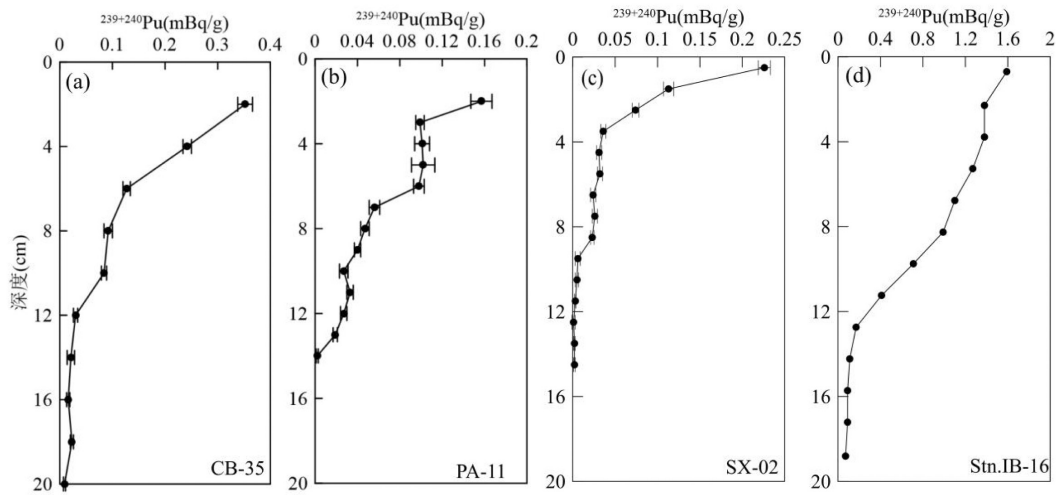


图7 海洋柱样中 $^{239+240}\text{Pu}$ 的无峰分布^[21-22,42-43]

Fig.7 Vertical distributions of $^{239+240}\text{Pu}$ in ocean sediment cores^[21-22,42-43]

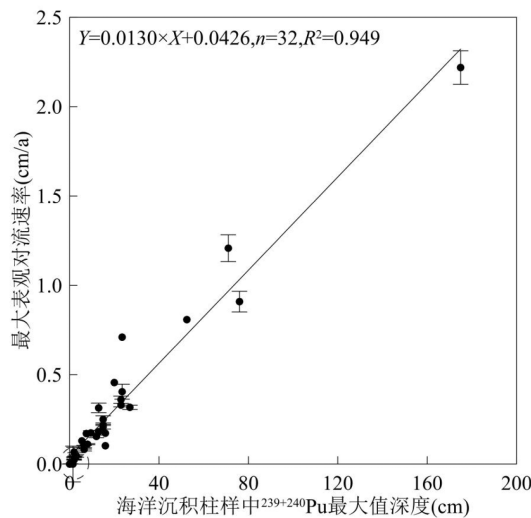


图8 海洋柱样中 $^{239+240}\text{Pu}$ 最大值深度与最大表观对流速率的关系

Fig.8 The relationship between depth of $^{239+240}\text{Pu}$ maximum value and v_{max} in sea sediment cores

相似地, $^{239+240}\text{Pu}$ 无峰分布在西太平洋海盆和日本近岸海域中也有发现^[42-43].例如,美拉尼西亚海盆 SX-02 柱样(水深 2080m;0.66°S,157.51°E)^[42] 和 Stn.IB-16 柱样(水深 566m; 36.99°N, 141.66°E)^[43],柱样中的分样间隔分别为 1cm 和 1.5cm.如果是分样间隔过大导致了无峰分布,那么即使对表层样再进行

细分,并发现了极表层所谓的“单峰”,柱样中 $^{239+240}\text{Pu}$ 分布模式也与北半球 $^{239+240}\text{Pu}$ 的沉降特征相违背.因此,太平洋美拉尼西亚海盆和日本近岸海域柱样中都发现的 $^{239+240}\text{Pu}$ 无峰分布是在海洋环境中一种普遍存在的且极为特殊的分布模式.整体上,中国已研究的32根海洋沉积物柱样中 $^{239+240}\text{Pu}$ 分布拟合出的最大表观对流速率 (v_{max}) 的范围是 $0.00\sim 2.219\text{cm/a}$ ^[27],并且最大表观对流速率 (v_{max}) 与 $^{239+240}\text{Pu}$ 比活度(1963 ± 1)峰值深度呈现正相关的线性关系,线性方程为 $Y=0.0130\times X+0.0426, n=32, R^2=0.949$.

3 结论

3.1 中国土壤、湖泊和海洋柱样中普遍存在一类 $^{239+240}\text{Pu}$ 无峰分布的柱样,这与柱样中 $^{239+240}\text{Pu}$ 的有峰分布存在明显差异.土壤柱样中 $^{239+240}\text{Pu}$ 的无峰分布有两种类型,而湖泊或海洋柱样中 $^{239+240}\text{Pu}$ 的无峰分布仅有一种类型.

3.2 中国土壤柱样 $^{239+240}\text{Pu}$ 的表观对流速率与 $^{239+240}\text{Pu}$ 最大值深度呈现正相关关系.而在湖泊或者海洋柱样中可交换态 $^{239+240}\text{Pu}$ 的最大表观对流速率 (v_{max})与沉积速率(v)在数值上相当,并且该速率不影

响 $^{239+240}\text{Pu}$ 在柱样中的垂向分布特征.

3.3 中国土壤($n=45$)、湖泊($n=35$)和海洋($n=32$)柱样中表观对流速率或者沉积速率与柱样中 $^{239+240}\text{Pu}$ 峰值深度呈现显著正相关的线性关系,皮尔森相关性系数(R^2)分别为:0.847、0.921 和 0.949.

参考文献:

- [1] UNSCEAR. Sources and effects of ionizing radiation. Report to the general assembly, with scientific annexes. Volume II: effects. United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation, United Nations [M]. New York, 2000.
- [2] Bossew P, Kirchner G. Modelling the vertical distribution of radionuclides in soil. Part 1: the convection–dispersion equation revisited [J]. *Journal of Environmental Radioactivity*, 2004,73(2): 127–150.
- [3] 黄亚楠,潘少明,肖智,等.中国表层土壤中 $^{239+240}\text{Pu}$ 的空间分布与变异性研究 [J]. *中国环境科学*, 2020,40(6):2554–2564.
Huang Y N, Pan S M, Xiao Z, et al. Spatial distribution and variability of $^{239+240}\text{Pu}$ in surface soil of China [J]. *China Environmental Science*, 2020,40(6):2554–2564.
- [4] 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 Y N, Pan S M, Liu Z Y. The source and distribution characteristic of $^{239+240}\text{Pu}$ in sediment cores of Chinese lakes [J]. *Scientia Geographica Sinica*, 2018,38(3):437–447.
- [5] 黄亚楠,潘少明.中国边缘海柱样沉积物中 $^{239+240}\text{Pu}$ 的分布与时标价值 [J]. *中国环境科学*, 2020,40(3):1235–1245.
Huang Y N, Pan S M. The dating and distribution of $^{239+240}\text{Pu}$ in the sediment cores of the marginal sea of China [J]. *China Environmental Science*, 2020,40(3):1235–1245.
- [6] Blagoeva R, Zikovskiy L. Geographic and vertical distribution of Cs-137 in soils in Canada [J]. *Journal of Environmental Radioactivity*, 1995,27(3):269–274.
- [7] Smith J T, Elder G D. A comparison of models for characterizing the distribution of radionuclides with depth in soils [J]. *European Journal of Soil Science*, 1999,50:295–307.
- [8] Cao L G, Zhou Z C, Wang N, et al. Vertical distribution and migration of plutonium in the Loess Plateau, North Shaanxi, China [J]. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 2019:1–6.
- [9] Zhang W C, Xing S, Hou X L. Evaluation of soil erosion and ecological rehabilitation in Loess Plateau region in Northwest China using plutonium isotopes [J]. *Soil and Tillage Research*, 2019,191: 162–70.
- [10] 伏介雄,张信宝,齐永青,等.无侵蚀非农耕地土壤 ^{137}Cs 深度分布入渗过程模型 [J]. *核技术*, 2006,29(3):189–193.
Fu J X, Zhang X B, Qi Y Q, et al. Penetration process model for ^{137}Cs depth distribution in uncultivated soil without erosion [J]. *Nuclear Techniques*, 2006,29(3):189–193.
- [11] 张信宝,龙翼,文安邦,等.中国湖泊沉积物 ^{137}Cs 和 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 断代的一些问题 [J]. *第四纪研究*, 2012,32(3):430–440.
Zhang X B, Long Y, Wen A B, et al. Discussion on applying ^{137}Cs and $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ for lake sediment dating in China [J]. *Quaternary Sciences*, 2012,32(3):430–440.
- [12] Kirchner G, Strebl F, Bossew P, et al. Vertical migration of radionuclides in undisturbed grassland soils [J]. *Journal of Environmental Radioactivity*, 2009,100(9):716–720.
- [13] 倪有意,卜文庭,郭秋菊,等.土壤中钚的迁移行为研究 [J]. *辐射防护*, 2017,37(1):1–7.
Ni Y Y, Bu W T, Guo Q J, et al. Study on the migration of Pu in soil [J]. *Radiation Protection*, 2017,37(1):1–7.
- [14] Ni Y Y, Wang Z T, Guo Q J, et al. Distinctive distributions and migrations of $^{239+240}\text{Pu}$ and ^{241}Am in Chinese forest, grassland and desert soils [J]. *Chemosphere*, 2018,212:1002–1009.
- [15] Dang H J, Yi X W, Zhang Z L, et al. The level, distribution and source of artificial radionuclides in surface soil from Inner Mongolia, China [J]. *Journal of Environmental Radioactivity*, 2021,233:106614.
- [16] Ni Y Y, Guo Q J, Huang Z Y, et al. First study of ^{237}Np in Chinese soils: source, distribution and mobility in comparison with plutonium isotopes [J]. *Chemosphere*, 2020,253:126683.
- [17] Bu W T, Ni Y Y, Guo Q J. Pu isotopes in soils collected downwind from Lop Nor: regional fallout vs. global fallout [J]. *Scientific Reports*, 2015,5:12262.
- [18] Zhang W C, Hou X L, Zhang H T, et al. Level, distribution and sources of plutonium in the northeast and north China [J]. *Environmental Pollution*, 2021,289:117967.
- [19] Guo H T, Xu Y H, Pan S M, et al. Distinctive distribution and migration of global fallout plutonium isotopes in an alpine lake and its implications for sediment dating [J]. *Chemosphere*, 2021,279:130535.
- [20] 邓彬彬.基于 ^{210}Pb 、 ^{137}Cs 和 $^{239+240}\text{Pu}$ 的不同水环境沉积物年代学比较研究 [D].上海:华东师范大学, 2021.
Deng B B. Sedimentary chronology comparison of ^{210}Pb , ^{137}Cs and $^{239+240}\text{Pu}$ in different water environment [D]. Shanghai: East China Normal University, 2021.
- [21] Nagaya Y, Nakamura K. $^{239+240}\text{Pu}$ and ^{137}Cs in the East China and the Yellow Seas [J]. *Journal of Oceanography*, 1992,48:23–35.
- [22] Dong W, Zheng J, Guo Q J, et al. Characterization of plutonium in deep-sea sediments of the Sulu and South China Sea [J]. *Journal of Environmental Radioactivity*, 2010,101:622–629.
- [23] 喻正伟,李军,张文芊,等.长白山区土壤中 ^{90}Sr 、 $^{239+240}\text{Pu}$ 纵向分布研究 [J]. *核电子学与探测技术*, 2017,37(5):536–540.
Yu Z W, Li J, Zhang W Q, et al. Study of the concentration distribution of ^{90}Sr and $^{239+240}\text{Pu}$ in the vertical direction in soil of Chang-bai Mountain [J]. *Nuclear Electronics & Detection Technology*, 2017, 37(5):536–540.
- [24] 王煜,王卫宪,申茂泉,等.山西、河南三地土壤样品中 $^{239+240}\text{Pu}$ 、 ^{137}Cs 分析 [J]. *辐射防护*, 2013,33(2):124–128.
Wang Y, Wang W X, Shen M Q, et al. $^{239+240}\text{Pu}$ and ^{137}Cs in soils of three sites from Shanxi and Henan [J]. *Radiation Protection*, 2013,33 (2):124–128.
- [25] 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 H, Liu X Y, An Z S, et al. Spatial pattern of modern sedimentation rate of Qinghai Lake and a preliminary estimate of the sediment flux [J]. *Chinese Science Bulletin*, 2010,55(7):384–390.

- [26] Kudelsky A V, Smith J T, Ovsianikova S V, et al. Mobility of Chernobyl-derived ^{137}Cs in a peatbog system within the catchment of the Pripyat River, Belarus [J]. *The Science of the Total Environment*, 1996,188:101–113.
- [27] Wei X M, Zhang R H, Zhu J J, et al. Spatial distribution and modelling of $^{239+240}\text{Pu}$ in the sediments and seawater columns of the South China Sea and Indian Ocean [J]. *Environmental Pollution*, 2024,123244.
- [28] Crusius J, Anderson R F. 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.
- [29] Huang Y N, Sun X M, Zhang W, et al. Spatial distribution and migration of $^{239+240}\text{Pu}$ in Chinese soils [J]. *Science of the Total Environment*, 2022,824:153724.
- [30] Xu Y H, Qiao J X, Hou X L, et al. Plutonium in soils from northeast China and its potential application for evaluation of soil erosion [J]. *Scientific Reports*, 2013,3:3506.
- [31] Davis R B, Hess C T, Norton S A, et al. ^{137}Cs and ^{210}Pb dating of sediments from soft-water lakes in New England (U.S.A) and Scandinavia, a failure of ^{137}Cs dating [J]. *Chemical Geology*, 1984,44:151–185.
- [32] Gascó C, Antón M P, Pozuelo M, et al. Distribution and inventories of fallout radionuclides ($^{239+240}\text{Pu}$, ^{137}Cs) and ^{210}Pb to study the filling velocity of salt marshes in Doñana National Park (Spain) [J]. *Journal of Environmental Radioactivity*, 2006,89(2):159–171.
- [33] Schertz M, Michel H, Barci-Funel G, et al. Transuranic and fission product contamination in lake sediments from an alpine wetland, Boréon (France) [J]. *Journal of Environmental Radioactivity*, 2006,85(2/3):380–388.
- [34] Zhang S, Yang G S, Zheng J, et al. Global fallout Pu isotopes, ^{137}Cs and ^{237}Np records in the sediments of Lake Xingkai and their response to environmental changes in the catchment [J]. *Catena*, 2022,215:106276.
- [35] Wu F C, Zheng J, Liao H Q, 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.
- [36] Loyland Asbury S M, Lamont S P, Clark S B. Plutonium partitioning to colloidal and particulate matter in an acidic, sandy sediment: implications for remediation alternatives and plutonium migration [J]. *Environmental Science & Technology*, 2001,35:2295–2300.
- [37] Zheng J, Wu F C, Yamada M, et al. Global fallout Pu recorded in lacustrine sediments in Lake Hongfeng, SW China [J]. *Environmental Pollution*, 2008,152(2):314–321.
- [38] Peng A G, Chen M, Li X B, et al. The records of $^{239+240}\text{Pu}$ and ^{137}Cs of global fallout in Lake East Dongting Sediments and Responses to watershed environmental changes [J]. *Journal of Environmental Radioactivity*, 2024,272:107364.
- [39] Huang Y N, Zhang W, Xiao Z, et al. Radionuclide $^{239+240}\text{Pu}$ for dating and sedimentation rate in Chinese lakes [J]. *ACS Earth and Space Chemistry*, 2022,7(1):195–203.
- [40] Wu M M, Shi Y, Liu Z Y, et al. Provenance and sedimentation of Pu and ^{237}Np in the northern Taiwan Strait suffering intensive land-ocean interaction [J]. *Environmental Pollution*, 2024,125420.
- [41] Pittauerova 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.
- [42] Dong W, Zheng J, Yamada M, et al. Distribution of plutonium isotopes in sediments of Melanesian Basin, Central Pacific [J]. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 2011,287(3):943–948.
- [43] Yamada M, Oikawa S. ^{239}Pu , ^{240}Pu , ^{241}Pu , ^{241}Am , ^{137}Cs , and ^{210}Pb in seafloor sediments in the western North Pacific Ocean and the Sea of Japan: distributions, sources and budgets [J]. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 2022,331(6):2689–2703.

致谢: 感谢中国科学院水利部成都山地灾害与环境研究所张信宝研究员和四川农业大学张云奇教授以及同济大学材料科学与工程学院周军博士后的支持.同时也特别感谢南京大学潘少明教授,中山大学地球科学与工程学院孙晓明教授与中国科学院南海海洋研究所陈天然研究员的支持.

作者简介: 黄亚楠(1986-),男,河南正阳人,讲师(助理研究员),博士后,并从事环境放射性的研究.发表论文 20 篇.highttee@163.com.