

连云港田湾海域表层沉积物中放射性核素含量水平

左书华, 韩志远, 谢华亮, 李怀远, 黄玉新

(交通运输部天津水运工程科学研究所, 港口水工建筑技术国家工程实验室,
工程泥沙交通行业重点实验室, 天津 300456)

摘要:采用高纯锗 γ 谱仪测量连云港田湾海域表层沉积物中7种放射性核素含量水平,分析其粒度特征和放射性核素分布特征,并与我国其他海域作对比。结果表明,该海域以细颗粒沉积物为主,以悬移质泥沙搬运为主要沉积模式;沉积物中 ^{210}Pb 、 ^{238}U 、 ^{228}Ra 、 ^{40}K 、 ^{226}Ra 、 ^{228}Th 、 ^{137}Cs 的测定均值分别为50.89 Bq/kg、39.98 Bq/kg、46.70 Bq/kg、898.72 Bq/kg、25.20 Bq/kg、51.65 Bq/kg、2.01 Bq/kg,虽然比活度变化较大,但总体处于一个水平;每个采样点位各核素出现的极大值有所不同,与离岸距离无明显关系;铀系、钍系衰变系列核素的放射性均呈现出一定的衰变不平衡性;沉积物中 ^{40}K 含量明显高于我国其他海域, ^{137}Cs 含量明显低于渤海湾,总体高于其他南部海域,与以往研究结论基本一致。

关键词:放射性核素; γ 能谱分析;表层沉积物;田湾海域;连云港

中图分类号:P736.4⁺5;X591 文献标志码:B 文章编号:1006-2009(2019)06-0042-04

Radionuclide Content in Surface Sediments of Tianwan Sea Area in Lianyungang

ZUO Shu-hua, HAN Zhi-yuan, XIE Hua-liang, LI Huai-yuan, HUANG Yu-xin

(Tianjin Research Institute for Water Transport Engineering, National Engineering Laboratory for Port Hydraulic Construction Technology, Key Laboratory of Engineering Sediment of Ministry of Transport, Tianjin 300456, China)

Abstract: The contents of 7 kinds of radionuclides in the surface sediments of Tianwan sea area in Lianyungang were measured by high purity germanium γ spectrometer. The characteristics of particle size and the distribution of the radionuclides were analyzed. The results showed that fine practical sediment was dominated, and suspended sediment transport was the main sedimentary model. The mean values of ^{210}Pb , ^{238}U , ^{228}Ra , ^{40}K , ^{226}Ra , ^{228}Th and ^{137}Cs were 50.89 Bq/kg, 39.98 Bq/kg, 46.70 Bq/kg, 898.72 Bq/kg, 25.20 Bq/kg, 51.65 Bq/kg and 2.01 Bq/kg respectively. Although the specific activity varied greatly, they were generally at a level. The maximum value of each nuclide at each sampling site was different and had no obvious relationship with the offshore distance. The ratios of $^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$, $^{210}\text{Pb}/^{226}\text{Ra}$ and $^{228}\text{Th}/^{228}\text{Ra}$ showed uranium and thorium decay series were in disequilibrium in the surface sediments. The content of ^{40}K was significantly higher than that in other sea areas of China. The content of ^{137}Cs was significantly lower than that in Bohai Bay area. Generally, the radionuclide contents were higher than that in other south sea area. The conclusion was basically consistent with the previous research.

Key words: Radioactive nuclide; γ energy disperse spectroscopy; Surface sediments; Tianwan sea area; Lianyungang

收稿日期:2018-09-13;修订日期:2019-08-12

基金项目:中央级公益性科研院所基本科研业务费专项资金资助项目(TKS170202);上海市科技创新行动计划基金资助项目(19DZ1204300)

作者简介:左书华(1979—),男,河北邱县人,副研究员,博士,主要从事河口海岸动力地貌研究。

近岸海洋环境中存在着大量的天然和人工放射性核素,分析其含量变化及存在形式对于沉积化学、地质年龄、水团运动研究和环境保护均有重要

意义。天然放射性核素以地球上原生放射性核素为主,包括 3 大自然衰变系(链)母体及其产生的子体核素,如 ^{238}U 系列的 ^{234}Th 、 ^{226}Ra 、 ^{222}Rn 、 ^{210}Pb 、 ^{210}Po 等,还有一些半衰期较长的核素,如 ^{40}K 、 ^{138}La 等^[1]。 ^{137}Cs 是人工放射性核素,其半衰期较长,是海洋调查的主要监测对象。海洋沉积物记录了海洋物理和化学过程,以及全球气候和环境变化历史信息,是研究海洋环境变化的良好工具^[2-4]。海洋沉积物中核素的测试方法包括 α 能谱分析、 α/β 计数法、液体闪烁计数法、质谱法和 γ 能谱分析等^[5-6]。 γ 能谱分析具有样品不需要化学分离、方法简便、可同时测量多种核素等优点,已成为目前环境放射性监测和调查及同位素海洋化学研究中应用最广泛的一种技术手段^[2,7]。

连云港地处江苏省北部黄海海州湾西南岸,海岸带资源丰富,沿海分布着连云港港和田湾核电等重要设施。对连云港及其临近海域的研究主要集中在水动力、沉积物分布特征^[8-15],以及港口工程建设对海域水沙环境的影响等方面^[16-20]。关于连云港及其附近海域沉积物中放射性核素方面的研究至今未见报道,海洋放射性或同位素海洋化学研究方面的报道也较少,仅彭俊等^[20]采用 ^{210}Pb 测年法对连云港近岸海域的表层沉积物和柱状样进行了分析。今采用高纯锗(HPGe) γ 谱仪测量连云港田湾海域表层沉积物中 ^{210}Pb 、 ^{238}U 、 ^{228}Ra 、 ^{40}K 、 ^{226}Ra 、 ^{228}Th 、 ^{137}Cs 等 7 种放射性核素含量水平,分析其粒度特征和放射性核素分布特征,并与其他海域作对比,为掌握我国典型海域的放射性核素含量水平提供依据。

1 研究海域概况

田湾位于连云港港南侧,羊山岛附近。连云港海区的潮汐运动主要受南黄海驻波系统控制,潮汐属于非正规浅海半日潮型,潮差较大,多年实测资料显示平均潮差为 3.64 m^[13,19],为中强度潮汐作用海区;潮流为不正规半日潮流,潮流动力作用较弱,大潮全潮平均流速一般为 0.20 m/s ~ 0.40 m/s,最大流速为 0.50 m/s ~ 0.70 m/s,近岸区多为往复流,呈南北向,与等深线走向基本一致,外海深水区为逆时针旋转流。波浪以风浪为主,常浪向为 NE 向和 E 向,出现频率为 26.41% 和 18.40%,平均 $H_{1/10}$ 波高为 0.7 m 和 0.5 m,强浪向为 NNE 向和 NE 向,最大波高为 5.0 m 和 4.2 m^[13]。

海域平均含沙量为 0.10 kg/m³ ~ 0.20 kg/m³,外海域一般在 0.1 kg/m³ 以下,台风期间海域含沙量骤增,近底层含沙量可达 5.0 kg/m³ 以上^[13]。连云港海域沉积地貌特征和海岸类型比较齐全,有基岩海岸、砂质海岸和粉砂淤泥质海岸。连云港港北侧海州湾近岸区域以黏土质粉砂为主,平均中值粒径为 0.016 mm;连云港港及其航道区域以砂质粉砂为主,平均中值粒径为 0.021 mm;连云港南部近岸以粉砂质砂为主,平均中值粒径为 0.045 mm。

2 研究方法

2.1 样品采集

2017 年 12 月在连云港田湾海域采集 48 个海床表层沉积物样品,布点范围覆盖整个田湾海域(见图 1)。采用蚌式抓斗采样器,采样深度为 5 cm ~ 10 cm,每次采样前后均严格按照规范^[21]要求清洗采样器,防止样品污染。每个点位采集 2 次(分别用于粒度分析和放射性核素测量),样品采集后充分搅拌混合,经现场描述后装袋标识,运回实验室以备分析。

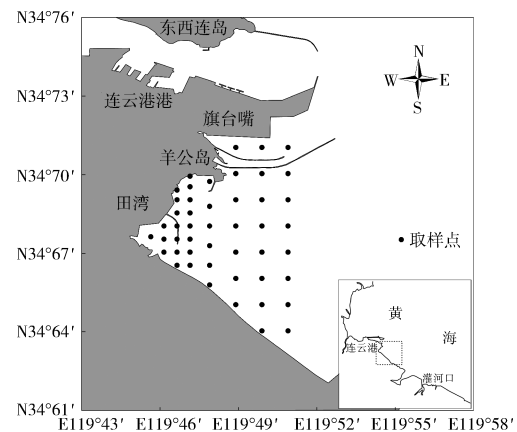


图 1 采样点位分布

Fig. 1 Distribution of sampling sites

2.2 粒度分析

样品经实验室处理后,采用 MS 2000 型激光粒度仪分析,再根据规范^[21]计算平均粒径、分选系数、偏度等参数,划分粒级标准,对沉积物命名。

2.3 放射性核素测量

将沉积物样品放入烘箱内,于 110 °C 烘干、研磨,装入 $\varphi 75\text{ mm} \times 50\text{ mm}$ 的聚乙烯塑料样品盒中封装 20 d 待测。使用美国 Canberra 公司 BE 5030 型高纯锗 γ 谱仪,晶体尺寸为 $\varphi 80.5\text{ mm} \times$

31.0 mm,可测量 γ 射线能量范围为 3 keV ~ 3 MeV。在 25 cm 源距,对 ^{60}Co 点源 1 332 keV 的 FWHM、FWTH 和相对效率分别为 1.628 keV、2.957 keV 和 50.0%,在 5.9 keV、122 keV 和 1 332 keV 处的射线峰分辨率分别为 0.50 keV、0.75 keV 和 2.2 keV^[22-23]。

3 结果与讨论

3.1 表层沉积物粒度特征

调查结果显示,该海域表层沉积物主要为粉砂质黏土和黏土质粉砂,局部有粗砂存在,可能是受到局部施工影响,平均中值粒径为 0.012 mm;细颗粒沉积物占 90% 以上,平均中值粒径为 0.006 mm,黏土占 45%,粉砂组分占 41%;粗颗粒沉积物平均中值粒径为 0.26 mm,砂组分占 94%,粉砂组分占 6%。总体而言,该海域以细颗粒沉积物为主,以悬移质泥沙搬运为主要沉积模式。

3.2 表层沉积物中放射性核素含量及分布特征

对沉积物中 ^{210}Pb 、 ^{238}U 、 ^{228}Ra 、 ^{40}K 、 ^{226}Ra 、 ^{228}Th 、 ^{137}Cs 的测量结果显示,其放射性比活度变化范围分别为 43.92 Bq/kg ~ 54.23 Bq/kg、36.74 Bq/kg ~ 47.91 Bq/kg、45.21 Bq/kg ~ 49.03 Bq/kg、876.13 Bq/kg ~ 904.99 Bq/kg、19.53 Bq/kg ~ 29.91 Bq/kg、45.95 Bq/kg ~ 55.74 Bq/kg、1.37 Bq/kg ~ 2.99 Bq/kg,平均值分别为 50.89 Bq/kg、39.98 Bq/kg、46.70 Bq/kg、898.72 Bq/kg、25.20 Bq/kg、51.65 Bq/kg、2.01 Bq/kg;虽然 7 种放射性核素比活度变化较大,但总体处于一个水平;每个采样点位各核素出现的极大值有所不同,与离岸距离无明显关系。

近海沉积物中的 ^{238}U 、 ^{226}Ra 和 ^{210}Pb 同属铀系衰变系列核素,其放射性呈衰变不平衡性。该海域 $^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$ 和 $^{210}\text{Pb}/^{226}\text{Ra}$ 的比活度比值变化范围分别为 0.53 ~ 0.87 和 1.62 ~ 2.70,平均值分别为 0.64 和 2.08。 $^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$ 比值 > 0.5 而不明显,表明 ^{226}Ra 相对于 ^{238}U 略有过剩; $^{210}\text{Pb}/^{226}\text{Ra}$ 比值均 > 1.5,表明该海域表层沉积物中 ^{210}Pb 过剩明显,其过剩量与离岸距离无明显关系。赵峰等^[7] 研究表明,过剩的 ^{210}Pb 主要来源于大气沉降,因为 ^{210}Pb 具有显著的颗粒活性,大气中 ^{222}Rn 衰变产生的 ^{210}Pb 与海水中 ^{226}Ra 产生的 ^{210}Pb 共同吸附于颗粒物中进入沉积物,造成沉积物中 ^{210}Pb 相对过剩。

^{228}Ra 和 ^{228}Th 均属钍系核素,该海域 $^{228}\text{Th}/^{228}\text{Ra}$ 的比活度比值变化范围为 0.99 ~ 1.17,平均值为 1.11,表明 ^{228}Th 相对于 ^{228}Ra 略有过剩。在钍系放射性核素中,除母体 ^{232}Th 外,只有 ^{228}Ra 和 ^{228}Th 半衰期较长,分别为 5.75 a 和 1.91 a,其他核素的半衰期均较短。可以将钍系看作是由 ^{232}Th 、 ^{228}Ra 和 ^{228}Th 构成的三级衰变链, ^{228}Ra 的主要来源是沉积物中 ^{232}Th 的衰变, ^{228}Th 主要来源于母体 ^{228}Ra 的衰变^[4]。 ^{228}Th 颗粒活性较强,能够吸附在颗粒物上。连云港田湾海域属于淤泥质海岸,海床表层沉积物具有黏性和较好的附着力,使得活性较强的 ^{228}Th 附着于水体颗粒物中,在沉积环境下富集在海床之上,而 ^{228}Ra 易于从颗粒物或沉积物中释放入海水,因而造成颗粒物或沉积物中 ^{228}Th 相对于 ^{228}Ra 过剩^[24-25]。

3.3 讨论

连云港田湾海域表层沉积物中 7 种放射性核素含量水平与我国其他海域的对比见表 1。

表 1 中国典型海域表层沉积物中放射性核素测定均值

海区	Table 1 Average contents of the sediment radionuclides in typical sea areas of China						Bq/kg	
	^{238}U	^{210}Pb	^{226}Ra	^{228}Ra	^{228}Th	^{40}K	^{137}Cs	文献
渤海湾	16.2		25.2			710	14.1	[27]
胶州湾	39.2	20.5	26.5	40.3	44.8	688	3.28	[28]
江苏连云港	40.0	50.9	25.2	46.7	51.6	899	2.01	该研究
长江口崇明东滩		50.1	18.5		48.5	684	1.02	[24,29-30]
福建兴化湾	42.6	55.6	24.8	63.7	64.4	734	3.10	[2]
大亚湾	67.4		35.3	62.8	68.7	711	2.30	[1,3]
珠江口	35.4	116	27.7	44.9	42.0	538	1.16	[26]
黄茅海—广海湾	77.4	123.8	36.6	58.1	64.5	571	1.52	[7]
阳江核电海域	82.4	121.7	35.5	57.1	60.2	621	2.21	[25]

由表 1 可见,田湾海域表层沉积物中 ^{40}K 含量

明显高于其他海域; ^{238}U 的放射水平与胶州湾相

当,高于渤海湾和珠江口,低于兴化湾、大亚湾和黄茅海海域; ^{210}Pb 含量与长江口崇明东滩接近,高于胶州湾而明显低于南海海域诸湾; ^{226}Ra 、 ^{228}Ra 、 ^{228}Th 含量与其他海域总体处于一个水平; ^{137}Cs 含量明显低于渤海湾,总体高于其他南部海域,与以往研究得出的“我国沿海从北到南沉积物中 ^{137}Cs 含量逐渐减小”的结论^[7,26]基本一致。

4 结论

采用高纯锗 γ 谱仪测量连云港田湾海域表层沉积物中 ^{210}Pb 、 ^{238}U 、 ^{228}Ra 、 ^{40}K 、 ^{226}Ra 、 ^{228}Th 、 ^{137}Cs 等7种放射性核素含量水平,分析其粒度特征和放射性核素分布特征,并与我国其他海域作对比。结果表明,该海域以细颗粒沉积物为主,以悬移质泥沙搬运为主要沉积模式;7种放射性核素虽然比活度变化较大,但总体处于一个水平;每个采样点位各核素出现的极大值有所不同,与离岸距离无明显关系;铀系、钍系衰变系列核素的放射性均呈现出一定的衰变不平衡性;沉积物中 ^{40}K 含量明显高于我国其他海域, ^{137}Cs 含量明显低于渤海湾,总体高于其他南部海域,与以往研究结论基本一致。

[参考文献]

- [1] 刘广山. 海洋放射性监测技术: 现在与未来[J]. 核化学与放射化学, 2012, 34(2): 65-73.
- [2] 李冬梅, 徐茂泉, 刘广山, 等. 福建兴化湾外近海沉积物岩心中放射性核素分布[J]. 地球学报, 2005, 26(B09): 220-223.
- [3] 李冬梅, 周鹏, 陈嘉辉, 等. 大亚湾核电海域沉积物岩心中放射性核素的垂向分布及其对沉积环境的示踪[J]. 海洋通报, 2013, 23(S1): 108-114.
- [4] 颜耕, 周磊, 陈玲. 同位素技术在环境科学研究中的应用进展[J]. 环境监测管理与技术, 2018, 30(2): 1-4.
- [5] 毕倩倩, 杜金洲. 海洋环境中放射性分析及其应用[J]. 核化学与放射化学, 2015, 37(1): 193-206.
- [6] 刘荔彬, 朱瑞瑞, 罗岳平, 等. 霞湾港沉积物铅形态及垂直分布特征[J]. 环境监测管理与技术, 2018, 30(2): 30-33.
- [7] 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.
- [8] 陈祥锋, 贾海林, 刘苍宇. 连云港南部近岸带沉积特征与沉积环境[J]. 华东师范大学学报(自然科学版), 2000(1): 74-81.
- [9] 左浩, 高抒. 江苏连云港基岩港湾海岸和砂质海岸沉积特征和沉积环境对比[C]//中国地质学会. 第三届全国沉积学大会论文摘要汇编. 北京: 中国地质学会, 2004: 286-287.
- [10] 赵洪波, 王广聚. 连云港海域波浪场数学模型研究[J]. 水道港口, 2007, 28(5): 322-324.
- [11] 张存勇, 冯秀丽. 连云港近岸海域沉积物粒度空间分布特征及其分析[J]. 海洋学报, 2009, 31(4): 120-127.
- [12] 范恩梅, 陈沈良, 张国安. 连云港近岸海域沉积物特征与沉积环境[J]. 海洋地质与第四纪地质, 2009, 29(2): 33-40.
- [13] 左书华, 杨华, 庞启秀, 等. 连云港徐圩港区海域含沙量分布特征研究[C]//中国海洋学会海洋工程分会. 第十六届中国海洋(岸)工程学术讨论会论文集(下册). 南京: 中国海洋学会海洋工程分会, 2013: 843-850.
- [14] 张存勇. 连云港近岸海域沉积物运移趋势[J]. 海洋学报, 2013, 35(3): 172-178.
- [15] 陈德昌, 虞志英, 金镠, 等. 连云港深水港建设中有关淤泥质海岸的水力、泥沙和环境问题的研究[J]. 华东师范大学学报(自然科学版), 1994(4): 77-84.
- [16] 张世奇, 张燕菁, 陈金荣. 连云港核电站附近海域泥沙冲淤计算研究[J]. 泥沙研究, 2004(2): 27-32.
- [17] 李孟国, 李文丹. 连云港港扩建对田湾核电站取水影响及措施研究[J]. 水道港口, 2008, 29(4): 239-246.
- [18] 李孟国, 李文丹, 时钟, 等. 田湾核电站海域潮流泥沙数值模拟研究[J]. 泥沙研究, 2008(2): 16-23.
- [19] 左书华, 杨华, 张娜, 等. 连云港徐圩港区航道大风天强淤可能性分析[J]. 水道港口, 2013, 34(1): 26-32.
- [20] 彭俊, 陈沈良. 连云港近岸海域沉积物特征与沉积环境分析[J]. 海洋科学进展, 2010, 28(4): 445-454.
- [21] 中华人民共和国国家质量监督检验检疫总局, 中国国家标准化管理委员会. GB/T 12763.8—2007 海洋调查规范 第8部分: 海洋地质地球物理调查[S]. 北京: 中国标准出版社, 2007.
- [22] 中华人民共和国国家质量监督检验检疫总局, 中国国家标准化管理委员会. GB/T 30738—2014 海洋沉积物中放射性核素的测定 γ 能谱法[S]. 北京: 中国标准出版社, 2014.
- [23] 中华人民共和国国家质量监督检验检疫总局, 中国国家标准化管理委员会. GB/T 7176—2008 锗 γ 射线探测器测试方法[S]. 北京: 中国标准出版社, 2008.
- [24] 吴梅桂. 多核素在长江口崇明东滩表层沉积物的分布及其环境指示意义[D]. 上海: 华东师范大学, 2011: 80-85.
- [25] 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.
- [26] 刘广山, 黄奕普. 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, 2001, 23(6): 76-84.
- [27] 李树庆, 刘如业. 辽宁渤、黄海近岸海域放射性水平的分布[J]. 海洋环境科学, 1984, 3(4): 43-51.
- [28] 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.
- [29] 段凌云, 王张华, 李茂田, 等. 长江口沉积物 ^{210}Pb 分布及沉积环境解释[J]. 沉积学报, 2005, 23(3): 514-522.
- [30] 张敬. 长江口及邻近海域沉积速率比较研究[D]. 上海: 华东师范大学, 2008: 32-53.

本栏目编辑 谢咏梅 姚朝英