

^{210}Pb 和 ^{137}Cs 定年技术在湖泊沉积物中的应用与问题*

高少鹏^{1**}, 王君波¹, 徐柏青^{1,2}, 张小龙¹

(1: 中国科学院青藏高原环境变化与地表过程重点实验室, 北京 100101)

(2: 中国科学院大学, 北京 100049)

摘要: 湖泊沉积记录研究对了解流域侵蚀、揭示区域气候环境变化及人类活动影响、建立外生地球化学循环模式等均具有重要意义. 放射性同位素 ^{210}Pb 和 ^{137}Cs 组合定年法是百年尺度湖泊沉积记录研究的首选方法, 在过去几十年中得到广泛应用, 大力推动了湖泊沉积记录的高分辨率气候环境变化研究的开展. 然而, 如何理解和选择适用的计算模式来尽可能地提高定年准确度目前仍存在争议, 这在一定程度上限制了该方法的应用. 鉴于上述问题, 本文基于本实验室近年来从青藏高原获取的若干支代表性湖芯的定年结果, 从样品前处理、仪器及测试、数据分析及计算等全过程对 ^{210}Pb 、 ^{137}Cs 定年原理和方法进行了较为系统的阐述; 在此基础上, 提出了 ^{210}Pb 定年样品封装原则, 探讨了高纯锗 γ 谱仪在放射性活度测量中的影响因素, 并建立了准确有效的比活度校正方法; 明确指出了恒定初始浓度模式(constant initial concentration, CIC)可用于计算沉积物每层的年龄, 而不是部分研究中认为的平均沉积速率, 这对于深刻理解该定年模式并提供准确的定年结果具有重要的参考意义. 同时, 通过对比两种放射性核素的分布特征发现, 相对于 ^{210}Pb 而言, ^{137}Cs 更容易发生垂向迁移进而影响其时标准准确性, 这需引起研究者的充分重视, 因此, 当二者定年结果出现明显差异时, 建议以 ^{210}Pb 定年结果为准.

关键词: 湖泊沉积物; 定年技术; ^{210}Pb ; ^{137}Cs ; 沉积速率

Application and problems of ^{210}Pb and ^{137}Cs dating techniques in lake sediments*

Gao Shaopeng^{1**}, Wang Junbo¹, Xu Baiqing^{1,2} & Zhang Xiaolong¹

(1: Key Laboratory of Tibetan Environment Changes and Land Surface Processes, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100101, P.R.China)

(2: University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, P.R.China)

Abstract: The study of lacustrine sedimentary records is of great significance for understanding basin erosion, revealing regional climatic and environmental changes and the influence of human activities, and establishing exogenous geochemical cycle patterns. The combined dating method of ^{210}Pb and ^{137}Cs is the preferred method for the study of centennial-scale lake sedimentary records. It has been widely used in the past decades, which greatly promotes the study of high-resolution climate and environmental changes in lake sedimentary records. However, it is still controversial how to understand and select the applicable calculation model to improve the accuracy of the dating as much as possible, which limits the application of this method to a certain extent. Because of the above problems, based on the dating results of several representative lake cores obtained from the Tibetan Plateau by our laboratory in recent years, the principles and methods of dating with ^{210}Pb and ^{137}Cs were systematically expounded from the whole process of sample pretreatment, instrument and sample measurement, data analysis and calculation. On this basis, the packing principle of ^{210}Pb dating samples was proposed, the influencing factors of High-purity germanium Gamma-Ray Spectrometer in radioactive activity measurement were discussed, and an accurate and effective specific activity correction method was established. It was pointed out that constant initial concentration (CIC) model could be used to calculate the age of each layer of sediments, rather than the average deposition rate in some studies, which is of great significance for understanding the model and providing accurate dating re-

* 2020-06-05 收稿; 2020-07-08 收修稿稿.

国家自然科学基金项目(41977397, 41877168)、中国科学院前沿科学重点研究计划(QYZDJ-SSW-DQC037)和中国科学院仪器设备功能开发技术创新项目联合资助.

** 通信作者; E-mail: gaoshaopeng@itpcas.ac.cn.

sults. Meanwhile, by comparing the distribution characteristics of the two radioisotopes, it was found that ^{137}Cs was more likely to have vertical migration compared with ^{210}Pb , and thus affected the dating accuracy, which should be paid more attention to by researchers. Therefore, in case of the obvious difference between the two results, it was suggested that ^{210}Pb results should prevail.

Keywords: Lake sediment; dating technique; ^{210}Pb ; ^{137}Cs ; sedimentation rate

湖泊沉积物是流域侵蚀和环境污染物质的重要寄宿体,记录着环境变化的历史^[1]. 大量研究表明,寻找过去环境变化的证据,发现过去环境演变的规律和机制,是对未来环境演变进行科学预测的基础. 与其他记录相比,湖泊沉积具有储存信息量大、沉积连续性好以及地理覆盖面广等特点,既可以提供长时间尺度的环境演变序列、满足长周期气候环境变化研究的需要,又可以得到 10 年左右甚至更高的分辨率^[2]. 因此,湖泊沉积记录研究对了解流域侵蚀、揭示区域至全球环境变化、建立外生地球化学循环模式等均具有重要意义^[1-2].

通过任何载体的研究来认识区域环境变化和污染历史问题都必须以精确的年代学研究作为基础^[1],其中放射性核素定年是常用的手段. 放射性定年的基本原理基于相关核素的指数衰变规律,因此,定年尺度由核素的半衰期决定,湖泊沉积物定年中常用的 ^{210}Pb 半衰期分别为 22.3 a,核素大约经过 7 个半衰期后强度即衰减到初始值的 1% 左右,难以被仪器准确检测,所以 ^{210}Pb 的定年上限约为 150 a. ^{210}Pb 的定年尺度恰好弥补了工业革命以来 ^{14}C 无法应用的缺陷^[3],这两种定年数据结合起来,基本能够满足现代湖泊沉积物的定年需求,因而自 ^{210}Pb 定年法问世以来^[4],已经在国内外现代沉积记录研究中得到了广泛应用^[5-6]. 同时,人工核素 ^{137}Cs 的起始点和峰值可以作为时标对 ^{210}Pb 定年结果进行验证,使 ^{210}Pb 、 ^{137}Cs 组合定年法逐渐成为浅层湖泊沉积物定年的首选方法.

然而, ^{210}Pb 、 ^{137}Cs 定年法的应用过程中仍然存在一些显著的问题,考虑到湖泊沉积过程的复杂性,该方法在理论上需对某些外界因素进行假设,在此基础上依据放射性核素衰变模式进行计算、获得定年结果. 而怎样理解和选择适用的计算模式,怎样尽可能地提高测试精度和定年准确度等问题对一些研究人员造成了困扰. 此外,国内现有文献对 ^{210}Pb 定年模式的表述也不尽相同^[7-8],且绝大部分文献集中于讨论定年结果,几乎不涉及仪器的分析方法. 针对以上问题,本文结合本实验室近年来测得的数支代表性湖芯的定年结果,从样品前处理、仪器及测试、比活度校正、数据分析及计算等全过程对 ^{210}Pb 、 ^{137}Cs 定年原理和方法进行了较为系统的阐述,结果对湖泊沉积记录研究或定年分析具有一定的借鉴意义.

1 仪器设备与分析方法

1.1 仪器与标准

用于 ^{210}Pb 比活度测量的方法主要有 γ 谱和 α 谱两种方法. γ 谱仪可以直接测量干燥后的沉积物样品,无需过多处理;而 α 谱法测量前需要对样品进行精细研磨以及复杂的放射化学处理^[1],因此, γ 谱法逐渐成为 ^{210}Pb 比活度测量的首选方法. 高纯锗 γ 谱仪因为其较低的本底和较高的分辨率以及探测效率,在湖泊沉积物定年中广泛应用,本文着重介绍 γ 谱仪测量法. 本研究使用的仪器为美国 ORTEC 公司高纯锗 γ 谱仪, GWL-120-15 井型高纯锗探头,搭配 DSPEC jr 2.0 多道数字化谱仪. ^{137}Cs 、 ^{210}Pb 、 ^{226}Ra 标准由中国原子能科学研究院提供,标准用 7 mL 圆底离心管封装,与井型探头内部的几何构型一致,待测样品用同样的离心管盛放.

1.2 ^{210}Pb 定年原理和定年模式

1.2.1 ^{210}Pb 定年原理 天然放射性同位素 ^{210}Pb 来自 ^{238}U 系衰变体系,衰变过程中会产生 ^{222}Rn . ^{222}Rn 是一种惰性气体,能够从岩石表面和土壤微粒中溢出并逸散到大气中. ^{222}Rn 的衰变子体(^{214}Pb 、 ^{214}Bi 、 ^{210}Pb 等)主要附着于细颗粒并在大气中扩散,然后可通过干、湿沉降进入湖泊和海洋,最终埋藏在沉积物中. 因此,沉积物中蓄积的总 ^{210}Pb ($^{210}\text{Pb}_{\text{tot}}$) 由两部分组成,一部分直接来自大气中的 ^{222}Rn ,称为过剩铅 ($^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$);另一部分来自沉积物本身的 ^{238}U 平衡衰变体系,称为支持铅或补给铅 ($^{210}\text{Pb}_{\text{sup}}$). $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 埋藏到沉积物后,由于不再接受大气中 ^{222}Rn 的补给,会逐渐衰减,通过不同层位沉积物样品的 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 比活度分析,结合其衰变规律,即可计算沉积速率或沉积年龄^[6].

1.2.2 ^{210}Pb 定年模式 常用的 ^{210}Pb 定年模式主要有 3 种^[6]: 恒定通量恒定沉积模式 (constant flux constant

sedimentation, CFCS)、恒定补给速率模式(constant rate of supply, CRS)和恒定初始浓度模式(constant initial concentration, CIC)。

CFCS 模式^[9]假设²¹⁰Pb 的沉积通量($f, \text{Bq}/(\text{cm}^2 \cdot \text{a})$)和沉积物的沉积速率($s, \text{g}/(\text{cm}^2 \cdot \text{a})$)均保持稳定,因此,沉积物的沉积速率和每层²¹⁰Pb_{ex}的初始比活度(f/s)均视为定值,²¹⁰Pb_{ex}比活度随时间呈指数衰减,CFCS 模式可用公式 1 表示:

$$C_{(m)} = C_{(0)} e^{-\lambda t} \quad (1)$$

式中, $C_{(0)}$ 为²¹⁰Pb_{ex}的初始比活度(Bq/kg), $C_{(m)}$ 为深度 m 时²¹⁰Pb_{ex}的比活度(Bq/kg), λ 为²¹⁰Pb 的衰变常数(0.03114 a^{-1}),通过谱仪测量出沉积物每层²¹⁰Pb_{ex}的活度后,通过最小二乘法模拟出的指数或对数曲线的斜率即可以计算出平均沉积速率,进而计算出沉积物的年龄。同时,如果不考虑沉积物的压实作用, m 也可以用物理深度(cm)表示,从而计算出更为直观的用长度单位表示的平均沉积速率(cm/a)。

然而,很多情况下沉积物的沉积速率并不是稳定的,CFCS 模式的应用范围受到限制。因此,Krishnaswami 等^[10]提出了适用范围更广的 CRS 模式,虽然因为沉积速率变化,每层沉积物中²¹⁰Pb_{ex}初始比活度不一致,但其沉积通量保持不变。因此,CRS 模式可以由公式 2 表示:

$$A = A_{(0)} e^{-\lambda t} \quad (2)$$

式中, $A_{(0)}$ 为整个沉积物岩芯中总的²¹⁰Pb_{ex}输入量(Bq/cm^2), A 为深度 m 及以下岩芯中的²¹⁰Pb_{ex}累计输入量(Bq/cm^2),代入公式(2)可以得到沉积物每层的年龄 t 。

CRS 模式假设²¹⁰Pb_{ex}主要受大气沉降控制,而实际上流域侵蚀来源的物质也可能含有²¹⁰Pb_{ex}。Pennington 等^[11]提出了恒定初始浓度模式,即 CIC 模式。该模式假设沉积物中输入的²¹⁰Pb_{ex}与沉积速率呈正比,即无论沉积物来源于何处,都包含同样比例的²¹⁰Pb_{ex}。因此,每个层位的²¹⁰Pb_{ex}初始比活度都等于表层沉积物的²¹⁰Pb_{ex}比活度。CIC 模式可用公式(3)表示:

$$C_{(m)} = C_{(0)} e^{-\lambda t} \quad (3)$$

将谱仪测量得到的表层沉积物²¹⁰Pb_{ex}比活度 $C_{(0)}$ 和深度 m 时²¹⁰Pb_{ex}的比活度 $C_{(m)}$ 代入公式(3),可求得沉积物每层的年龄 t 。

1.3 ¹³⁷Cs 时标定年

¹³⁷Cs 是一种人工核素,由核试验时²³⁵U 裂变产生,因此在人工核试验之前,自然界中是不存在的。自 1950s 初以来,核爆炸和核泄漏产生的¹³⁷Cs 开始进入大气环流,吸附于细颗粒物中,最终均匀沉降于地表,并在沉积物中富集。一般认为,最早检测到¹³⁷Cs 的时间为 1954 年。同时,全球大规模的核试验集中于 1961—1963 年,随着 1963 年 8 月美、苏、英三国《禁止在大气层、宇宙空间和水下核试验条约》的签订,大规模核试

验停止,大气中的¹³⁷Cs 浓度开始下降,所以¹³⁷Cs 的最大峰值出现在 1963 年。此外,1986 年,前苏联(现乌克兰境内)切尔诺贝利核电站发生了严重的核泄漏事故,也导致大量¹³⁷Cs 进入大气,在很多沉积物中也能检测到峰值。因此,理想情况下,开始出现¹³⁷Cs 的层位可定为 1954 年,最大峰值可定为 1963 年,次峰值可定为 1986 年。

1.4 定年样品处理及活度测试

1.4.1 样品前处理 沉积物的压实作用通常不能忽略,尤其是含水量高的样品。因此,定年计算过程中通常用质量深度做单位,以消除压实作用的影响,这就对分样的完整性提出了要求。分样时需要将每层完整的样品冻干后称取干重,用于计算质量深度。任何仪器分析均要求样品与标准的测试条件保持一致。然而在实际测试过程中,经常发现有样品不能填满离心管的情况,这可能对测量结果产生影响。从图 1 的对比实验结果中

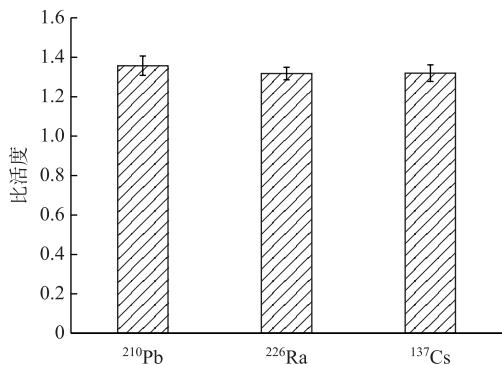


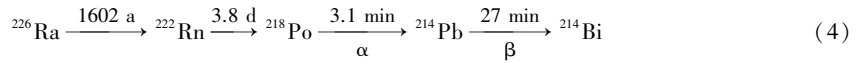
图 1 同一样品填半管和满管样品测得的比活度差异

Fig.1 Difference of the radioactivity obtained between half filled and full filled of the same sample

可以发现,同一样品,填充 1/2 离心管得到的样品比活度比填满离心管得到的比活度要明显偏高. 分析原因可能是高纯锗井型探头不同深度探测效率不一致,下部的探测效率明显高于上部,尤其是低能端. 而样品未填满时集中于探头井内下部,导致测量值偏高.

因此,沉积物定年样品的装样原则应该是:在保证能够均匀填满离心管的前提下,填装尽量多的样品. 如果样品量充足(一般需要 5~7 g 样品,视密度而定),可以均匀的压实,以填入更多的样品,提高测量精度;如果样品量不足,应首先保证填满离心管,避免探头不同深度探测效率对测量值产生影响. 高纯锗 γ 谱仪放射性活度测量接近无损分析(过分研磨可能改变样品粒度分布),测试完成的样品不影响大部分其他指标分析.

过剩铅 ²¹⁰Pb_{ex} 的活度可由 ²¹⁰Pb_{tot} 活度和沉积物本身 ²³⁸U 衰变体系平衡活度的差值求得. ²²²Rn 的释放破坏了其后的 ²³⁸U 衰变平衡,因此,需用 ²²²Rn 的上一级母体 ²²⁶Ra 来表示 ²³⁸U 衰变体系的平衡活度. ²¹⁰Pb_{tot} (46.54 keV) 的活度可由 γ 谱仪直接测量得到,而 ²²⁶Ra 在 γ 谱仪上的特征谱线(186.10 keV)与 ²³⁵U (185.71 keV) 过于接近,超过谱仪的分辨能力,因此,不能直接测量 ²²⁶Ra 的活度,需要测量它的衰变子体(公式(4)):



²²⁶Ra 的衰变子体 ²¹⁴Pb (351.92 keV) 和 ²¹⁴Bi (609.31 keV) 均能在 γ 谱仪上寻到无干扰的特征谱线,都可以用来表示 ²²⁶Ra 的活度. 然而,为保证样品填装的均匀性,沉积物样品通常需要进行一定程度的研磨再进行装样^[1],研磨的过程中也可能导致 ²²²Rn 释放,从而破坏 ²²⁶Ra 至 ²¹⁴Bi 这一段衰变的放射性平衡. 根据放射性平衡的定义, ²²⁶Ra 至 ²¹⁴Bi 这一段衰变的再平衡时间由 ²²²Rn 的半衰期(3.8 d)决定. 因此,沉积物样品装入离心管并由封口膜密封后,再放置 3~4 周(约 5~7 个 ²²²Rn 的半衰期)后方可上机测试.

1.4.2 高纯锗 γ 谱仪放射性活度测量 高纯锗探头需要在低温下工作,常用的探头冷却方式有液氮制冷、电制冷、液氮回凝装置等. 实验发现,即使轻微的振动也会对 γ 谱仪的本底产生影响,尤其是低能量区间,而 ²¹⁰Pb 的特征谱线(46.54 keV)刚好位于低能端,对本底要求较高. 电制冷工作过程中会有振动,不推荐使用. 液氮制冷对本底的影响最小,但需要每周补充液氮以保持探头的高压稳定,否则探头频繁回温会造成真空度下降、吸附剂饱和,导致分辨率、稳定性等指标下降. 因此,推荐采用直接液氮制冷或液氮回凝方式对高纯锗探头进行冷却.

高纯锗 γ 谱仪的日常校准包括能量刻度和效率校正. 能量刻度是指在能谱上确定多道分析器的道址与射线能量的关系,偏差大于 0.3 keV 时执行能量刻度操作. 效率校正可采用效率曲线拟合或单点校正的方式,本研究专注于 ²¹⁰Pb、²²⁶Ra、¹³⁷Cs 的活度测试,采用更为准确的单点校正方法. 校正用的标准源本身活度也在不断衰减,因此需要依据核素的半衰期在线动态校正或定期离线计算其实际活度,确保校正结果的准确性. Bq 是常用的放射性活度单位,表示每秒衰变.

沉积物定年样品的测量时间一般为 40000 s 或 80000 s,计数时间越长,测量精度越高,同时测试效率下降,样品测试时可根据具体样品的活度情况确定计数时间. ²¹⁰Pb 谱线位于低能端,容易受到本底干扰,积分时可采用一次平滑的方式提高积分准确性,但不推荐更多的平滑次数,每次平滑均会降低积分面积. 样品上机测试前,可用保鲜膜简单包裹,避免将样品管外壁的污染物带入探头井内.

2 结果与讨论

2.1 样品比活度校正

从图 1 的初步实验结果可以看出,如果定年样品不能填满样品管,测得的样品比活度将会明显偏高. 而在实际工作中,由于沉积物样品含水量过高、分样间隔过密或者兼顾其他指标同时分析等原因,经常出现定年样品不能填满样品管的情况. 因此,如果不进行校正,将对样品比活度的测量和最终的定年结果产生严重影响.

本研究尝试对实际测量过程中由于样品量不足,不能填满样品管而造成的比活度测量误差进行校正. 7 mL 离心管长度约 5.5 cm,按 0.5 cm 间隔可以分为 11 个单位. 将标准样品 11 等分后,按照 0.5 cm 间隔均匀填入离心管中,并依次放入高纯锗 γ 谱仪中进行活度测试,得到不同填装深度的比活度测量数值. 将不同填

装深度测得的比活度与离心管填满时测得的比活度的比值作为校正系数,绘制校正系数和填装深度的关系图. 从图 2 可以看出,2 cm 以上的填装深度(填装深度 2 cm 以下测量误差较大)与校正系数呈现良好的线性关系($R^2>0.98$),线性回归曲线即是比活度校正公式,将实际填装深度代入校正公式,即可获得对应核素的校正系数.

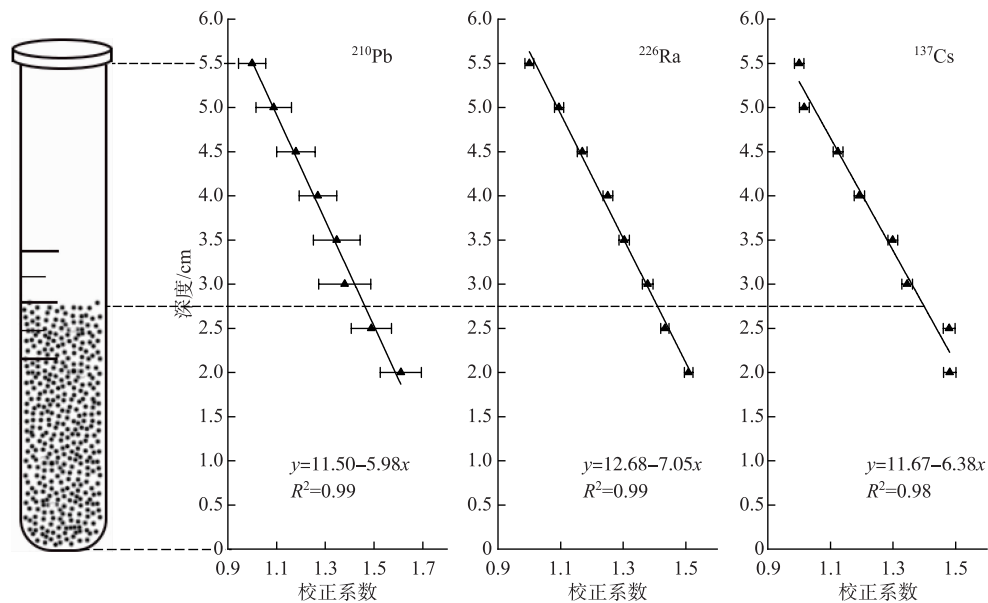


图 2 样品管未填满时测得比活度校正方法

Fig.2 Calibration method for measured specific activity when sample tube is not filled

用上述校正曲线对图 1 中的半管样品比活度进行校正,从表 1 可以看出,校正前半管样品与满管样品比活度测量值的相对标准偏差在 20% 左右,而校正后的相对标准偏差控制在 4% 以内,说明校正方法准确有效. 另外,虽然高纯锗 γ 谱仪都配备有低本底铅室,仍难避免本底干扰的出现,尤其是 ^{210}Pb 谱线所在的低能端. 因此需要定期测试空白离心管作为本底,结果计算时加以扣除.

表 1 样品比活度校正前后结果对比

Tab.1 Comparison of the specific activity of samples before and after correction

核素	校正公式	比活度/(Bq/kg)			相对标准偏差/%	
		满管样品	半管样品		校正前	校正后
			校正前	校正后		
^{210}Pb	$y = 11.50 - 5.98x$	250.63	340.23	239.36	21.45	3.25
^{226}Ra	$y = 12.68 - 7.05x$	127.38	167.87	122.30	19.39	2.88
^{137}Cs	$y = 11.67 - 6.38x$	74.38	98.12	72.20	19.46	2.10

2.2 ^{210}Pb 定年模式的选择

CFCS 模式是最简单的计算模式^[6],通常用于计算平均沉积速率,如果定年区间内沉积速率有明显变化,也可以分段采用 CFCS 模式计算. CRS 基于的三个基本假设贴近大部分沉积物的实际情况,因此绝大部分研究都采用 CFCS 模式计算平均沉积速率,并用 CRS 年龄作为定年参考^[5,8]. 然而,如果湖泊曾发生大的水文变化,改变了常规沉积模式,或者由于发生坍塌、滑坡、混浊流等而形成了沉积记录间断,CRS 模式就不再适用,此时可考虑选用 CIC 模式^[6]. 图 3 是 2011 年采自青藏高原唐古拉地区 TGL-E 湖(32°54'N, 91°57'

E) 的定年结果^[12], CRS、CIC 模式计算得到的各层沉积速率均值和 CFCS 模式求得平均沉积速率分别为 0.042、0.041 和 0.039 g/(cm²·a)。因此,在²¹⁰Pb_{ex} 沉积通量和沉积速率均比较稳定的理想情况下,3 种²¹⁰Pb 模式给出的定年结果是一致的。

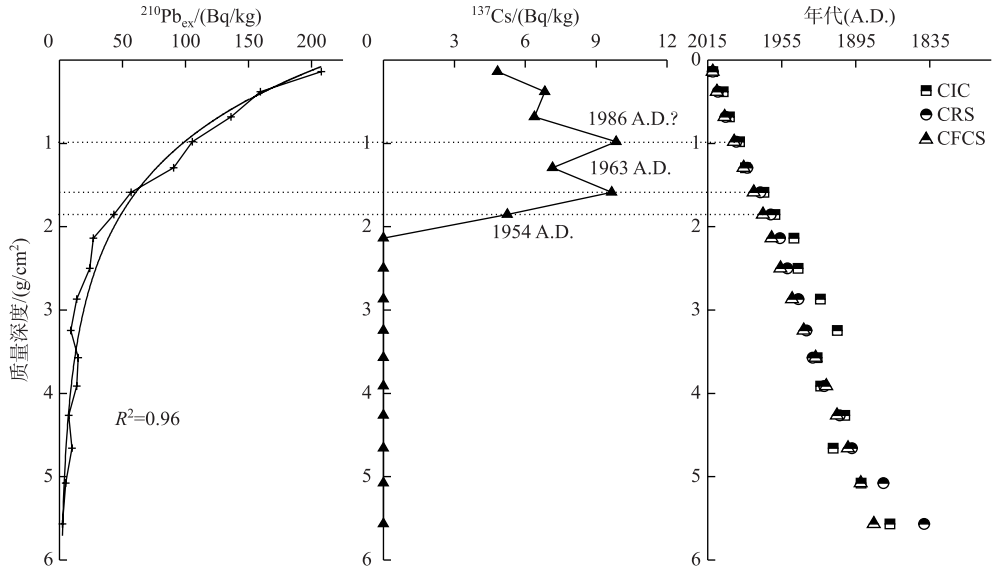


图 3 2011 年唐古拉地区 TGL-E 湖定年结果

Fig.3 Dating results of a core from TGL-E lake in the region of Tanggula in 2011

从 CFCS 模式跟 CIC 模式的计算公式来看,公式(1)与公式(3)在形式上完全一样,实际上二者有本质区别. CIC 模式只是假设了恒定的²¹⁰Pb_{ex} 初始比活度,通过不同深度沉积物的实测比活度来反推年龄,可以获得每个层位的沉积年龄(图 3). CFCS 模式除假设了恒定的²¹⁰Pb_{ex} 初始比活度以外,进一步假设沉积速率是恒定的,因此,其年代可以简单地用深度除以沉积速率来表示,再利用²¹⁰Pb_{ex} 指数衰变拟合曲线的斜率求得平均沉积速率. 部分研究中提到用 CIC 模式计算平均沉积速率^[5,7,13-15],给出的 CIC 年龄完全与深度呈比例变化,是不准确的,实际应用的应该是 CFCS 模式.

从 CRS 模式的计算公式(公式(2))可以看到,需要用到整个沉积物岩芯中总的²¹⁰Pb_{ex} 输入量(Bq/cm²). 然而,某些沉积物样品采样深度未达到²¹⁰Pb 的本底值,理论上不能使用 CRS 模式计算年龄. Sanchez-Cabeza 等^[16]提出可用 CFCS 模式推算出底部²¹⁰Pb_{ex} 的比活度,并代入 CRS 模式计算年龄,取得了较为可信的结果. 实际测量中也不可能测到²¹⁰Pb 的绝对本底,这也是图 3 和图 4 中底部 CRS 结果偏离其它模式,发生“翘尾”的主要原因. 另外,²¹⁰Pb_{ex} 经过 3 个半衰期后,活度已经很低,差减法获得的实测值本身也会产生很大误差,因此这种 CFCS 结合 CRS 的新模式,反而可能会得到更为准确的年代结果^[8]. 但是,推算时已经假设样品底部沉积速率是相对稳定的,如果此区间内粒度等参数发生了明显变化,推算结果可能会产生很大误差.

2.3 ¹³⁷Cs 的纵向迁移

¹³⁷Cs 作为一种人工放射性核素,无天然本底,且容易吸附到粘土矿物中而很难解吸^[17],因此其起始点和峰值时标在湖泊沉积研究中广泛应用. 但是,铯是一种碱金属,其大部分盐类是可溶的,沉积后可能发生上下迁移. 通常认为,沉积物中¹³⁷Cs 扩散的主要原因一是沉积后的再迁移作用,另一种是核素通过间隙水扩散迁移^[18]. 图 3 中 TGL-E 湖芯中¹³⁷Cs 的起始点和峰值能够跟²¹⁰Pb 数据计算得到的 1954 年、1963 年基本对应,且在 1986 年附近也出现了明显的峰值. 张信宝等总结了近年来东亚地区若干支湖芯的¹³⁷Cs 活度变化趋势,明确指出东亚地区不存在明显的 1974 或 1986 年¹³⁷Cs 蓄积峰^[19],Lan 等在中国西北部的最新研究也给

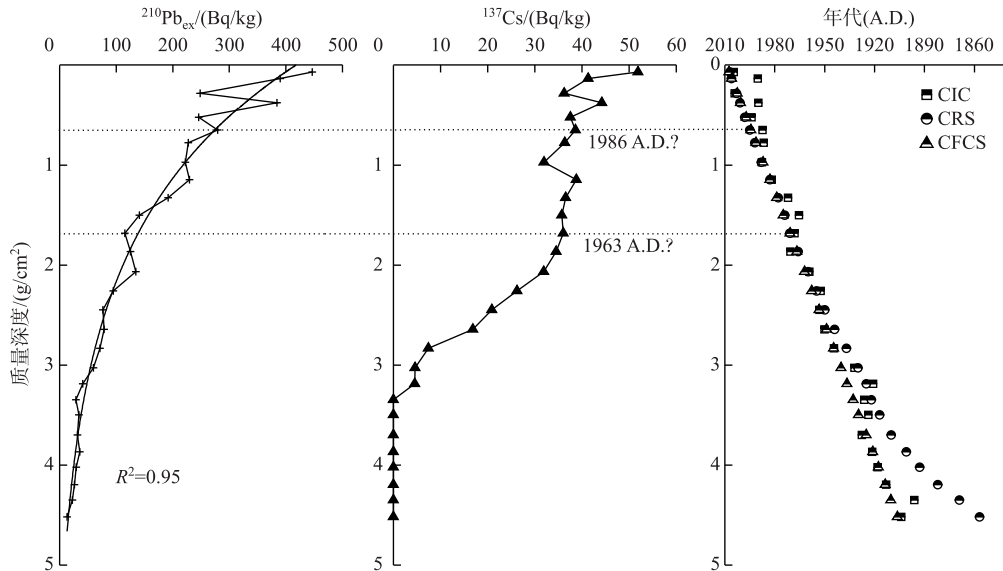


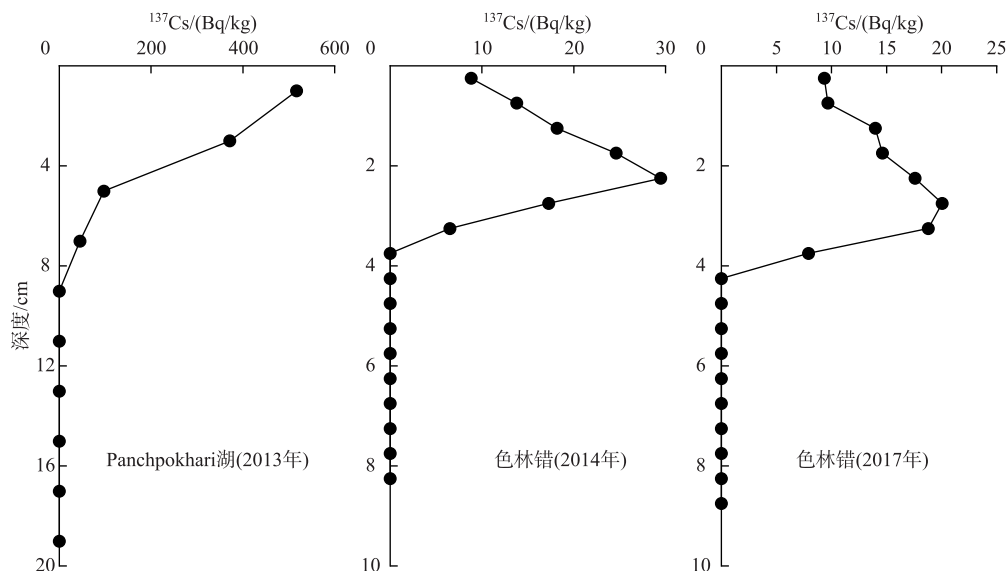
图4 2009年纳木错湖芯定年结果

Fig.4 Dating results of a core from Nam Co in 2009

出了同样的结果^[20]. 而青藏高原湖区的研究中,¹³⁷Cs 分布也多以单蓄积峰为主,仅指示了 1963 年的时标^[21-24],因此,须谨慎应用 1974 和 1986 年的¹³⁷Cs 时标. TGL-E 湖芯中¹³⁷Cs 的总体活度很低,测量误差也可能是其在 1986 年附近出现峰值的原因. 从 2009 年纳木错(30°30′~30°56′N, 90°16′~91°03′E)湖芯的定年结果来看^[25],3 种²¹⁰Pb 定年模式给出的定年结果基本一致,但¹³⁷Cs 有明显的迁移现象. 1963 年的¹³⁷Cs 峰值只是隐约有显示,但并非最高值,也低于表层,同时¹³⁷Cs 的起始点更是在 1930 年左右,远远偏离了 1954 年,说明¹³⁷Cs 沉积后发生了上下迁移.

Brunskill 等在 Fayetteville Green 湖研究中发现,¹³⁷Cs 在富含有机质的深色层理中的含量是浅色层的 6 倍,排除沉积速率的因素后,仍说明有机质对¹³⁷Cs 有明显的富集作用^[26]. 项亮在 Crawford 湖的研究中也发现了¹³⁷Cs 明显的上下扩散现象,通过纹层年龄进一步确认,单一的¹³⁷Cs 峰值明显偏离 1963 年,起始点也远远老于 1954 年^[27]. ¹³⁷Cs 沉降到湖底后易溶于水被有机质吸收,同时,有机质经过一段时间后发生降解,会释放出¹³⁷Cs,如果缺乏足够的黏土矿物吸附,¹³⁷Cs 也会通过间隙水上下扩散. 此外,核污染治理的相关研究中发现,由于 Cs 和 K 化学性质上的相似性,富 K 植物对 Cs 有较好的吸收能力,可用于治理放射污染区土壤^[28-29]. 因此,如果沉积物表层有水生植物活动,可能会强烈吸附¹³⁷Cs,造成¹³⁷Cs 富集于沉积物表面. 图 5 是喜马拉雅中部地区尼泊尔境内的 Panchpokhari(28°2′~28°3′N, 85°42′~85°43′E)湖芯^[30]和色林错(31°34′~31°51′N, 88°33′~89°21′E)湖芯 150 年左右的¹³⁷Cs 分布图. 其中 2013 年 Panchpokhari 湖芯的¹³⁷Cs 活度从表层往下呈现指数下降趋势,说明¹³⁷Cs 已经明显向表层富集,而 2014 年和 2017 年在色林错采集的湖芯中¹³⁷Cs 则呈现了锐利的单一峰值,且活度很快归零,说明¹³⁷Cs 没有明显迁移. 因此,¹³⁷Cs 的迁移程度跟湖泊本身的沉积环境有关,¹³⁷Cs 的上下迁移甚至峰位改变都是可能的.

与 Cs 不同,Pb 的盐类溶解度通常很低,很难通过间隙水上下迁移,也难以被有机质或水生植物吸附,因此在沉积物中能够稳定存在. 综上,本研究认为,如果¹³⁷Cs 有明显峰值,且能够与²¹⁰Pb 的年代结果基本对应的话,可以用¹³⁷Cs 的 1963 年峰值作为准确时标参考,东亚地区绝大部分沉积物中 1974 和 1986 年的峰值并不明显,不能将唯一峰值定为 1974 或 1986 年;如果¹³⁷Cs 有明显的单一峰值,但与²¹⁰Pb 结果无法良好对应的话,应慎重检查²¹⁰Pb 的定年结果,选择合适的计算模式,可能的话,与纹层等其他定年方法比对;如果¹³⁷Cs 无明显峰值或者峰值明显偏离实际,说明¹³⁷Cs 已经发生了严重的纵向迁移,无法作为定年时标使用,定年结果应以²¹⁰Pb 为准.

图5 色林错和 Panchpokhari 湖沉积物中 ^{137}Cs 活度变化趋势Fig.5 ^{137}Cs activity changing trend in sediments of Selin Co and Panchpokhari Lake

3 结论

1) ^{210}Pb 定年样品封装时,应遵循“在保证能够均匀填满样品管的前提下,填装尽量多样品”的原则,提高测量精度. 如果样品量不足不能填满离心管,应进行校正以减小实验误差. 本研究以样品管不同填装深度测得的比活度与填满时测得的比活度的比值作为校正系数,建立了校正系数与填装深度的相关关系,获得了3种核素的校正公式. 用该系列公式对实际样品进行校正,结果显示,校正前半管样品与满管样品测量值的相对标准偏差在20%左右,而校正后的相对标准偏差控制在4%以内,说明校正方法准确有效.

2) CIC 模型可用于计算沉积物每层的年龄,而不是平均沉积速率. CIC 模式只是假设了恒定的 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 初始比活度,通过不同深度沉积物的实测比活度来反推每层的年龄. CFCS 则进一步假设沉积速率是恒定的,利用 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 指数衰变拟合曲线的斜率可求得平均沉积速率. 部分研究中提到用 CIC 模式计算平均沉积速率,给出的 CIC 年龄完全与深度呈比例变化,是不准确的.

3) ^{137}Cs 碱金属的属性决定了其大部分盐类是可溶的,沉积后可能随间隙水发生上下迁移. 从纳木错和 Panchpokhari 湖的 ^{137}Cs 活度变化趋势来看, ^{137}Cs 发生了明显的上下迁移,其迁移程度跟湖泊本身的沉积环境有关. 与 Cs 不同,Pb 的盐类溶解度通常很低,很难通过间隙水上下迁移,也难以被有机质或水生植物吸附,在沉积物中能够稳定存在. 因此,当二者出现明显差异时,建议定年结果以 ^{210}Pb 为准.

4 参考文献

- [1] Wan GJ. ^{210}Pb dating for recent sedimentation. *Quaternary Sciences*, 1997, **17**(3): 230-239. [万国江. 现代沉积的 ^{210}Pb 计年. 第四纪研究, 1997, **17**(3): 230-239.]
- [2] Wang JB, Zhu LP. Environmental change reflected by lake sediments on Tibetan Plateau: Progress and prospect. *Progress in Geography*, 2005, **24**(5): 1-12. [王君波, 朱立平. 青藏高原湖泊沉积与环境演变研究: 现状与展望. 地理科学进展, 2005, **24**(5): 1-12.]
- [3] Björck S, Wohlfarth B. ^{14}C Chronostratigraphic Techniques in Paleolimnology//Last WM, Smol JP eds. Tracking environmental change using lake sediments: Basin analysis, coring, and chronological techniques. Dordrecht: Springer, 2001: 205-245.

- [4] Goldberg ED, Koide M. Rates of sediment accumulation in the Indian Ocean//Geiss J, Goldberg ED eds. Earth science and meteoritics. Amsterdam: North-Holland publishing Company, 1963: 90-102.
- [5] Wang JB, Zhu LP, Wang Y *et al.* Spatial variability of recent sedimentation rate and variations in the past 60 years in Nam Co, Tibetan plateau, China. *Quaternary Sciences*, 2011, **31**(3): 535-543. [王君波, 朱立平, 汪勇等. 西藏纳木错现代沉积速率的空间分布特征及近 60 年来的变化研究. 第四纪研究, 2011, **31**(3): 535-543.]
- [6] Appleby PG. Chronostratigraphic techniques in recent sediments. Tracking environmental change using lake sediments. Dordrecht: Kluwer Academic Publishers, 1995: 171-203. DOI: 10.1007/0-306-47669-x_9.
- [7] Gu JW. Preliminary study on the sedimentation rate of wetlands in the lower yellow river based on the ^{210}Pb and ^{137}Cs Dating Techniques. *Earth and Environment*, 2020, **48**(6): 698-703. [顾家伟. 基于 ^{210}Pb 和 ^{137}Cs 计年法的黄河下游湿地沉积速率研究初探. 地球与环境, 2020, **48**(6): 698-703.]
- [8] Wang XH, Wu YJ, Fan DD. ^{210}Pb derived sedimentation rates in offshore area of the Xinghua Bay, Fujian Province, and proposed calibration method. *Journal of Palaeogeography*, 2019, **21**(3): 527-536. DOI: 10.7605/gdxb.2019.03.034. [王晓慧, 吴伊婧, 范代读. 福建兴化湾外近海 ^{210}Pb 法沉积速率及校正方法. 古地理学报, 2019, **21**(3): 527-536.]
- [9] Crozaz G, Picciotto E, de Breuck W. Antarctic snow chronology with ^{210}Pb . *Journal of Geophysical Research Atmospheres*, 1964, **69**(12): 2597-2604. DOI: 10.1029/jz069i012p02597.
- [10] Krishnaswamy S, Lal D, Martin JM *et al.* Geochronology of lake sediments. *Earth and Planetary Science Letters*, 1971, **11**(1/2/3/4/5): 407-414. DOI: 10.1016/0012-821x(71)90202-0.
- [11] Pennington W, Cambray RS, Eakins JD *et al.* Radionuclide dating of the recent sediments of Blelham Tarn. *Freshwater Biology*, 1976, **6**(4): 317-331. DOI: 10.1111/j.1365-2427.1976.tb01617.x.
- [12] Kang SC, Huang J, Wang FY *et al.* Atmospheric mercury depositional chronology reconstructed from lake sediments and ice core in the Himalayas and Tibetan Plateau. *Environmental Science & Technology*, 2016, **50**(6): 2859-2869. DOI: 10.1021/acs.est.5b04172.
- [13] Liu EF, Xue B, Yang XD *et al.* ^{137}Cs and ^{210}Pb chronology for modern lake sediment: A case study of Chaohu lake and Taibai lake. *Marine Geology & Quaternary Geology*, 2009, **29**(6): 89-94. [刘恩峰, 薛滨, 羊向东等. 基于 ^{210}Pb 与 ^{137}Cs 分布的近代沉积物定年方法——以巢湖、太白山湖为例. 海洋地质与第四纪地质, 2009, **29**(6): 89-94.]
- [14] Wang R, Yang XD, Langdon P *et al.* Limnological responses to warming on the Xizang Plateau, Tibet, over the past 200 years. *Journal of Paleolimnology*, 2011, **45**(2): 257-271. DOI: 10.1007/s10933-011-9496-y.
- [15] Chai SL, Gao LN, Qiu DM *et al.* ^{210}Pb and ^{137}Cs dating of the sediment core and its recent accumulation rates in Yueliang lake in west Jilin Province. *Journal of Jilin University: Earth Science Edition*, 2013, **43**(1): 134-141. [柴社立, 高丽娜, 邱殿明等. 吉林省西部月亮湖沉积物的 ^{210}Pb 和 ^{137}Cs 测年及沉积速率. 吉林大学学报: 地球科学版, 2013, **43**(1): 134-141.]
- [16] Sanchez-Cabeza JA, Ruiz-Fernández AC. ^{210}Pb sediment radiochronology: An integrated formulation and classification of dating models. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 2012, **82**: 183-200. DOI: 10.1016/j.gca.2010.12.024.
- [17] Cremers A, Elsen A, De Preter P *et al.* Quantitative analysis of radiocaesium retention in soils. *Nature*, 1988, **335**(6187): 247-249. DOI: 10.1038/335247a0.
- [18] Davis RB, Hess CT, Norton SA *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. *Chemical Geology*, 1984, **44**(1/2/3): 151-185. DOI: 10.1016/0009-2541(84)90071-8.
- [19] Zhang XB, Long Y, Wen AB *et al.* Discussion on applying ^{137}Cs and $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ for lake sediment dating in China. *Quaternary Sciences*, 2012, **32**(3): 430-440. [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. 第四纪研究, 2012, **32**(3): 430-440.]
- [20] Lan JH, Wang TL, Chawchai S *et al.* Time marker of ^{137}Cs fallout maximum in lake sediments of Northwest China. *Quaternary Science Reviews*, 2020, **241**: 106413. DOI: 10.1016/j.quascirev.2020.106413.
- [21] Ma XZ, Wang YB, Zhao CC *et al.* Modern sedimentary process of Lake Basomtso in the southeastern Tibetan Plateau and its response to climate change. *J Lake Sci*, 2019, **31**(4): 1169-1181. DOI: 10.18307/2019.0403. [马学志, 王永波, 赵辰辰等. 青藏高原东南部巴松措现代沉积过程及其对气候变化的响应. 湖泊科学, 2019, **31**(4): 1169-1181.]
- [22] Zeng L, Wu FC, Wan GJ *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. DOI: 10.18307/2009.0101. [曾理, 吴丰昌, 万国江等. 中国地区湖泊沉积物中¹³⁷Cs 分布特征和环境意义. 湖泊科学, 2009, **21**(1): 1-9.]
- [23] Wang JB, Peng P, Ma QF *et al.* Investigation of water depth, water quality and modern sedimentation rate in Mapam Yumco and La'ang Co, Tibet. *J Lake Sci*, 2013, **25**(4): 609-616. DOI: 10.18307/2013.0420. [王君波, 彭萍, 马庆峰等. 西藏玛旁雍错和拉昂错水深、水质特征及现代沉积速率. 湖泊科学, 2013, **25**(4): 609-616.]
- [24] Fu GY, Sha ZJ, Zhang K *et al.* Research of deposition rate in northwestern Qinghai lake based on the ¹³⁷Cs and ²¹⁰Pb dating. *Journal of Salt Lake Research*, 2015, **23**(2): 7-14. [付国燕, 沙占江, 张凯等. ¹³⁷Cs 和 ²¹⁰Pb 测年的青海湖西北沉积速率研究. 盐湖研究, 2015, **23**(2): 7-14.]
- [25] Cong ZY, Kang SC, Gao SP *et al.* Historical trends of atmospheric black carbon on Tibetan Plateau as reconstructed from a 150-year lake sediment record. *Environmental Science & Technology*, 2013, **47**(6): 2579-2586. DOI: 10.1021/es3048202.
- [26] Brunskill GJ, Ludlam SD, Peng TH. Fayetteville Green Lake, New York, U.S.A.: VIII. Mass balance for ¹³⁷Cs in water, varved and non-varved sediments. *Chem Geol*, 1984, **44**(1): 101-117.
- [27] Xiang L. Limitations of the application of ¹³⁷Cs limnology: A case study of ¹³⁷Cs profile in Crawford lake sediment. *J Lake Sci*, 1995, **7**(4): 307-313. DOI: 10.18307/1995.0403. [项亮. ¹³⁷Cs 湖泊沉积年代学方法应用的局限——以 Crawford 湖为例. 湖泊科学, 1995, **7**(4): 307-313.]
- [28] Lasat MM, Fuhrmann M, Ebbs SD *et al.* Phytoremediation of a radiocesium-contaminated soil: Evaluation of cesium-137 bioaccumulation in the shoots of three plant species. *Journal of Environmental Quality*, 1998, **27**(1): 165-169.
- [29] Yang JC, Zhu YY, Chen JJ *et al.* Plant remediation of soil contaminated with ¹³⁷Cs. *Acta Agriculturae Nucleatae Sinica*, 2005, **19**(4): 286-290. [杨俊诚, 朱永懿, 陈景坚等. 植物对¹³⁷Cs 污染土壤的修复. 核农学报, 2005, **19**(4): 286-290.]
- [30] Raut R, Bajracharya RM, Sharma S *et al.* Potentially toxic trace metals in water and lake-bed sediment of panchpokhari, an alpine lake series in the central Himalayan region of Nepal. *Water Air & Soil Pollution*, 2017, **228**(8): 303. DOI: 10.1007/s11270-017-3467-5.