

黄海表层沉积物中总 β 放射性及其分布特征的研究*

尹 肖

(国家海洋局第一海洋研究所, 青岛)

摘要 本文通过对黄海表层沉积物中总 β 放射性的分析测定, 对黄海环境放射性污染现状进行了初步评价。结合沉积物类型、沉积环境等因素的宏观状况, 初步探讨了黄海沉积物中总 β 放射性的分布特征。总 β 放射性与沉积物的粒度、碳酸盐含量、Eh值及 Fe^{3+}/Fe^{2+} 值存在一定的负相关关系, 与沉积物的有机质及自生黄铁矿的含量存在一定的正相关关系。海洋沉积物放射性调查必须同时考虑沉积物的类型、沉积物化学特征及海洋动力状况诸因素。

随着原子能工业的发展, 核武器试验的增加以及核动力的越来越广泛的应用, 海洋环境的放射性污染引起国际上的极大关注, 围绕该问题的调查研究相继展开。海洋环境一般都不是被单一核素沾污, 为了快速给出沾污数据, 作出海洋环境放射性污染评价, 及早制定防护措施, 通常采用总 β 放射性分析方法。

黄海我国近海海洋环境放射性沾污状况的调查研究基本上属于空白。随着我国工业和国防现代化的飞速发展, 必将有越来越多的核电站和核舰船投入使用。为保护海洋环境免受放射性污染危害, 保证海洋资源的开发利用和人民群众的身体健康, 对我国沿海广大海域的环境放射性水平及分布特征进行调查研究是非常必要的。1982年, 我们对黄海表层沉积物中的总 β 放射性及分布特征进行了初步研究。

调 查 研 究 方 法

黄海为中国大陆和朝鲜半岛之间的半封闭型内海, 本次调查研究范围为 $34^{\circ}30'N$ 以北, $124^{\circ}E$ 以西的黄海海域。基本上采用网格状布点, 近岸区域布点适当加密, 共设置了120个采样站, 均采0—5cm以上的表层沉积物样品。除去样品中大的贝壳, 在低温下烘干粉碎, 40目过筛, 混合均匀后称取一定的数量铺样制源。在FJ-332低本底 β 测量仪上测定, 用纯KCl标准源进行自吸收校正, 计算总 β 放射性含量。为定性分析沉积物中放射性核素的主要种类, 用FH-1906低本底(NaI) γ 谱仪对沉积物样品进行了 γ 能谱分析。结合沉积物类型、沉积物化学特征以及海洋动力状况等研究资料, 综合探讨了沉积物总 β 放射性及其分布特征。

* 本所海化组协助采集分析样品, 张洪燧同志协助清绘文中插图, 谨此致谢。
收稿日期: 1983年4月20日。

基 本 状 况

黄海表层沉积物中总 β 放射性的含量范围为9至45nCi/kg(干重),平均值为24nCi/kg(干重),总 β 放射性的含量分布不均匀,呈现一定的区域性(图1)。

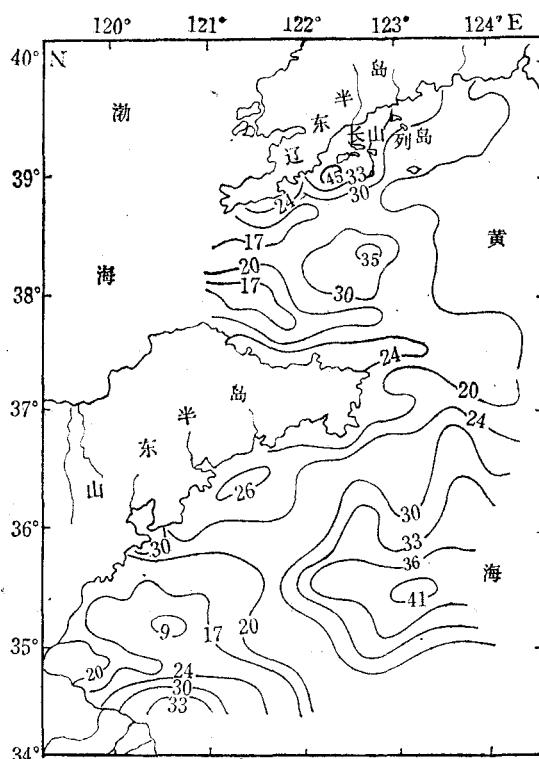


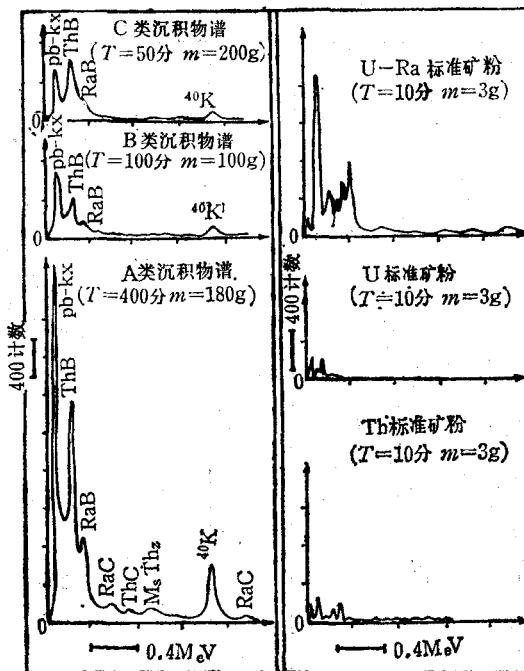
图 1 黄海表层沉积物中总 β 放射性的分布(单位: nCi/kg (干重))

含量较高的区域为：黄海南部水下平原区，黄海北部水下平原区，老黄河水下三角洲区及长山列岛区。含量较低的区域为：海州湾残留沉积区和渤海海峡残留沉积区。沉积物中的放射性同位素主要是铀、钍系及⁴⁰K等天然放射性同位素（图2）。

分 布 特 征

美国汉福特原子能工厂于 1943 年在未通过哥伦比亚河向海洋排放放射性废物之前，海洋只存在天然放射性，而现在其沉积物中的总 β 放射性则包括天然放射性同位素和人工放射性同位素两个方面，因此研究黄海沉积物的总 β 放射性及其分布特征，必须对这两个方面予以认真考虑。

天然放射性同位素来源于海底岩石的风化,陆源物质的输入及宇宙射线的辐射;沉积物中主要的天然放射性同位素为铀、钍系的放射性同位素、 ^{40}K 及 ^{32}Si ;人工放射性同位素的主要来源是核武器试验的沉降灰,原子反应堆的低活度放射性废液的排放,放射性废弃物的深海投放,同位素的应用以及核事故等。在核电站以及其它核设施和核事故区域,人

图2 黄海表层沉积物的几类 γ 能谱

工放射性同位素对沉积物中总 β 放射性的含量有显著影响，在远离这些区域的地方，沉积物中总 β 放射性的含量主要受天然放射性同位素的制约。根据有关海区沉积物中总 β 放射性的变化，就可以快速监测海洋环境的放射性沾污。研究沉积物中总 β 放射性的分布，就要同沉积物的来源，源生物质的放射性水平，沉积物的类型、化学特征以及人工放射性污染源的调查研究综合起来分析，并探讨同它们的相关性。

1. 总 β 放射性与沉积物类型之间的关系

在不同类型的沉积物中，天然放射性同位素和人工放射性同位素的含量各不相同，因此，不同类型沉积物的总 β 放射性亦存在差异。一般说来，细粒沉积物中总 β 放射性较高。例如英国温茨凯原子能工厂近岸沉积物中，泥质样品总 β 放射性强度为 6272 pCi/g（干重），而砂质沉积物的总 β 放射性仅为 43 pCi/g（干重），相差 146 倍^[4]。我国青岛近海砂质沉积物中¹³⁷Cs 的含量为 46 pCi/kg（干重），而粉砂质沉积物中¹³⁷Cs 的含量则为 156 pCi/kg（干重），相差 3 倍多^[1]。黄海平均水深 44 m，周边有黄河、海河、辽河、鸭绿江及朝鲜境内的青川江和大同江等较大的河流输入，陆源物质极为丰富。总的说来，黄海沉积物质的分异与一般水盆地沉积物质分异规律相一致，即随着离岸距离和水深的增加，陆源物质的颗粒由粗变细。但是，渤海海峡、成山角外海和海州湾外海三区域却有异常，在这三地离岸较远的海区分布着粗粒沉积物。研究证明，它们基本上是在冰后期以来很少接受沉积的所谓残留沉积区^[2]。黄海表层沉积物中值粒径 ϕ 值的分布如图 3 所示，黄海南部和北部水下平原及老黄河水下三角洲沉积物的颗粒相对较细，该三区恰是总 β 放射性含量相对较高的海域，海州湾外海残留沉积区和渤海海峡残留沉积区沉积物的颗粒相对较粗，恰是总 β 放射性含量相对较低的海域。总的来看，黄海沉积物总 β 放射性的含

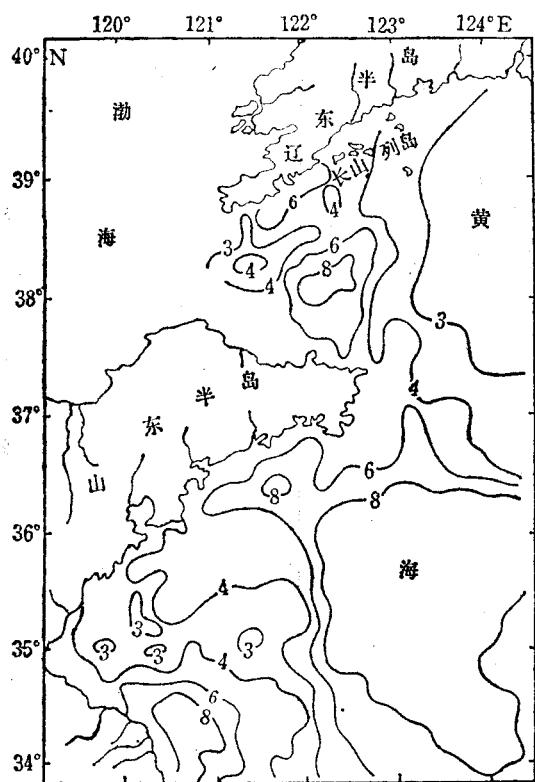
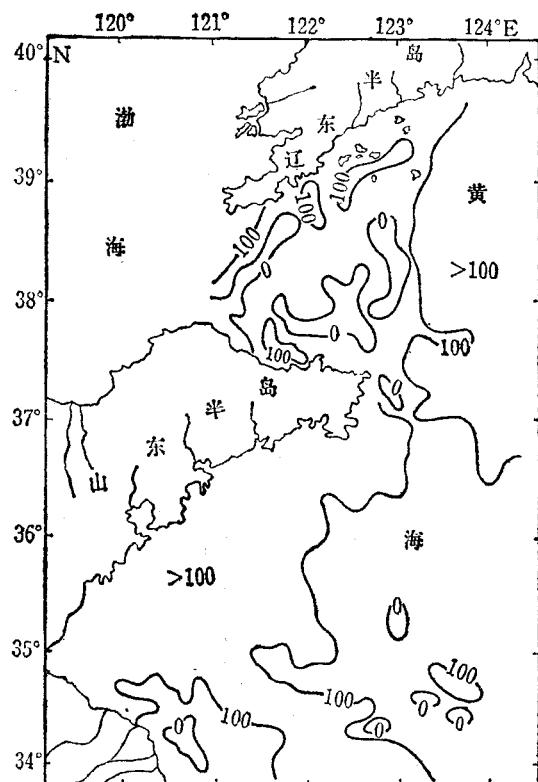
图 3 黄海表层沉积物中值粒径 M 值分布

图 4 黄海表层沉积物的 Eh 分布(单位: mV)

量基本上符合元素的正粒度控制率^[7], 即沉积物的总 β 放射性含量与沉积物的粒度大致成负相关关系。长山列岛区不符合这一关系, 其原因见后面的综合分析。

2. 总 β 放射性与 Eh 及 $\text{Fe}^{3+}/\text{Fe}^{2+}$ 之间的关系

由黄海沉积物的 γ 能谱图可看出, 铀、钍系及 ^{40}K 等天然放射性同位素对沉积物的总 β 放射性含量有较大影响。铀、钍含量在沉积物中的分布格局主要取决于沉积物形成时期的沉积环境以及在外生条件下铀、钍各自不同的地球化学特征, 而铀在还原环境下容易自海水中沉淀出来。另一方面, 象 ^{90}Sr , ^{65}Zn , ^{60}Co 等人工放射性同位素在还原环境下则易被沉积物所吸附。因此, 在还原环境的沉积物化学条件下, 其总 β 放射性相对较强。根据黄海沉积物中各化学要素的分布特征及沉积地质环境, 整个黄海海域可分为四个沉积化学环境区¹⁾, 即: 强氧化环境区, 氧化环境区, 弱氧化环境区和还原环境区(图 4 和 5)。黄海南部水下平原区, 黄海北部水下平原区及老黄河水下三角洲沉积物中的氧化还原电位(Eh)值小于 100 mV, 高低铁比值($\text{Fe}^{3+}/\text{Fe}^{2+}$)小于 1, 是典型的还原环境区。另外, 长山列岛一带也基本上处于还原环境下, 这四个区域恰是总 β 放射性含量较高的区域, 反之, 海州湾和渤海海峡两残留沉积区则属强氧化环境区, 恰是总 β 放射性含量较低的区域。由此可看出, 黄海表层沉积物的总 β 放射性含量与沉积物的 Eh 及 $\text{Fe}^{3+}/\text{Fe}^{2+}$ 的数值存在一定的负相关关系。

1) 房泽成, 1979。黄海沉积物化学特征的初步研究。

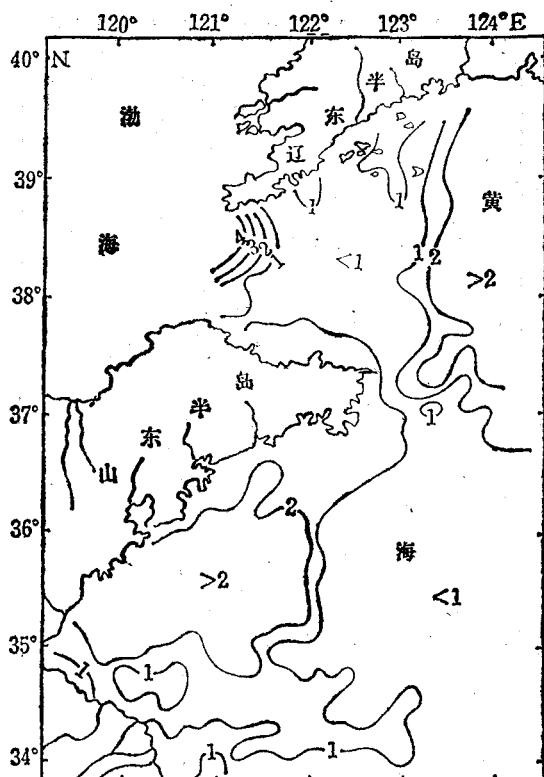
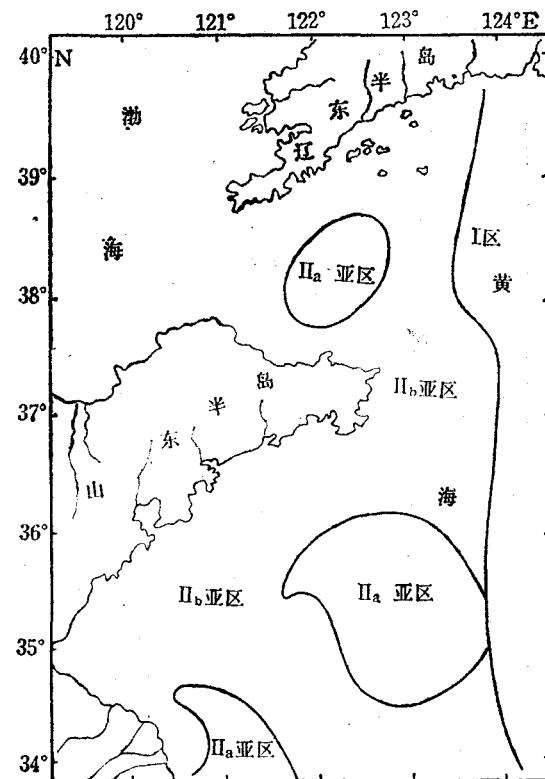
图5 黄海表层沉积物的 $\text{Fe}^{3+}/\text{Fe}^{2+}$ 分布

图6 黄海表层沉积物的矿物组合分区

3. 总 β 放射性与重矿物及粘土矿物之间的关系

不同矿物源生放射性的含量不同，不同矿物对海水中放射性同位素的吸附性能也不同，例如含伊利石多的沉积物对 ^{137}Cs 的吸附分配系数较高。一般说来，粘土组分具有最强的吸附能力。黄海粘土矿物主要来源于河流和风搬运来的陆源物质，由于粘土矿物颗粒很小，可随水和风运移很远，导致粘土矿物在大面积范围内的一致性。再加上黄海沉积环境及海洋动力的影响，致使黄海粘土矿物的分布无明显的规律性¹⁾。因而，总 β 放射性的分布与粘土矿物的分布也无明显的规律性。

黄海沉积物的重矿物可划分为两大矿物组合区（图6）²⁾。I. 东部矿物组合区（角闪石-绿帘石-石榴石-钛铁矿组合区）；II. 西部矿物组合区：II_a（角闪石-绿帘石-黄铁矿-片状矿物组合亚区），II_b（角闪石-绿帘石-金属矿物-副矿物组合亚区）。自生黄铁矿的分布如图7所示。由图1看出，三个II_a亚区恰是总 β 放射性含量较高的区域，这可能是由于该三区为还原环境，其中自生黄铁矿含量较高的原故。因为天然放射性同位素铀的沉淀富集通常与硫化物黄铁矿共生，在还原条件下容易沉淀。而氢氧化铁通过共沉淀及吸附机理，可以把海洋环境中的许多放射性同位素转移到海底。总的说来，黄海沉积物中的总 β 放射性含量与沉积物中的自生黄铁矿含量存在一定的正相关关系。

1) 赵全基, 1979。黄海表层沉积物粘土矿物研究。

2) 赵奎襄、彭汉昌, 1979。黄海重矿物分布特征及影响因素。

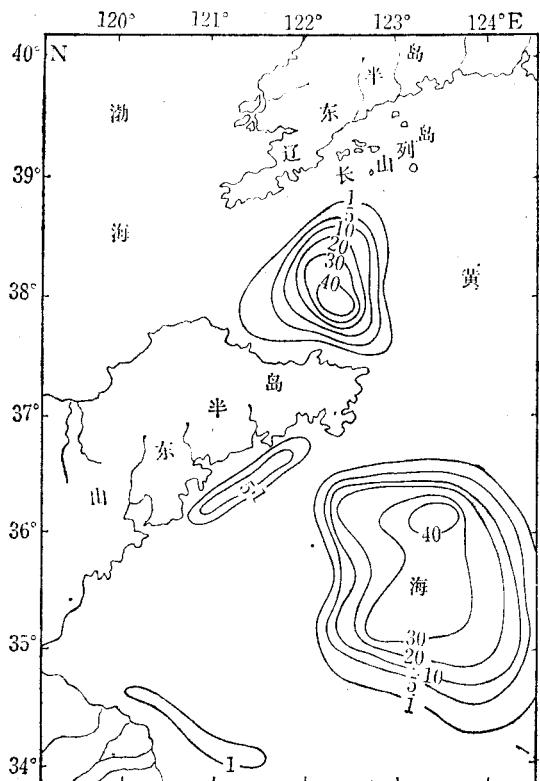


图 7 黄海表层沉积物中自生黄铁矿百分含量的分布

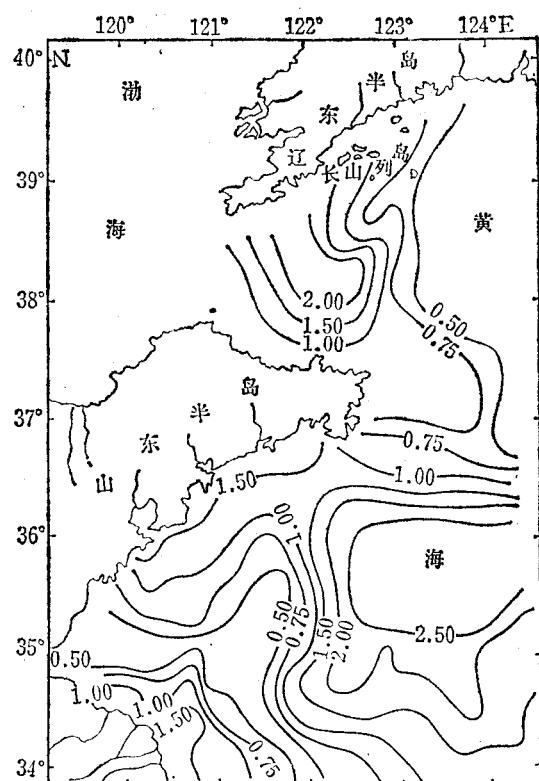


图 8 黄海表层沉积物中有机质的百分含量分布

4. 总 β 放射性与有机质含量之间的关系

因为有机质中含有腐殖质和腐泥质, 经过一定的转化, 对 UO_2^{2+} 有很强的吸附和汲取作用, 许多文献报道海洋沉积物中铀与有机质呈正相关关系^[9,10]。黄海沉积物中有机质的分布如图 8 所示。黄海南部和北部水下平原区和老黄河水下三角洲及长山列岛一带有机质的含量相对较高^[1], 这四个区域恰是总 β 放射性含量相对较高的区域。另外, 海洋生物对放射性同位素有很强的浓集作用, 这也是导致黄海沉积物中总 β 放射性与沉积物中有机质含量呈正相关关系的原因之一。

5. 总 β 放射性与碳酸盐含量之间的关系

碳酸盐含量高的沉积物对放射性同位素的吸附能力低^[4]。沉积物中铀、钍的浓度与沉积物中碳酸盐的含量亦有关, 铀、钍的最低含量往往与碳酸钙的最高含量联系在一起^[5,8]。黄海沉积物碳酸盐的主要成分是碳酸钙, 沉积物中碳酸盐的百分含量分布如图 9 所示^[3]。碳酸盐含量较高的海州湾和渤海海峡一带, 沉积物中的总 β 放射性含量较低, 碳酸盐含量较低的黄海南部和北部水下平原, 总 β 放射性的含量则较高。总的说来, 黄海沉积物的总 β 放射性含量与沉积物中碳酸盐的含量存在一定的负相关关系。

1) 房泽成, 1979。黄海沉积物化学特征的初步研究。

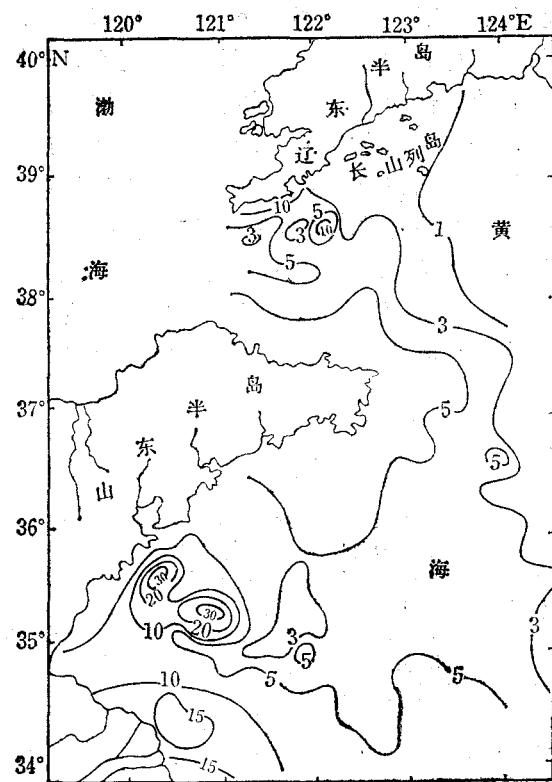


图9 黄海表层沉积物中碳酸盐的百分含量分布

6. 综合分析

沉积物类型、碳酸盐含量、有机质含量、自生黄铁矿含量以及沉积环境的氧化还原电位诸因素是相互制约的。一般说来，海洋动力弱作用区细粒物质容易沉积，由于水交换慢，这些地区容易处于还原环境，而还原环境自生黄铁矿及有机质的含量相对增高。黄海中南部和中北部，分别为底层水温终年低于8℃的黄海南部和北部冷水团盘据的地方，因其底部水温低、密度大，水体缺乏对流，动力作用微弱，各种陆源悬浮物都容易在此沉积，因此分布着最细的粉砂质泥，形成典型的还原环境，有机质及自生黄铁矿含量都最高，所以，这些海区沉积物中的总 β 放射性含量亦较高。长山列岛区沉积物粒度并非最小，但有机质及铁的含量较高，Eh及 $\text{Fe}^{3+}/\text{Fe}^{2+}$ 值较低，其总 β 放射性含量所以较高，可能是上述诸因素共同作用相互制约的结果。另外，该区岛屿较多，沉积环境及海洋动力状况都有其独特之处，其沉积物主要是由辽东半岛的碧流河、大洋河及鸭绿江输送的陆源物质和诸岛屿基岩的侵蚀风化所形成；其陆源物质多为花岗岩，而花岗岩中铀、钍放射性同位素的含量相对较高，这也可能是该海域沉积物中总 β 放射性含量较高的另一个原因。是否如上所述，尚需作进一步地深入探讨。

结语

1. 黄海海域沉积物中总 β 放射性含量的变化不悬殊，没有出现异常高值区，说明黄海各海区尚未受到严重的人工放射性沾污。几个海区总 β 放射性的相对增高是由于这些海

区沉积物类型、化学特征及陆源物质源生放射性不同等因素所致,由人工放射性沾污导致的可能性不大。黄海沉积物总 β 放射性主要受铀、钍系及 ^{40}K 天然放射性同位素所制约。

2. 黄海沉积物的总 β 放射性含量与沉积物的粒度、碳酸盐含量、Eh值和 $\text{Fe}^{3+}/\text{Fe}^{2+}$ 值存在一定的负相关关系,而与沉积物中有机质及自生黄铁矿的含量存在一定的正相关关系。上述诸因素之间是相互制约和影响的,其相关性与相互制约关系是一致的。

3. 海洋沉积物放射性调查是海洋环境放射性调查研究的重要组成部分,只分析沉积物的放射性含量,不考虑沉积物的类型、沉积物的化学特征及不同沉积物对放射性同位素吸附性能的差异,所得数值应用价值不大,并将给环境放射性质量评价带来一定困难,甚至导致错误的结论^[1]。建议对现行《海洋污染调查暂行规范》^[6]的有关部分进行补充和修正。

参 考 文 献

- [1] 尹毅、刘光章, 1983。几种近海沉积物吸附 ^{137}Cs 的初步研究。海洋科学 **1**: 18—21。
- [2] 刘振夏, 1982。黄海表层沉积物的分布规律。海洋通报 **1**(1): 43—51。
- [3] 刘彬昌, 1981。黄海沉积物中碳酸钙的初步研究。海洋湖沼通报 **2**: 20—25。
- [4] 李永棋, 1978。海洋的放射性。科学出版社, 73页。
- [5] 李培泉、刘志和、卢光山等, 1983。渤海近岸区表层沉积物中 U, Ra, Th, ^{40}K , ^{137}Cs 的 $\text{Ge}(\text{Li})\gamma$ 谱测定及地球化学研究。海洋与湖沼 **14**(4): 333—340。
- [6] 国家海洋局, 1979。海洋污染调查暂行规范。海洋出版社, 355页。
- [7] 赵一阳, 1980。海洋地球化学名词解释。海洋科学 **3**: 33。
- [8] Heye, D., 1969. Uranium, thorium and radium in ocean water and deep-sea sediments. *Earth Planet. Sci. Lett.* **6**:112.
- [9] Tin Mo, A. D. Suttle and W. M. Sackett, 1973. Uranium concentrations in marine sediments. *Geochimica et Cosmochimica Acta* **37**(1):35.
- [10] Коченов, А. В. и Г. Н. Батурина, 1967. Распределение урана в осадках Аральского моря. *Океанология*. **7**(4):623.

A STUDY OF THE TOTAL BETA RADIOACTIVITY IN SURFACE LAYER SEDIMENT AND ITS DISTRIBUTION IN THE HUANGHAI SEA

Yin Yi

(First Institute of Oceanography, NBO, Qingdao)

ABSTRACT

In this paper, the sea area of interest is the Huanghai Sea north of $34^{\circ}30'N$, west of $124^{\circ}E$. 120 sampling stations were set principally at grid points and the surface layer sediments in the upper 5 cm were sampled. The total beta measurement and energy spectrum analysis are made with FJ-332 low background beta counter and FH-1906 low background NaI(Tl) gamma-ray spectrometer, respectively. The total beta radioactivity in sediment and its distribution are then discussed comprehensively in conjunction with the sediment type, the chemical characteristics of sediment

and the dynamical conditions in the sea.

The content of total beta radioactivity in surface layer sediment in the Huanghai Sea ranges from 9 to 45 nCi/kg(dry weight) with a mean of 24 nCi/kg(dry weight). The total beta radioactivity varies with the sea area, the higher content area are the southern Huanghai Sea, the underwater plain in the northern Huanghai Sea, the former Huanghe River Delta and the sea area off Changshan Islands, whereas the lower content areas are the Haizhou Bay residual deposit area and the Bohai Strait residual deposit area. The radioactive isotopes in the sediments are basically the natural radioactive isotopes of U, Th family and ^{40}K etc.

The total beta radioactivity content in the sediment exhibits certain negative correlations with the grain size of sediment, carbonate content, Eh value and $\text{Fe}^{3+}/\text{Fe}^{2+}$ value in the sediment, and certain positive correlations with the organic matter and authigenic pyrite content in the sediment. The above-mentioned factors interact with each other, and the correlation is consistent with the interaction among the abovementioned factors. Therefore, the sediment type, the chemical characteristics of the sediment and the dynamical condition in the sea should be taken into account in investigation on marine sediment radioactivity.