

DOI: 10.16562/j.cnki.0256-1492.2018092001

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

林武辉^{1,2}, 余克服^{1,2}, 王英辉^{1,2}, 刘昕明³, 陈立奇⁴

1. 广西南海珊瑚礁研究重点实验室, 南宁 530004
2. 广西大学海洋学院, 南宁 530004
3. 广西海洋研究院, 南宁 530022
4. 自然资源部海洋-大气化学与全球变化重点实验室, 厦门 361005

摘要:放射性核素示踪技术被广泛应用于海洋学研究。海洋沉积物是许多物质的归宿,海洋沉积过程的研究常关注3个关联问题:物质来源、沉积速率、再悬浮过程。针对这3个问题,在南海9个珊瑚礁区、北部湾涠洲岛海域、珠江口、北冰洋、南大洋等多个海区利用典型的铀系放射性核素(²¹⁰Pb、²²⁶Ra、²³⁴Th、²³⁸U)示踪技术开展海洋沉积过程研究。物源识别方面,研究发现珊瑚礁区沉积物具有极低的²²⁶Ra/²³⁸U活度比值(<0.1),显著低于其他海区的²²⁶Ra/²³⁸U活度比值(0.5~1.0),该独特性质可以应用于珊瑚礁区的沉积物/悬浮物来源示踪,是其他传统元素地球化学方法(Al、Ti、稀土元素)的补充。沉积速率方面,基于²¹⁰Pb的恒定通量恒定沉积速率(Constant Flux Constant Sedimentation Model, CFCS)模式,定量计算了广西涠洲岛珊瑚礁区沉积柱样的沉积速率(3.7±0.6 mm/a),该结果低于中国多个近岸海域的沉积速率(5~96 mm/a)。沉积物再悬浮方面,提出利用“残余²³⁴Th”(不同于过剩²³⁴Th)示踪海洋沉积物再悬浮过程,并成功应用于北冰洋、南海、南大洋。

关键词:放射性核素;沉积物;示踪;珊瑚礁;残余²³⁴Th

中图分类号:P736.21 文献标识码:A

Using uranium-series radionuclides as tools for tracing marine sedimentary processes: Source identification, sedimentation rate, and sediment resuspension

LIN Wuhui^{1,2}, YU Kefu^{1,2}, WANG Yinghui^{1,2}, LIU Xinming³, CHEN Liqi⁴

1. Guangxi Laboratory on the study of Coral Reefs in the South China Sea, Nanning 530004, China
2. School of Marine Sciences, Guangxi University, Nanning 530004, China
3. Guangxi Academy of Oceanography, Nanning 530022, China
4. Key Lab of Global Change and Marine-Atmospheric Chemistry, Ministry of Natural Resources, Xiamen 361005, China

Abstract: Radionuclides are widely used as tracers in oceanography. As the final fate of many substances, marine sediment is mainly concerned from three perspectives: source identification, sedimentation rate, and sediment resuspension. In the present study, uranium-series radionuclides (²¹⁰Pb, ²²⁶Ra, ²³⁴Th, and ²³⁸U) are applied in several sea regions such as the nine typical coral reefs in the South China Sea, the Weizhou Island, the Pearl River Estuary, the Arctic Ocean, and the Southern Ocean, to study the sediment source, sedimentation rate, and sediment resuspension. Firstly, activity ratio of ²²⁶Ra to ²³⁸U was found extremely low (<0.1) in the marine sediment of coral reef regions comparing to the activity ratios (0.5~1.0) in other marine sediments and therefore, it could be used as the tool to identify the sources of marine sediments from coral reef regions in addition to other geochemical tools (Al, Ti, and REE). Secondly, the sedimentation rate (3.7±0.6 mm/a) was calculated for a sediment core taking from the coral reefs near the Weizhou Island via excess ²¹⁰Pb (Constant Flux Constant Sedimentation Model, CFCS model in brief) which was lower than most figures (5 mm/a~96 mm/a) in other coastal areas of China. Finally, residual β activity of particulate ²³⁴Th (RA_{P234})

资助项目:国家重大科学研究计划项目“南海珊瑚礁对多尺度热带海洋环境变化的响应、记录与适应对策研究”(2013CB956102);国家自然科学基金“珊瑚礁千米深钻记录的西沙碳酸盐台地形成演化和环境变迁史”(91428203),“南海造礁珊瑚对海洋人工放射性核素⁹⁰Sr源汇过程的指示作用研究”(41906043);广西“珊瑚礁资源与环境”八桂学者(2014BGXZGX03);广西自然科学基金面上项目“北部湾海洋沉积物中放射性核素的分布格局和调控机制研究”(2019GXNSFAA185006);国家海洋局海洋-大气化学与全球变化重点实验室开放基金“造礁珊瑚对海水中人工放射性核素⁹⁰Sr的指示作用研究”(GCMAC1606)

作者简介:林武辉(1987—),男,博士,主要研究海洋过程的同位素示踪、海洋放射性监测与评价, E-mail: linwuhui8@163.com

通讯作者:余克服(1969—),男,教授,主要从事珊瑚礁地质与生态环境研究, E-mail: kefuyu@scsio.ac.cn

收稿日期:2018-09-20; **改回日期:**2019-01-03. 文凤英编辑

was proposed for tracking marine sediment resuspension. The RA_{P234} was successfully applied in the Arctic Ocean, South China Sea, and Southern Ocean. In conclusion, the successful applications of these radioactive tracers have provided potential tools used for tracing marine sedimentary processes in addition to the ongoing toolbox.

Key words: radionuclides; sediment; tracer; coral reefs; residual β activity of particulate ^{234}Th

放射性核素示踪技术是海洋学研究的一种重要手段, 在国内外研究中具有广泛的应用^[1-8]。海洋放射性核素示踪技术的应用可以从垂直尺度和水平尺度两方面进行简单归纳。这些典型海洋过程的放射性核素示踪技术展示于图 1(但并不限于图 1)。

垂直方向上, 放射性核素示踪技术在海洋过程研究中的典型应用包括: 海气交换过程的 ^{222}Rn 示踪^[9], 大气沉降过程的 ^7Be 、 ^{232}Th 、 ^{210}Po 、 ^{210}Pb 示踪^[10-13], 海洋初级生产力的 ^{14}C 示踪^[14], 海洋输出生产力的 $^{234}\text{Th}/^{238}\text{U}$ 和 $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$ 示踪^[1, 15-18], 上升流过程的 ^7Be 和 ^{227}Ac 示踪^[19-20], 弱光层颗粒动力学过程的 $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$ 示踪^[21], 海底雾状层的 ^{234}Th 示踪^[22], 海洋沉积物埋藏过程的 ^{210}Pb 示踪^[2], 沉积物再悬浮过程的“残余 ^{234}Th ”示踪^[3], 沉积物间隙水运输的 $^{224}\text{Ra}/^{228}\text{Th}$ 示踪^[23]。

水平方向上, 放射性核素示踪技术在海洋过程研究中的典型应用包括: 河口与近岸的悬浮颗粒物动力学过程的 ^7Be 、 ^{210}Pb 、 ^{234}Th 、 ^{137}Cs 示踪^[24-26], 地下水运输过程的 ^{222}Rn 、 ^{226}Ra 、 ^{228}Ra 示踪^[27-28], 跨陆架输运过程的 $^{228}\text{Th}/^{228}\text{Ra}$ 示踪^[29-30], 大洋水团混合过程的 ^{226}Ra 和 ^{228}Ra 示踪^[31]。

海洋沉积物作为海洋环境的要素之一, 是许多污染物(重金属、放射性核素、持久性有机污染物等)的归宿, 同时也是古气候变化重建的重要“档案馆”。我国也开展亚洲边缘源汇过程与陆海相互作用

用的相关科学研究, 探讨大陆边缘沉积过程和表生物物质循环^[32]。

海洋沉积过程的研究通常碰到 3 个基本问题: 物质来源问题、沉积速率问题、再悬浮问题^[33]。物质来源直接关系着古环境的重建与信息提取, 比如南海沉积物源汇问题^[34]; 沉积速率的高低与区域环境背景密切相关, 同时对古环境的定量重建(年代构建)和海岸工程建设(港口淤积和疏浚、沙滩养护)具有重要意义^[35]; 再悬浮过程则影响沉积记录的可靠保存和对上覆水体的二次污染(海洋污染, 比如沉积物中营养盐的再释放对赤潮的影响、重金属和持久性有机污染物的二次污染等)^[3]。这三大问题形成一个相互关联的连续体系, 从沉积什么(物质来源), 到沉积快慢(沉积速率), 最后到沉积逆向过程的发生(再悬浮), 都需要特定的技术方法, 开展定量研究。

过去研究者往往采用矿物类别、特征元素(Al、Ti 等)、稀土元素、稳定同位素(Sr、Nd 等)、浊度、悬浮物浓度等传统的技术手段, 解决海洋沉积过程所涉及的这 3 个基本问题。但是, 在特定环境下这些方法可能存在一定的局限性, 比如基于称重法的悬浮物浓度可能存在一定的灵敏度限制, 基于某些元素/稳定同位素的方法可能存在端元特征值的重叠问题等。同时, 部分测量方法需要复杂的化学分离过程, 要求高纯度试剂、洁净实验室、娇贵仪器(同位素质谱)等条件。因此, 基于放射性核素示踪

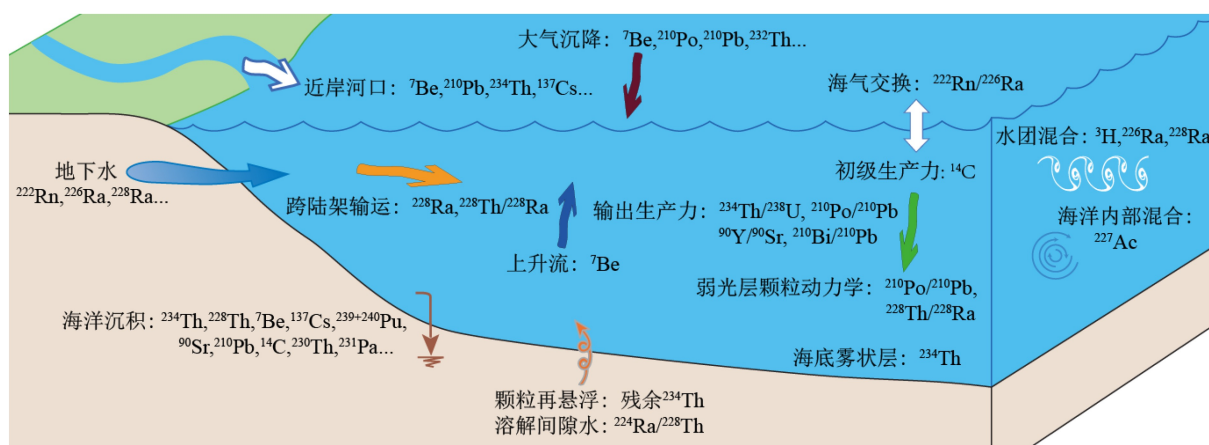


图 1 放射性核素示踪技术在海洋过程研究中的典型应用

Fig.1 Typical application of radionuclides to tracing marine processes

技术的高灵敏度、指纹特征、无需化学分离(^{210}Pb 、 ^{226}Ra 、 ^{238}U 的高纯锗 γ 谱仪测量)等特点,本文试图利用铀系放射性核素示踪技术解决海洋沉积过程研究中所面临的物源识别、沉积速率、再悬浮过程三大问题。

本文针对海洋沉积物的物源识别、沉积速率、再悬浮3个相互关联的沉积过程,通过在多个海区(南海9个珊瑚礁区、北部湾涠洲岛海域、南海珠江口、北冰洋、南大洋等)开展的研究实例,重点讨论铀系放射性核素示踪技术($^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$ 、 ^{210}Pb 、残余 ^{234}Th)在海洋沉积过程中的应用。本文采用的多种典型的铀系放射性核素($^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$ 、 ^{210}Pb 、残余 ^{234}Th)示踪技术将为海洋沉积过程的研究提供一定的参考,同时也一定程度上拓展放射性核素示踪技术在海洋学研究中的应用。

1 材料与方法

1.1 南海珊瑚礁区沉积物中 ^{226}Ra 和 ^{238}U

2015年5月至2017年7月期间,采用水肺潜水法,在水下原位采集南海9个珊瑚礁区的表层2 cm的沉积物,采样站位自北向南依次包括:广东大亚湾,广西涠洲岛,海南鹿回头,西沙群岛的北礁,中沙群岛的黄岩岛,南沙群岛(三角礁、仙鹅礁、信义礁),泰国普吉岛。采集后的沉积物放置于密封袋内,并冷冻带回实验室。

沉积物带回实验室后解冻烘干,剔除贝壳、树叶、砾石等杂质,研磨过筛(100~150目),取100 g沉积物粉末,装盒密封后放置30天,使 ^{226}Ra 及其子体核素达到平衡状态,进一步利用高纯锗 γ 谱测量放射性核素(^{238}U 和 ^{226}Ra)^[36-38]。

所有沉积物样品采用高纯锗 γ 谱仪(Canberra Be6530)进行测量,相对探测效率为63.4%,在1332 keV的能量分辨率为1.57 keV。铅室型号为777A,重量为1633 kg,从外到内的屏蔽材料为低碳不锈钢(9.5 mm)+低本底铅(15 cm)+老铅(2.5 cm), ^{210}Pb 活度小于25 Bq/kg)+低本底锡(1 mm)+高纯铜(1.6 mm)。数据处理采用Genie 2000软件。样品采用国际原子能机构(IAEA)提供的爱尔兰海沉积物(IAEA-385)标准源,获得样品探测效率。 ^{238}U 和 ^{226}Ra 分别选择其子体 ^{234}Th (63.3 keV)和子体 ^{214}Pb (351.9 keV)和 ^{214}Bi (609.3 keV)进行分析。仪器测量时刻的核素活度 A 和不确定度 δA 的计算公式如下:

$$A = \frac{(n_T - n_0)}{\varepsilon m} e^{\lambda(t_1 - t_0)} \quad (1)$$

$$\delta A = A \times \sqrt{\frac{(n_{GT} + n_{G0})}{T(n_T - n_0)^2}} \quad (2)$$

式中的 n_T 和 n_0 分别代表核素对应的 γ 全能峰处的样品和仪器净计数率; n_{GT} 和 n_{G0} 分别代表核素 γ 全能峰处的样品总计数率和仪器本底总计数率(包含环境本底和电子学噪声等); ε 和 m 代表相对探测效率和样品重量; λ 代表衰变常数; t_1 和 t_0 分别代表仪器测量时刻和样品采样时刻; T 代表仪器的测量时间。由于 ^{238}U 和 ^{226}Ra 的半衰期分别为 4.47×10^9 a和 1.6×10^3 a,采样时间至测量时间(1~2a)过程中的衰变校正可以忽略不计。

1.2 涠洲岛珊瑚礁区沉积物中 ^{210}Pb 和 ^{226}Ra

本文于2016年10月25日在北部湾涠洲岛西南部(21.03°N、109.08°E)采集1个沉积柱样。表层至20 cm,采用每层1 cm的分层方式,20~40 cm采用每层2 cm的分层方式,进行分样。每层样品进行称量,记录湿重。样品在60℃的烘箱中干燥,记录干重。取20 g沉积物粉末,装盒密封后放置30天,使 ^{226}Ra 及其子体核素达到平衡状态,进一步利用高纯锗 γ 谱测量放射性核素(^{210}Pb 和 ^{226}Ra)^[36-38]。

值得指出,本文沉积物中 ^{137}Cs 低于仪器最低检测限(0.63 Bq/kg),其他研究者在该海域附近也未能观察到沉积物中的 ^{137}Cs ^[39],该现象不同于其他中高纬海域的沉积柱样,可以同时利用过剩 ^{210}Pb 定年法和 ^{137}Cs 定年法^[40]。沉积物中 ^{137}Cs 的活度具体取决于不同纬度的全球落下灰沉降通量、黏土矿物的含量和吸附能力、河流输入贡献等因素。

所有沉积物样品采用高纯锗 γ 谱仪(Canberra Be6530)进行测量,根据公式(1)和公式(2)计算 ^{210}Pb (46.7 keV)和 ^{226}Ra (351.9 keV和609.3 keV)的活度和不确定度。结合恒定通量恒定沉积速率(CFCS)假设^[41],开展基于 ^{210}Pb -CFCS模式的沉积速率研究,详细方法参考林武辉等^[2]。

$$\ln A_{210\text{Pb}_{\text{ex}}} = \ln A_{210\text{Pb}_{\text{ex}-0}} - \frac{\lambda}{s} \times h \quad (3)$$

$$s = \frac{\lambda}{k} \quad (4)$$

$$\delta s = s \times \frac{\delta k}{k} \quad (5)$$

公式中 $A_{210\text{Pb}_{\text{ex}}}$ 代表过剩 ^{210}Pb 活度,即 ^{210}Pb 活度减去 ^{226}Ra 活度, $A_{210\text{Pb}_{\text{ex}-0}}$ 代表最表层沉积物过剩 ^{210}Pb 活度, s 和 δs 代表沉积速率和不确定度, k 和 δk 代表线

性拟合的斜率和不确定度, h 代表深度, λ 是 ^{210}Pb 的衰变常数。

在高纯锗 γ 谱仪放射性核素测量方法的质量控制方面, 广西大学海洋学院实验室定期开展仪器本底和标准源 (IAEA-385, IAEA-448, IAEA-314 等) 的测量工作, 绘制质量控制图, 参加并顺利通过 2017 年度国家海洋环境监测中心和 2018 年度国家核电厂安全及可靠性工程技术中心举办的高纯锗 γ 谱仪测量比对中所有放射性核素项目 (^{210}Pb , ^{238}U , ^{226}Ra , ^{228}Ra , ^{228}Th , ^{137}Cs , ^{40}K , ^{60}Co)。

1.3 海洋沉积物中残余 ^{234}Th

本文的残余 ^{234}Th 样品分别于 2012 年 9 月、2010 年 11 月、2012 年 1 月采集自北冰洋、南海、南大洋 3 个海区 [3, 18]。残余 ^{234}Th 指的是 Residual β activity of particulate ^{234}Th , 是在 $^{234}\text{Th}/^{238}\text{U}$ 不平衡法研究基础上, 在颗粒态 ^{234}Th 测量过程中, 经过 5 倍以上的 ^{234}Th 半衰期 (24.1 天) 后, 颗粒态 ^{234}Th 样品上残余 (剩余) 的 β 活度的表征。

残余 ^{234}Th 的采样和测量方法简单而言, 取 4~8 L 的海水 (具体体积视悬浮物总量而定), 采用石英滤膜 (QMA) 过滤颗粒物后, 滤膜在 60°C 的烘箱中过夜烘干, 用 DISC RING 制源, 利用一层塑料保鲜膜、两层锡箔纸 (8.0 mg/m^2) 屏蔽 ^{234}Th 的低能 β 粒子 (0.188 MeV) 的贡献, 以保证测量的粒子为 $^{234\text{m}}\text{Pa}$ 发射出来的高能 β 粒子 (2.28 MeV), 记录五路低本底 β 计数器 (Risø GM-25-5, Denmark) 的计数率 n_1 。经过 5 倍以上的 ^{234}Th 半衰期 (24.1 天) 后, ^{234}Th 几乎衰变殆尽, 再次测量颗粒态 ^{234}Th 的样品获得第二次测量的计数率 n_2 。再取一张空白滤膜 (未过滤海水), 同样步骤制源, 测量获得空白滤膜的本底计数率 n_0 , 颗粒态 ^{234}Th 样品的第二次测量计数率 n_2 与空白滤膜的本底计数率 n_0 的差值在一定程度上可以反映沉积物再悬浮过程的信号, 具体计算方法如公式 (6) 和 (7)。

$$\text{RA}_{\text{P}234} = \frac{n_2 - n_0}{\varepsilon V} \quad (6)$$

$$\delta\text{RA}_{\text{P}234} = \frac{\sqrt{(n_2 + n_0)/T}}{\varepsilon V} \quad (7)$$

其中 $\text{RA}_{\text{P}234}$ 和 $\delta\text{RA}_{\text{P}234}$ 分别表示残余 ^{234}Th 和不确定度, T 代表样品测量时间。

值得注意的是, 残余 ^{234}Th 是指滤膜所过滤的海水中颗粒物经过 120 天后 (5 个 ^{234}Th 半衰期) 在 β 计数器所记录的活度, 属于有长寿命的母体核素持续衰变支持的信号^[1]。它不同于其他研究采用的没有

长寿命母体核素 (^{238}U) 支持的过剩 ^{234}Th (Excess ^{234}Th) 的概念^[42-43]。

2 结果与讨论

2.1 珊瑚礁区沉积物的 $^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$: 物源识别

珊瑚礁是一种典型的海洋生态系统, 具有重要的生态服务功能^[44]。然而, 近年来全球珊瑚礁受到人类活动的影响而产生不同程度的退化^[45]。近岸珊瑚礁特别容易受到河流和人类活动的影响^[46]。人类活动 (港口疏浚、工程建设) 引入的悬浮物直接影响海水透明度, 进而影响虫黄藻的光合效率, 可能导致珊瑚白化, 甚至窒息死亡^[47]。因此, 如何识别珊瑚礁区外来和珊瑚礁区本身的悬浮物和沉积物, 示踪人类活动的影响, 具有重要的意义, 特别是对于靠近近岸的珊瑚礁 (岸礁)。

$^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$ 的活度比值被视为是一种海洋沉积物来源的指示剂^[37, 48-49]。海洋沉积物中 $^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$ 的活度比值与区域的地质环境特征密切相关, 大连湾^[40]、莱州湾^[50]、长江口^[48]、大亚湾^[51]、香港^[52]、广海湾^[53]、海南岛东部海域^[49], 都有独特的 $^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$ 的活度比值报道 (图 2)。

但是, 至今为止珊瑚礁区沉积物的 $^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$ 的活度比值的报道极少。河口区域的盐度梯度、有机物的络合和降解过程、铁锰水合物氧化物的形成等会破坏 ^{226}Ra 和 ^{238}U 在海水中的保守行为。相对于盐度、氧化还原电位等理化参数变化剧烈的河口区, 造礁珊瑚一般喜欢生长于较为稳定且较高盐度的富氧海水中。在高盐且富氧的珊瑚礁区表层海水中, 镭同位素的解吸行为和还原环境下铀同位素的沉淀行为被极大地抑制, 海水中 ^{226}Ra 和 ^{238}U 都拥有较为保守的生物地球化学行为。相对于其他颗粒活性核素 (Th、Pa、Pb 等), 珊瑚礁区的高盐富氧海水中 ^{226}Ra 和 ^{238}U 核素不易吸附于颗粒物表面, 颗粒物中 $^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$ 信号可以更好地反映源区状态。因此, 在高盐且富氧的珊瑚礁区表层海水中, ^{226}Ra 和 ^{238}U 核素所拥有的保守行为, 使得颗粒物更好地保留原始信号, 颗粒物中 $^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$ 信号免受吸附过程的干扰, 可能可以更好地应用于颗粒物的物源识别。

本文研究结果表明, 除珊瑚礁区外的其他海域的海洋沉积物中 $^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$ 的活度比值为 0.5~1 (图 2 中的紫色椭圆), 环礁海洋沉积物中 $^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$ 的活度比值均小于 0.1 (图 2 中的绿色椭圆), 显著区别于其他海区的海洋沉积物, 具有十分独特的

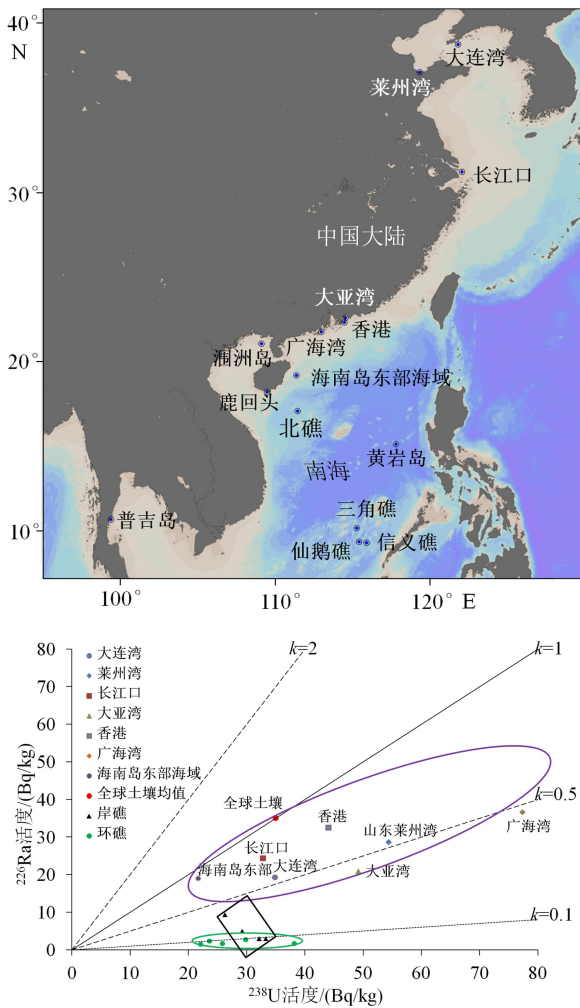


图2 海洋沉积物采样站点分布和对应的沉积物中 ^{226}Ra 和 ^{238}U 活度

k 值代表 $^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$ 的活度比值。绿色椭圆表示环礁的 $^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$ 活度比值(<0.1)。长方形代表岸礁的沉积物 $^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$ 活度比值。紫色椭圆代表其他海区的沉积物 $^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$ 的活度比值($0.5\sim 1.0$)。

Fig.2 Sampling station map of China for marine sediments and their associated ^{226}Ra and ^{238}U activities

k means activity ratio of ^{226}Ra to ^{238}U . The green ellipse indicates marine sediments from the atoll reefs with k values <0.1 . The black rectangle shows marine sediments from the fringing reefs. The purple ellipse represents marine sediments excluding coral reefs with k values of $0.5\sim 1.0$.

$^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$ 特征指纹。

珊瑚礁区海洋沉积物主要成分为碳酸钙, 沉积物中 $^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$ 特征端元是由生物矿化、破碎、风化过程所致。珊瑚礁区的造礁珊瑚钙化过程, 吸收海水的 ^{226}Ra ($1\sim 3\text{ Bq/m}^3$)和 ^{238}U (40 Bq/m^3)进入骨骼^[54], 大洋海水的 $^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$ 比值较为稳定且小于 0.1 , 同时造礁珊瑚对海水 ^{226}Ra 和 ^{238}U 的富集因子(CF)都为 $\sim 1000\text{ L/kg}$ ^[55-56], 因此, 根据公式(8)可以计算获得珊瑚骨骼中 $^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$ 活度比值小于 0.1 。我们也实测珊瑚骨骼中 $^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$ 活度比值, 印证了公式(8)获

得的结果(<0.1)。珊瑚礁区的沉积物主要来源于造礁珊瑚骨骼的破碎风化^[57], 进而导致珊瑚礁区沉积物拥有独特的 $^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$ 指纹(<0.1)。

$$\frac{^{226}\text{Ra}}{^{238}\text{U}}\Bigg|_{\text{珊瑚骨骼}} = \frac{^{226}\text{Ra}}{^{238}\text{U}}\Bigg|_{\text{海水}} \times \frac{\text{CF}^{226}\text{Ra}}{\text{CF}^{238}\text{U}} \quad (8)$$

其他海区沉积物主要来自于陆源的输入。陆源物质主要通过岩石和土壤的风化过程, 进入河流, 并最终进入海洋沉积物。陆源物质中的母子体核素(^{238}U 和 ^{226}Ra)通常较为接近平衡。因此, 我国多个近海海域的海洋沉积物具有明显的陆源特征, $^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$ 活度比值分布在 $0.5\sim 1$ 之间。

珊瑚礁区沉积物的 $^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$ 指纹特征, 可以用于识别陆源和生物过程来源的不同类型沉积物, 定量二者的贡献比例。部分岸礁容易受到河流、人类活动的影响, $^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$ 可以用于示踪陆源物质对岸礁的影响。本文也观察到部分岸礁(广东大亚湾)沉积物中 $^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$ 活度比值达到 0.36 (图2中的黑色方框), 该区域容易受到陆源物质的影响。大洋环礁的岛礁建设过程中, 所引入的外来陆源的黏土矿物, 也将显著区别于珊瑚礁区本身的沉积物, $^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$ 可能可以用于示踪岛礁工程建设的影响。因此, $^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$ 为珊瑚礁区沉积物物源识别的一种新方法, 用于识别陆源和生源两种不同来源的物质。该方法具有样品前处理简单和无需化学分离的优点, 更重要的是珊瑚礁区极低的 $^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$ 比值显著不同于其他海区沉积物的 $^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$ 比值, $^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$ 比值将是传统Al、Ti、K、Fe、稀土元素等元素地球化学方法在物源识别方面应用的有益补充^[58]。

2.2 基于 ^{210}Pb -CFCS模式的珊瑚礁区沉积速率计算

海洋沉积物是气候变化与环境污染的“档案馆”, 其中年代学是历史信息重建的基础。 ^{210}Pb 定年法是目前十年至百年尺度上海洋沉积物定年的可靠方法^[41], 被广泛应用于世界不同海区^[2, 35, 59-60]。

中国近海也开展了大量的海洋沉积物中 ^{210}Pb 的研究, 多位研究者指出这些研究主要集中于渤海、黄海、东海^[35, 61], 南海的研究相对较为缺乏^[62], 且南海的沉积速率研究主要集中于珠江口区域和海南岛海域^[63-65]。北部湾位于南海西北部, 该海域的涠洲岛是中国地质年龄最年轻的火山岛, 也是国家级的珊瑚礁海洋公园。海洋沉积过程对于造礁珊瑚的生长与珊瑚礁生态系统的健康具有重要意义^[47]。然而, 涠洲岛海域尚未见沉积速率方面的定量研究。

本文基于高纯锗 γ 谱的测量,通过公式(3)—(5)计算获得涠洲岛珊瑚礁区的沉积速率为 3.7 ± 0.6 mm/a(图 3),小于中国多个近岸河口区的沉积速率($5 \sim 96$ mm/a)^[35,62],低于南海海区的珠江口($15 \sim 73$ mm/a)和海南岛近岸海域($5 \sim 20$ mm/a)的沉积速率^[63-65],也低于广西近岸海域三娘湾的沉积速率(8.6 mm/a)^[66]。广西涠洲岛珊瑚礁区远离河口近岸等人为活动较为强烈的海区(直线距离 50 km 左右),相对于中国其他近岸海区,总体上具有较低的沉积速率。本文获得的珊瑚礁区邻近海域的沉积速率是南海沉积速率研究的重要补充,同时该沉积柱样也是今后研究近百年来北部湾环境变化的良好载体。

2.3 基于残余 ^{234}Th 的沉积物再悬浮过程示踪

沉积物再悬浮是沉积过程的反向过程,发生于全球不同海洋中^[67-69],该过程影响着沉积物和海水界面的物质交换,比如有机碳埋藏、营养盐交换、污染物的二次污染,进一步关系着海洋碳循环、富营养化、海洋污染。沉积物再悬浮过程可以利用物理方法(浊度)^[70]、化学方法(Al、Ti)^[71]、生物方法^[72]、地质方法^[22]进行研究。

残余 ^{234}Th ($\text{RA}_{\text{P}_{234}}$)是在 $^{234}\text{Th}/^{238}\text{U}$ 不平衡法示踪海水颗粒动力学过程的基础上发展而来^[1],用于指示沉积物再悬浮过程的发生。残余 ^{234}Th 是指有长寿命的母体核素持续衰变支持的信号^[1],不同于其他研究采用的没有长寿命母体核素(^{238}U)支持的过剩 ^{234}Th ($\text{Excess } ^{234}\text{Th}$)的概念^[42-43]。

传统的 $^{234}\text{Th}/^{238}\text{U}$ 不平衡法研究中, ^{234}Th 作为海洋颗粒物动力学的重要示踪剂,可以用来计算海洋颗粒物的停留时间,进而开展海水中颗粒物动力学研究^[1]。本文将颗粒态 ^{234}Th 测量方法基础上获得的残余 ^{234}Th ,运用于北冰洋陆架区、南海珠江口陆架区、南大洋陆架区,都观测到 $\text{RA}_{\text{P}_{234}}$ 在沉积物上覆水体的异常高值(图 4 中的黄色椭圆层位)。

在北冰洋站位,我们同时测量海水浊度(图 5),发现浊度和 $\text{RA}_{\text{P}_{234}}$ 剖面图具有较好的一致性,也说明 $\text{RA}_{\text{P}_{234}}$ 异常高值很可能是沉积物再悬浮所致^[3]。颗粒有机碳(POC)和残余 ^{234}Th ($\text{RA}_{\text{P}_{234}}$)也存在良好的相关性(图 6, $R^2=0.853$, $p<0.01$),沉积物再悬浮过程而导致的上覆水体具有高 POC 浓度,因此 POC 和 $\text{RA}_{\text{P}_{234}}$ 存在较好的相关性。汪卫国等(2014)在楚科奇海也观测到中下层海水存在较高浓度的悬浮颗粒物(SPM)^[73]。楚科奇海南部,靠近白令海峡,水动力条件较为强烈^[74],一定程度上为沉积物的再悬浮创造了条件。这些因素($\text{RA}_{\text{P}_{234}}$, 浊度, POC, SPM, 水文观测)都辅助说明残余 ^{234}Th ($\text{RA}_{\text{P}_{234}}$)指标与再悬浮过程密切相关,今后可以较为可靠地指示海洋沉积物的再悬浮过程^[3]。

从原理上, ^{238}U 和 ^{232}Th 与 Al 和 Ti 同属于亲石元素(Lithophile)^[75],陆架区沉积物中的陆源物质具有较高的 ^{238}U 和 ^{232}Th 核素活度,在衰变平衡的条件下,二者的子体核素 $^{234\text{m}}\text{Pa}$ 和 ^{212}Bi 能够衰变产生高能 β 粒子(>2.0 MeV),这些高能 β 粒子能够穿透一层塑料保鲜膜和两层锡箔纸,而被超低本底 β 计数器(Risø GM-25-5, Denmark)所测量。沉积物再悬

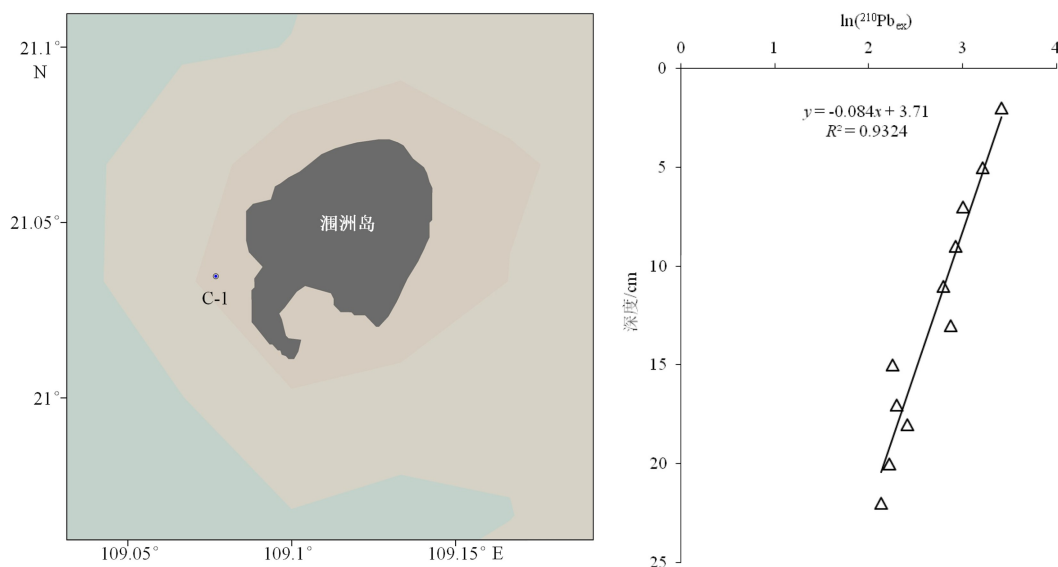


图 3 广西涠洲岛珊瑚礁区沉积物柱状样的站位图与过剩 ^{210}Pb 活度自然对数计算后的垂直分布

Fig.3 Location map of the sediment core collected from the Weizhou Island, Guangxi Province and vertical profile of excess ^{210}Pb activity with Napierian Logarithm transformation

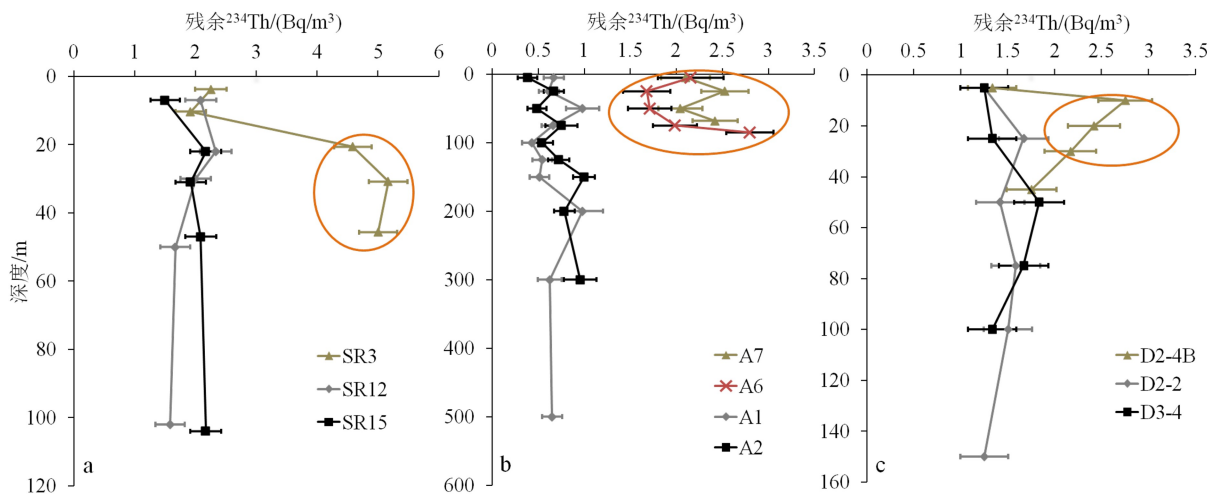


图4 北冰洋陆架区 (a)、南海珠江口陆架区 (b)、南大洋陆架区 (c) 不同站位的残余²³⁴Th (RA_{p234}) 剖面图
黄色椭圆形代表沉积物再悬浮过程引起RA_{p234}异常高值。

Fig.4 Vertical profiles of RA_{p234} in Arctic Ocean (a), South China Sea (b), and Southern Ocean (c)
Abnormal high RA_{p234} activity is indicated by yellow ellipses.

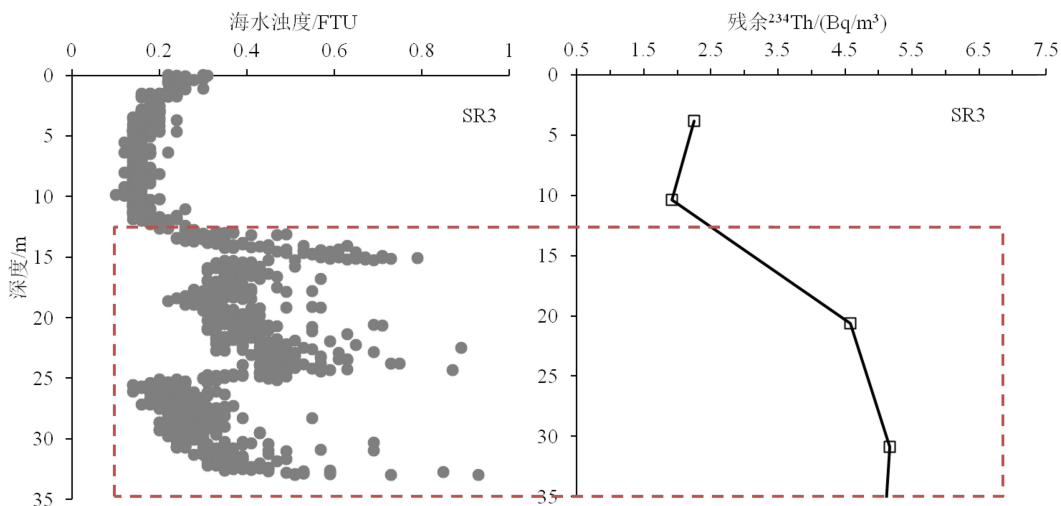


图5 北冰洋SR3 站位的海水浊度与残余²³⁴Th 剖面图对比
Fig.5 Vertical profiles of seawater turbidity and RA_{p234} at station SR3 in the Arctic Ocean

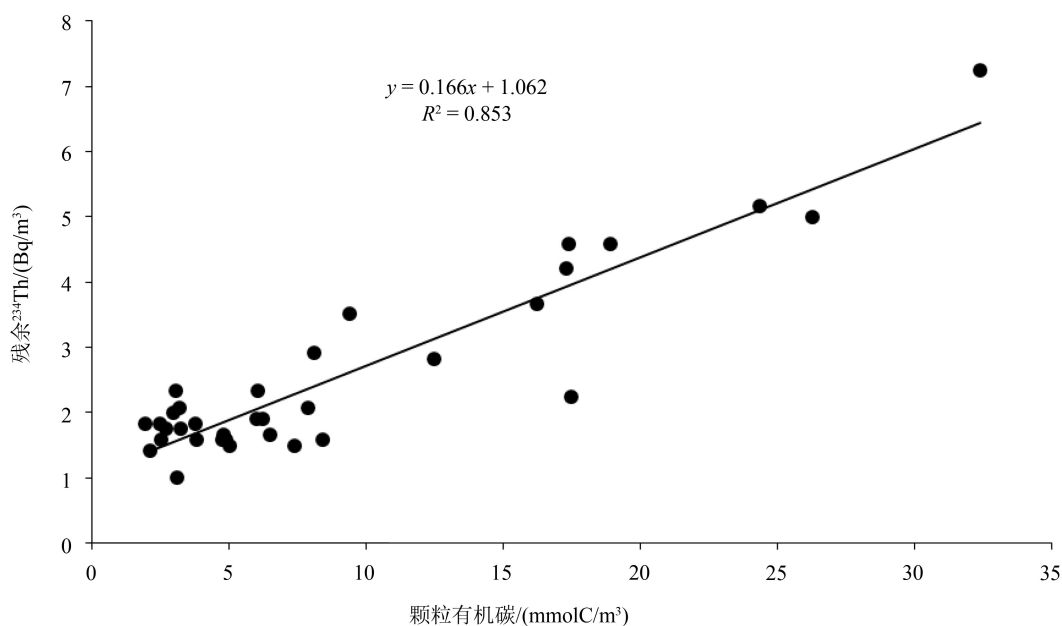
浮过程导致水体具有较高的悬浮物, 悬浮物中的²³⁸U和²³²Th核素的子体将产生较高的残余²³⁴Th (RA_{p234})信号^[3]。

3 结论与展望

从海洋沉积物的物源识别、沉积速率、沉积物再悬浮过程3个方面出发, 在多个海区(南海9个珊瑚礁区、北部湾涠洲岛海域、南海珠江口、北冰洋、南大洋), 利用²²⁶Ra/²³⁸U、²¹⁰Pb/²²⁶Ra、残余²³⁴Th三种不同的铀系放射性核素示踪技术分别进行研究, 得到珊瑚礁沉积物的独特²²⁶Ra/²³⁸U活度比值(<0.1), 定量计算获得珊瑚礁区的沉积速率为3.7±0.6 mm/a,

从浊度、POC、SPM、水文观测、探测原理三方面佐证残余²³⁴Th (RA_{p234})对沉积物再悬浮过程的示踪。

物源识别方面, 珊瑚礁区独特的²²⁶Ra/²³⁸U活度比值(<0.1)可以用于识别生物过程来源和陆源的不同类型沉积物, 示踪人类活动、河流对岸礁的影响, 以及指示岛礁工程建设所引入的外来陆源的黏土矿物等。沉积速率方面, 本文获得的珊瑚礁区临近海域的沉积速率(3.7±0.6 mm/a)低于广西三娘湾(8.6 mm/a)、南海海区(5~73 mm/a)、中国多个近岸海区(5~96 mm/a)的沉积速率; 广西涠洲岛海水具有较低的悬浮颗粒物浓度, 透明度较高的水体可能更加有利于造礁珊瑚的生长, 同时本文结果也是南海海域沉积速率的重要补充。沉积物再悬浮方

图6 北冰洋颗粒有机碳(POC)和残余 ^{234}Th ($\text{RA}_{\text{p}234}$)相关性分析

$$R^2=0.853, p<0.01$$

Fig.6 Linear relationship between particulate organic carbon (POC) and $\text{RA}_{\text{p}234}$ in the Arctic Ocean

The correlation factor and p value is 0.853 and <0.01 , respectively.

面,在传统的 $^{234}\text{Th}/^{238}\text{U}$ 不平衡法的研究基础上,残余 ^{234}Th ($\text{RA}_{\text{p}234}$)不同于过剩 ^{234}Th ,被视为一种示踪沉积物再悬浮过程的潜在方法,未来可能可以进一步应用于大气-海水-沉积物界面的相互作用研究,仍然需要更多工作的开展和验证。这些相对独立而又有一定关联的研究实例阐明了铀系放射性核素示踪技术可以为海洋沉积过程的研究提供一些参考手段。

致谢:本研究感谢自然资源部第三海洋研究所何建华副研究员和余雯副研究员在部分样品测量方面的支持与帮助,感谢顾海峰研究员、郑新庆副研究员在部分样品采集的帮助。感谢厦门大学海洋与地球学院蔡平河教授提供的南海部分 ^{234}Th 数据。感谢中国海洋大学李涛博士提供的北冰洋浊度数据。感谢“雪龙”号船员在南北极科学考察中所提供的帮助。感谢广西大学黄学勇、覃祯俊等南海科学考察队员在样品采集方面的帮助及冯禹、莫敏婷、陈肖霞等在实验测量中的帮助。感谢广西海洋研究院宁秋云、李英花、莫珍妮等在样品前处理和测量过程中的帮助。

参考文献 (References)

- [1] 林武辉. 高纬度边缘海海洋生物泵的多同位素示踪研究[D]. 清华大学博士学位论文, 2015: 126. [LIN Wuhui. Marine biological carbon pumps and their tracing using multi-isotope in the high latitude marginal seas [D]. Doctor Dissertation of Tsinghua University, 2015: 126.]
- [2] 林武辉, 陈立奇, 余雯, 等. 白令海和楚科奇海陆架区的生源物质埋藏通量研究[J]. 极地研究, 2016, 28(2): 194-202. [LIN Wuhui, CHEN Liqi, YU Wen, et al. Burial fluxes of biogenic materials in the Bering Sea and Chukchi Sea [J]. Chinese Journal of Polar Research, 2016, 28(2): 194-202.]
- [3] Lin W H, Chen L Q, Zeng S, et al. Residual β activity of particulate ^{234}Th as a novel proxy for tracking sediment resuspension in the ocean [J]. *Scientific Reports*, 2016, 6: 27069.
- [4] 黄奕普, 陈敏. 海洋同位素示踪技术研究进展[J]. 厦门大学学报: 自然科学版, 2001, 40(2): 512-523. [HUANG Yipu, CHEN Min. Progress in the isotope tracer technique for marine science [J]. Journal of Xiamen University: Natural Science, 2001, 40(2): 512-523.]
- [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(4): 193-206. [BI Qianqian, DU Jinzhou. Radioanalysis and its application in the marine environment [J]. *Journal of Nuclear and Radiochemistry*, 2015, 37(4): 193-206.]
- [6] Hong G H, Hamilton T F, Baskaran M, et al. Applications of anthropogenic radionuclides as tracers to investigate marine environmental processes[M]//Baskaran M. Handbook of Environmental Isotope Geochemistry. Berlin, Heidelberg: Springer, 2012: 367-394.
- [7] Rutgers Van Der Loeff M M. Uranium-Thorium decay series in the oceans overview[M]//Steele J H. Encyclopedia of Ocean Sciences. San Diego: Academic Press, 2001: 3135-3145.
- [8] 刘广山. 同位素海洋学[M]. 郑州: 郑州大学出版社, 2010. [LIU Guangshan. Isotope Oceanography [M]. Zhengzhou: Zhengzhou University Press, 2010.]

- Guangshan. *Isotopic Oceanography* [M]. Zhengzhou: Zhengzhou University Press, 2010.]
- [9] Loose B, Kelly R P, Bigdeli A, et al. How well does wind speed predict air-sea gas transfer in the sea ice zone? A synthesis of radon deficit profiles in the upper water column of the Arctic Ocean [J]. *Journal of Geophysical Research: Oceans*, 2017, 122(5): 3696-3714.
- [10] Hayes C T, Anderson R F, Fleisher M Q, et al. Quantifying lithogenic inputs to the North Pacific Ocean using the long-lived thorium isotopes [J]. *Earth and Planetary Science Letters*, 2013, 383: 16-25.
- [11] Kadko D, Landing W M, Shelley R U. A novel tracer technique to quantify the atmospheric flux of trace elements to remote ocean regions [J]. *Journal of Geophysical Research: Oceans*, 2015, 120(2): 848-858.
- [12] Baskaran M. Po-210 and Pb-210 as atmospheric tracers and global atmospheric Pb-210 fallout: a review [J]. *Journal of Environmental Radioactivity*, 2011, 102(5): 500-513.
- [13] Du J, Du J Z, Baskaran M, et al. Temporal variations of atmospheric depositional fluxes of ^7Be and ^{210}Pb over 8 years (2006-2013) at Shanghai, China, and synthesis of global fallout data [J]. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 2015, 120(9): 4323-4339.
- [14] Regaudie-de-Gioux A, Lasternas S, Agustí S, et al. Comparing marine primary production estimates through different methods and development of conversion equations [J]. *Frontiers in Marine Science*, 2014, 1: 19.
- [15] Yu W, He J, Li Y, et al. Particulate organic carbon export fluxes and validation of steady state model of ^{234}Th export in the Chukchi Sea [J]. *Deep Sea Research Part II: Topical Studies in Oceanography*, 2012, 81-84: 63-71.
- [16] He J H, Yu W, Lin W H, et al. Particulate organic carbon export fluxes on Chukchi Shelf, western Arctic Ocean, derived from $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$ disequilibrium [J]. *Chinese Journal of Oceanology and Limnology*, 2015, 33(3): 741-747.
- [17] Lin W H, Ma H, Chen L Q, et al. Decay/ingrowth uncertainty correction of $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$ in seawater [J]. *Journal of Environmental Radioactivity*, 2014, 137: 22-30.
- [18] Cai P H, Zhao D C, Wang L, et al. Role of particle stock and phytoplankton community structure in regulating particulate organic carbon export in a large marginal sea [J]. *Journal of Geophysical Research: Oceans*, 2015, 120(3): 2063-2095.
- [19] Kadko D, Johns W. Inferring upwelling rates in the equatorial Atlantic using ^7Be measurements in the upper ocean [J]. *Deep Sea Research Part I: Oceanographic Research Papers*, 2011, 58(6): 647-657.
- [20] Geibert W, Rutgers Van Der Loeff M M, Hanfland C, et al. Actinium-227 as a deep-sea tracer: sources, distribution and applications [J]. *Earth and Planetary Science Letters*, 2002, 198(1-2): 147-165.
- [21] Ma H Y, Yang W F, Zhang L H, et al. Utilizing ^{210}Po deficit to constrain particle dynamics in mesopelagic water, western South China Sea [J]. *Geochemistry, Geophysics, Geosystems*, 2017, 18(4): 1594-1607.
- [22] Rutgers Van Der Loeff M, Meyer R, Rudels B, et al. Resuspension and particle transport in the benthic nepheloid layer in and near Fram Strait in relation to faunal abundances and ^{234}Th depletion [J]. *Deep Sea Research Part I: Oceanographic Research Papers*, 2002, 49(11): 1941-1958.
- [23] Cai P H, Shi X M, Moore W S, et al. ^{224}Ra : ^{228}Th disequilibrium in coastal sediments: Implications for solute transfer across the sediment-water interface [J]. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 2014, 125: 68-84.
- [24] Du J Z, Zhang J, Baskaran M. Applications of short-lived radionuclides (^7Be , ^{210}Pb , ^{210}Po , ^{137}Cs and ^{234}Th) to trace the sources, transport pathways and deposition of particles/sediments in rivers, estuaries and coasts [M]//Baskaran M. *Handbook of Environmental Isotope Geochemistry*. Berlin, Heidelberg: Springer, 2012: 305-329.
- [25] Huang D K, Du J Z, Moore W S, et al. Particle dynamics of the Changjiang Estuary and adjacent coastal region determined by natural particle-reactive radionuclides (^7Be , ^{210}Pb , and ^{234}Th) [J]. *Journal of Geophysical Research: Oceans*, 2013, 118(4): 1736-1748.
- [26] Wang J L, Du J Z, Baskaran M, et al. Mobile mud dynamics in the East China Sea elucidated using ^{210}Pb , ^{137}Cs , ^7Be , and ^{234}Th as tracers [J]. *Journal of Geophysical Research: Oceans*, 2016, 121(1): 224-239.
- [27] Moore W S. The effect of submarine groundwater discharge on the ocean [J]. *Annual Review of Marine Science*, 2010, 2: 59-88.
- [28] Wang G Z, Wang Z Y, Zhai W D, et al. Net subterranean estuarine export fluxes of dissolved inorganic C, N, P, Si, and total alkalinity into the Jiulong River estuary, China [J]. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 2015, 149: 103-114.
- [29] Rutgers Van Der Loeff M, Cai P, Stimac I, et al. Shelf-basin exchange times of Arctic surface waters estimated from $^{228}\text{Th}/^{228}\text{Ra}$ disequilibrium [J]. *Journal of Geophysical Research: Oceans*, 2012, 117(C3): C03024.
- [30] Charette M A, Breier C F, Henderson P B, et al. Radium-based estimates of cesium isotope transport and total direct ocean discharges from the Fukushima Nuclear Power Plant accident [J]. *Biogeosciences*, 2013, 10(3): 2159-2167.
- [31] Charette M A, Morris P J, Henderson P B, et al. Radium isotope distributions during the US GEOTRACES North Atlantic cruises [J]. *Marine Chemistry*, 2015, 177: 184-195.
- [32] 杨守业. 一沙一世界——藏于海底的地球环境变迁史 [J]. *自然杂志*, 2017, 39(5): 313-319. [YANG Shouye. To see a world in a grain of sand: Environment changes recorded in global seafloor [J]. *Chinese Journal of Nature*, 2017, 39(5): 313-319.]
- [33] Burdige D J. *Geochemistry of Marine Sediments* [M]. Princeton: Princeton University Press, 2006.
- [34] Liu Z F, Zhao Y L, Colin C, et al. Source-to-Sink transport processes of fluvial sediments in the South China Sea [J]. *Earth-Science Reviews*, 2016, 153: 238-273.
- [35] Qiao S Q, Shi X F, Wang G Q, et al. Sediment accumulation and budget in the Bohai Sea, Yellow Sea and East China Sea [J]. *Marine Geology*, 2017, 390: 270-281.
- [36] 林武辉, 余克服, 王英辉, 等. 罕见的地表低辐射水平区域: 珊瑚礁区 [J]. *辐射防护*, 2018, 38(4): 287-292. [LIN Wuhui, YU Kefu, WANG Yinghui, et al. Unusual low radiation area on the surface of the earth: coral reefs [J]. *Radiation Protection*, 2018, 38(4): 287-292.]
- [37] 林武辉, 余克服, 王英辉, 等. 珊瑚礁区沉积物的极低放射性水平特

- 征与成因[J]. 科学通报, 2018, 63(21): 2173-2183. [LIN Wuhui, YU Kefu, WANG Yinghui, et al. Extremely low radioactivity in marine sediment of coral reefs and its mechanism [J]. Chinese Science Bulletin, 2018, 63(21): 2173-2183.]
- [38] Liu X M, Lin W H. Natural radioactivity in the beach sand and soil along the coastline of Guangxi Province, China [J]. *Marine Pollution Bulletin*, 2018, 135: 446-450.
- [39] 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 Yuanyi, LIN Jing, HUANG Dekun, 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.]
- [40] 杜金秋, 关道明, 姚子伟, 等. 大连近海沉积物中放射性核素分布及环境指示[J]. *中国环境科学*, 2017, 37(5): 1889-1895. [DU Jinqiu, GUAN Daoming, YAO Ziwei, et al. Distribution and environmental significances of radionuclides in sediments of Dalian coastal area [J]. *China Environmental Science*, 2017, 37(5): 1889-1895.]
- [41] Sanchez-Cabeza J A, Ruiz-Fernández A C. ^{210}Pb sediment radiochronology: An integrated formulation and classification of dating models [J]. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 2012, 82: 183-200.
- [42] Aller R C, Cochran J K. $^{234}\text{Th}/^{238}\text{U}$ disequilibrium in near-shore sediment: particle reworking and diagenetic time scales [J]. *Earth and Planetary Science Letters*, 1976, 29(1): 37-50.
- [43] Corbett D R, Mckee B, Duncan D. An evaluation of mobile mud dynamics in the Mississippi River deltaic region [J]. *Marine Geology*, 2004, 209(1-4): 91-112.
- [44] Moberg F, Folke C. Ecological goods and services of coral reef ecosystems [J]. *Ecological Economics*, 1999, 29(2): 215-233.
- [45] Hughes T P, Barnes M L, Bellwood D R, et al. Coral reefs in the Anthropocene [J]. *Nature*, 2017, 546(7656): 82-90.
- [46] McCulloch M, Fallon S, Wyndham T, et al. Coral record of increased sediment flux to the inner Great Barrier Reef since European settlement [J]. *Nature*, 2003, 421(6924): 727-730.
- [47] Jones R, Bessell-Browne P, Fisher R, et al. Assessing the impacts of sediments from dredging on corals [J]. *Marine Pollution Bulletin*, 2016, 102(1): 9-29.
- [48] Wang J L, Du J Z, Bi Q Q. Natural radioactivity assessment of surface sediments in the Yangtze Estuary [J]. *Marine Pollution Bulletin*, 2017, 114(1): 602-608.
- [49] Huang D K, Du J Z, Deng B, et al. Distribution patterns of particle-reactive radionuclides in sediments off eastern Hainan Island, China: implications for source and transport pathways [J]. *Continental Shelf Research*, 2013, 57: 10-17.
- [50] Wang Q D, Song J M, Li X G, et al. Environmental radionuclides in a coastal wetland of the Southern Laizhou Bay, China [J]. *Marine Pollution Bulletin*, 2015, 97(1-2): 506-511.
- [51] Zhou P, Li D M, Li H T, et al. Distribution of radionuclides in a marine sediment core off the waterspout of the nuclear power plants in Daya Bay, northeastern South China Sea [J]. *Journal of Environmental Radioactivity*, 2015, 145: 102-112.
- [52] Yu K N, Guan Z J, Stokes M J, et al. Natural and artificial radionuclides in seabed sediments of Hong Kong [J]. *The International Journal of Radiation Applications and Instrumentation. Part E: Nuclear Geophysics*, 1994, 8(1): 45-48.
- [53] 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 Feng, WU Meigui, ZHOU Peng, et al. Radionuclides in surface sediments from the Huangmaohai Estuary-Guanghai Bay and its adjacent sea area of the South China Sea [J]. *Journal of Tropical Oceanography*, 2015, 34(4): 77-82.]
- [54] 林武辉, 陈立奇, 马豪, 等. 日本福岛核事故后的海洋放射性监测进展[J]. *中国环境科学*, 2015, 35(1): 269-276. [LIN Wuhui, CHEN Liqi, MA Hao, et al. Review on monitoring marine radioactivity since the Fukushima Nuclear Accident [J]. *China Environmental Science*, 2015, 35(1): 269-276.]
- [55] Baskaran M. Dating of biogenic and inorganic carbonates using ^{210}Pb - ^{226}Ra disequilibrium method: a review[M]//Baskaran M. *Handbook of Environmental Isotope Geochemistry*. Berlin, Heidelberg: Springer, 2012: 789-809.
- [56] Saha N, Webb G E, Zhao J X. Coral skeletal geochemistry as a monitor of inshore water quality [J]. *Science of the Total Environment*, 2016, 566-567: 652-684.
- [57] Hart D E, Kench P S. Carbonate production of an emergent reef platform, Warraber Island, Torres Strait, Australia [J]. *Coral Reefs*, 2007, 26(1): 53-68.
- [58] Łącka M, Pawłowska J, Zajęczkowski M. New methods in the reconstruction of Arctic marine palaeoenvironments[M]//Zielinski T, Weslawski M, Kuliński K. *Impact of Climate Changes on Marine Environments*. Cham: Springer, 2015: 127-148.
- [59] Oguri K, Harada N, Tadao O. Excess ^{210}Pb and ^{137}Cs concentrations, mass accumulation rates, and sedimentary processes on the Bering Sea continental shelf [J]. *Deep Sea Research Part II: Topical Studies in Oceanography*, 2012, 61-64: 193-204.
- [60] Kuzyk Z Z A, Gobeil C, Macdonald R W. ^{210}Pb and ^{137}Cs in margin sediments of the Arctic Ocean: controls on boundary scavenging [J]. *Global Biogeochemical Cycles*, 2013, 27(2): 422-439.
- [61] 曾文义, 程汉良, 曾宪章, 等. 厦门港的淤积现状及防淤建议[J]. *海洋通报*, 1991, 10(1): 45-49. [ZENG Wenyi, CHENG Hanliang, ZENG Xianzhang, et al. Situation of modern sedimentation and propositions of preventing siltation in Xiamen Harbour [J]. *Marine Science Bulletin*, 1991, 10(1): 45-49.]
- [62] 刘广山. ^{210}Pb 过剩法与中国海的现代沉积物测年[M]//刘广山. *海洋放射年代学*. 厦门: 厦门大学出版社, 2016: 106-136. [LIU Guangshan. ^{210}Pb excess method and modern sediment dating in the China Sea[M]//LIU Guangshan. *Marine Radiological Chronology*. Xiamen: Xiamen University Press, 2016: 106-136.]
- [63] 潘少明, 王雪瑜, SMITH J N. 海南岛洋浦港现代沉积速率[J]. *沉积学报*, 1994, 12(2): 86-93. [PAN Shaoming, WANG Xueyu, SMITH J N. Recent sedimentation rates in Yangpu Harbour on Hainan Island [J]. *Acta Sedimentologica Sinica*, 1994, 12(2): 86-93.]
- [64] 潘少明, 施晓东, SMITH J N. 海南岛三亚港现代沉积速率的研究[J]. *海洋与湖沼*, 1995, 26(2): 132-137. [PAN Shaoming, SHI Xiaodong, SMITH J N. Determination of recent sedimentation rates in Sanya Harbour, Hainan Island [J]. *Oceanologia et Limnologia Sinica*,

- 1995, 26(2): 132-137.]
- [65] 刘志勇, 潘少明, 程功弼, 等. 珠江口沉积物²¹⁰Pb分布特征及环境意义[J]. 沉积学报, 2010, 28(1): 166-175. [LIU Zhiyong, PAN Shaoming, CHENG Gongbi, et al. ²¹⁰Pb characteristic in the sediment cores from the Pearl River Mouth and its environmental implication [J]. Acta Sedimentologica Sinica, 2010, 28(1): 166-175.]
- [66] Li P Y, Wang Y H, Huang W Y, et al. Sixty-Year sedimentary record of DDTs, HCHs, CHLs and Endosulfan from emerging development gulfs: a case study in the Beibu Gulf, South China Sea [J]. *Bulletin of Environmental Contamination and Toxicology*, 2014, 92(1): 23-29.
- [67] McCave I N. Local and global aspects of the bottom nepheloid layers in the world ocean [J]. *Netherlands Journal of Sea Research*, 1986, 20(2-3): 167-181.
- [68] Boudreau B P. A one-dimensional model for bed-boundary layer particle exchange [J]. *Journal of Marine Systems*, 1997, 11(3-4): 279-303.
- [69] Middag R, Van Hulten M M P, Van Aken H M, et al. Dissolved aluminium in the ocean conveyor of the West Atlantic Ocean: effects of the biological cycle, scavenging, sediment resuspension and hydrography [J]. *Marine Chemistry*, 2015, 177: 69-86.
- [70] Hall I R, Schmidt S, McCave I N, et al. Particulate matter distribution and ²³⁴Th/²³⁸U disequilibrium along the Northern Iberian Margin: implications for particulate organic carbon export [J]. *Deep Sea Research Part I: Oceanographic Research Papers*, 2000, 47(4): 557-582.
- [71] Rutgers Van Der Loeff M M, Boudreau B P. The effect of resuspension on chemical exchanges at the sediment-water interface in the deep sea — A modelling and natural radiotracer approach [J]. *Journal of Marine Systems*, 1997, 11(3-4): 305-342.
- [72] Turley C. Bacteria in the cold deep-sea benthic boundary layer and sediment-water interface of the NE Atlantic [J]. *FEMS Microbiology Ecology*, 2000, 33(2): 89-99.
- [73] 汪卫国, 方建勇, 陈莉莉, 等. 楚科奇海悬浮体含量分布及其颗粒组分特征[J]. 极地研究, 2014, 26(1): 79-88. [WANG Weiguo, FANG Jianyong, CHEN Lili, et al. The distribution and composition of suspended particles in the Chukchi Sea [J]. *Chinese Journal of Polar Research*, 2014, 26(1): 79-88.]
- [74] Woodgate R A, Aagaard K, Weingartner T J. A year in the physical oceanography of the Chukchi Sea: Moored measurements from autumn 1990-1991 [J]. *Deep Sea Research Part II: Topical Studies in Oceanography*, 2005, 52(24-26): 3116-3149.
- [75] White W M. *Geochemistry*[M]. Chichester, West Sussex Hoboken: John Wiley & Sons, 2013.