

李佩华, 吴晓, 毕乃双, 等. 山东半岛东部近岸表层沉积物放射性核素的季节性变化及其环境指示意义[J]. 海洋地质前沿, 2022, 38(2): 37-47.
LI Peihua, WU Xiao, BI Naishuang, et al. Seasonal variation of radionuclides in surface sediments off the east coast of Shandong Peninsula and its environmental implications[J]. Marine Geology Frontiers, 2022, 38(2): 37-47.

山东半岛东部近岸表层沉积物放射性核素的季节性变化及其环境指示意义

李佩华¹, 吴晓^{1,2}, 毕乃双^{1,2}, 王厚杰^{1,2*}

(1 中国海洋大学海洋地球科学学院, 青岛 266100; 2 海底科学与探测技术教育部重点实验室, 青岛 266100)

摘要:基于 2019 年 4 月、7 月、10 月、12 月渤海共享航次取得山东半岛东部近岸 H01 和 H02 站位多个季节沉积物样品, 通过低本底 γ 能谱仪分析得到其表层沉积物放射性核素 ^7Be 、 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 、 $^{228}\text{Th}_{\text{ex}}$ 和 ^{137}Cs 活度数据。结果表明, 短半衰期核素 ^7Be 、 $^{228}\text{Th}_{\text{ex}}$ 与长半衰期核素 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 、 ^{137}Cs 在同一站位的季节分布存在差异, 同一核素在 H01 和 H02 站位的季节分布也存在差异; H01 站位的 ^7Be 和 $^{228}\text{Th}_{\text{ex}}$, H02 站位的 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 和 ^{137}Cs , 受表层沉积物粒度影响较不明显, ^7Be 和 $^{228}\text{Th}_{\text{ex}}$ 的季节变化受悬浮物质的输运和沉降的影响显著, 而 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 和 ^{137}Cs 更多指示的是环流作用下的沉积物再分配; 与 H02 相比, H01 站位表层沉积物核素变化受大气沉降影响较低。H01 和 H02 站位分别位于“ Ω ”形泥质体顶部和东部边缘, 其物源和沉积动力环境存在差异, 放射性核素 ^7Be 、 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 、 $^{228}\text{Th}_{\text{ex}}$ 和 ^{137}Cs 在示踪物质输运和沉降过程中具有重要意义。

关键词: 山东半岛东部近岸; 表层沉积物; 季节变化; 放射性核素

中图分类号: P736.21 文献标识码: A DOI: 10.16028/j.1009-2722.2020.112

0 引言

全球河流每年向海洋注入约 200 亿 t 的沉积物^[1], 部分细颗粒沉积物可在海流作用下向外输运和沉降, 形成陆架远端泥质沉积区, 如长江的浙闽沿岸泥质带^[2]、亚马逊河 (Amazon) 三角洲的泥质带^[3-5]、意大利波河 (Po) 沿岸泥质带^[6-8]、黄河在黄海的泥质沉积带^[9]。陆架海作为陆源物质的“汇”和沉积物扩散至深海的“源”^[10], 在物质由陆向海输运的源-汇体系中扮演重要的角色。

黄河入海沉积物通过再悬浮并被沿岸流搬运, 经过渤海海峡, 在山东半岛海域受沿岸波浪、潮汐

和上升流的相互作用而沉积^[11], 形成了环绕山东半岛的大型泥质沉积体, 沉积中心位于山东半岛东部海域。对山东半岛东部泥质体表层沉积物的研究有助于了解黄河入海沉积物的源汇过程和沉降特征。

放射性核素在表层沉积物的研究中具有很好的环境指示意义, 在示踪季节性或事件性泥沙沉降过程中能够发挥良好作用^[12-16]。近年来, 因核素检测的高灵敏度以及其核衰变不受外界干扰的优越性, 放射性核素示踪技术在海洋沉积学的相关研究中应用愈来愈广^[12]。

本研究利用具有不同半衰期的颗粒活性核素 ^7Be 、 ^{210}Pb 、 ^{228}Th 以及 ^{137}Cs 作为工具, 结合表层沉积物的粒度和海水悬浮体浓度特征等信息, 对山东半岛东部泥质体附近表层沉积物的核素变化进行研究, 分析环流等海洋因素的控制作用, 并进一步探讨放射性核素在物质输运和沉降过程的环境指示意义。

1 研究区域概况

1.1 地形地貌与泥质沉积体

研究区位于山东半岛东部近岸, 南、北黄海交

收稿日期: 2020-07-27

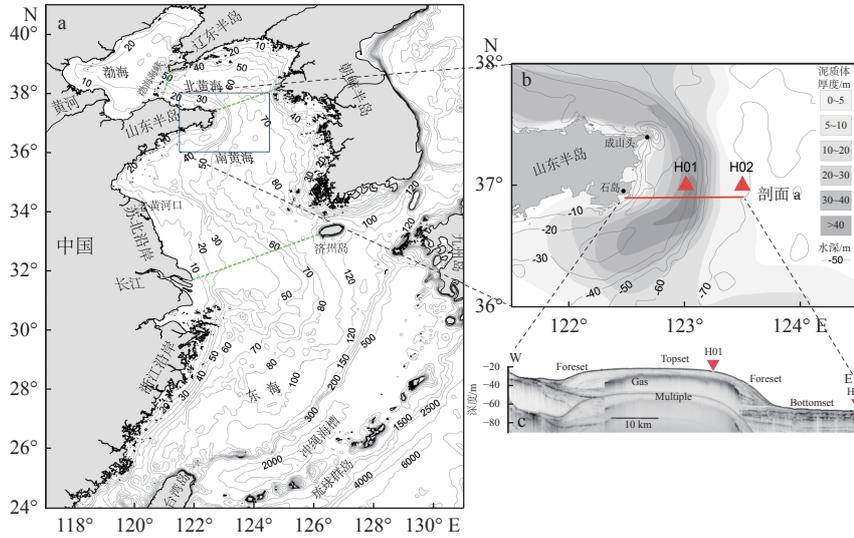
资助项目: 国家自然科学基金项目 (41525021, U1606401, 41530966, 41806101); 山东省泰山学者项目 (TS20190913); 基金委共享航次 (NORC2018-01, NORC 2019-01)

作者简介: 李佩华 (1994-), 男, 在读硕士, 主要从事海洋沉积动力学方面的研究工作. E-mail: phliouc@163.com

* 通讯作者: 王厚杰 (1972-), 男, 博士, 教授, 主要从事海洋沉积动力学方面的研究工作. E-mail: hjwang@ouc.edu.cn

界的成山头附近海域^[17](图 1a)。海底地貌特征主要为发育离岸的“Ω”形泥质沉积体^[11]。由岸向海深

度先减小再增大,最浅处不足 30 m,最深处超过 70 m(图 1b)。



(a)中国东部海域水深地形^[17]; (b)山东半岛东部泥质体等厚度图; (c)地震剖面^[11]

图 1 研究区域概况

Fig.1 Geological background of the study area

泥质沉积体在平面上绕山东半岛发育, YANG^[11]的研究结果认为其从东北部绕山东半岛之后仍向黄海中部发展,最远可以到达 80 m 等深线处(图 1b)。通过浅地层剖面研究,泥质沉积体在剖面上整体呈现中间厚、向海和向陆减薄的楔形(图 1c),最大沉积厚度可达 40 m^[11,18-21]。研究普遍认为该楔形泥质体于冰后期海平面上升时期沉积形成^[22-23],最大厚度位于向海一侧的海侵体系域(图 1c)。²¹⁰Pb 测年结果表明在百年尺度内泥质体中部沉积速率较高,可达 0.86 cm/yr,向海和向陆沉积速率降低^[24-25]。山东半岛近海沉积物类型以泥质沉积为主,粉砂是其表层沉积物主要组分,东部“泥楔”以粗粉砂为主,粉砂组分尤其是粗粉砂组分含量向海明显减少^[26]。现在普遍认为,泥楔的形成过程是黄河搬运入海的沉积物和侵蚀黄河三角洲的再悬浮物受洋流的搬运作用进入研究区域,在区域水动力环境和海底地形等因素的综合作用下沉积而成^[18,25]。

1.2 水动力环境与悬沙输运

研究区以不规则半日潮汐和规则半日潮流为主。受沿岸地形影响,泥质体附近以南北向的往复潮流为主。潮流是导致研究区泥沙再悬浮的重要动力^[27-29]。

山东半岛东部研究区位于东亚季风区,夏季盛行偏南风,风力较弱,冬季盛行偏北风,风力较强。盛行季风一方面影响环流的季节性变化,另一方面风力强弱能够影响波浪和涌浪强弱,进而影响泥沙

再悬浮程度^[29]。

黄海环流相比潮流较弱,但相对稳定^[30],对悬浮物的长期输运具有重要影响。山东半岛东部海域环流存在显著的季节变化。冬半年,环流以沿 60 m 等深线附近北上的黄海暖流和沿泥质体近岸南下的沿岸流为主;夏半年,环流主要为在冷水团边缘发育的近乎封闭的逆时针冷水团环流,沿岸流往往较弱甚至不发育^[30]。山东半岛近岸沉积物的再分配受环流影响。

研究区悬浮体具有空间分布差异和季节变化特征。空间上,山东半岛沿岸存在高浓度悬浮泥沙区,呈带状绕山东半岛发育,总体上由岸向海、由底到表悬浮体浓度不断降低;时间上,悬浮体分布的季节性变化较为明显;总体上,受风浪和沿岸流增强的影响,冬季水体悬浮体浓度明显高于夏季^[31-32],且沿岸输运增强,具有“夏储冬输”的输运格局^[33]。

山东半岛近岸悬浮沉积物的搬运受季节性发育的锋面过程影响^[34-37]。温度锋面在夏季发育强盛,但仅局限于底部,离岸方向转为水体层化^[37];冬季温度锋面表、底层基本一致,但相对较弱,垂向以水体混合为主。

2 研究方法

2.1 沉积物站位布设和采样过程

本文选取位于泥质体顶部和东部边缘的 H01、

H02 特定站位开展研究(图 1b、c), 依托国家自然科学基金委渤海共享航次对这 2 个站位表层沉积物进行了多季节重复采样。沉积物采样站位的坐标和时间见表 1, 因天气原因秋季航次 H01 站位未能采得沉积物样品。

表 1 表层沉积物采样站位

Table 1 Location of surface sediment sampling stations

季节	站位	采样日期	E/(°)	N/(°)	水深/m
春	H01	2019-04-29	123.01	37.00	29.4
春	H02	2019-04-29	123.50	37.02	72.9
夏	H01	2019-07-27	123.00	37.00	28.0
夏	H02	2019-07-27	123.50	37.00	73.0
秋	H02	2019-10-12	123.51	37.00	73.0
冬	H01	2019-12-18	123.01	37.00	30.4
冬	H02	2019-12-18	123.50	37.00	72.7

沉积物样品是利用 30 cm×30 cm×60 cm 箱式采样器采集所得, 用 7.5 cm×5 cm 口径的 PVC 方管垂直表面插入泥样中, 采得沉积物柱状样并密封保存带回实验室。本文的表层沉积物指柱状样分样后 0~1 cm 的表层沉积物样品。

2.2 放射性核素测试

本研究中沉积物样品的放射性核素活度检测在低本底高纯锗伽马能谱仪系统上完成(Ortec 和 Canberra)。沉积物样品上机测试前需进行预处理: 取 0~1 cm 的表层沉积物样品冻干、研磨, 装入 10 mL 离心管(春、夏、秋)或直径 50 mm 圆柱形样品盒(冬)中, 封装 20 d 以上达到放射性平衡后上机测量。

样品的测量时间一般为 24 h。本文所关注的核素计算方法如下: 以 46.5 keV 处的峰计算²¹⁰Pb 的比活度, 以 351.92 keV(²¹⁴Pb)和 609.31 keV(²¹⁴Bi)处的峰计算²²⁶Ra 的活度, ²¹⁰Pb 与²²⁶Ra 的差值为²¹⁰Pb_{ex} 的比活度; 以 583.19 keV(²⁰⁸Tl)以及 238.63 keV(²¹²Pb)处的峰计算²²⁸Th 的比活度, 以 338.32 keV、911.21 keV、968.97 keV(²²⁸Ac, ²²⁸Ra 的子体)3 处的峰计算²²⁸Ra 的活度, ²²⁸Th 和²²⁸Ra 的差值为²²⁸Th_{ex} 的比活度; 以 477.61 keV、661.7 keV 能量处的峰分别计算⁷Be 和¹³⁷Cs 的比活度^[12]。

2.3 沉积物粒度测试

本研究中沉积物样品的粒度测试由 Mastersizer 3000 激光粒度仪完成。粒度实验过程为: 选取少量沉积物表层样品放入烧杯中, 先后加入双氧水和稀

盐酸(1 mol/L)以去除有机质和钙质碎屑, 待充分反应后(一般各需 24 h 以上), 进行离心洗酸处理, 待充分洗酸后, 加入六偏磷酸钠溶液(1 mol/L)并进行超声振荡处理, 使待测沉积物减少络合, 充分分散, 最后用激光粒度仪测得粒度数据并导出分析。

2.4 研究方法自评估

测年结果表明泥楔近几十年平均沉积速率不足 1 cm/a^[23-24], 模式数据指示山东半岛东部泥质区的海床厚度季节性变化大多约为 1 cm, 或不足 1 cm^[37]。综合考虑沉积物再悬浮、输运和沉降的季节性差异, 所以用箱式取样器采集 60 cm 以上沉积物, 并重点分析其表层 0~1 cm 样品, 可以定性研究表层沉积物放射性核素的季节性变化及其对沉积环境的响应。本研究各季节采用相同采样方式, 且均选取 0~1 cm 表层沉积物样品, 经过相同前处理和测试流程, 分析其放射性核素活度和粒度特征, 在定性分析过程中具有可比性。

本研究利用半衰期不同的颗粒活性核素⁷Be、²¹⁰Pb、²²⁸Th 以及¹³⁷Cs 作为示踪工具, 结合粒度和悬浮体浓度等数据, 通过对作为载体的表层沉积物的变化进行研究, 可以进一步探讨导致物质输运和沉降季节性差异的环境因素及环境过程。

由于物质来源、物质输运和沉降过程、沉积物垂向混合过程等存在时空差异, 所以对表层沉积物放射性核素活度和粒度的定性定量分析仍需探索更多方法, 对表层沉积物放射性核素季节性变化及其对沉积环境响应的探讨仍需结合更多其他证据。

3 结果

3.1 H01 和 H02 表层沉积物组成和粒度季节性变化

H01 站位表层沉积物粒度数据表明(图 2a), 春、夏、冬 3 个季节平均粒径分别为 23.87、20.95、23.98 μm, 夏季较小, 但变化范围不大; 泥沙组分以粉砂为主, 不同季节占比为 78.10%~79.12%, 全年变化范围不大, 其次为砂, 占比为 13.04%~14.89%, 黏土占比为 6.59%~8.47%。在变化趋势上, 因黏土组分的增加和砂组分的减少, 夏季平均粒径略小于春、冬两季, 从而使粒径表现为从春季到冬季, 先减小再增加的趋势。春季和冬季粗颗粒组分占比相对较高, 细颗粒占比较少, 这与冬、春季节较强的水

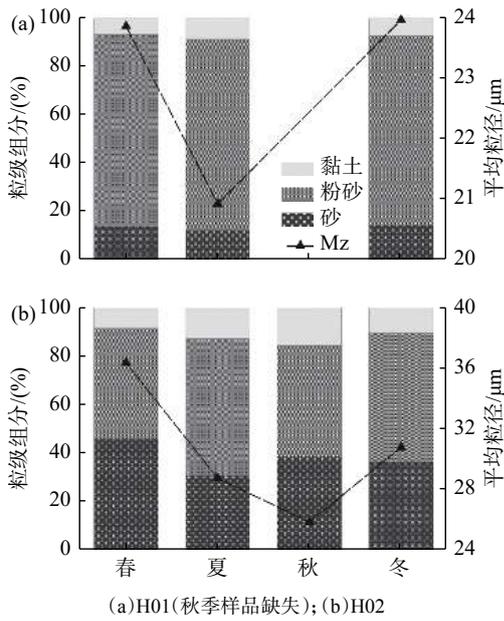


图2 表层沉积物平均粒径和粒级组分季节变化

Fig.2 Seasonal variation of mean grain size and composition of surface sediment

动力环境有关。

H02 站位粒度数据表明(图 2b), 春、夏、秋、冬 4 个季节表层沉积物平均粒径分别为 36.37、28.76、

25.88、30.80 μm , 整体上冬、春季节粒径较粗, 夏、秋季节粒径较细; 泥沙组分以粉砂和砂为主, 粉砂组分不同季节占比大致为 30.94%~46.08%, 砂组分不同季节占比大致为 45.53%~56.49%, 黏土组分不同季节占比大致为 8.40%~15.34%, 砂组分占比在春季最高, 夏季最低, 而黏土组分占比在夏、秋季节高于冬春季节。在变化趋势上, 随着黏土组分从春季到秋季逐渐增加, 砂组分占比在夏、秋季节相对春季降低, 平均粒径从春季到秋季逐渐减小; 冬季黏土组分相对秋季减少, 而粉砂组分增加, 导致沉积物平均粒径相对秋季又增大。

3.2 H01 和 H02 表层沉积物所含核素季节性变化

H01 站位表层沉积物 ^7Be 活度在春、冬两季高于夏季, 春季最高为 17.30 Bq/kg, 夏季最低为 1.97 Bq/kg。H02 站位表层沉积物 ^7Be 活度从春季到秋季逐渐升高, 冬季降低, 秋季最高为 7.22 Bq/kg, 春季最低为 2.02 Bq/kg。H01 和 H02 两站位表层沉积物中 ^7Be 的分布存在显著的季节差异和空间差异(图 3a)。

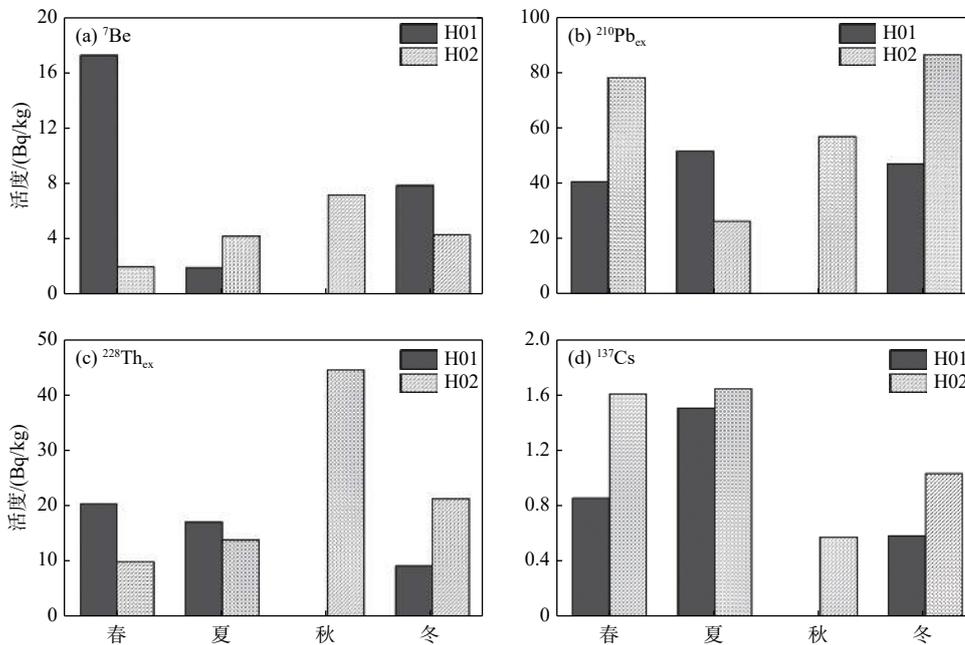


图3 H01 和 H02 表层沉积物所含核素的季节性变化

Fig.3 Seasonal variations of radionuclides of surface sediment at stations H01 and H02

$^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 在 H01 和 H02 站位表层沉积物中的季节性分布与 ^7Be 完全不同(图 3b)。H01 站位表层沉积物 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 活度春、冬两季低于夏季, 夏季最高为 51.79 Bq/kg, 但 3 个季节变化不大。H02 表层沉积物 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 活度春、冬两季较高, 且显著高于 H01 站

位, 夏、秋两季较低, 夏季最低为 26.70 Bq/kg, 全年变化相对较大。H01 和 H02 两站位表层沉积物中 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 的分布也存在显著的季节差异和空间差异, 但与 ^7Be 分布总体上具有相反的特征, 即在 H01 站位, $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 活度夏季高于春、冬两季, ^7Be 活度夏季

低于春、冬两季;而在 H02 站位, $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 活度春、冬两季高于秋季, ^7Be 活度春、冬两季低于秋季。

$^{228}\text{Th}_{\text{ex}}$ 在 H01 和 H02 站位表层沉积物中的季节性分布整体上与 ^7Be 相似(图 3c), 在 H01、H02 两站位的最高活度分别出现在春季和秋季, 在 H02 站位春季活度最低, 不同的是, 在 H01 站位冬季 $^{228}\text{Th}_{\text{ex}}$ 活度最低。 $^{228}\text{Th}_{\text{ex}}$ 与 ^7Be 具有大致相似的季节差异和空间差异。

^{137}Cs 在 H01 和 H02 站位表层沉积物中的季节性分布整体上与 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 相似(图 3d), 在 H01 站位夏季活度高于春、冬两季, 在 H02 站位春、冬两季活度高于秋季, 且显著高于 H01 站位春、冬两季活度, 不同的是, H02 站位夏季 ^{137}Cs 活度较高。 ^{137}Cs 与 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 具有大致相似的季节差异和空间差异。

4 讨论

4.1 表层沉积物粒度与放射性核素活度的关系

^7Be 、 ^{228}Th 、 ^{210}Pb 、 ^{137}Cs 均属于颗粒活性核素,

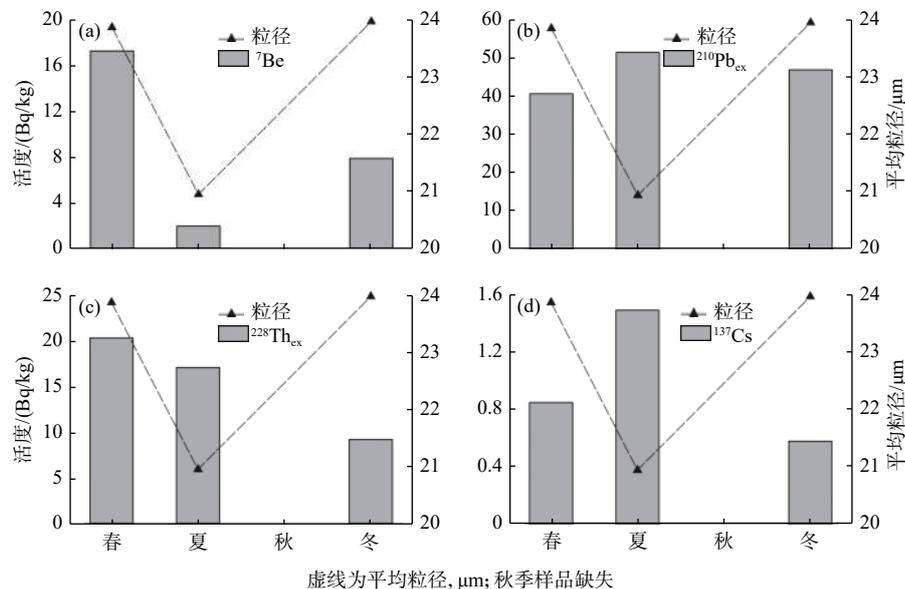


图 4 H01 站位表层沉积物的粒度与放射性核素活度

Fig.4 Seasonal variations of mean grain size and radionuclide activity of surface sediment at station H01

4.2 表层沉积物 ^7Be 和 $^{228}\text{Th}_{\text{ex}}$ 的影响因素

4.2.1 大气沉降对表层沉积物 ^7Be 的影响

^7Be 主要在平流层中产生(占 70%)^[39], 由于具有强烈的颗粒活性, 形成后很快被大气中的气溶胶吸附。而平流层气溶胶的停留时间平均为 1 a, 由于半衰期较短(53.3 d), 所以沉降到地球表面的 ^7Be

通过颗粒吸附而转移到沉积物中。沉积物粒径越小, 比表面能越大, 对核素的吸附能力也越强, 一般来说沉积物中核素活度也越高^[38]。H01 站位表层沉积物中的 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 和 ^{137}Cs (图 4b、4d), H02 站位表层沉积物中的 ^7Be 和 $^{228}\text{Th}_{\text{ex}}$ (图 5a、5c), 均与平均粒径大小表现为相反的变化趋势, 说明相应核素在相应站位的活度受沉积物粒度影响较为明显。由于平均粒径的变化受细颗粒组分(黏土组分)影响较为明显, 所以以黏土为代表的细颗粒组分的变化, 可能是导致 H01 站位的 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 和 ^{137}Cs , H02 站位的 ^7Be 和 $^{228}\text{Th}_{\text{ex}}$ 季节性变化的重要原因。

H01 站位的 ^7Be 和 $^{228}\text{Th}_{\text{ex}}$ (图 4a、4c), H02 站位的 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 和 ^{137}Cs (图 5b、5d) 受粒度影响较为不明显, 甚至部分核素活度高低与粒度大小变化有相同的趋势: 在 H01 站位, 春季到夏季, 平均粒径变小, ^7Be 和 $^{228}\text{Th}_{\text{ex}}$ 活度也降低; 在 H02 站位, 春、冬两季的平均粒径大于秋季, $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 和 ^{137}Cs 活度分布相似。沉积动力改造或事件性沉积可能是导致这些核素受粒度影响不明显的原因, 仍需更多的证据说明。

主要来源于对流层。只有在春季 4—5 月之间, 中纬度对流层变窄, 使得对流层-平流层交换加强, 平流层中的 ^7Be 可以“泄露”到对流层, 出现“春季泄露”的现象^[40-41]。所以, ^7Be 大气沉降的直接来源是对流层, 且对流层中 ^7Be 含量存在显著季节差异。

大气中吸附核素的气溶胶通过干、湿沉降到达陆地或海洋^[42]。大气中的 ^7Be 主要通过湿沉降清除,

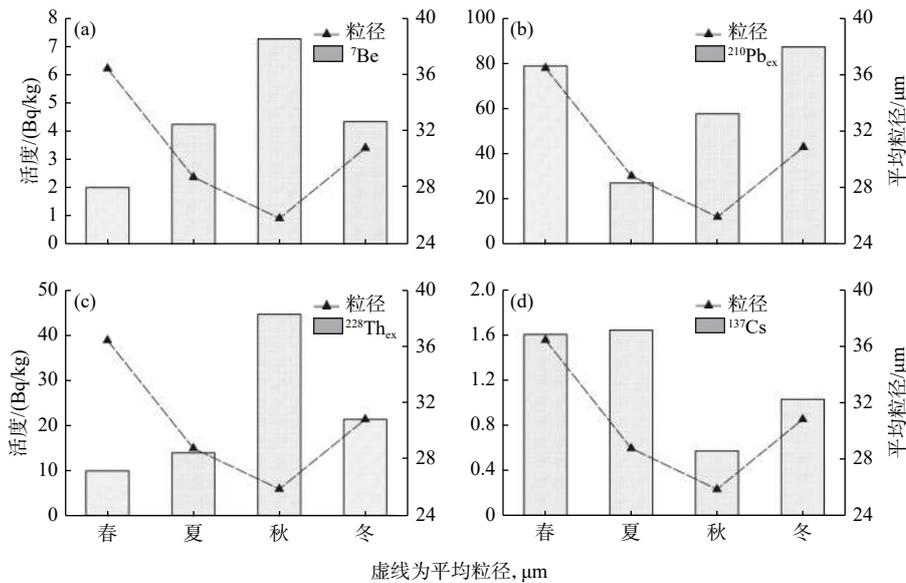


图5 H02 站位表层沉积物的粒度与放射性核素活度

Fig.5 Seasonal variations of mean grain size and radionuclide activity of surface sediment at station H02

干沉降贡献较小^[43]。湿沉降即通过降水清除。前人对于厦门、上海、青岛等地区大气沉降的研究均指出,⁷Be 大气沉降通量与降雨量存在相关性,降雨增加能够促进大气中⁷Be 的沉降^[43-46]。

2004—2005 年在青岛地区大气放射性核素沉降的研究表明^[46](图 6),受⁷Be“春季泄露”现象和夏秋季节降雨量增加的共同影响,青岛地区⁷Be 大气沉降通量整体上在 4—8 月份较高。可以用青岛地区的⁷Be 大气沉降,近似说明本文研究区⁷Be 大气沉降过程,即受控于⁷Be“春季泄露”现象和夏秋季节降雨量增加的影响,研究区 4—8 月份有较多⁷Be 从大气沉降到海洋。考虑到海水对物质沉降的迟滞作用,H02 站位表层沉积物⁷Be 活度从春季(4 月)到秋季(7 月)的逐渐增加与大气沉降具有一致性,即春夏季节⁷Be 大气沉降的增加可能是导致 H02 站位表层沉积物⁷Be 活度在夏秋季相对较高的原因。

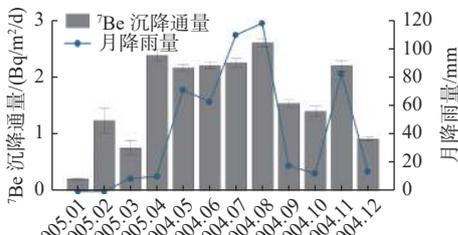


图6 青岛地区⁷Be 日均大气沉降通量和月降雨量^[46]

Fig.6 Atmospheric deposition flux of ⁷Be and monthly rainfall in Qingdao area^[46]

H01 站位表层沉积物⁷Be 活度在夏季(7 月)较低,与⁷Be 大气沉降过程不一致,说明在该站位海水中⁷Be 的沉降还受到其他因素的显著影响,如悬浮

物浓度或沉积动力改造等。

4.2.2 悬浮体浓度对表层沉积物⁷Be 和²²⁸Th_{ex} 的影响

海水中的 Ra 同位素主要来源于海底沉积物的向上扩散,河流输送部分的贡献仅为 3%~10%^[47-48]。因此,²²⁸Ra 衰变的子体同位素²²⁸Th 也主要来源于海底沉积物。

⁷Be 和²²⁸Th 作为短半衰期放射性核素,在海水中的直接来源分别主要为大气沉降和海底沉积物向上扩散,且均具有较强的颗粒活性,被海水中悬浮颗粒物吸附并随之沉降,是其从水体清除进入表层沉积物的主要路径。悬浮体浓度越高,对水体中核素的清除能力越强,有利于促进核素沉降。H01 和 H02 站位实测表、中、底层悬浮体浓度的季节变化如图 7 所示,表层沉积物⁷Be 和²²⁸Th_{ex} 活度整体上随悬浮体浓度的增减而增减,两者存在一定的相关性,说明悬浮体的浓度变化及沉降对这两种短半衰期放射性核素在表层沉积物中的季节分布具有显著影响。这种影响在山东半岛东部近岸体现在两个方面:一是悬浮体浓度增加有利于核素从水体中清除并沉降,二是在海洋动力条件下山东半岛沿岸表层沉积物的再悬浮、搬运和集中沉降有利于核素的富集。

在 H01 站位,从春季到夏季,⁷Be 和²²⁸Th_{ex} 活度并未随粒度变小而增大,这可能是受悬浮体浓度降低影响。另外,在山东半岛东部泥质体海域的数值模拟研究表明,夏秋季节温度锋面诱导潮流不对称性增强,泥质体近岸表层沉积物有侵蚀加剧并向外运输的趋势^[37],这也可能是导致⁷Be 和²²⁸Th_{ex} 活度

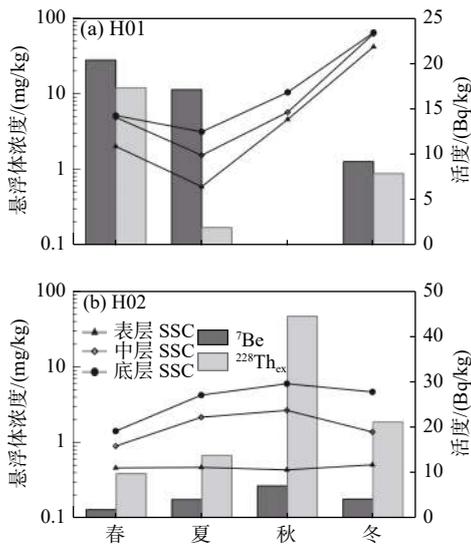


图 7 H01 和 H02 站位的悬浮体浓度和表层沉积物放射性核素活度

Fig.7 Seasonal variations of suspended sediment concentration and radionuclide activity of surface sediment at stations H01 and H02

在 H01 站位夏季降低的原因。

H01 站位冬季表层沉积物 ^7Be 和 $^{228}\text{Th}_{\text{ex}}$ 活度与随悬浮体浓度变化不一致。冬季 H01 站位受大风天气影响导致沉积物再悬浮增强, 悬浮体浓度急剧增大, 但 ^7Be 活度相对春季较低, $^{228}\text{Th}_{\text{ex}}$ 活度甚至比夏季还低, 这可能是由于再悬浮和搬运增强, 导致沉积物本身垂向混合增强, 下部低放射性活度沉积物向上混合导致。

4.3 表层沉积物 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 和 ^{137}Cs 的影响因素

^{210}Pb 是天然放射性核素, 半衰期为 22.3 a, 海洋

沉积物中过剩 ^{210}Pb 主要来自于大气沉降、陆源输入和海水自身 ^{226}Ra 衰变子体 ^{210}Pb 被悬浮颗粒物吸附并随之沉降^[49]。 ^{137}Cs 是人工放射性核素, 半衰期为 30.1 a, 主要来源于 20 世纪核试验或核泄漏释放到大气中的 ^{137}Cs 的沉降^[12], 海洋沉积物中的直接来源为大气沉降和陆源输入。两者均具有较强的颗粒活性, 易被悬浮体吸附而从水体中清除。细颗粒物质的吸附能力更强。因具有较长的半衰期, ^{210}Pb 和 ^{137}Cs 在海洋沉积物中能够停留较长时间, 容易受沉积物再悬浮和再分配影响而导致空间分布不均, 进而影响其再分配。

渤海表层沉积物的 ^{210}Pb 和 ^{137}Cs 的空间分布已有较为广泛的研究^[50-51]。 ^{210}Pb 和 ^{137}Cs 在渤海表层沉积物具有相似的空间分布特征(图 8), 在粒度较细、黏土组分含量较高的渤海中部、北黄海西部以及南黄海中西部, ^{210}Pb 和 ^{137}Cs 也具有分布的相对高值区(图 8)。海底沉积物中 ^{210}Pb 、 ^{137}Cs 与平均粒径之间良好的相关性, 表明 ^{210}Pb 、 ^{137}Cs 可以作为有效的示踪剂, 在河流主导的边缘海中追踪细粒沉积物及其相关颗粒活性污染物的扩散路径^[50-51]。细颗粒组分在海洋中的运输和沉降对 ^{210}Pb 和 ^{137}Cs 分布具有明显的富集作用。

在山东半岛东部研究区, ^{210}Pb 、 ^{137}Cs 分布整体上表现为由北向南增大的特征。沿岸流携带黄河物质绕过成山头继续南下, 水动力减弱导致沉降分异, 细颗粒物富集了 ^{210}Pb 、 ^{137}Cs , 在水动力稳定的南黄海中西部沉降形成 ^{210}Pb 、 ^{137}Cs 分布的高值区^[50-51](图 8)。而据报道^[52], 亚马逊河沉积物中 ^{210}Pb 大约 67% 来自外海的输送。因此, 有理由推断, 冬、春季

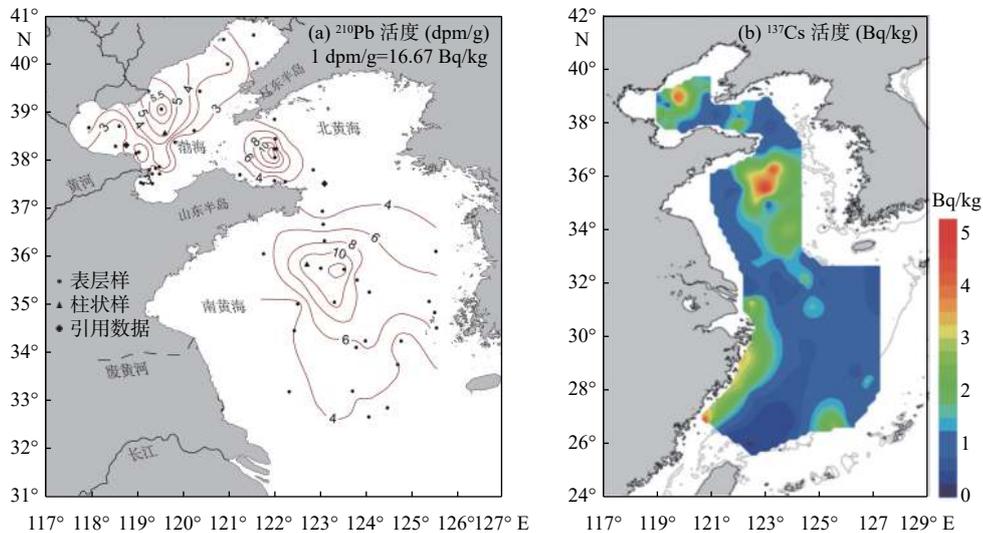


图 8 中国东部海域表层沉积物 ^{210}Pb 和 ^{137}Cs 的空间分布^[50-51]

Fig.8 Spatial distribution of ^{210}Pb and ^{137}Cs in surface sediment of the ECSs^[50-51]

节, 黄海暖流携带外海物质或者南黄海中部 ^{210}Pb 、 ^{137}Cs 高值区的物质向北输送(图9), 这可能是导致H02 站位冬、春季节表层沉积物 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 较高的原因;

同时, 沿岸流从 ^{210}Pb 低值区携带的再悬浮物质南下堆积, 也可能导致H01 站位冬、春季节表层沉积物 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 较低。

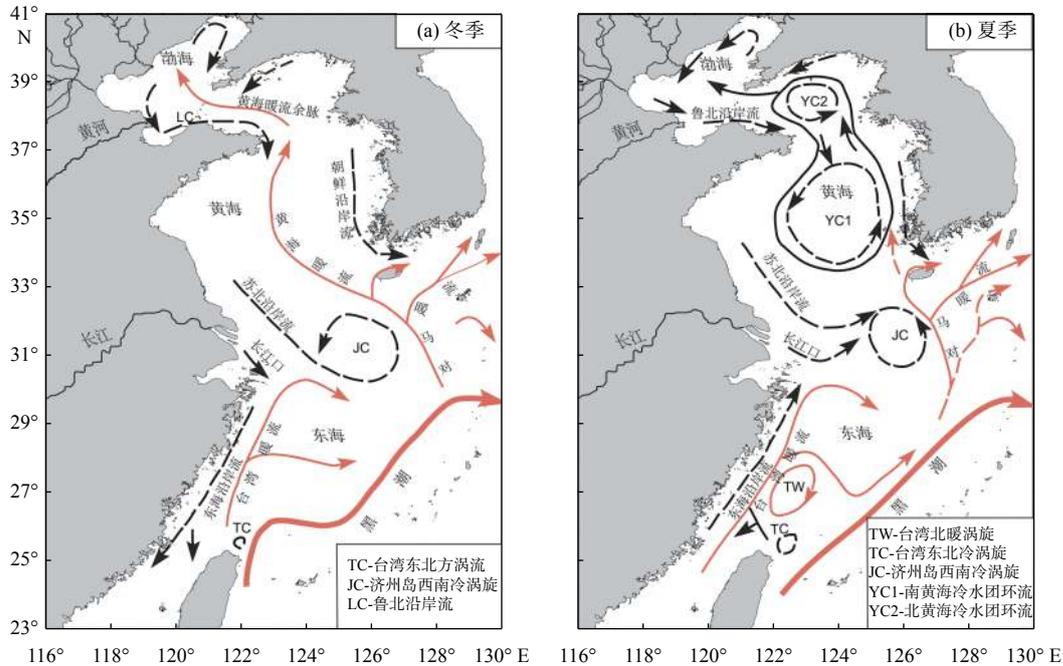


图9 中国东部陆架海冬季与夏季环流示意图^[30]

Fig.9 Ocean currents in winter and summer of East China Seas^[30]

其中 H02 站夏季表层沉积物中 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 活度降低, ^{137}Cs 活度却依然较高, 说明两种核素变化并不完全同步, ^{137}Cs 活度变化并不完全受沉积物再分配的影响。由于样品数量以及采集样品的时间跨度有限, 关于黄海表层沉积物 ^{210}Pb 和 ^{137}Cs 的富集机制及季节性沉积效应仍需进一步采样分析和系统研究。

4.4 表层沉积物 $^7\text{Be}/^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 活度比值变化

利用核素比值可以克服因沉积物组分、粒度大小对核素示踪的影响^[49,53], 用以区分沉积物的不同来源或者反映影响沉积的不同水动力环境。 ^7Be 和 ^{210}Pb 在介质或载体中的停留时间和清除过程存在显著不同, 在大气或海洋环境中两种核素的物源也存在差异, 因此实际工作中往往结合两种核素来示踪大气和海洋的物质运输与沉降过程, $^7\text{Be}/^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 活度比值在对近海沉积物物源诊断方面发挥了良好作用^[12,13,49,54-59]。

H01 和 H02 站位表层沉积物 $^7\text{Be}/^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 活度比值变化存在显著不同(图 10a): H01 站位核素比值春、冬两季高于夏季, 夏季最低; H02 站位核素比值

夏季最高, 显著高于其他 3 个季节。说明 2 个站位物源组成或沉积动力环境的季节变化存在较大差异。前文对单个核素的分析已指出, 悬浮体浓度的季节变化对表层沉积物 ^7Be 的影响相比 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 更为显著, ^{210}Pb 在渤海表层沉积物分布不均和海洋环流对沉积物的再分配能够导致 H01 和 H02 站位 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 的显著变化, 另外锋面影响下, 山东半岛东部近岸沉积物的侵蚀与扩散也能改变表层沉积物组成, 这些均可能是导致两站位 $^7\text{Be}/^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 活度比值变化存在差异的原因。

前人对中国上海、厦门、青岛放射性核素大气沉降的总结分析指出^[44](图 10b), 不同城市大气沉降的 $^7\text{Be}/^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 活度比值具有相似分布模式, 高值出现在 5—6 月。本文夏季采样是在 7 月, 考虑到海水的迟滞作用和采样间隔的限制, H02 站位表层沉积物 $^7\text{Be}/^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 活度比值分布模式与大气沉降基本一致, 说明大气沉降对于 H02 站位附近海洋物质沉降可能起到一定的促进作用。而 H01 站位 $^7\text{Be}/^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 在夏季显著较低, 说明了大气沉降对该站位附近物质沉降影响较低, 物质沉降或侵蚀可能主要受海洋本身的沉积动力过程影响。

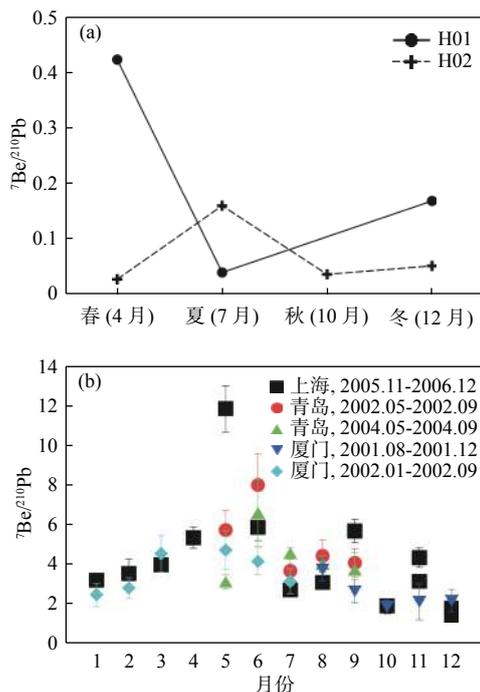


图 10 表层沉积物 ${}^7\text{Be}/{}^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 活度比值季节变化和上海、厦门和青岛大气沉降 ${}^7\text{Be}/{}^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 活度比值变化^[44]

Fig.10 Seasonal variation of ${}^7\text{Be}/{}^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ activity ratio of surface sediment and variation of ${}^7\text{Be}/{}^{210}\text{Pb}$ activity ratio of atmospheric deposition in Shanghai, Xiamen and Qingdao^[44]

5 结论

H01 和 H02 站位分别位于山东半岛东部“Ω”形泥质体顶部和东部边缘, 表层沉积物粒度及放射性核素活度存在季节变化, 且不同核素的季节分布存在差异, 指示出泥质体不同部位物质运输和沉降及受控因素的不同。

表层沉积物 ${}^7\text{Be}$ 在 H01 站位春、冬季节高于夏季, 在 H02 站位秋季最高, ${}^{228}\text{Th}_{\text{ex}}$ 与 ${}^7\text{Be}$ 整体上具有相似的分布特征; 表层沉积物 ${}^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 在 H01 站位春、冬季节低于夏季, 在 H02 站位春、冬季节较高, ${}^{137}\text{Cs}$ 与 ${}^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 整体上具有相似的分布特征。短半衰期核素 ${}^7\text{Be}$ 、 ${}^{228}\text{Th}_{\text{ex}}$ 与长半衰期核素 ${}^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 、 ${}^{137}\text{Cs}$ 在同一站位季节分布存在差异, 2 个站位同一核素的季节分布也存在差异。

沉积物粒径越细对核素的吸附能力越强。但 H01 站位表层沉积物的 ${}^7\text{Be}$ 和 ${}^{228}\text{Th}_{\text{ex}}$, H02 站位表层沉积物的 ${}^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 和 ${}^{137}\text{Cs}$, 受沉积物粒度影响较不明显。 ${}^7\text{Be}$ 和 ${}^{228}\text{Th}_{\text{ex}}$ 活度变化与悬浮体浓度变化具有一定的一致性, 悬浮体吸附核素并沉降对表层沉积物 ${}^7\text{Be}$ 和 ${}^{228}\text{Th}_{\text{ex}}$ 影响较为明显。而 ${}^{210}\text{Pb}$ 和 ${}^{137}\text{Cs}$ 在山东半岛东部表层沉积物空间分布不均, 沿岸流和黄

海暖流通过对沉积物的再分配, 能够影响泥质体附近表层沉积物核素的季节变化。 ${}^7\text{Be}$ 和 ${}^{228}\text{Th}_{\text{ex}}$ 受悬浮物质的输运和沉降影响更明显, 而 ${}^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 和 ${}^{137}\text{Cs}$ 更多指示的是环流作用下的沉积物再分配。

H02 站位表层沉积物 ${}^7\text{Be}$ 季节变化与大气沉降结果具有一定的一致性, ${}^7\text{Be}/{}^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 的活度比值变化也与多地区大气沉降结果相一致, 所以 H02 站位表层沉积物可能受大气沉降影响较为明显。而 H01 站位表层沉积物受大气沉降影响较弱, 推测其主要受海洋自身的沉积动力过程影响。

致谢: 感谢“北斗号”、“蓝海 101 号”和“东方红 3 号”科考船实验室成员在航次工作和数据采集方面给予的大力支持!

参考文献:

- [1] SYVITSKI J P M, SAITO Y. Morphodynamics of deltas under the influence of humans[J]. *Global and Planetary Change*, 2007, 57(3/4): 261-282.
- [2] LIU J P, LI A C, XU K H, et al. Sedimentary features of the Yangtze River-derived along-shelf clinoform deposit in the East China Sea[J]. *Continental Shelf Research*, 2006, 26(17-18): 2141-2156.
- [3] KUEHL S A, DEMASTER D J, NITTROUER C A. Nature of sediment accumulation on the Amazon continental shelf[J]. *Continental Shelf Research*, 1986, a,6(1/2): 209-225.
- [4] KUEHL S A, NITTROUER C A, DEMASTER D J. Distribution of sedimentary structures in the Amazon subaqueous delta[J]. *Continental Shelf Research*, 1986, b,6(1/2): 311-336.
- [5] NITTROUER C A, KUEHL S A, DEMASTER D J, et al. The deltaic nature of Amazon shelf sedimentation[J]. *GSA Bulletin*, 1986, 97(4): 444-458.
- [6] CATTANEO A, CORREGGIARI A, LANGONE L, et al. The late-Holocene Gargano subaqueous delta, Adriatic shelf: sediment pathways and supply fluctuations[J]. *Marine Geology*, 2003, 193(1): 61-91.
- [7] CATTANEO A, TRINCARDI F, LANGONE L, et al. Clinoform Generation on Mediterranean Margins[J]. *Oceanography*, 2004, 17(4): 104-117.
- [8] NIEDORODA A W, REED C W, DAS H, et al. Analyses of a large-scale depositional clinoformal wedge along the Italian Adriatic coast[J]. *Marine Geology*, 2005: 179-192.
- [9] LIU J P, XUE Z, ROSS K, et al. Fate of sediments delivered to the sea by Asian large rivers: long-distance transport and formation of remote alongshore clinoforms[J]. *The Sedimentary Record*, 2009, 7(4): 4-9.
- [10] 藏政晨. 黄海水体温盐结构的季节性变化对悬浮体分布的影响[D]. 青岛: 中国海洋大学, 2015.
- [11] YANG Z S, LIU J P. A unique Yellow River-derived distal subaqueous delta in the Yellow Sea[J]. *Marine Geology*, 2007, 240(1/4): 169-176.

- [12] 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.
- [13] 吴梅桂, 杜金洲, 张敬, 等. ^{210}Pb 、 ^{228}Th 、 ^7Be 和 ^{137}Cs 在崇明东滩表层沉积物的季节性特征及其环境指示意义[J]. *海洋环境科学*, 2011, 30(6): 792-797.
- [14] 姜亦飞. 多核素示踪近代环境演变在河口沉积物中的记录[D]. 上海: 华东师范大学, 2012.
- [15] 姜亦飞, 杜金洲, 张敬, 等. 长江口崇明东滩不同植被带沉积速率研究[J]. *海洋学报(中文版)*, 2012, 34(2): 114-121.
- [16] WOODRUFF J D, GEYER W R, SOMMERFIELD C K, et al. Seasonal variation of sediment deposition in the Hudson River estuary[J]. *Marine Geology*, 2001, 179(1/2): 105-119.
- [17] DONG L X, GUAN W B, CHEN Q, et al. Sediment transport in the Yellow Sea and East China Sea[J]. *Estuarine Coastal and Shelf Science*, 2011, 93(3): 248-258.
- [18] 王安国, 张训华, 李广雪, 等. 山东半岛近岸海区全新世泥质沉积体研究现状[J]. *海洋地质前沿*, 2013, 29(10): 52-58.
- [19] 程鹏, 高抒, 刘敬圃, 等. 北黄海西部全新统分布的初步认识[J]. *第四纪研究*, 2001, 21(4): 379-379.
- [20] 刘欣, 高抒. 北黄海西部晚第四纪浅层地震剖面层序分析[J]. *海洋地质与第四纪地质*, 2005, 25(3): 61-68.
- [21] LIU J, SAITO Y, WANG H, et al. Sedimentary evolution of the Holocene subaqueous clinoform off the Shandong Peninsula in the Yellow Sea[J]. *Marine Geology*, 2007, 236(3/4): 165-187.
- [22] 刘健, 王红, 李绍全, 等. 南黄海北部泥质沉积区冰后期海侵沉积记录[J]. *海洋地质与第四纪地质*, 2004, 24(3): 1-10.
- [23] 刘健, 朱日祥, 李绍全, 等. 南黄海东南部冰后期泥质沉积物中磁性矿物的成岩变化及其对环境变化的响应[J]. *中国科学(D辑): 地球科学*, 2003, 33(6): 583-592.
- [24] ALEXANDER C R, DEMASTER D J, NITTROUER C A. Sediment accumulation in a modern epicontinental-shelf setting: the Yellow Sea[J]. *Marine Geology*, 1991, 98(1): 51-72.
- [25] 李凤业, 高抒, 贾建军, 等. 黄、渤海泥质沉积区现代沉积速率[J]. *海洋与湖沼*, 2002, 33(4): 364-369.
- [26] 李军, 胡邦琦, 李国刚, 等. 山东半岛近海不同粉砂粒级含量分布的空间差异性及其沉积学意义[J]. *海洋学报*, 2017, 39(1): 64-75.
- [27] 边昌伟. 中国近岸泥沙在渤海、黄海和东海的输运[D]. 青岛: 中国海洋大学, 2012.
- [28] BIAN C W, JIANG W S, RICHARD J, et al. The suspended sediment concentration distribution in the Bohai Sea, Yellow Sea and East China Sea[J]. *Journal of Ocean University of China*, 2013, 12(3): 345-354.
- [29] ZENG X M, HE R Y, XUE Z, et al. River-derived sediment suspension and transport in the Bohai, Yellow, and East China Seas: a preliminary modeling study[J]. *Continental Shelf Research*, 2015, 111: 112-125.
- [30] 苏纪兰. 中国近海水文[M]. 北京: 海洋出版社, 2005.
- [31] 肖合辉. 渤海海域悬浮体分布: 季节性变化及扩散通量[D]. 青岛: 中国海洋大学, 2014.
- [32] 余佳. 黄海悬浮体分布及季节性变化[D]. 青岛: 中国海洋大学, 2012.
- [33] 杨作升, 高文兵. 黄东海陆架悬浮体向其东部深海区输送的宏观格局[J]. *海洋学报*, 1992, 14(2): 81-90.
- [34] 王勇智, 乔璐璐, 杨作升, 等. 夏、冬季山东半岛东北部沿岸悬浮物输送机制的初步研究[J]. *泥沙研究*, 2012(5): 49-57.
- [35] 王勇智, 乔璐璐, 杨作升, 等. 近岸强海流切变锋作用下悬浮沉积物的输送和沉积: 以山东半岛东端外海为例[J]. *沉积学报*, 2013, 31(3): 486-496.
- [36] 王爱美. 黄海中部泥质沉积区温度锋面及层化的时空变化及其沉积效应[D]. 青岛: 中国海洋大学, 2019.
- [37] WANG A, RALSTON D K, BI N, et al. Seasonal variation in sediment transport and deposition on a muddy clinoform in the Yellow Sea[J]. *Continental Shelf Research*, 2019: 37-51.
- [38] 范德江, 杨作升, 郭志刚. 中国陆架 ^{210}Pb 测年应用现状与思考[J]. *地球科学进展*, 2000, 15(3): 297-302.
- [39] SAGAR P, GOEL P S. Cosmogenic and bomb-produced ^7Be in stratospheric air[C]// Proceedings of the Indian Academy of Sciences - Earth and Planetary Sciences, 1980, 89(2): 133-136.
- [40] SILKER W B. Beryllium-7 and fission products in the Geosecs II water column and applications of their oceanic distributions[J]. *Earth & Planetary Science Letters*, 1972, 16(1): 131-137.
- [41] YOUNG J A, SILKER W B. Aerosol deposition velocities on the Pacific and Atlantic oceans calculated from ^7Be measurements[J]. *Earth & Planetary Science Letters*, 1980, 50(1): 92-104.
- [42] 朱厚玲, 汤洁, 郑向东. 天然放射性核素铍-7和铅-210在大气示踪研究中的应用[J]. *气象科技*, 2003(3): 131-135.
- [43] 贾成霞, 刘广山, 杨伟锋, 等. 厦门地区 ^7Be 和 ^{210}Pb 的大气沉降通量[J]. *厦门大学学报(自然科学版)*, 2003, 42(3): 352-357.
- [44] DU J Z, ZHANG J, WU Y F. Deposition patterns of atmospheric ^7Be and ^{210}Pb in coast of East China Sea, Shanghai, China[J]. *Atmospheric Environment*, 2008, 42(20): 5101-5109.
- [45] 宋为娟, 孔然, 周立旻, 等. 上海市大气降水中 ^{210}Pb 、 ^7Be 的变化特征[J]. *城市环境与城市生态*, 2014, 27(2): 1-4.
- [46] 易勇. 胶州湾沉积物放射性核素和矿物地球化学[D]. 厦门: 厦门大学, 2006.
- [47] 门武, 刘广山, 陈志刚, 等. 镭同位素在海洋学研究中的应用及进展[J]. *地球科学进展*, 2010, 25(1): 33-42.
- [48] COCHRAN J K. The oceanic chemistry of the U- and Th-series nuclides in the oceans[M]//IVANOVICH M, HARMON R S, eds. Uranium series disequilibrium: applications to environmental problems. Oxford Clarendon Press, 1982: 384-430.
- [49] 黄德坤. 基于核素示踪的长江口、东海和海南东部近海泥沙的沉降过程[D]. 上海: 华东师范大学, 2012.
- [50] 齐君, 李凤业, 宋金明. 黄海和渤海沉积物 ^{210}Pb 活度的分布特征[J]. *地球化学*, 2005, 34(4): 351-356.
- [51] ZHANG F L, WANG J L, LIU D T, et al. Distribution of ^{137}Cs in the Bohai Sea, Yellow Sea and East China Sea: sources, budgets and environmental implications[J]. *Science of the Total Environment*, 2019, 672: 1004-1016.
- [52] JOSEPH M S, DEMASTER D J, STEVEN A K, et al. The behavior of particle-reactive tracers in a high turbidity environ-

- ment: ^{234}Th and ^{210}Pb on the Amazon continental shelf[J]. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 1996, 60(12): 2123-2137.
- [53] FENG H, COCHRAN J K, HIRSCHBERG D J. ^{234}Th and ^7Be as tracers for the transport and dynamics of suspended particles in a partially mixed estuary[J]. *Geochimica Et Cosmochimica Acta*, 1999, 63(17): 2487-2505.
- [54] WILSON C G, MATISOFF G, WHITING P J. The use of ^7Be and ^{210}Pb to differentiate fine suspended sediment sources in South Slough, Oregon[J]. *Estuaries and Coasts*, 2007, 30(2): 348-358.
- [55] DU J, DU J Z, HUANG D K, et al. Seasonal distribution patterns of ^7Be and ^{210}Pb in surface sediments in the Changjiang Estuary, China and their implication[J]. *Journal of Marine Systems*, 2016(154): 41-49.
- [56] 赵胜, 于非, 刁新源, 等. 黄海暖流的路径及机制研究[J]. *海洋科学*, 2011, 35(11): 73-80.
- [57] 臧家业, 汤毓祥, 邹娥梅, 等. 黄海环流的分析[J]. *科学通报*, 2001, 46(S1): 7.
- [58] 王辉武, 于非, 吕连港, 等. 冬季黄海暖流区的空间变化和年际变化特征[J]. *海洋科学进展*, 2009, 27(2): 140-148.
- [59] 宋新, 林霄沛, 王悦. 冬季黄海暖流变化及其原因浅析[J]. *中国海洋大学学报(自然科学版)*, 2009(S1): 259-266.

Seasonal variation of radionuclides in surface sediments off the east coast of Shandong Peninsula and its environmental implications

LI Peihua¹, WU Xiao^{1,2}, BI Naishuang^{1,2}, WANG Houjie^{1,2*}

(1 College of Marine Geosciences, Ocean University of China, Qingdao 266100, China;

2 Key Laboratory of Submarine Geosciences and Technology of Ministry of Education, Qingdao 266100, China)

Abstract: Surface sediment samples were collected off the east coast of Shandong Peninsula in April, July, October and December of 2019 respectively. Radionuclides ^7Be , $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$, $^{228}\text{Th}_{\text{ex}}$ and ^{137}Cs of the surface sediments are analysed and discussed for different seasons. The results suggest that the seasonal distributions of ^7Be and $^{228}\text{Th}_{\text{ex}}$ are different from $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ and ^{137}Cs at same station, and the seasonal distribution of the same radionuclide vary from station to station. The variations of radionuclides seem to have nothing to do with the grain size of surface sediments. The seasonal variations of ^7Be and $^{228}\text{Th}_{\text{ex}}$ are significantly affected by the transport and settlement of suspended matter, while $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ and ^{137}Cs are more closely related to sediment redistribution. Comparing to the station H02, the changes of radionuclides in surface sediments at the station H01 are less affected by atmospheric sedimentation. H01 and H02 are located in different parts of the omega-shaped (Ω) mud deposits, owing to different sediment sources and dynamic environments. The study results further confirm that ^7Be , $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$, $^{228}\text{Th}_{\text{ex}}$ and ^{137}Cs are good tracers for illustrating sediment transport and deposition.

Key words: east coast of Shandong Peninsula; surface sediments; seasonal variations; radionuclides