

<https://doi.org/10.3799/dqkx.2021.120>



渤海沉积物中放射性核素分布及其对沉积环境变化的响应

杜金秋¹, 王震¹, 林武辉², 路波¹, 高会¹, 王宇宁¹, 姚子伟^{1*}, 关道明¹

1. 国家海洋环境监测中心, 辽宁大连 116023

2. 广西大学海洋学院, 广西南宁 530004

摘要: 为了探讨近百年来, 人类活动背景下近海沉积物中放射性核素的沉积记录及其对物质输入与埋藏等沉积环境变化的响应, 利用 γ 能谱法对渤海表层和柱状沉积物中的放射性核素 ^{238}U 、 ^{226}Ra 、 ^{232}Th 、 ^{210}Pb 、 ^{40}K 和 ^{137}Cs 进行分析. 结果显示, 渤海沉积物中放射性核素水平和垂直分布特征明显, 铀衰变系核素 ^{238}U 、 ^{226}Ra 和 ^{210}Pb 不平衡, ^{232}Th 和 ^{210}Pb 受沉积物粒度和有机碳影响显著, ^{238}U 与 ^{226}Ra 、 ^{232}Th 、 ^{40}K 存在显著相关性. $^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$ 、 $^{232}\text{Th}/^{238}\text{U}$ 和 $^{40}\text{K}/^{238}\text{U}$ 比值时空差异显著, 渤海沉积物陆源输入影响由西南向东北方向延伸, 受河流影响, 渤海北部和南部的沉积物输入不稳定, 近几十年波动显著. 利用 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 和 ^{137}Cs 法的测年结果计算获得的渤海近百年来沉积速率在中国近海沉积速率研究背景值范围内; 空间上, 渤海北部、中部和南部沉积速率处于同一水平, 其中北部偏高; 时间上, 近百年来渤海沉积速率随时间波动, 整体上呈现增加趋势, 尤其是1980年之后, 人类活动影响下渤海沉积速率增加幅度显著, 与沉积物输入的波动变化相对应.

关键词: 放射性核素; 沉积速率; 渤海; 沉积环境; 演变; 地球化学.

中图分类号: P595

文章编号: 1000-2383(2021)12-4503-14

收稿日期: 2021-04-27

Distribution of Radionuclides in Sediments of Bohai Sea and Their Response to Changes in Sedimentary Environment

Du Jinqiu¹, Wang Zhen¹, Lin Wuhui², Lu Bo¹, Gao Hui¹, Wang Yuning¹, Yao Ziwei^{1*}, Guan Daoming¹

1. National Marine Environmental Monitoring Center, Dalian 116023, China

2. School of Marine Sciences, Guangxi University, Nanning 530004, China

Abstract: In order to investigate the temporal and spatial changes of the offshore sedimentary processes such as terrestrial material input and sedimentation rate in the context of human activities during the past 100 years, the radionuclides ^{238}U , ^{226}Ra , ^{232}Th , ^{210}Pb , ^{40}K and ^{137}Cs in surface and column sediments in the Bohai Sea region were analyzed using γ energy spectrometry. The horizontal and vertical distribution characteristics of radionuclides in the sediments of the Bohai Sea were obvious, and the radionuclides ^{238}U , ^{226}Ra and ^{210}Pb in the uranium decay series were unbalanced. ^{232}Th and ^{210}Pb were significantly affected by sediment grain size and organic carbon. The correlation between ^{238}U and ^{226}Ra , ^{232}Th , ^{40}K was obvious. There were significant temporal and spatial differences in the ratios of $^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$, $^{232}\text{Th}/^{238}\text{U}$ and $^{40}\text{K}/^{238}\text{U}$. The influence of terrestrial input of Bohai Sea sediments extends from southwest to northeast. Affected by rivers, the sediments in the northern and southern Bohai Sea material

基金项目: 国家自然科学基金(No.41807383); 河口海岸学国家重点实验室开放基金(No.SKLEC-KF201712); 国家海洋局海洋沉积与环境地质重点实验室开放基金(No.MASEG201709).

作者简介: 杜金秋(1984—), 女, 工程师, 博士, 从事同位素海洋学与同位素地球化学研究. ORCID: 0000-0002-8630-4341.
E-mail: jinqiu609@163.com

***通讯作者:** 姚子伟, E-mail: zwyao@nmemc.org.cn

引用格式: 杜金秋, 王震, 林武辉, 等, 2021. 渤海沉积物中放射性核素分布及其对沉积环境变化的响应. 地球科学, 46(12):4503-4516.

input were unstable and fluctuated significantly in recent decades. The sedimentation rate calculated by the $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ and ^{137}Cs dating methods in the Bohai Sea in the past 100 years was within the background value of the sedimentation rate research in the offshore China. Spatially, the sedimentation rate was at the same level in the northern part, central part and southern part, among which it was relatively high in the northern part. Temporally speaking, the sedimentation rate of the Bohai Sea fluctuated with time in the past 100 years and showed an overall increasing trend, especially since 1980, under the influence of human activities, the increase was significant, corresponding to the changes in sediment input.

Key words: radionuclide; sedimentation rate; Bohai Sea; sedimentary environment; evolution; geochemistry.

0 引言

近岸海域是全球物质循环源—汇效应的敏感区,其海陆相互作用活跃、受人类活动影响显著,通常具有较高的沉积速率,在维持海岸带稳定和缓解气候变化等方面发挥重要作用(Callaway *et al.*, 2012). 近几十年来,沿海地区工业化和城镇化发展对近岸海域生态环境产生显著影响,因而深入认识近海沉积环境演变历史,积极应对人类活动的负面影响已经成为海洋领域的重要研究内容(黄小平等, 2015). 沉积物是海洋中各类元素的最终归宿,其中放射性核素作为一类较特殊的元素,由于其特有的衰变特性和母子体核素之间的平衡关系,加之不同核素的地球化学性质差异,导致不同海域沉积物中放射性核素含量与分布特征不同,能够为海洋沉积环境研究提供时间标尺和示踪剂,因而受到越来越多的关注(Gulin *et al.*, 2014). 海洋沉积环境研究中的物质来源和埋藏是两大基本问题,关系着区域的环境演变和古环境信息提取,对于认识和理解陆海相互作用和人类活动影响具有重要意义(高抒, 2011). 在近海物质来源方面,天然放射性核素 ^{238}U 、 ^{226}Ra 、 ^{232}Th 、 ^{40}K 等由于其地球化学特性可以作为物源识别信号,指示近海沉积物来源变化(林武辉等, 2020). 在近海物质埋藏方面,放射性核素以其固有的半衰期和不受外界干扰等特性备受青睐,其中天然放射性核素 ^{210}Pb 和人工放射性核素 ^{137}Cs 在百年时间尺度沉积速率和有机碳埋藏研究中应用最为广泛(刘广山等, 2008; 王福和王宏, 2011; Du *et al.*, 2019).

渤海由山东半岛和辽东半岛所环抱,是半封闭的陆架浅海,每年都有大量的陆源物质随河流进入渤海,陆海相互作用显著(乔淑卿等, 2010). 渤海的环流体系主要由北黄海经渤海海峡进入的黄海暖流,沿山东半岛北岸向东的渤海沿岸流,以及在辽东湾、渤海湾和莱州湾内形成的局部环流(段晓勇等, 2016). 当前大量的研究证实渤海受到人类活动的影响,并对渤海部分区域的现代沉积速率进行

了研究,但通过分析沉积物中放射性核素含量与分布,探讨近百年来,人类活动影响下沉积环境演变研究还鲜见报道. 基于此,本研究以渤海为研究区域,沿东北西南走向重点关注北部、中部和南部等典型区域,利用高纯锗 γ 能谱测量沉积物中主要放射性核素 ^{238}U 、 ^{226}Ra 、 ^{232}Th 、 ^{210}Pb 、 ^{40}K 和 ^{137}Cs 的含量,分析放射性核素的分布特征,结合沉积物粒度和沉积物有机碳分布,探讨近百年来渤海沉积物来源和沉积速率变化,以期在近海沉积环境演变及其对人类活动的响应研究提供理论基础.

1 材料和方法

1.1 样品采集

本研究沉积物样品于 2016 年 10 月采集,其中表层沉积物样品 26 个,分布于整个渤海;柱状沉积物样品 3 个,沿渤海的东北西南走向,分别在渤海北部、中部和南部采集. 研究区域及样品站位分布如图 1 所示,柱状沉积物样品站位 BH01、BH02 和 BH03 的水深分别为 21 m、55 m 和 16 m. 沉积物利用船载箱式采泥器采集,表层样品采集深度约 5 cm,柱状样品利用 50 mm 直径的有机玻璃管采集,长度约 30 cm,按 1 cm 间隔现场切割,采集样品利用铝箔纸包裹放入密封袋内标记. 现场采集包装的样品均冷冻后带回实验室保存.

1.2 分析测试

沉积物中的放射性核素利用高纯锗 γ 能谱仪(型号: GEM-MX7080P4)测量. 原始沉积物样品经过烘干、研磨、过筛、称重,封装待测. 天然放射性核素测量前需要建立母子体核素之间的平衡,本研究中样品测量时间与样品密封时间间隔满足母子体核素平衡时间要求. 样品在密封的前提下直接置于探测器顶部,并由专门的定位器固定位置,测量时间为 24 h,测定结果校正为采样时的沉积物干重含量. 测量效率采用与样品几何规格一致的标准源进

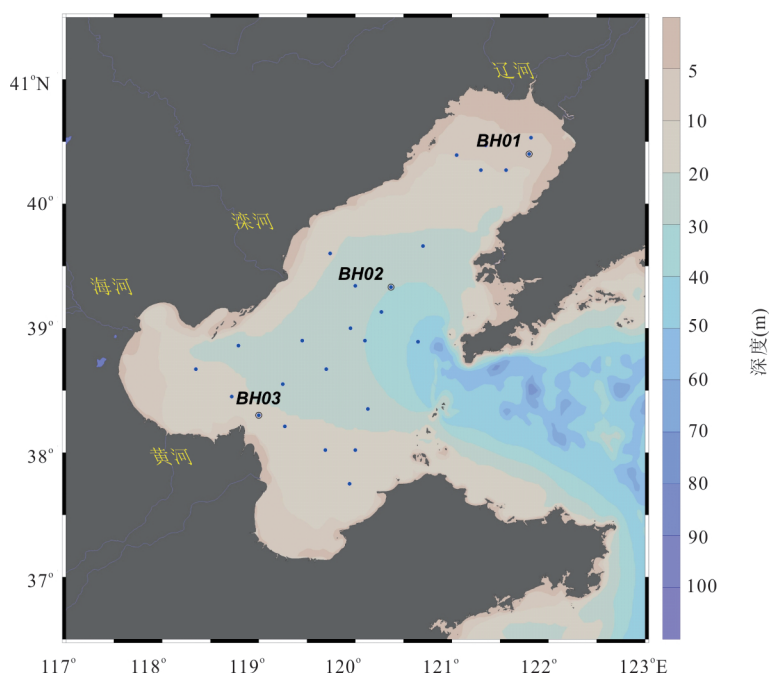


图1 研究区域及样品站位分布

Fig.1 Sampling sites and study area

行刻度,标准源(编号:CJ130621)由中国计量科学研究院制备标定.目标核素活度计算的特征峰能量分别为, ^{238}U (子体 ^{234}Th): 63.20 keV; ^{226}Ra : 295.20 keV、351.90 keV、609.30 keV和1 120.29 keV; ^{232}Th (子体 ^{228}Ra): 338.70 keV、911.20 keV和968.80 keV; ^{210}Pb : 46.50 keV; ^{40}K : 1 460.82 keV; ^{137}Cs : 661.66 keV.采用全能峰净面积法计算,测量结果以活度表示,除以样品质量得到样品中放射性核素的比活度含量.

沉积物粒度利用激光粒度仪(型号:LS13320)测量.首先,取一定量(0.5~1.0 g)的原始沉积物湿样,依次加入10 % H_2O_2 和 HCl 去除有机质和生物钙;待反应完全后,用纯净水洗至中性,然后利用超声波震荡仪将样品进行分散;最后,取一定量分散均匀的沉积物样品直接测量.测量粒度范围为0.02~2 000.00 μm ,测量结果以平均粒径表示,重复测量结果的相对误差小于2%.

沉积物有机碳利用元素分析仪(型号:Vario EL cube)测量.经过烘干、研磨、过筛后的沉积物样品,利用百万分之一分析天平准确称取适量待测样品(10~20 mg)于锡杯内,进样前,样品在干燥器中用浓盐酸熏蒸24 h以去除无机碳酸盐,将样品置烘箱内于60 $^{\circ}\text{C}$ 烘干至恒重.测试结果以干重含量沉积物来表示.

2 结果

2.1 渤海沉积物中放射性核素含量水平

研究区域沉积物中放射性核素含量及其变异系数(标准偏差与平均值的比值)如表1所示.表层沉积物中放射性核素 ^{238}U 、 ^{226}Ra 、 ^{232}Th 、 ^{210}Pb 、 ^{40}K 和 ^{137}Cs 的平均含量分别为37.64 $\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ 、25.06 $\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ 、42.22 $\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ 、71.89 $\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ 、690.00 $\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ 和1.84 $\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$.铀衰变系核素不平衡, ^{226}Ra 相对于母体核素 ^{238}U 亏损, ^{210}Pb 相对于母体核素 ^{226}Ra 过剩.核素含量的变化范围可见, ^{137}Cs 变异系数最大,高达47.83%, ^{40}K 变异系数最小,仅为10.49%,铀、钍系核素变化适中.柱状沉积物中 ^{238}U 、 ^{226}Ra 、 ^{232}Th 、 ^{210}Pb 、 ^{40}K 和 ^{137}Cs 的平均含量分别为27.93 $\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ 、28.18 $\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ 、37.79 $\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ 、79.40 $\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ 、678.00 $\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ 和1.76 $\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$.铀衰变系核素不平衡,子体核素 ^{226}Ra 和 ^{210}Pb 相对于母体核素 ^{238}U 和 ^{226}Ra 过剩.核素含量的变化范围可见, ^{137}Cs 变异系数最大,高达39.78%, ^{40}K 变异系数最小,仅为7.16%,铀、钍系核素变化不明显.

研究区域,表层沉积物中各放射性核素含量存在较显著差异,柱状沉积物中各放射性核素含量差异较小.放射性核素 ^{137}Cs 含量在表层沉积物和柱状沉积物中均呈现较显著变化. ^{40}K 含量在表层沉积物中存在较明显变化,而在柱状沉积物中变化较小.

表 1 渤海沉积物中放射性核素含量(Bq·kg⁻¹)
Table 1 Contents of radionuclides in the sediments of the Bohai Sea(Bq·kg⁻¹)

类型		²³⁸ U	²²⁶ Ra	²³² Th	²¹⁰ Pb	⁴⁰ K	¹³⁷ Cs
表层样	范围	23.77~59.39	17.56~35.98	30.38~59.18	41.34~116.46	571~839	0.69~4.50
	平均值	37.64	25.06	42.22	71.89	690	1.84
	变异系数	25.29%	19.27%	19.83%	31.58%	10.49%	47.83%
柱状样	范围	22.33~38.16	22.23~35.85	26.75~49.51	38.70~111.51	612~784	0.97~4.05
	平均值	27.93	28.18	37.79	79.40	678	1.76
	变异系数	16.08%	11.82%	18.63%	21.00%	7.16%	39.78%

铀衰变系核素在表层沉积物和柱状沉积物中均不平衡,表层沉积物中²³⁸U含量较柱状沉积物中偏高,表层沉积物中²²⁶Ra含量较柱状沉积物中偏低,²¹⁰Pb含量在表层沉积物和柱状沉积物中差异不明显.钍系核素²³²Th在表层沉积物中变化较明显,柱状沉积物中变化较小,表层沉积物和柱状沉积物基本处于同一水平.

目前,我国近海沉积物中放射性核素在部分海区已有相关报道,具体结果列于表 2,其中²³⁸U、²²⁶Ra、²³²Th、²¹⁰Pb、⁴⁰K 和¹³⁷Cs 的含量范围分别为:24.7~82.4 Bq·kg⁻¹、19.3~38.2 Bq·kg⁻¹、34.4~75.0 Bq·kg⁻¹、43.2~123.8 Bq·kg⁻¹、253~899 Bq·kg⁻¹和 0.74~8.60 Bq·kg⁻¹.比较可见,不同近海区域的沉积物中放射性核素含量不同,这与区域的物质来源和沉积环境密切相关.与土壤中放射性核素含量比较,近海沉积物中放射性核素含量变化范围较大,表明海洋沉积物中的放射性核素受到较复杂的沉积环境影响产生了不同程度的变化,其中²³⁸U含量在土壤含量上下浮动,²²⁶Ra含量较土壤中偏低,

²³²Th和⁴⁰K含量差异不明显.本研究中,渤海表层沉积物和柱状沉积物中放射性核素含量基本处于研究背景值范围之内.

2.2 渤海沉积物中放射性核素分布特征

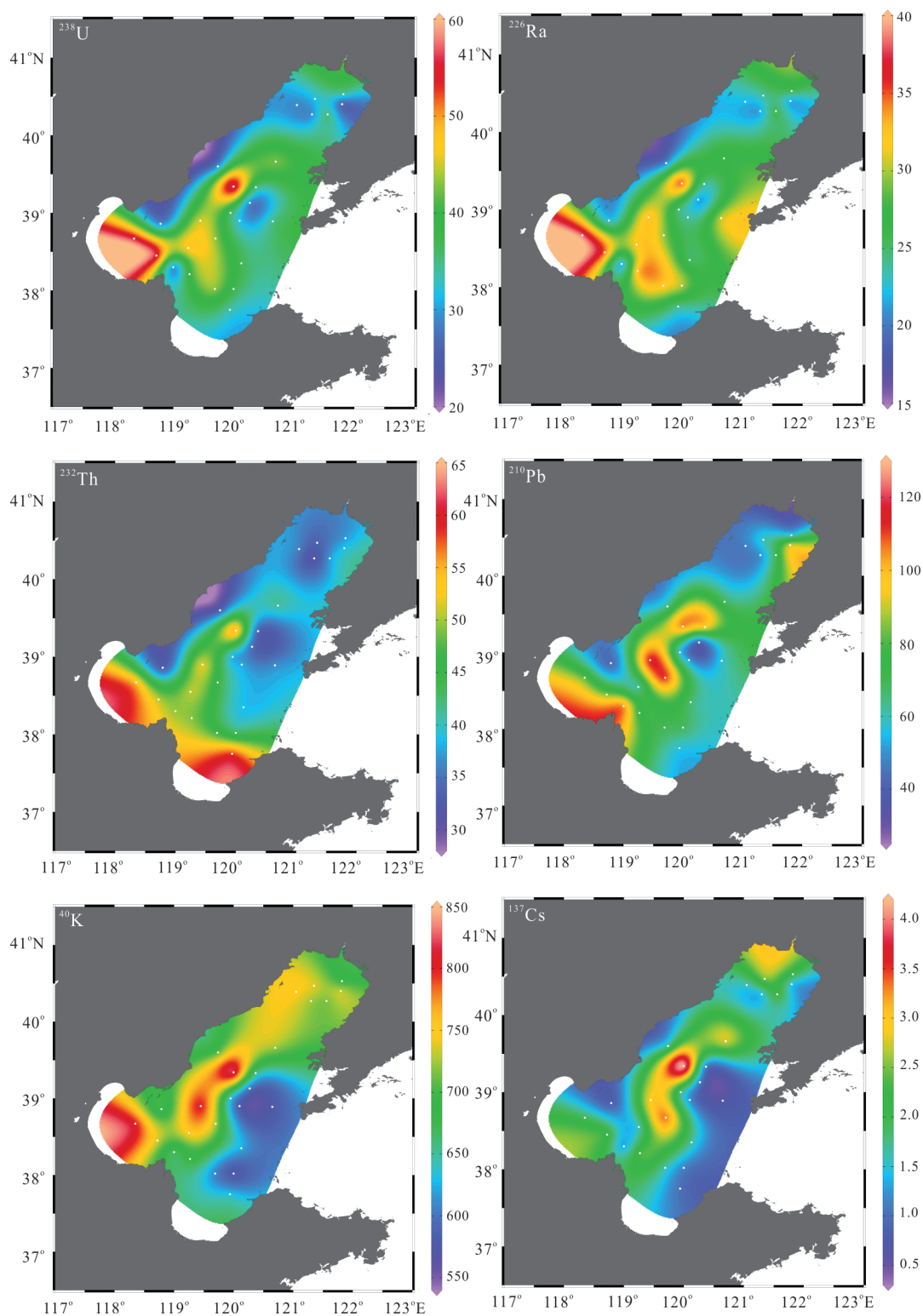
研究区域沉积物中放射性核素含量的水平分布如图 2 所示,不同放射性核素均呈现出较为显著的分布特征.其中铀、钍系核素²³⁸U、²²⁶Ra、²³²Th和²¹⁰Pb分布十分相似,南北方向均出现由西南向东北方向延伸的高值,最高值出现在渤海中部海域,未到达北部海域,东西方向有沿西部陆地伸展的低值,但受到高值带阻隔未继续向东延伸.同一主族核素⁴⁰K和¹³⁷Cs的分布特征相似,南北方向也出现了自南向北延伸的高值,并一直到达北部沿岸区域,最高值也出现在渤海中部区域,东西方向有来自东部外海延伸进来的显著低值,同时西部沿岸区域也出现小范围低值.

研究区域沉积物中放射性核素含量的垂直分布如图 3 所示,各放射性核素在三个柱状沉积物中的含量水平存在差异,但垂直分布特征相似,其

表 2 中国近海沉积物中放射性核素含量(Bq·kg⁻¹)
Table 2 Contents of radionuclides in coastal sediments of China(Bq·kg⁻¹)

研究区域	²³⁸ U	²²⁶ Ra	²³² Th ^a	²¹⁰ Pb	⁴⁰ K	¹³⁷ Cs	参考文献
田湾海域	40.0	25.2	46.7	50.9	899	2.0	左书华等,2019
大亚湾海域	60.3	38.2	52.1	—	619	0.9	梁贵渊等,2019
阳江海域	82.4	35.5	57.1	121.7	621	2.2	吴梅桂等,2018
胶州湾海域	39.0	26.5	40.3	61.0	688	3.3	刘广山等,2008
厦门海域	51.9	26.5	75.0	72.0	658	3.2	李冬梅等,2009
大连海域	34.9	19.3	—	72.4	746	2.4	杜金秋等,2017
深圳近海	—	26.5	—	43.2	364	1.8	丁敏霞等,2017
北部湾	24.7	22.2	34.4	—	253	—	林武辉等,2020
黄茅海/广海湾	77.4	36.6	58.1	123.8	571	1.5	赵峰等,2015
长江口	32.8	26.5	40.9	—	628	—	Wang <i>et al.</i> , 2017
中国土壤	39.5	36.5	54.6	—	580	—	曹龙生等,2012
渤海	20.8~59.4	17.6~36.0	26.8~59.2	38.7~116.5	571~839	0.7~4.5	本研究

注:部分报道中的²³²Th数据由其子体²²⁸Ra获得.

图2 渤海沉积物中放射性核素水平分布($\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$)Fig.2 Horizontal distribution of radionuclides in the sediments of the Bohai Sea ($\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$)

中 ^{238}U 在表层含量偏高,之后随深度增加出现波动,14 cm以下变化不明显。 ^{226}Ra 在表层含量偏低,之后随深度增加出现轻微波动,整体上变化不明显。 ^{232}Th 在BH02站位含量低于BH01和BH03,其

垂直分布与 ^{226}Ra 相似,上层出现轻微波动,但整体变化不明显。 ^{210}Pb 在3个站位表现出相同的分布模式,其含量均在表层最高,之后随着深度增加而波动,整体上呈现降低趋势。 ^{40}K 含量在BH01偏高于

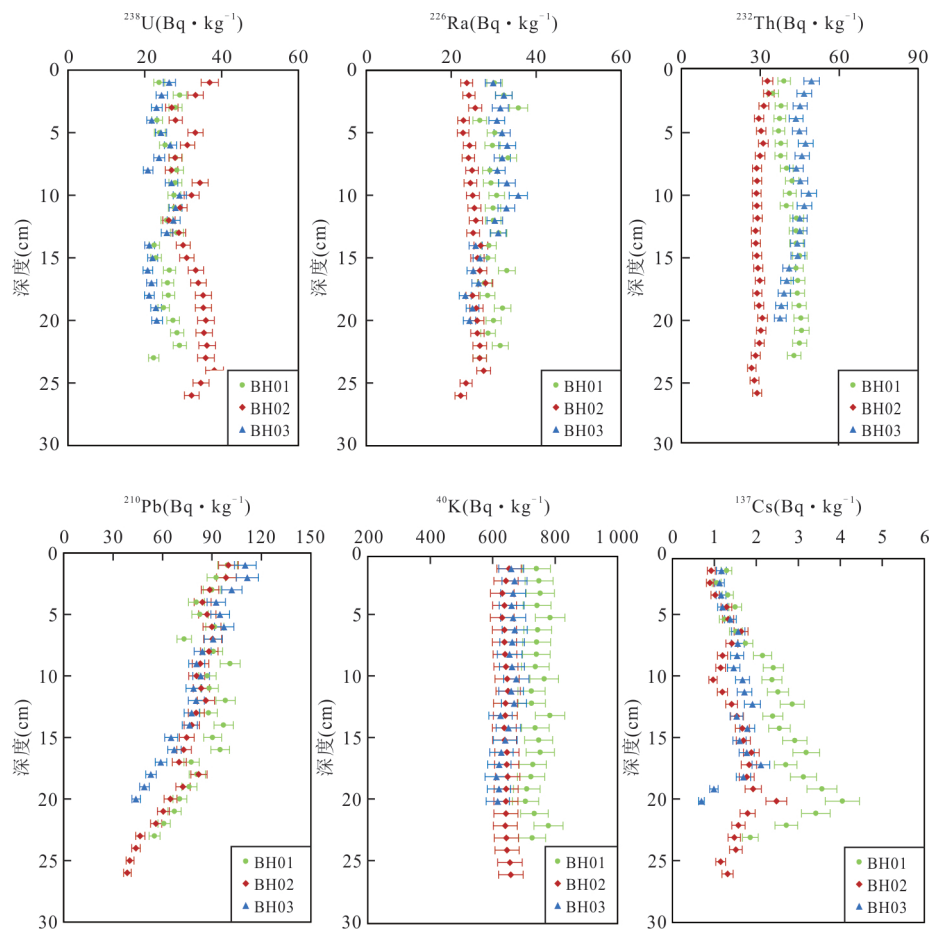


图 3 渤海沉积物中放射性核素垂直分布

Fig.3 Vertical distribution of radionuclides in the sediments of the Bohai Sea

BH02 和 BH03,其垂直分布在 3 个站位随深度变化均不明显。¹³⁷Cs 含量的垂直分布特征相似,均在表层含量较低,随深度增加而波动,且均在某一层位出现极大值,之后随深度增加而降低。

3 讨论

3.1 渤海沉积物中放射性核素控制因素与环境指示

沉积物中的放射性核素含量与分布受到诸多因素影响,细微颗粒的沉积物比粗颗粒的沉积物更易富集放射性核素;淤积在沉积物上的有机质和碎屑直接或间接影响放射性核素的吸附等(Webster *et al.*, 1995). 沉积物中天然放射性核素 ²³⁸U、²²⁶Ra、²³²Th 和 ⁴⁰K 含量主要取决于沉积物来源的岩石和土壤类型,由于其半衰期都很长,百年时间尺度内,沉积物中的含量与分布与物质的输入及核素自身的迁移有关,其中 ²³⁸U 对氧化还原条件敏感,通常表层含量偏低(Morford and Emerson, 1999); ²²⁶Ra 为离子活性核素,通常在河口和水动力条件复杂的区

域, ²²⁶Ra 容易发生解吸,导致沉积物中含量减小(Webster *et al.*, 1995);矿物颗粒 ⁴⁰K 含量高,生源物质 ⁴⁰K 含量低,沉积物中 ⁴⁰K 的时空变化反映了生源物质输入的影响(Gulin *et al.*, 2014). 因此,沉积物中不同放射性核素的分布特征可以指示物质输入等沉积环境的变化(Yang *et al.*, 2013).

粒度(GS)和有机碳(TOC)是沉积环境的两个重要理化参数,能够直接反映沉积物特征,主要受控于沉积物来源和沉积环境变化(王中波等, 2020). 为探索渤海沉积物中放射性核素分布的控制因素,对沉积物中放射性核素与 TOC、GS 进行相关性分析,结果列于表 3. 表层沉积物中,放射性核素 ²³⁸U、²²⁶Ra、²³²Th、²¹⁰Pb、⁴⁰K 和 ¹³⁷Cs 与 TOC 存在正相关关系,与 GS 存在负相关关系,表明随着有机碳含量升高,沉积物粒度减小,沉积物越容易吸附放射性核素(Webster *et al.*, 1995),尤其是 ²³²Th 和 ²¹⁰Pb,与 TOC 和 GS 存在显著相关性,沉积物粒度和有机碳含量对 ²³²Th 和 ²¹⁰Pb 的分布影响最为显著,这

与 ^{232}Th 和 ^{210}Pb 自身的颗粒活性密切相关。 ^{238}U 、 ^{226}Ra 、 ^{40}K 和 ^{137}Cs 与 TOC、GS 的相关性不显著,相对于 ^{232}Th 和 ^{210}Pb ,非颗粒活性核素 ^{238}U 、 ^{226}Ra 、 ^{40}K 和 ^{137}Cs 受有机碳和沉积物粒度影响相对较小.有机碳和粒度是渤海表层沉积物中的放射性核素的主要影响要素,相对于 ^{238}U 、 ^{226}Ra 、 ^{40}K 和 ^{137}Cs , ^{232}Th 和 ^{210}Pb 受到的影响更为显著.柱状沉积物中,放射性核素与 GS 之间存在显著相关性,但与表层沉积物中的放射性核素与 GS 之间的负相关关系不同,只有 ^{238}U 与 GS 负相关, ^{226}Ra 、 ^{232}Th 、 ^{210}Pb 、 ^{40}K 和 ^{137}Cs 与 GS 正相关,表明随着沉积物粒度的减小,放射性核素的含量也在降低,这与沉积物粒度越小,比表面积越大,越易吸附放射性核素的结论不吻合 (Webster *et al.*, 1995),推测一是由于本文采用平均粒径,无法准确指示不同粒径沉积物与不同放射性核素之间的相关性;二是由于柱状沉积物历经长期复杂的沉积动力过程,不同粒径沉积物发生的迁移变化不同,同时不同放射性核素存在自身衰变等特性,最终导致放射性核素与沉积物粒度之间的相关关系在柱状沉积物与表层沉积物中存在差异. ^{238}U 、 ^{226}Ra 和 ^{232}Th 与 TOC 之间相关性显著, ^{210}Pb 、 ^{40}K 和 ^{137}Cs 与 TOC 相关性不明显,推测沉积物在沉降与埋藏的过程中,TOC 受动力条件、生物扰动、地球化学要素影响,发生降解而无法保持沉积物物源的原始特征,而放射性核素因自身特性受外部因素的影响较弱 (Gulin *et al.*, 2014).

除外部因素外,不同放射性核素之间还存在着

一定的内在联系,表层沉积物中 ^{238}U 与 ^{226}Ra 、 ^{232}Th 、 ^{40}K 均存在显著的正相关关系,尤其是与 ^{226}Ra 相关系数达 0.930,表明二者的来源相同.柱状沉积物中 ^{238}U 与 ^{226}Ra 、 ^{232}Th 、 ^{40}K 均存在负相关关系,表明在沉积过程中不同放射性核素因自身地球化学特性发生不同的变化,但仍存在着显著的关联.沉积物中放射性核素之间的比值保留了物质来源信息,可以作为一种地球化学指标指示沉积物来源的变化 (林武辉等, 2020).当物质处于封闭状态下足够长时间,长半衰期的核素通常达到衰变平衡,因此陆地土壤中放射性核素之间的比值应为固定值.根据中国土壤中放射性核素含量,土壤中 $^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$ 、 $^{232}\text{Th}/^{238}\text{U}$ 和 $^{40}\text{K}/^{238}\text{U}$ 的比值分别为 0.92、1.38 和 14.60 (曹龙生等, 2012).渤海表层沉积物中 $^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$ 、 $^{232}\text{Th}/^{238}\text{U}$ 和 $^{40}\text{K}/^{238}\text{U}$ 的比值范围分别为 0.61~0.87、0.88~1.64 和 12.81~31.13,平均值分别为 0.73、1.15 和 19.27,其水平分布如图 4 所示; $^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$ 和 $^{232}\text{Th}/^{238}\text{U}$ 比值沿西南东北走向呈现由南部黄河口海域向东向北延伸的高值,同时在北部和西部沿岸出现高值,渤海中部出现低值,表明来自河流输入的陆源物质影响,以及沿岸流的影响,该特征符合由河口海域向开阔海域过渡的陆源沉积特征.与 $^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$ 比值不同, $^{40}\text{K}/^{238}\text{U}$ 比值沿西南东北走向呈现西高东低的特点,矿物质输入导致 $^{40}\text{K}/^{238}\text{U}$ 比值增大,生源物质的输入导致 $^{40}\text{K}/^{238}\text{U}$ 比值减小,渤海沉积物矿物质和生源物质输入特征复杂,推测与渤海的封闭海域向开阔海域过渡的沉积特征有

表 3 渤海沉积物中放射性核素、TOC、GS 之间的 Pearson 相关系数
Table 3 Pearson correlation among radionuclides, TOC and GS in the sediments of the Bohai Sea

类型		^{226}Ra	^{232}Th	^{210}Pb	^{40}K	^{137}Cs	TOC	GS
表层样	^{238}U	0.930**	0.690**	0.412*	0.495*	0.637**	0.055	-0.261
	^{226}Ra		0.681**	0.368	0.369	0.522**	0.015	-0.173
	^{232}Th			0.506**	0.369	0.414*	0.542**	-0.549**
	^{210}Pb				0.462*	0.515**	0.657**	-0.670**
	^{40}K					0.682**	0.185	-0.231
	^{137}Cs						0.135	-0.197
	TOC							-0.916**
柱状样	^{238}U	-0.680*	-0.302*	-0.237*	-0.223	-0.054	-0.551**	-0.726**
	^{226}Ra		0.695**	0.325**	0.436**	0.412**	0.706**	0.886**
	^{232}Th			0.399**	0.568**	0.331**	0.346**	0.588**
	^{210}Pb				0.300*	0.012	0.112	0.321**
	^{40}K					0.511**	-0.007	0.547**
	^{137}Cs						0.030	0.331**
	TOC							0.535**

注:**在 0.01 水平(双侧)上显著相关;*在 0.05 水平(双侧)上显著相关.

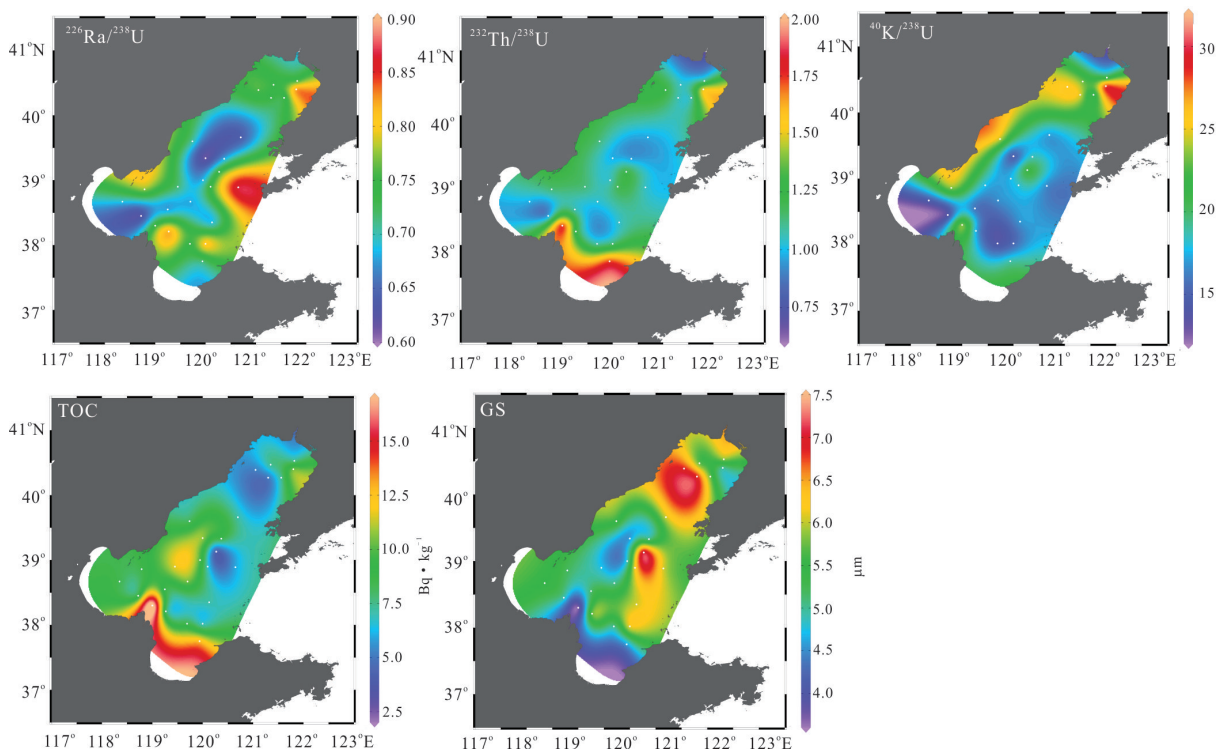


图 4 渤海沉积物中 $^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$ 、 $^{232}\text{Th}/^{238}\text{U}$ 和 $^{40}\text{K}/^{238}\text{U}$ 比值,以及 TOC 和 GS 的水平分布

Fig.4 Horizontal distributions of $^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$, $^{232}\text{Th}/^{238}\text{U}$ and $^{40}\text{K}/^{238}\text{U}$ ratios, as while as TOC and GS in the sediments of the Bohai Sea

关.TOC和GS的水平分布见图4,二者的分布特征相反,与二者的负相关关系吻合,其中TOC与 $^{232}\text{Th}/^{238}\text{U}$ 比值分布相似,有由西南向东北方向延伸的高值,与黄河携带陆源输入物质的影响吻合.

渤海BH01~BH03中 $^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$ 、 $^{232}\text{Th}/^{238}\text{U}$ 、 $^{40}\text{K}/^{238}\text{U}$ 比值范围分别为1.01~1.28、0.68~0.92、1.05~1.48;1.19~1.96、0.70~1.16、1.62~2.09;25.68~32.75、17.66~24.39、23.19~31.33.渤海北部和南部柱状沉积物中 $^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$ 、 $^{232}\text{Th}/^{238}\text{U}$ 和 $^{40}\text{K}/^{238}\text{U}$ 比值较高,沉积物保留了陆源物质特性,且陆源物质输入沉降过程相对较快,受海源物质影响较弱;渤海中部柱状沉积物中 $^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$ 、 $^{232}\text{Th}/^{238}\text{U}$ 和 $^{40}\text{K}/^{238}\text{U}$ 比值较低,陆源物质输入特征不明显,且沉降过程较慢,受海源物质影响较强,与表层沉积物中的结论吻合.渤海沉积物中 $^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$ 、 $^{232}\text{Th}/^{238}\text{U}$ 和 $^{40}\text{K}/^{238}\text{U}$ 比值,以及TOC和GS的垂直分布如图5所示,3个比值的分布特征相同,均随深度增加而波动,尤其是15 cm以上,整体上呈现分段式分布特征,渤海北部和南部波动幅度显著,渤海中部波动幅度较小,深层变化均不明显.TOC的分布与核素比值相似,也呈现显著的分段分布特征,表层含量较高,随深度波动,整体上有降低的趋势,

其中渤海南部的变化最为显著,渤海中部的TOC含量相对较低,对应河流入海物质对渤海南部和北部的影响.GS随深度变化不明显,仅在10 cm以上有轻微的降低趋势,其中渤海中部的GS水平最低,表明渤海中部受陆源影响相对较低,与核素比值的

结果吻合.

综上所述,渤海柱状沉积物中 $^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$ 、 $^{232}\text{Th}/^{238}\text{U}$ 和 $^{40}\text{K}/^{238}\text{U}$ 比值,以及TOC和GS与表层沉积物中的特征不同,随着物质输入与沉积过程的变化,埋藏并保留在深层沉积物的 ^{238}U 、 ^{226}Ra 、 ^{232}Th 和 ^{40}K 含量及其比值,以及有机质和沉积物粒度与表层存在差异.柱状沉积物中比值的增大和极大值对应着陆源输入的增强和沉积速率的加快.其中渤海北部和南部随深度波动显著,尤其是15 cm以上;渤海中部波动幅度相对较小,也在15 cm以上波动有所增大,受河流物质输入影响,渤海北部和南部物质输入和沉积过程不稳定,渤海中部相对稳定.15 cm以上的显著波动对应着近几十年来人类活动影响下近海沉积物输入的变化.

3.2 渤海沉积速率的时空演变

沉积物中放射性核素含量的垂直变化记录着沉积环境演变的历史信息,成为良好示踪剂和有利

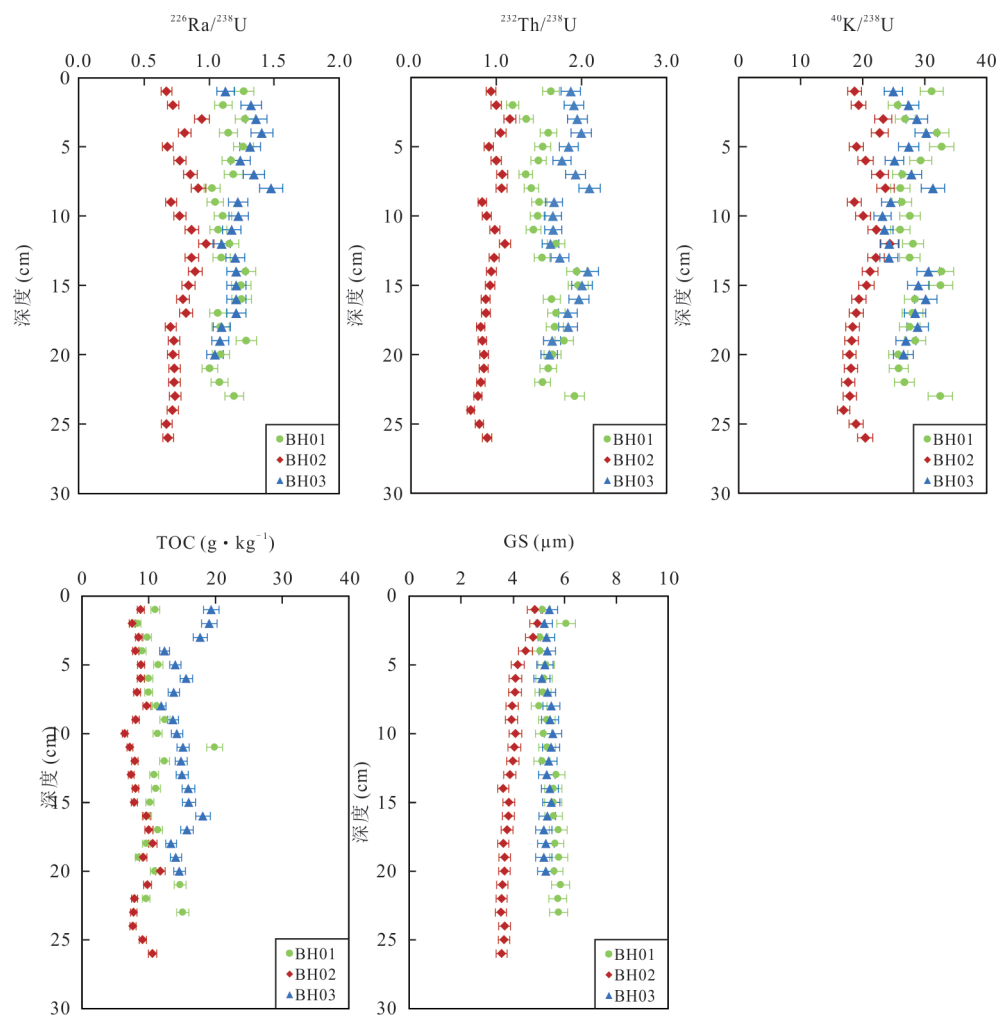


图5 渤海沉积物中 $^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$ 、 $^{232}\text{Th}/^{238}\text{U}$ 和 $^{40}\text{K}/^{238}\text{U}$ 比值,以及TOC和GS的垂直分布

Fig.5 Vertical distributions of $^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$, $^{232}\text{Th}/^{238}\text{U}$ and $^{40}\text{K}/^{238}\text{U}$ ratios, as while as TOC and GS in the sediments of the Bohai Sea

测年工具(Yeager *et al.*, 2006; Huh *et al.*, 2011),特别是 ^{210}Pb 和 ^{137}Cs ,其半衰期适中,是研究现代沉积速率的最常用核素(Fuller *et al.*, 1999; 王永红和沈焕庭, 2002).沉积速率能够综合反应某一区域的沉积特征,是沉积环境研究最基本和最重要的指标(许冬等, 2012).放射性核素 ^{210}Pb 和 ^{137}Cs 测年技术被广泛运用于湖泊、河口海岸和海洋现代沉积速率的估算(潘少明等, 1997; 夏小明等, 1999; 杜金秋等, 2017).国际上的相关研究已从单纯的沉积物测年研究到不同时间尺度下跟踪沉积物来源,探索沉积表层活动、物质混合、沉积速率等之间关系(Fuller *et al.*, 1999; Baskaran and Swarzenski, 2007),以及利用放射性核素的垂直分布特征研究海岸沉积过程变迁及沉积模式等(Huh *et al.*, 2011).中国近海沉积物的 ^{210}Pb 和 ^{137}Cs 测年研究起步稍晚,但也取得了很多研究成果,我国近海沉积速率的相关数据结

果列于表4,分析可见,不同近海区域的沉积速率存在明显差异,变化范围处于 $0.07\sim 7.25\text{ cm}\cdot\text{a}^{-1}$,其中河口与海湾的沉积速率偏高,陆架浅海偏低.

研究区域沉积物中 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 和 ^{137}Cs 含量的垂直分布如图6所示, BH01~BH03站位的 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 含量均在表层最高,之后随深度增加而减小, 5~15 cm层位虽有小幅波动,但深度上呈现显著的降低趋势,利用CRS模型计算得到不同深度的沉积物年龄(Sanchez-Cabeza and Ruiz-fernández, 2012),结果对应见图4. BH01~BH03站位的 ^{137}Cs 含量随深度增加出现波动,但均出现了特征峰值, 3个站点自下向上的第一个峰值分别出现在20 cm、20 cm和17 cm深度,将此位置对应为核爆炸高峰年(1963年),即沉积物年龄为1963年.根据 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 测年结果,渤海北部、中部和南部站位的20 cm、20 cm和17 cm深度的沉积物年龄分别对应为1956年、1958年和1964年.

表 4 中国近海沉积速率

Table 4 Sedimentation rate in coastal seas of China

研究海域	研究方法	沉积速率 (cm·a ⁻¹)	资料来源
渤海	²¹⁰ Pb _{ex}	0.15~0.41	李凤业和史玉兰, 1995
北黄海	²¹⁰ Pb _{ex}	0.07~0.45	齐君等, 2004
南黄海	²¹⁰ Pb _{ex}	0.40~1.00	李凤业等, 2002
东海	²¹⁰ Pb _{ex} , ¹³⁷ Cs	0.57~5.70	夏小明等, 1999
渤海湾	²¹⁰ Pb _{ex} , ¹³⁷ Cs	0.30~3.17	王福和王宏, 2011
胶州湾	²¹⁰ Pb _{ex} , ¹³⁷ Cs	0.64~1.74	刘广山等, 2008
大亚湾	²¹⁰ Pb _{ex}	0.44	曲宝晓等, 2018
北部湾	²¹⁰ Pb _{ex}	0.20~1.00	许冬等, 2012
厦门近海	²¹⁰ Pb _{ex}	0.07~13.20	李冬梅等, 2009
大连近海	²¹⁰ Pb _{ex} , ¹³⁷ Cs	0.43~0.48	杜金秋等, 2017
长江口	²¹⁰ Pb _{ex}	1.36~4.11	张瑞等, 2009

两种测年方法的结果较为吻合。

在利用²¹⁰Pb_{ex}法获得不同层位沉积物年龄的基础上,直接除以沉积层厚度,即可计算得到近百年来线性沉积速率SR(cm·a⁻¹),结果列于表5,由¹³⁷Cs含量第一个峰值深度对应1963年,计划得到近50年来的沉积速率,同时列于表5,两种方法获得的渤海沉积速率较吻合,其中近50年来的沉积速率较近百年来有所升高。渤海北部、中部和南部近百年来SR平均值十分相近,其中北部的变化范围相对较大,南部的范围相对较小,与报道的渤海沉积速率在同一水平(李凤业和史玉兰,1995),但明显低于渤海湾和长江口等河口海湾区域。由于不同区域的沉积物性质不同,当前的沉积速率研究偏向于

利用沉积物年代学结合沉积物质量计算获得的沉积物质量累积速率MAR(kg·m⁻²·a⁻¹),结果同时列于表5,MAR和SR结果吻合,近百年来渤海沉积速率基本处于同一水平,其中渤海北部稍高于中部和南部,同时北部的变化范围相对较大,近百年来渤海北部沉积速率变化最为显著。

研究区域MAR随时间的变化如图7所示,渤海北部MAR随时间先缓慢增加,至1980年后随时间波动,但整体上呈快速增长趋势,2012年之后呈现缓慢回落,表明1980年后渤海北部沉积速率快速增大,并于2012年之后增长趋势减缓。渤海中部MAR随时间呈分段增长模式,1970年以前变化不明显,1970—1990年随时间缓慢增大,1990年之后随时间波动,整体上增长迅速,至2012年出现极大值后有所减小。渤海南部MAR随时间变化幅度较小,1946—1969年几乎保持不变,其值略大于渤海北部和中部,1970年之后随时间波动,整体上呈增大趋势,至1996年后变化趋缓,并小于渤海北部和中部。

研究区域MAR结果与SR结果基本吻合,近百年来,渤海沉积速率存在显著时空差异。空间上,渤海近百年来平均沉积速率处于同一水平,其中渤海北部稍高于中部和南部,区域差异在1980年后较为显著。渤海是半封闭型陆架浅海,其90%的沉积物来源于河流入海物质,并以黄河、辽河和滦河的贡献为主(乔淑卿等,2010)。渤海沿岸主要河流年径流量和年输沙量的统计数据表明,位于渤海南部的黄河,年径流量高达30 km³·a⁻¹,年输沙量达到722 Mt·a⁻¹;位于渤海北部的辽河,同样每年向渤海

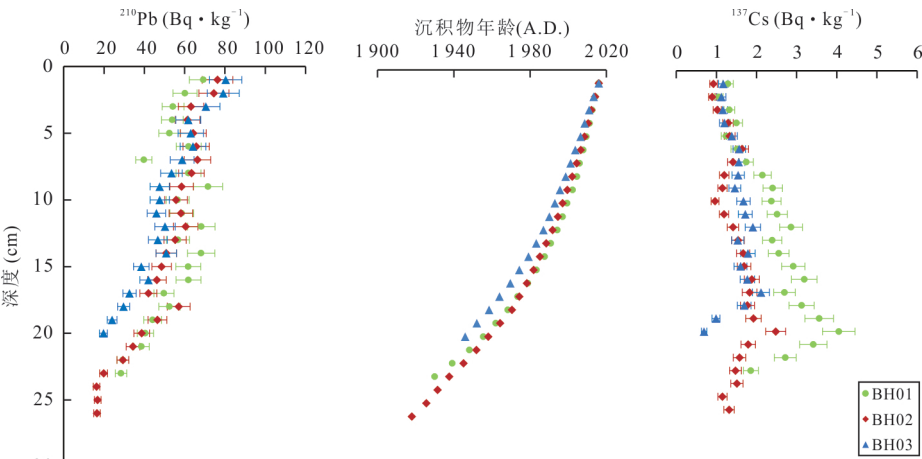


图 6 沉积物中²¹⁰Pb_{ex}和¹³⁷Cs垂直分布及其年代学

Fig. 6 Vertical distribution of ²¹⁰Pb_{ex}, ¹³⁷Cs and the chronologies of the sediments

表 5 研究区域近百年来沉积速率
Table 5 Sedimentation rates of study areas in last 100 years

研究区域	$^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ -SR 范围 ($\text{cm}\cdot\text{a}^{-1}$)	$^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ -SR 平均值 ($\text{cm}\cdot\text{a}^{-1}$)	^{137}Cs -SR ($\text{cm}\cdot\text{a}^{-1}$)	$^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ -MAR 范围 ($\text{kg}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{a}^{-1}$)	$^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ -MAR 平均值 ($\text{kg}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{a}^{-1}$)
渤海北部	0.08~0.73	0.35	0.38	1.46~13.16	6.34
渤海中部	0.12~0.58	0.31	0.38	1.84~10.04	5.53
渤海南部	0.16~0.46	0.30	0.32	2.83~6.94	4.82
中国近海 ^a	0.07~7.25	—	—	—	—

注:a.数据来自文献(见表 2).

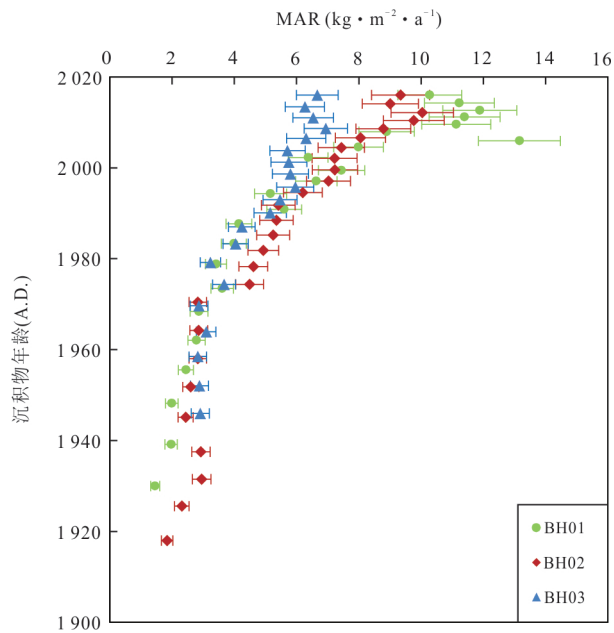


图 7 研究区域沉积速率随时间的变化
Fig.7 Variation of MAR with time in study area

输入了大量的水沙,其径流量比黄河低 1 个数量级,输沙量低 2 个数量级(Wang *et al.*, 2014).本研究沉积速率结果表明,渤海南部的沉积速率相对于中部和北部在同一水平,且偏低,与泥沙输入量并不成正比,推测一是由于近百年来黄河携带入海的泥沙并未直接影响到本研究区域所在的渤海南部海域,而是沿山东半岛北岸向东的渤海沿岸流一部分供应给渤海东部,一部分穿过渤海海峡供应给北黄海(蓝先洪等, 2016);二是由于黄河入海口几经改道,而本研究渤海南部所在位置的沉积速率经过近百年来平均,受河流的影响程度降低.渤海北部的高沉积速率保留了辽河泥沙输入的显著影响,表明辽河三角洲不断向海淤积进而影响范围已经抵达本研究渤海北部所在位置.时间上,渤海近百年来沉积速率随时间波动,整体上呈现增大趋势,尤其是 1980 年之后,增大幅度显著,且波动程度加强.

这种变化推测与 20 世纪 70 年代末期中国改革开放后沿海经济快速发展导致的近海开发与利用等人类活动影响的增加相关(Lemoine *et al.*, 2015; Du *et al.*, 2019),与近几十年来沉积物输入的波动变化相对应.

4 结论

通过分析渤海沉积物中的放射性核素的含量与分布特征,结合 ^{210}Pb 、 ^{137}Cs 测年法,以及 $^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$ 、 $^{232}\text{Th}/^{238}\text{U}$ 和 $^{40}\text{K}/^{238}\text{U}$ 比值的时空变化,得出以下主要结论.

(1)渤海沉积物中放射性核素 ^{238}U 、 ^{226}Ra 、 ^{232}Th 、 ^{210}Pb 、 ^{40}K 和 ^{137}Cs 含量在研究背景值范围内,水平和垂直分布特征明显,颗粒活性核素 ^{232}Th 和 ^{210}Pb 受沉积物粒度和有机碳影响显著, ^{238}U 与 ^{226}Ra 、 ^{232}Th 、 ^{40}K 存在显著相关性. $^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$ 、 $^{232}\text{Th}/^{238}\text{U}$ 和 $^{40}\text{K}/^{238}\text{U}$ 比值的时空变化分析结果显示,渤海沉积物陆源物质输入影响由西南向东北方向延伸,海源物质影响向东部外海方向增强.受河流输入影响,渤海北部和南部沉积物输入不稳定,近几十年波动明显.

(2)渤海沉积物中 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 含量随深度增加而降低,采用 CRS 模型计算获得不同深度的沉积物年龄,样品采集深度基本处于百年时间尺度水平.沉积物中 ^{137}Cs 含量随深度而波动,将自 ^{137}Cs 检出以来的第一个峰值深度对应为核爆炸高峰年为 1963 年,估算沉积物年龄.两种方法在渤海北部、中部和南部的沉积物测年结果均较为吻合.

(3)在沉积物测年结果基础上,计算获得渤海沉积速率 SR 和 MAR,SR 范围落在中国近海沉积速率研究结果的范围内, MAR 结果与 SR 基本吻合.空间上,渤海的平均沉积速率处于同一水平,其中北部偏高于中部和南部;时间上,近百年来,渤海沉积速率随时间波动,整体上呈现增大趋势,尤其

是 1980 年之后增长迅速,其中渤海北部和南部出现波动和显著高值。

致谢:感谢国家海洋环境监测中心渤海调查航次出海作业人员徐恒振、刘星、孟书锋等在样品采集集中给予的帮助,感谢团队相关人员对本研究的贡献,感谢审稿人的建设性意见和建议。

References

- Baskaran, M., Swarzenski, P.W., 2007. Seasonal Variations on the Residence Times and Partitioning of Short-Lived Radionuclides (^{234}Th , ^7Be and ^{210}Pb) and Depositional Fluxes of ^7Be and ^{210}Pb in Tampa Bay, Florida. *Marine Chemistry*, 104(1–2): 27–42. <https://doi.org/10.1016/j.marchem.2006.06.012>
- Callaway, J.C., Borgnis, E.L., Turner, R.E., et al., 2012. Carbon Sequestration and Sediment Accretion in San Francisco Bay Tidal Wetlands. *Estuaries and Coasts*, 35(5): 1163–1181. <https://doi.org/10.1007/s12237-012-9508-9>
- Cao, L.S., Yang, Y.X., Zhang, Y., et al., 2012. Distribution Pattern of Radionuclides in the Soil of Mainland China. *Journal of East China Institute of Technology (Natural Science Edition)*, 35(2): 167–172(in Chinese with English abstract).
- Ding, M.X., Liu, G.Q., Su, L.L., et al., 2017. Radionuclides in Seawater and Sediments from Near-Shore Area of Shenzhen. *Journal of Nuclear and Radiochemistry*, 39(6): 442–446(in Chinese with English abstract).
- Du, J.Q., Guan, D.M., Yao, Z.W., et al., 2017. Distribution and Environmental Significances of Radionuclides in Sediments of Dalian Coastal Area. *China Environmental Science*, 37(5): 1889–1895(in Chinese with English abstract).
- Du, J.Q., Guan, D.M., Yao, Z.W., et al., 2019. Records of Human-Induced Changes in Sedimentation and Carbon Sequestration in Dalian Bay, North China. *Continental Shelf Research*, 178: 51–58. <https://doi.org/10.1016/j.csr.2019.04.004>
- Duan, X.Y., Li, Y.X., Yin, P., 2016. Distribution of Cu in Surface Sediments of the Bohai Sea and Its Influence Factors. *Marine Geology & Quaternary Geology*, 36(6): 135–141(in Chinese with English abstract).
- Fuller, C.C., van Geen, A., Baskaran, M., et al., 1999. Sediment Chronology in San Francisco Bay, California, Defined by ^{210}Pb , ^{234}Th , ^{137}Cs , and $^{239,240}\text{Pu}$. *Marine Chemistry*, 64(1–2): 7–27. [https://doi.org/10.1016/s0304-4203\(98\)00081-4](https://doi.org/10.1016/s0304-4203(98)00081-4)
- Gao, S., 2011. Numerical Modeling of Marine Sedimentary Processes: The Nature, Scientific Problems, and Prospect. *Marine Geology & Quaternary Geology*, 31(5): 1–7(in Chinese with English abstract).
- Gulin, S.B., Gulina, L.V., Sidorov, I.G., et al., 2014. ^{40}K in the Black Sea: A Proxy to Estimate Biogenic Sedimentation. *Journal of Environmental Radioactivity*, 134: 21–26. <https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2014.02.011>
- Huang, X.P., Zhang, J.P., Jiang, Z.J., 2015. Eco-Environmental Effects of Nutrients Input Caused by Human Activities on the Semi-Enclosed Bay and Its Management Strategy. *Advances in Earth Science*, 30(9): 961–969(in Chinese with English abstract).
- Huh, C., Chen, W., Hsu, F., et al., 2011. Modern (<100 Years) Sedimentation in the Taiwan Strait: Rates and Source-to-Sink Pathways Elucidated from Radionuclides and Particle Size Distribution. *Continental Shelf Research*, 31(1): 47–63. <https://doi.org/10.1016/j.csr.2010.11.002>
- Lan, X.H., Li, R.H., Mi, B.B., et al., 2016. Distribution Characteristics of Rare Earth Elements in Surface Sediment and Their Provenance Discrimination in the Eastern Bohai and Northern Yellow Seas. *Earth Science*, 41(3): 463–474(in Chinese with English abstract). <https://doi.org/10.3799/dqkx.2016.038>
- Lemoine, F., Poncet, S., Ünal, D., 2015. Spatial Rebalancing and Industrial Convergence in China. *China Economic Review*, 34: 39–63. <https://doi.org/10.1016/j.chieco.2015.03.007>
- Li, D.M., Liu, G.S., Li, C., et al., 2009. Radionuclide Distribution in Sediments and Sedimentary Rates in Seas Surrounding Xiamen. *Journal of Oceanography in Taiwan Strait*, 28(3): 336–342(in Chinese with English abstract).
- Li, F.Y., Gao, S., Jia, J.J., et al., 2002. Contemporary Deposition Rates of Fine-Grained Sediment in the Bohai and Yellow Seas. *Oceanologia et Limnologia Sinica*, 33(4): 364–369(in Chinese with English abstract).
- Li, F.Y., Shi, Y.L., 1995. Study of the Modern Sedimentation in the Bohai Sea. *Marine Sciences*, 19(2): 47–50(in Chinese with English abstract).
- Liang, G.Y., Deng, F., Chen, W.L., et al., 2019. The Radioactivity of Marine Sediments Nearby Daya Bay Nuclear Power Base. *Nuclear Safety*, 18(5): 33–37(in Chinese with English abstract).
- Lin, W.H., Feng, Y., Yu, K.F., et al., 2020. Characteristics of Radionuclides in Sediments Collected from the Beibu Gulf and Influence Factors. *Acta Oceanologica Sinica*, 42(2): 143–154(in Chinese with English abstract).

- Liu, G.S., Li, D.M., Yi, Y., et al., 2008. Radionuclide Distribution in Sediments and Sedimentary Rates in the Jiaozhou Bay. *Acta Geoscientica Sinica*, 29(6): 769–777(in Chinese with English abstract).
- Morford, J. L., Emerson, S., 1999. The Geochemistry of Redox Sensitive Trace Metals in Sediments. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 63(11–12): 1735–1750. [https://doi.org/10.1016/s0016-7037\(99\)00126-x](https://doi.org/10.1016/s0016-7037(99)00126-x)
- Pan, S.M., Zhu, D.K., Li, Y., et al., 1997. ^{137}Cs Profile in Sediments in Estuaries and Its Application in Sedimentology. *Acta Sedimentologica Sinica*, 15(4): 69–73(in Chinese with English abstract).
- Qi, J., Li, F.Y., Song, J.M., et al., 2004. Sedimentation Rate and Flux of the North Yellow Sea. *Marine Geology & Quaternary Geology*, 24(2): 9–14(in Chinese with English abstract).
- Qiao, S.Q., Shi, X.F., Wang, G.P., et al., 2010. Discussion on Grain-Size Characteristics of Seafloor Sediment and Transport Pattern in the Bohai Sea. *Acta Oceanologica Sinica*, 32(4): 139–147(in Chinese with English abstract).
- Qu, B.X., Song, J.M., Yuan, H.M., 2018. Sediment Records and Responses for Anthropogenic Activities of Organic Matter in the Daya Bay during Recent One Hundred Years. *Acta Oceanologica Sinica*, 40(10): 119–130(in Chinese with English abstract).
- Sanchez-Cabeza, J.A., Ruiz-Fernández, A.C., 2012. ^{210}Pb Sediment Radiochronology: An Integrated Formulation and Classification of Dating Models. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 82: 183–200. <https://doi.org/10.1016/j.gca.2010.12.024>
- Wang, F., Wang, H., 2011. The Division of ^{137}Cs Vertical Profile Types on Coastal Area and Its Implication. *Geological Bulletin of China*, 30(7): 1099–1110(in Chinese with English abstract).
- Wang, H.J., Wang, A.M., Bi, N.S., et al., 2014. Seasonal Distribution of Suspended Sediment in the Bohai Sea, China. *Continental Shelf Research*, 90: 17–32. <https://doi.org/10.1016/j.csr.2014.03.006>
- Wang, J.L., Du, J.Z., Bi, Q.Q., 2017. Natural Radioactivity Assessment of Surface Sediments in the Yangtze Estuary. *Marine Pollution Bulletin*, 114(1): 602–608. <https://doi.org/10.1016/j.marpolbul.2016.09.040>
- Wang, Y.H., Shen, H.T., 2002. The Study Methods of Sedimentation Rates in the Estuarine and Coastal Environments. *Marine Geology & Quaternary Geology*, 22(2): 118–123(in Chinese with English abstract).
- Wang, Z.B., Lu, K., Wen, Z.H., et al., 2020. Grain Size Compositions and Their Influencing Factors of the Surface Sediments in Eastern China Seas. *Earth Science*, 45(7): 2709–2721(in Chinese with English abstract). <https://doi.org/10.3799/dqkx.2020.028>
- Webster, I. T., Hancock, G. J., Murray, A. S., 1995. Modelling the Effect of Salinity on Radium Desorption from Sediments. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 59(12): 2469–2476. [https://doi.org/10.1016/0016-7037\(95\)00141-7](https://doi.org/10.1016/0016-7037(95)00141-7)
- Wu, M.G., Zhou, P., Zhao, F., et al., 2018. The Concentration of γ Radionuclides in Surface Marine Sediments from Yangjiang Nuclear Power Plant and Its Adjacent Sea Area, South China Sea. *Marine Environmental Science*, 37(1): 43–47(in Chinese with English abstract).
- Xia, X.M., Xie, Q.C., Li, Y., et al., 1999. ^{137}Cs and ^{210}Pb Profiles of the Seabed Cores along the East China Sea Coast and Their Implications to Sedimentary Environment. *Donghai Marine Science*, 17(1): 21–28(in Chinese with English abstract).
- Xu, D., Chu, F.Y., Yang, H.L., et al., 2012. Modern Sedimentation Rates in the Beibu Gulf. *Marine Geology & Quaternary Geology*, 32(6): 17–26(in Chinese with English abstract).
- Yang, W.F., Chen, M., Zhang, X.X., et al., 2013. Thorium Isotopes (^{228}Th , ^{230}Th , ^{232}Th) and Applications in Reconstructing the Yangtze and Yellow River Floods. *International Journal of Sediment Research*, 28(4): 588–595. [https://doi.org/10.1016/s1001-6279\(14\)60015-9](https://doi.org/10.1016/s1001-6279(14)60015-9)
- Yeager, K. M., Santschi, P. H., Schindler, K. J., et al., 2006. The Relative Importance of Terrestrial versus Marine Sediment Sources to the Nueces-Corpus Christi Estuary, Texas: An Isotopic Approach. *Estuaries and Coasts*, 29(3): 443–454. <https://doi.org/10.1007/bf02784992>
- Zhang, R., Pan, S.M., Wang, Y.P., et al., 2009. Sedimentation Rates and Characteristics of Radionuclide ^{210}Pb at the Subaqueous Delta in Changjiang Estuary. *Acta Sedimentologica Sinica*, 27(4): 704–713(in Chinese with English abstract).
- Zhao, F., Wu, M.G., Zhou, P., et al., 2015. Radionuclides in Surface Sediments from the Huangmaohai Estuary Guanghai Bay and Its Adjacent Sea Area of the South China Sea. *Journal of Tropical Oceanography*, 34(4): 77–82(in Chinese with English abstract).
- Zuo, S.H., Han, Z.Y., Xie, H.L., et al., 2019. Radionuclide Content in Surface Sediments of Tianwan Sea Area in Lianyungang. *The Administration and Technique of Environmental Monitoring*, 31(6): 42–45(in Chinese with English abstract).

附中文参考文献

- 曹龙生,杨亚新,张叶,等,2012.中国大陆主要省份土壤中天然放射性核素含量分布规律研究.东华理工大学学报(自然科学版),35(2):167—172.
- 丁敏霞,刘国卿,苏玲玲,等,2017.深圳近岸海域海水及沉积物中放射性核素水平.核化学与放射化学,39(6):442—446.
- 杜金秋,关道明,姚子伟,等,2017.大连近海沉积物中放射性核素分布及环境指示.中国环境科学,37(5):1889—1895.
- 段晓勇,李艳霞,印萍,2016.渤海表层沉积物中铜的分布及其影响因素.海洋地质与第四纪地质,36(6):135—141.
- 高抒,2011.海洋沉积地质过程模拟:性质与问题及前景.海洋地质与第四纪地质,31(5):1—7.
- 黄小平,张景平,江志坚,2015.人类活动引起的营养物质输入对海湾生态环境的影响机理与调控原理.地球科学进展,30(9):961—969.
- 蓝先洪,李日辉,密蓓蓓,等,2016.渤海东部和黄海北部表层沉积物稀土元素的分布特征与物源判别.地球科学,41(3):463—474.
- 李冬梅,刘广山,李超,等,2009.环厦门海域沉积物放射性核素分布与沉积速率.台湾海峡,28(3):336—342.
- 李凤业,高抒,贾建军,等,2002.黄、渤海泥质沉积区现代沉积速率.海洋与湖沼,33(4):364—369.
- 李凤业,史玉兰,1995.渤海现代沉积的研究.海洋科学,19(2):47—50.
- 梁贵渊,邓飞,陈万良,等,2019.大亚湾核电基地周围海洋沉积物的放射性水平.核安全,18(5):33—37.
- 林武辉,冯禹,余克服,等,2020.北部湾沉积物中放射性核素的分布特征与控制因素.海洋学报,42(2):143—154.
- 刘广山,李冬梅,易勇,等,2008.胶州湾沉积物的放射性核素含量分布与沉积速率.地球学报,29(6):769—777.
- 潘少明,朱大奎,李炎,等,1997.河口港湾沉积物中的 ^{137}Cs 剖面及其沉积学意义.沉积学报,15(4):69—73.
- 齐君,李凤业,宋金明,等,2004.北黄海沉积速率及其沉积通量.海洋地质与第四纪地质,24(2):9—14.
- 乔淑卿,石学法,王国庆,等,2010.渤海海底沉积物粒度特征及输运趋势探讨.海洋学报,32(4):139—147.
- 曲宝晓,宋金明,袁华茂,2018.近百年来大亚湾沉积物有机质的沉积记录及对人为活动的响应.海洋学报,40(10):119—130.
- 王福,王宏,2011.海岸带地区 ^{137}Cs 沉积剖面类型划分及其意义.地质通报,30(7):1099—1110.
- 王永红,沈焕庭,2002.河口海岸环境沉积速率研究方法.海洋地质与第四纪地质,22(2):118—123.
- 王中波,陆凯,温珍河,等,2020.中国东部海域表层沉积物粒度组成及影响因素.地球科学,45(7):2709—2721.
- 吴梅桂,周鹏,赵峰,等,2018.阳江核电站附近海域表层沉积物中 γ 放射性核素含量水平.海洋环境科学,37(1):43—47.
- 夏小明,谢钦春,李炎,等,1999.东海沿岸海底沉积物中的 ^{137}Cs 、 ^{210}Pb 分布及其沉积环境解释.东海海洋,17(1):21—28.
- 许冬,初凤友,杨海丽,等,2012.北部湾现代沉积速率.海洋地质与第四纪地质,32(6):17—26.
- 张瑞,潘少明,汪亚平,等,2009.长江河口水下三角洲 ^{210}Pb 分布特征及其沉积速率.沉积学报,27(4):704—713.
- 赵峰,吴梅桂,周鹏,等,2015.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.热带海洋学报,34(4):77—82.
- 左书华,韩志远,谢华亮,等,2019.连云港田湾海域表层沉积物中放射性核素含量水平.环境监测管理与技术,31(6):42—45.