

林武辉, 杜隕峰, 余克服, 等. 基于放射性核素的沉积物源识别技术探索与优化——以红树林-海草床-珊瑚礁系统为例[J]. 海洋学报, 2023, 45(12): 58–66, doi:10.12284/hyxb2023175

Lin Wuhui, Du Yunfeng, Yu Kefu, et al. Exploring and optimizing characterization of radionuclide fingerprint for tracking sediment source: Comparison of mangrove, seagrass, and coral reef ecosystems[J]. Haiyang Xuebao, 2023, 45(12): 58–66, doi:10.12284/hyxb2023175

基于放射性核素的沉积物源识别技术探索与优化

——以红树林-海草床-珊瑚礁系统为例

林武辉^{1,5}, 杜隕峰¹, 余克服^{1*}, 杜金秋², 莫珍妮³, 李英花³, 何贤文⁴, 莫敏婷¹

(1. 广西大学海洋学院/广西南海珊瑚礁研究重点实验室, 广西南宁 530004; 2. 国家海洋环境监测中心, 辽宁大连 116023; 3. 广西海洋研究院, 广西南宁 530022; 4. 广西壮族自治区辐射环境监督管理站, 广西南宁 530022; 5. 集美大学极地海洋研究院, 福建厦门 361021)

摘要: 物质来源是沉积学研究的关键问题。沉积地球化学是沉积学的重要研究手段, 放射性核素在沉积地球化学中的应用探索仍较为匮乏。本研究利用高纯锗 γ 谱仪同时测量红树林、海草床、珊瑚礁三大典型生态系统的沉积物中天然放射性核素 (^{238}U 、 ^{226}Ra 、 ^{228}Ra 、 ^{40}K), 分析 3 种生态系统的沉积物中放射性核素分布特征, 探索基于放射性核素的一维视角下活度特征、二维视角下核素对与活度比值、三维视角下三角图解的指纹表征技术, 识别沉积物中不同物质的来源, 并尝试推广至中国不同海域。本研究强调三维指纹表征技术——基于核素活度的 ^{238}U - ^{232}Th (^{228}Ra)- $^{40}\text{K}/10$ 三角图解可以综合展示 3 种放射性核素的活度大小、组成比例、空间分布等信息, 指出 ^{238}U - ^{232}Th (^{228}Ra)- $^{40}\text{K}/10$ 三角图解可能是沉积物中物源识别的一种优化方法, 可为沉积地球化学研究中的现有代用指标工具库提供有益补充。

关键词: 放射性核素; 地球化学指标; 沉积物源; 红树林; 珊瑚礁; 海草床

中图分类号: P736.21⁺2

文献标志码: A

文章编号: 0253-4193(2023)12-0058-09

1 引言

物质来源是沉积物“源-汇”过程研究的关键科学问题^[1-3], 也是沉积学的重要研究范畴^[4-6]。沉积地球化学作为沉积学研究的重要手段^[7], 已经逐步构建了包含常量元素、微量元素、稀土元素、稳定同位素、有机标志物等一系列地球化学代用指标^[7-8]。

放射性核素是地球化学研究中重要的工具, 被广泛应用于年代学研究^[9-11]; 也可用于指示沉积物的物质来源、搬运、沉积、扰动、再悬浮等过程^[12-17]。虽然放射性核素在地球化学和沉积学中都有一定的应用,

但是放射性核素在沉积地球化学代用指标体系中的相关探索仍然较为缺乏^[8]。

海洋沉积物是放射性核素的重要储库和归宿, 在特定条件下也可以通过间隙水扩散和再悬浮过程成为海水中放射性核素的来源^[10]。国内外学者尝试利用 ^{40}K 、 ^{226}Ra 等一维特征核素^[17-19], $^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$ 、 $^{232}\text{Th}/^{238}\text{U}$ 、 $^{226}\text{Ra}/^{228}\text{Ra}$ 、 $^{40}\text{K}/^{238}\text{U}$ 、 $^7\text{Be}/^{210}\text{Pbex}$ 、 $^{234}\text{Thex}/^{210}\text{Pbex}$ 、 $^{228}\text{Th}/^{232}\text{Th}$ 等二维核素对与活度比值^[12, 19-24], U-Th-K 三角图解^[25] 等放射性核素代用指标体系示踪海洋沉积物的源汇过程。然而, 目前海洋沉积物中放射性核素示踪研究不同程度的存在研究区域较窄、放射性核素种类较

收稿日期: 2023-02-21; 修订日期: 2023-06-30。

基金项目: 国家自然科学基金项目(42276044); 广西自然科学基金项目(2021GXNSFAA220053); 广西南海珊瑚礁研究重点实验室开放基金项目(GXLSCRSCS2023003)。

作者简介: 林武辉(1987—), 男, 福建省泉州市人, 教授, 主要研究海洋过程的同位素示踪、海洋放射性观测与核安全评估。E-mail: linwuhui8@163.com

* 通信作者: 余克服(1969—), 男, 湖北省公安县人, 教授, 主要从事珊瑚礁地质与生态环境研究。E-mail: kefuyu@scsio.ac.cn

少、表征技术较单一、适用范围较局限等问题,并进一步限制了放射性核素在沉积地球化学工具库中的探索和应用。

本研究系统测定南海3种典型海洋生态系统(广西红树林、广西海草床、南海珊瑚礁)的沉积物中放射性核素含量水平,探索基于放射性核素的多维特征指纹的表征技术,识别海洋沉积物的不同物质来源,尝试提出基于核素活度的 ^{238}U - ^{232}Th (^{228}Ra)- $^{40}\text{K}/10$ 三角图解的表征技术,应用于中国不同海域,以期成为沉积地球化学研究中代用指标工具库提供有益补充。

2 材料与方 法

本研究以2017年5月在广西红树林采集的13个表层沉积物、2015年7月至2017年7月期间在南海珊瑚礁区采集的17个表层沉积物、2017年3月在广西贵明海草床采集的7个沉积物样品为研究对象,采样站位见图1。所有样品采集后置于密封袋内,并带回实验室冷冻保存。实验前取出沉积物,在60℃烘箱内烘干至恒重,剔除贝壳、树叶、砂砾等杂物,研磨过筛(100~120目)。取20g或45g沉积物粉末装入样品盒并密封放置30d以上,保证 ^{226}Ra 及其 ^{222}Rn 等子体核素达到平衡状态后进行测量。

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%,1.332 MeV峰处的分辨率小于1.58 keV。 ^{238}U 和 ^{228}Ra 分别选择其子体 ^{234}Th (63.3 keV)和 ^{228}Ac (911.1 keV)的 γ 射线进行计算, ^{226}Ra 采用其子体 ^{214}Pb (351.9 keV)和 ^{214}Bi (609.3 keV)进行分析, ^{40}K 选择1460.8 keV的能量区间计算。放射性核素的活度(A)和不确定度(δA)由式(1)和式(2)计算。

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

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

式中, n_T 和 n_0 分别代表核素对应的 γ 全能峰的样品净计数率和仪器本底净计数率; n_{GT} 和 n_{G0} 分别代表样品谱图中核素 γ 全能峰的总计数率和本底计数率; λ 代表衰变常数; ϵ 和 m 分别代表相对探测效率和样品质量; t_1 和 t_0 分别代表测量时刻和采样时刻; T 代表仪器的测量时间。不确定度主要来源于衰变过程中 γ 粒子计数统计涨落,并用1个标准差(1 δ)展示。

质量控制方面,实验室定期测量仪器本底和中国计量科学研究院提供的混合源(^{241}Am 、 ^{228}Ra 、 ^{137}Cs 、 ^{60}Co)探测效率,并制作质量控制图以保证仪器的稳定性;同时定期测量国际原子能机构(IAEA-384、IAEA-385、IAEA-314、IAEA-448)和中国计量科学研究院提供的不同沉积物标准源进行交叉验证,以保证数据的可靠性。实验室多次参加并顺利通过国家海洋环境监测中心和国家核电厂安全及可靠性工程技术研究中心组织的全国范围内海洋沉积物与土壤中多种放射性核素(^{238}U 、 ^{226}Ra 、 ^{232}Th 、 ^{40}K 、 ^{137}Cs 、 ^{210}Pb 、 ^{228}Ra 等)的实验室间比对活动。测量方法和部分数据亦可参见研究团队的相关报道^[26-28]。

3 结果与讨论

3.1 一维视角下放射性核素活度特征

本研究结果显示,红树林的13个沉积物中 ^{238}U 、 ^{226}Ra 、 ^{228}Ra 和 ^{40}K 活度范围(活度均值)分别为(6.16 ± 2.34)~(70.7 ± 6.40) Bq/kg [(27.8 ± 19.1) Bq/kg]、(7.33 ± 0.46)~(55.3 ± 1.67) Bq/kg [(21.2 ± 13.4) Bq/kg]、(10.0 ± 1.25)~(94.1 ± 3.48) Bq/kg [(35.8 ± 23.8) Bq/kg]和(26.5 ±

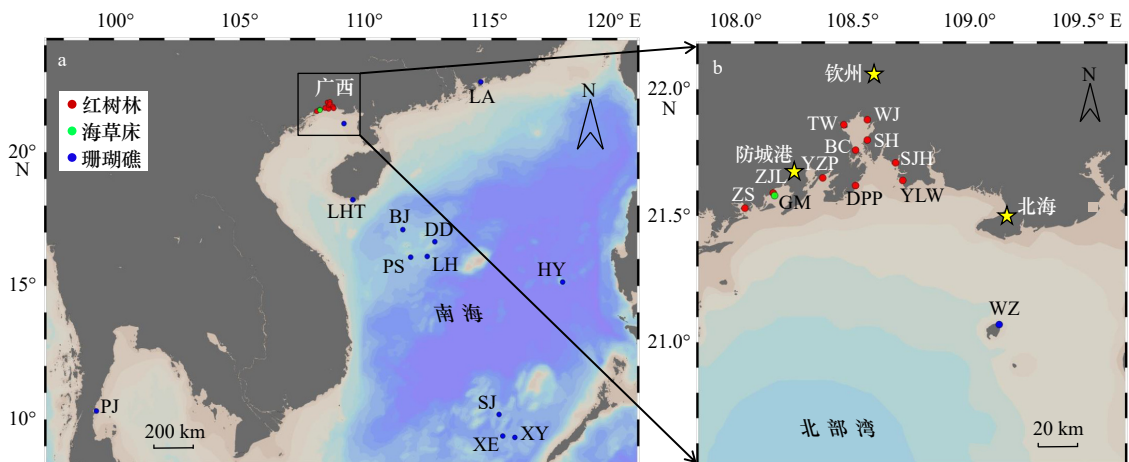


图1 红树林、海草床、珊瑚礁生态系统的沉积物采样站位

Fig. 1 Stations of sediments collected from mangrove, seagrass and coral reef ecosystems

1.23)~(479 ± 12.4) Bq/kg [(177 ± 125) Bq/kg]; 海草床的 7 个沉积物中 ^{238}U 、 ^{226}Ra 、 ^{228}Ra 和 ^{40}K 活度范围(活度均值)分别为 (36.3 ± 5.25)~(85.6 ± 5.57) Bq/kg[(57.4 ± 14.4) Bq/kg]、(22.5 ± 0.59)~(30.9 ± 1.24) Bq/kg[(27.2 ± 3.02)Bq/kg]、(29.2 ± 2.56)~(40.3 ± 2.47) Bq/kg[(35.2 ± 3.59) Bq/kg] 和 (144 ± 6.16)~(231 ± 7.54) Bq/kg[(196 ± 32.9) Bq/kg]; 珊瑚礁的 17 个沉积物中 ^{238}U 、 ^{226}Ra 、 ^{228}Ra 和 ^{40}K 活度范围(活度均值)分别为 (23.0 ± 2.00)~(38.2 ± 4.83) Bq/kg [(28.3 ± 4.74) Bq/kg]、(1.06 ± 0.07)~(4.99 ± 0.44) Bq/kg [(2.54 ± 1.04) Bq/kg]、(0.51 ± 0.26)~(5.52 ± 0.97) Bq/kg [(2.42 ± 1.58) Bq/kg] 和 (2.15 ± 0.71)~(23.1 ± 2.13) Bq/kg [(9.02 ± 4.99) Bq/kg]。本研究所有 37 个沉积物样品中 ^{238}U 、 ^{226}Ra 、 ^{228}Ra 和 ^{40}K 活度均值分别为 (33.6 ± 17.5) Bq/kg、(13.7 ± 13.3) Bq/kg、(20.4 ± 21.8) Bq/kg 和 (103 ± 115) Bq/kg。3 种生态系统的沉积物中放射

性核素活度水平如图 2 所示。

图 2 显示一维视角下放射性核素的活度特征对比情况,在考虑标准差的情况下红树林和海草床的放射性核素活度水平总体较为接近,而珊瑚礁系统中 ^{226}Ra 、 ^{228}Ra 和 ^{40}K 活度均显著低于红树林和海草床系统的结果。该结果与本团队提出的珊瑚礁系统拥有极低放射性核素水平的结果一致^[13,28]。珊瑚礁系统中造礁生物按照一定的生物富集因子选择性吸收海水中放射性核素进入生物骨骼,导致随后形成的珊瑚礁区生源沉积物中极低的 ^{226}Ra 、 ^{228}Ra 和 ^{40}K 活度水平^[27-28]。因此, ^{226}Ra 、 ^{228}Ra 和 ^{40}K 活度可以作为特征核素指示珊瑚礁区生源沉积物的独特端元,而 ^{238}U 的指示效果不理想。

3.2 二维视角下放射性核素对的应用

^{226}Ra - ^{238}U 和 ^{232}Th (^{228}Ra)- ^{238}U 的核素对与活度比值

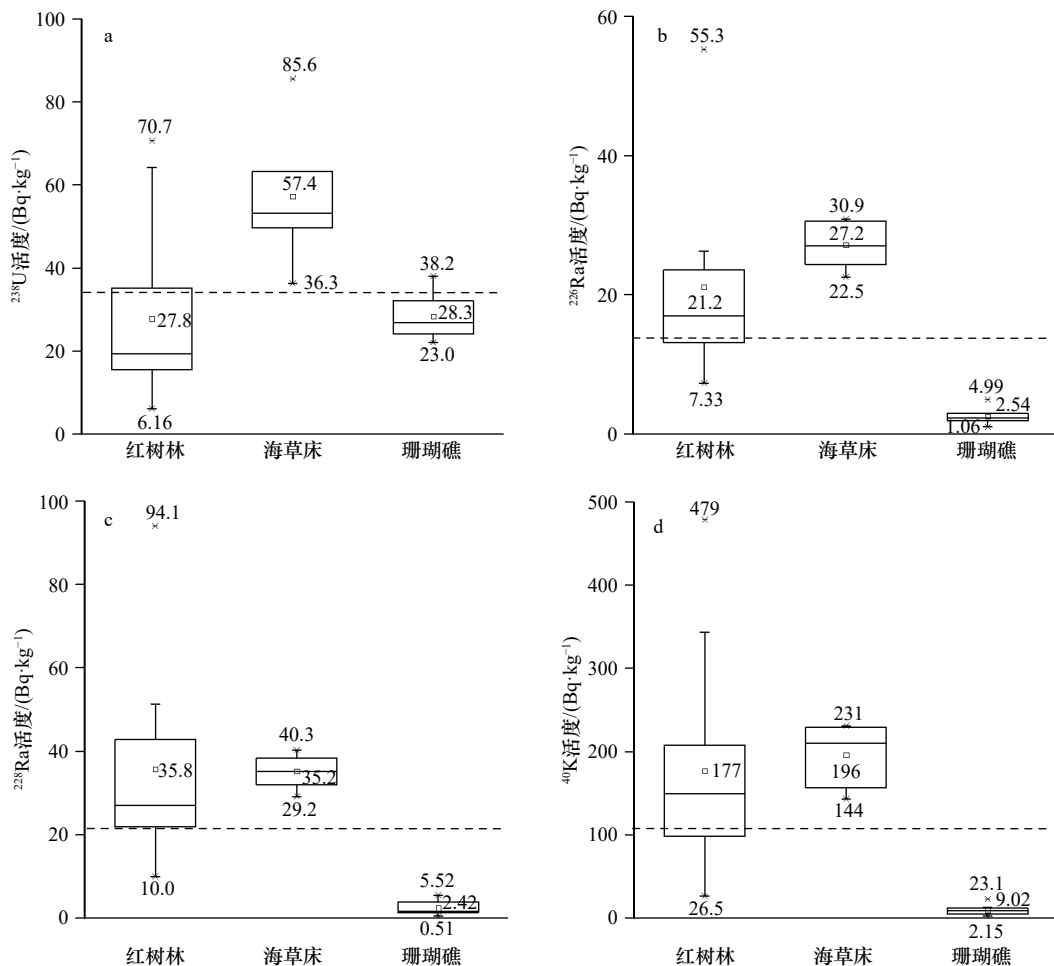


图 2 红树林、海草床、珊瑚礁生态系统沉积物中 ^{238}U 、 ^{226}Ra 、 ^{228}Ra 、 ^{40}K 的活度箱线图

Fig. 2 Boxplots of ^{238}U , ^{226}Ra , ^{228}Ra and ^{40}K activities in sediments of mangrove, seagrass and coral reef ecosystems

虚线代表所有沉积物中放射性核素的活度均值;箱线图内部横线代表中位数;箱线图、上、中、下 3 个数值分别代表不同生态系统沉积物中放射性核素的最大活度、活度均值和最小活度

The dotted lines represent the average activities of radionuclides in all sediments. The inner line of the boxplot depicts the median value. The upper, middle and lower values of the boxplot refer to the maximum activity, average activity, and minimum activity of radionuclides in sediments, respectively

已被应用于识别沉积物中不同物质的来源^[12, 19, 25, 29]。本研究探索 3 种生态系统中 ^{232}Th (^{228}Ra)- ^{238}U 和 ^{226}Ra - ^{238}U 核素对的特征(图 3), 并进一步结合 ^{40}K 信息提出 ^{40}K - $^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$ 核素对(图 3c), 指示海洋沉积物中不同物质来源。

图 3 展示二维视角下 3 组放射性核素对的空间分布特征, 红树林、海草床、珊瑚礁的空间分布特征均存在一定的差别。特别指出, 珊瑚礁区沉积物拥有极低的 $^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$ 和 $^{228}\text{Ra}/^{238}\text{U}$ 活度比值(均为 0.1 左右), 显著低于红树林和海草床的结果(大部分在 0.5~2 之间, 均显著大于 0.1, t 检验的 $p < 0.05$)。二维视角下放射性核素对更加明显地展示了珊瑚礁区生源沉积物不同于广西近岸红树林和海草床的陆源沉积物^[13, 27]。珊瑚礁区生源沉积物中放射性核素来源于造礁生物对海水中放射性核素的选择性吸收以及所记录保存的相应指纹特征, 而近岸红树林和海草床的陆源沉积物最终来自于地球内部岩浆冷却形成岩石, 并发生一系列风化、搬运、沉积等过程^[27]。图 3 的中国陆地土壤中放射性核素信号也与近岸红树林和海草床的陆源沉积物的结果更为接近, 指示陆地土壤和近岸陆源沉积物之间的源汇关联。

3.3 三维视角下放射性核素的三角图解

沉积地球化学中元素三角图解是识别不同物质来源的重要工具^[8]。U-Th-K 3 种元素的三角图解也曾被用于判断物质来源^[25]。本研究基于红树林、海草床、珊瑚礁系统的沉积物中 ^{238}U 、 ^{226}Ra 、 ^{232}Th (^{228}Ra) 和 ^{40}K 活度, 尝试提出 ^{238}U - ^{232}Th (^{228}Ra)- $^{40}\text{K}/10$ 三角图解和 ^{226}Ra - ^{232}Th (^{228}Ra)- $^{40}\text{K}/10$ 三角图解(图 4), 综合展示放射性核素的活度大小、组成比例、空间特征等信息, 识

别沉积物中不同物质来源。

三维视角下放射性核素的三角图解可以展示 3 种放射性核素的端元比例组成, 颜色棒的数值则反映基于高纯锗 γ 谱仪测量的 3 种放射性核素(^{238}U 、 ^{228}Ra 、 $^{40}\text{K}/10$ 或者 ^{226}Ra 、 ^{232}Th 、 $^{40}\text{K}/10$)的活度总和(A_T , 单位为 Bq/kg), 定量反映沉积物中 3 种核素的总体活度水平, 具体计算方法如式(3)。值得注意的是, 由于沉积物中 ^{40}K 活度通常比 ^{238}U 和 ^{232}Th 活度高一个数量级^[12], 本文发现将 ^{40}K 活度除以 10 处理后的展示效果更好。

$$A_T = A_{^{238}\text{U}/^{226}\text{Ra}} + A_{^{228}\text{Ra}} + A_{^{40}\text{K}}/10 \quad (3)$$

^{226}Ra 和 ^{238}U 同属铀系放射性核素, 本研究选择铀系的一种放射性核素作为端元, 结合钍系(^{228}Ra)和 ^{40}K 另外两个端元, 对比 ^{238}U - ^{232}Th (^{228}Ra)- $^{40}\text{K}/10$ 和 ^{226}Ra - ^{232}Th (^{228}Ra)- $^{40}\text{K}/10$ 的三角图解在物质来源识别中的效果。图 4 结果显示, ^{238}U - ^{232}Th (^{228}Ra)- $^{40}\text{K}/10$ 三角图解可以更好的区分红树林、珊瑚礁、海草床的空间分布特征; 红树林、珊瑚礁、海草床的 ^{226}Ra - ^{232}Th (^{228}Ra)- $^{40}\text{K}/10$ 三角图解则存在更多的重叠区域。因此, 本研究的 ^{238}U - ^{232}Th (^{228}Ra)- $^{40}\text{K}/10$ 三角图解可以更好识别物质来源。

为进一步探索 ^{238}U - ^{232}Th (^{228}Ra)- $^{40}\text{K}/10$ 三角图解的适用范围, 本研究利用花岗岩^[31]、玄武岩^[31]、土壤^[32]、地壳^[33] 中 3 种放射性核素(^{238}U 、 ^{228}Ra 、 ^{40}K)端元的平均活度绘制三角图解(图 5)。图 5 显示, 地壳中放射性核素的比例组成、活度水平、空间特征的综合结果均较好分布在花岗岩、玄武岩、土壤 3 种端元的中心。地壳包含以花岗岩为主的陆壳和以玄武岩为主的洋壳, 土壤来源于地壳表层岩石的风化。因此, 地壳中 3 种放射性核素在经过一系列的岩浆冷却、放射

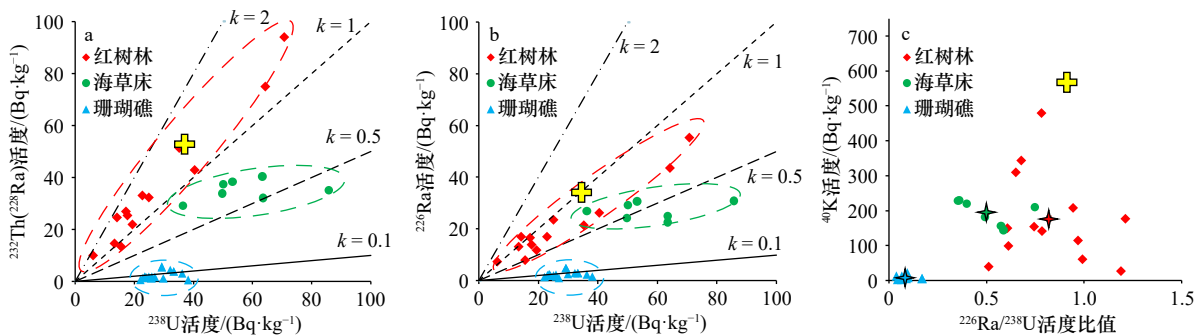


图 3 红树林、海草床、珊瑚礁系统的沉积物中 ^{232}Th (^{228}Ra)- ^{238}U (a)、 ^{226}Ra - ^{238}U (b)、 ^{40}K - $^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$ (c) 的关系
Fig. 3 Correlation analysis of ^{232}Th (^{228}Ra)- ^{238}U (a), ^{226}Ra - ^{238}U (b) and ^{40}K - $^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$ (c) in sediments of mangrove, seagrass, and coral reef ecosystems

黄色十字代表中国土壤^[30]; k 代表放射性核素活度比值; 图 c 十字星号分别代表在不同生态系统沉积物中 ^{40}K 活度均值和 $^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$ 活度比值均值

The yellow cross represents the average activities of radionuclides in China soil^[30]; k means the activity ratio. The cross asterisk represents the average activities of ^{40}K and average activity ratio of $^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$ in sediments from these ecosystems in Figure c

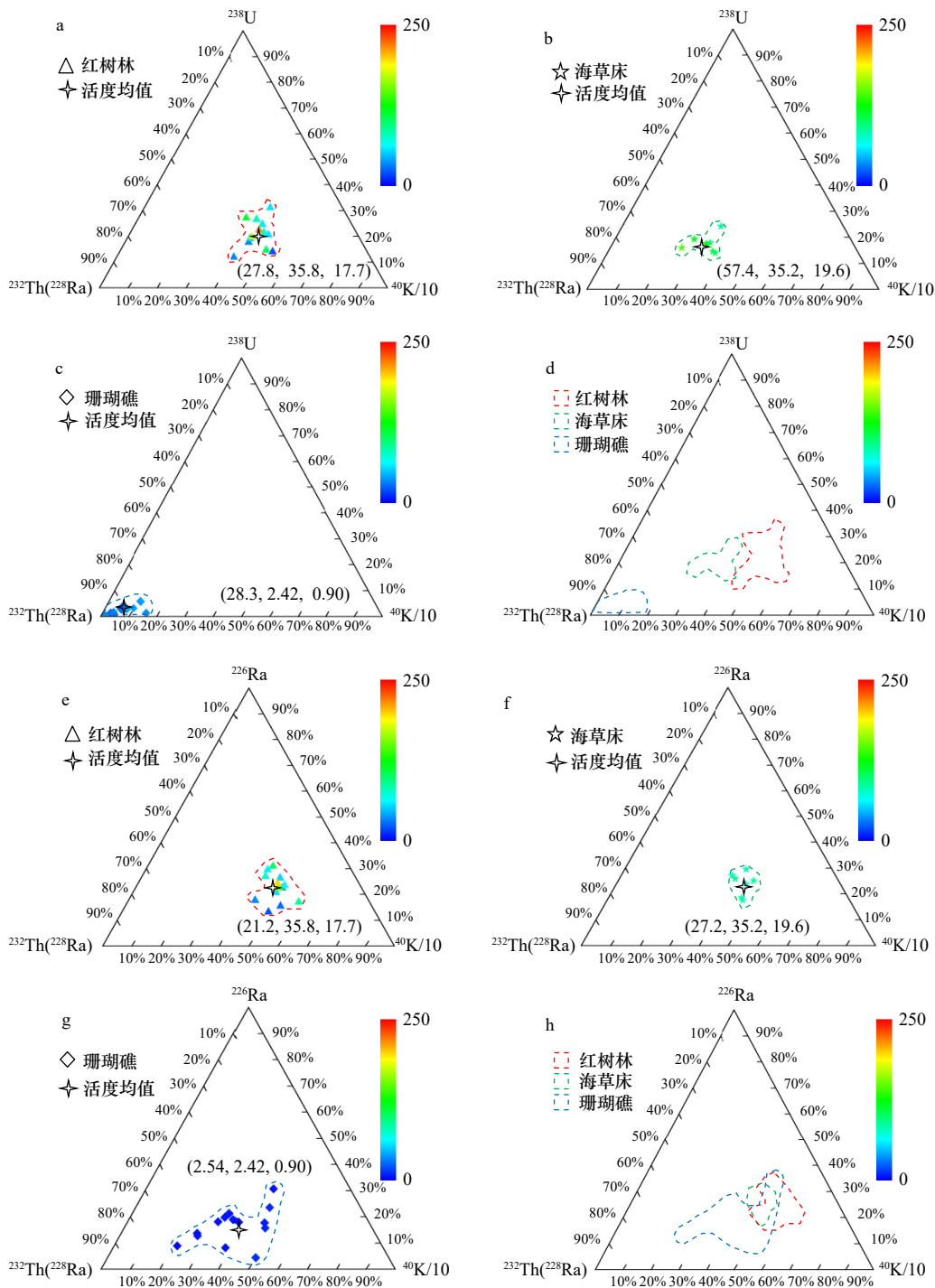


图4 红树林、海草床、珊瑚礁中沉积物的 ^{238}U - $^{232}\text{Th}(^{228}\text{Ra})$ - $^{40}\text{K}/10$ 三角图解(a, b, c)和 ^{226}Ra - $^{232}\text{Th}(^{228}\text{Ra})$ - $^{40}\text{K}/10$ 三角图解(e, f, g)以及3个生态系统的空间分布特征区域(d, h)

Fig. 4 Ternary diagrams of ^{238}U - $^{232}\text{Th}(^{228}\text{Ra})$ - $^{40}\text{K}/10$ (a, b, c) and ^{226}Ra - $^{232}\text{Th}(^{228}\text{Ra})$ - $^{40}\text{K}/10$ (e, f, g) in sediments from mangrove, seagrass, and coral reef ecosystems and their spatial distribution areas (d, h)

十字星号代表不同生态系统沉积物的活度均值;图a, b, c中括号内数值依次代表 ^{238}U 、 $^{232}\text{Th}(^{228}\text{Ra})$ 、 $^{40}\text{K}/10$ 的活度均值;图e, f, g中括号内数值依次代表 ^{226}Ra 、 $^{232}\text{Th}(^{228}\text{Ra})$ 、 $^{40}\text{K}/10$ 的活度均值。颜色棒代表3个核素端元的活度之和(Bq/kg)

The cross asterisks exhibit the average activities from different ecosystems. The values in the brackets refer to the average activities of ^{238}U , $^{232}\text{Th}(^{228}\text{Ra})$ and $^{40}\text{K}/10$ in Figures a, b, c. The values in the brackets exhibit the average activities of ^{226}Ra , $^{232}\text{Th}(^{228}\text{Ra})$ and $^{40}\text{K}/10$ in Figures e, f, g. The color bar quantitatively exhibits the sum of activities of three radionuclides' endmembers (Bq/kg)

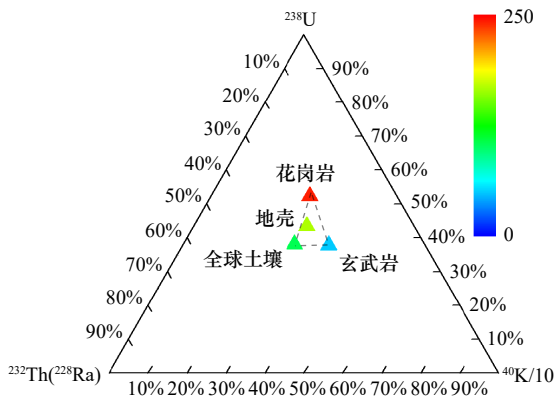


图5 花岗岩^[31]、玄武岩^[31]、全球土壤^[32]、地壳^[33]的²³⁸U-²³²Th(²²⁸Ra)-⁴⁰K/10三角图解

Fig. 5 Ternary diagram of ²³⁸U-²³²Th(²²⁸Ra)-⁴⁰K/10 of granite^[31], basalt^[31], global soil^[32] and crust^[33]

颜色棒代表3个核素端元的活度之和(Bq/kg)

The color bar quantitatively exhibits the sum of activities of three radionuclides' endmembers (Bq/kg)

性核素结晶分异、风化、搬运迁移、沉积等地质过程后,活度大小、比例组成、空间特征将在²³⁸U-²³²Th(²²⁸Ra)-⁴⁰K/10三角图解中发生不同程度的变化和偏移。

本研究进一步收集渤海、黄海、东海和南海沉积物中放射性核素活度数据^[12, 34-44],探索²³⁸U-²³²Th(²²⁸Ra)-⁴⁰K/10三角图解在中国近海应用的可行性。图6显示,渤海、黄海和东海沉积物²³⁸U-²³²Th(²²⁸Ra)-⁴⁰K/10三角图解的空间特征与中国土壤中核素均值的空间分布存在较好的一致性;南海部分海区沉积物中放射性核素的空间特征与中国土壤的核素均值分布一致,而南海珊瑚礁区的生源沉积物中放射性核素的空间分布特征则存在较大偏离。渤海、黄海和东海沉积物主要来源于河流和大气沉降等途径输入的中国土壤,导致3个海域的海洋沉积物和中国土壤中放射性核素存在较好的一致性。南海沉积物则源于中国和周边东南亚多个国家的河流输入,以及发育广泛的南海珊瑚岛礁“碳酸岩工厂”产生的生源沉积物,均可能导致南海部分海区与中国土壤的较大偏离特征。

相比前人提出的U-Th-K三角图解中所给出的组成信息,本研究优化提出的²³⁸U-²³²Th(²²⁸Ra)-⁴⁰K/10核素活度的三角图解可以同时给出比例组成(空间位置)和活度水平(颜色棒),并展示空间分布特征,用于中

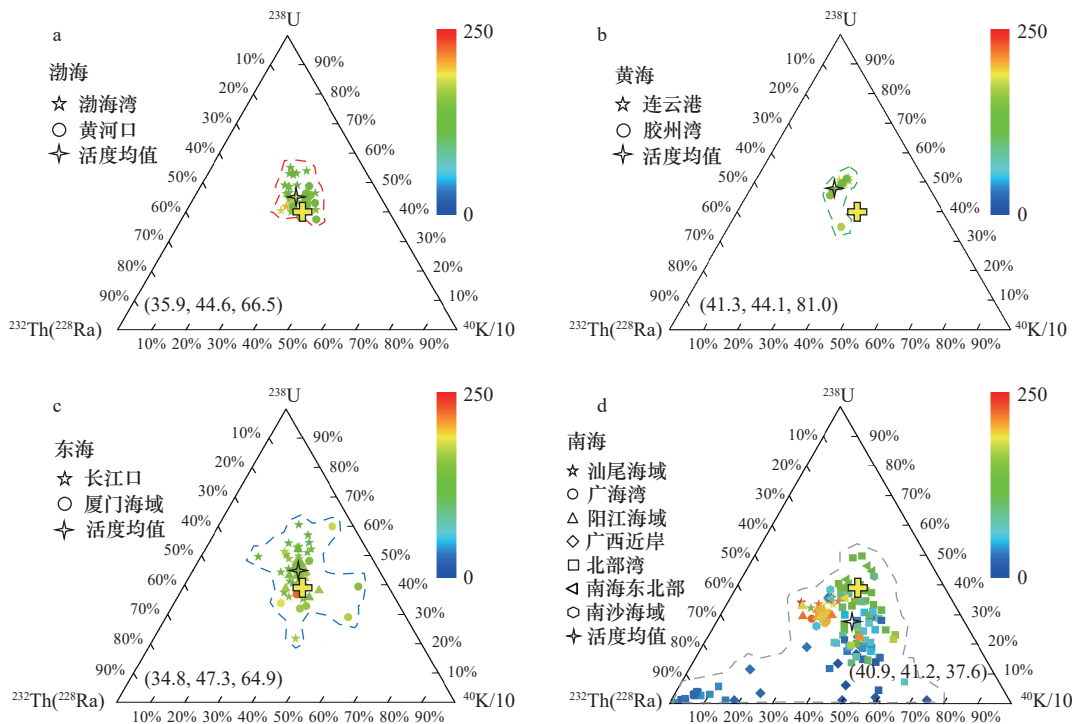


图6 渤海(a)^[34-35]、黄海(b)^[36-37]、东海(c)^[29, 38]、南海(d)^[12, 39-44]沉积物的²³⁸U-²³²Th(²²⁸Ra)-⁴⁰K/10三角图解

Fig. 6 Ternary diagram of ²³⁸U-²³²Th(²²⁸Ra)-⁴⁰K/10 in sediments from Bohai Sea (a)^[34-35], Yellow Sea (b)^[36-37], East China Sea (c)^[29, 38], and South China Sea (d)^[12, 39-44]

虚线指示不同海域沉积物的空间分布特征区域;颜色棒代表核素端元的活度之和(Bq/kg);黄色十字代表中国土壤^[30];十字星号代表中国不同海域沉积物的活度均值;图中括号内数值依次代表²³⁸U、²³²Th(²²⁸Ra)、⁴⁰K/10的活度均值

Dashed lines indicate the spatial distribution characteristics of sediments in different sea areas. The color bars represent the sum of the activities of ²³⁸U, ²³²Th(²²⁸Ra), and ⁴⁰K/10 (Bq/kg). The yellow cross represents the average activities of radionuclides in China soil^[30]. The cross asterisks exhibit the average activities from different sea areas. The values in the brackets refer to the average activities of ²³⁸U, ²³²Th(²²⁸Ra) and ⁴⁰K/10

国不同海域识别不同物质来源。此外,3个放射核素(比如, ^{238}U 、 ^{232}Th 、 ^{40}K)在二维视角下需要同时给出核素对的3种组合方式(^{238}U - ^{232}Th 、 ^{232}Th - ^{40}K 、 ^{238}U - ^{40}K)才能全面展示核素信息,而三维视角下 ^{238}U - ^{232}Th (^{228}Ra)- ^{40}K /10三角图解只需一个图即可综合展示所有核素信息。

4 结论

本研究利用高纯锗 γ 谱仪测定红树林、海草床、珊瑚礁系统的沉积物中天然放射性核素(^{238}U 、 ^{226}Ra 、 ^{228}Ra 、 ^{40}K)的含量,探索和优化基于放射性核素的一

维活度大小、二维核素对、三维核素三角图解的指纹表征技术,并尝试用于中国不同海域的沉积物源识别。本文强调三维指纹表征技术—— ^{238}U - ^{232}Th (^{228}Ra)- ^{40}K /10三角图解可以综合展示放射性核素的活度水平、组成比例、空间特征等信息,识别沉积物的不同物质来源,为放射性核素在沉积地球化学研究中的应用提供一定的借鉴。

致谢: 感谢广西中医药大学刘昕明副研究员在部分样品采集中所提供的帮助。

参考文献:

- [1] Liu Zhifei, Zhao Yulong, 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.
- [2] 石学法, 乔淑卿, 杨守业, 等. 亚洲大陆边缘沉积学研究进展(2011–2020)[J]. *矿物岩石地球化学通报*, 2021, 40(2): 319–336. Shi Xuefa, Qiao Shuqing, Yang Shouye, et al. Progress in sedimentology research of the Asian Continental Margin (2011–2020)[J]. *Bulletin of Mineralogy, Petrology and Geochemistry*, 2021, 40(2): 319–336.
- [3] 杨守业, 韦刚健, 石学法. 地球化学方法示踪东亚大陆边缘源汇沉积过程与环境演变[J]. *矿物岩石地球化学通报*, 2015, 34(5): 902–910. Yang Shouye, Wei Gangjian, Shi Xuefa. Geochemical approaches of tracing source-to-sink sediment processes and environmental changes at the East Asian Continental Margin[J]. *Bulletin of Mineralogy, Petrology and Geochemistry*, 2015, 34(5): 902–910.
- [4] 王成善, 林畅松. 中国沉积学近十年来的发展现状与趋势[J]. *矿物岩石地球化学通报*, 2021, 40(6): 1217–1229. Wang Chengshan, Lin Changsong. Development status and trend of sedimentology in China in recent ten years[J]. *Bulletin of Mineralogy, Petrology and Geochemistry*, 2021, 40(6): 1217–1229.
- [5] Boggs S Jr. *Principles of Sedimentology and Stratigraphy*[M]. 5th ed. Boston: Pearson, 2011.
- [6] 国家自然科学基金委员会, 中国科学院. 沉积学[M]. 北京: 科学出版社, 2023. National Natural Science Foundation of China, Chinese Academy of Sciences. *Sedimentology*[M]. Beijing: Science Press, 2023.
- [7] 周锡强, 陈代钊, 刘牧, 等. 中国沉积学发展战略: 沉积地球化学研究现状与展望[J]. *沉积学报*, 2017, 35(6): 1293–1316. Zhou Xiqiang, Chen Daizhao, Liu Mu, et al. The future of sedimentology in China: a review and perspective of sedimentary geochemistry[J]. *Acta Sedimentologica Sinica*, 2017, 35(6): 1293–1316.
- [8] 田景春, 张翔. 沉积地球化学[M]. 北京: 地质出版社, 2016. Tian Jingchun, Zhang Xiang. *Sedimentary Geochemical*[M]. Beijing: Geology Press, 2016.
- [9] White W M. *Isotope Geochemistry*[M]. Chichester: Wiley, 2015.
- [10] 林武辉, 余克服, 王英辉, 等. 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[J]. *海洋地质与第四纪地质*, 2020, 40(1): 60–70. Lin Wuhui, Yu Kefu, Wang Yinghui, et al. Using uranium-series radionuclides as tools for tracing marine sedimentary processes: Source identification, sedimentation rate, and sediment resuspension[J]. *Marine Geology & Quaternary Geology*, 2020, 40(1): 60–70.
- [11] Lin Wuhui, Yu Kefu, Wang Yinghui, et al. Assessing the feasibility of the $^{228}\text{Th}/^{228}\text{Ra}$ dating method for young corals (< 10 a) by gamma spectrometry[J]. *Quaternary Geochronology*, 2021, 61: 101125.
- [12] Lin Wuhui, Feng Yu, Yu Kefu, et al. Long-lived radionuclides in marine sediments from the Beibu Gulf, South China Sea: Spatial distribution, controlling factors, and proxy for transport pathway[J]. *Marine Geology*, 2020, 424: 106157.
- [13] Lin Wuhui, Feng Yu, Yu Kefu, et al. Comparative study of radioactivity levels and radionuclide fingerprints in typical marine ecosystems of coral reefs, mangroves, and hydrothermal vents[J]. *Marine Pollution Bulletin*, 2020, 152: 110913.
- [14] 林武辉, 余克服, 邓芳芳, 等. 南海现代珊瑚骨骼中放射性核素特征指纹[J]. *中国环境科学*, 2019, 39(10): 4279–4289. Lin Wuhui, Yu Kefu, Deng Fangfang, et al. Fingerprints of radionuclides in modern coral skeletons in the South China Sea[J]. *China Environmental Science*, 2019, 39(10): 4279–4289.
- [15] Castrillejo M, Casacuberta N, Breier C F, et al. Reassessment of ^{90}Sr , ^{137}Cs , and ^{134}Cs in the coast off Japan derived from the Fukushima Dai-ichi nuclear accident[J]. *Environmental Science & Technology*, 2016, 50(1): 173–180.
- [16] Song Shasha, Santos I R, Yu Huaming, et al. A global assessment of the mixed layer in coastal sediments and implications for carbon

- storage[J]. *Nature Communications*, 2022, 13(1): 4903.
- [17] 林武辉, 余锦萍, 余克服, 等. 北部湾涠洲岛海域沉积物中物质来源解析——来自元素、稳定同位素、放射性核素的证据 [J]. *沉积学报*, 2021, 39(3): 621–630.
Lin Wuhui, Yu Jinping, Yu Kefu, et al. Source identification in a ^{210}Pb -dated sediment core near Southwest Weizhou Island, Beibu Gulf: evidence from elements, stable isotopes, and radionuclides[J]. *Acta Sedimentologica Sinica*, 2021, 39(3): 621–630.
- [18] Gulin S B, Gulina L V, Sidorov I G, et al. ^{40}K in the Black Sea: a proxy to estimate biogenic sedimentation[J]. *Journal of Environmental Radioactivity*, 2014, 134: 21–26.
- [19] Arriola-Velázquez A C, Tejera A, Guerra J G, et al. ^{226}Ra , ^{228}Ra and ^{40}K as tracers of erosion and accumulation processes: A 3-year study on a beach with different sediment dynamics[J]. *CATENA*, 2021, 207: 105705.
- [20] Wang Jinlong, Zhang Weiguo, Baskaran M, et al. Fingerprinting sediment transport in river-dominated margins using combined mineral magnetic and radionuclide methods[J]. *Journal of Geophysical Research: Oceans*, 2018, 123(8): 5360–5374.
- [21] 林武辉, 冯禹, 余克服, 等. 北部湾沉积物中放射性核素的分布特征与控制因素 [J]. *海洋学报*, 2020, 42(2): 143–154.
Lin Wuhui, Feng Yu, Yu Kefu, et al. Characteristics of radionuclides in sediments collected from the Beibu Gulf and influence factors[J]. *Haiyang Xuebao*, 2020, 42(2): 143–154.
- [22] Dai Zhijun, Du Jinzhou, Chu Ao, et al. Sediment characteristics in the North Branch of the Yangtze Estuary based on radioisotope tracers[J]. *Environmental Earth Sciences*, 2011, 62(8): 1629–1634.
- [23] Du Jinqiu, Wang Zhen, Du Jinzhou, et al. Radionuclides in sediment as tracers for evolution of modern sedimentary processes in the Bohai Sea[J]. *Regional Studies in Marine Science*, 2021, 48: 102061.
- [24] Yang Weifeng, Chen Min, Zhang Xinxing, et al. Thorium isotopes (^{228}Th , ^{230}Th , ^{232}Th) and applications in reconstructing the Yangtze and Yellow River floods[J]. *International Journal of Sediment Research*, 2013, 28(4): 588–595.
- [25] Bezuidenhout J. The investigation of natural radionuclides as tracers for monitoring sediment processes[J]. *Journal of Applied Geophysics*, 2020, 181: 104135.
- [26] 林武辉, 莫敏婷, 宁秋云, 等. 广西防城港核电周边红树林沉积物中放射性核素是否存在富集现象?[J]. *海洋环境科学*, 2020, 39(5): 676–683.
Lin Wuhui, Mo Minting, Ning Qiuyun, et al. Do the enrichment of radionuclides occur in the mangrove systems nearby the Fangchenggang Nuclear Power Plant in Guangxi?[J]. *Marine Environmental Science*, 2020, 39(5): 676–683.
- [27] Lin Wuhui, Yu Kefu, Wang Yinghui, et al. Radioactive level of coral reefs in the South China Sea[J]. *Marine Pollution Bulletin*, 2019, 142: 43–53.
- [28] 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.
- [29] Wang Jinlong, Du Jinzhou, Bi Qianqian, et al. Natural radioactivity assessment of surface sediments in the Yangtze Estuary[J]. *Marine Pollution Bulletin*, 2017, 114(1): 602–608.
- [30] Wang Zuoyuan. Natural radiation environment in China[J]. *International Congress Series*, 2002, 1225: 39–46.
- [31] Gabolde G, Cholet H, Nguyen J P, et al. Well Logging Handbook[M]. Paris: Éditions Technip, 2008.
- [32] UNSCEAR. Sources and effects of ionizing radiation[C]. UNSCEAR 2000 Report, UNSCEAR: New York, 2000.
- [33] Adams J A S, Weaver C E. Thorium-to-uranium ratios as indicators of sedimentary processes: Example of concept of geochemical facies[J]. *AAPG Bulletin*, 1958, 42(2): 387–430.
- [34] 杜金秋, 王震, 林武辉, 等. 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 [J]. *地球科学*, 2021, 46(12): 4503–4516.
Du Jinqiu, Wang Zhen, Lin Wuhui, et al. Distribution of radionuclides in sediments of Bohai Sea and their response to changes in sedimentary environment[J]. *Earth Science*, 2021, 46(12): 4503–4516.
- [35] 李培泉, 刘志和. 黄河下游及河口区表层沉积物中 U, Ra, Th, ^{40}K 和 ^{137}Cs 的测定 [J]. *海洋科学*, 1990(5): 39–42.
Li Peiquan, Liu Zhihe. Determination of radioisotopes in surface sediment from lower reach and estuary of Huanghe River[J]. *Marine Sciences*, 1990(5): 39–42.
- [36] 左书华, 韩志远, 李为华, 等. 连云港田湾海域沉积物中放射性核素分布与沉积速率 [J]. *海洋环境科学*, 2021, 40(5): 745–751.
Zuo Shuhua, Han Zhiyuan, Li Weihua, et al. Radionuclide distribution in sediments and sedimentary rates in the Tianwan Sea area of Li-anyungang[J]. *Marine Environmental Science*, 2021, 40(5): 745–751.
- [37] 刘广山, 李冬梅, 易勇, 等. 胶州湾沉积物的放射性核素含量分布与沉积速率 [J]. *地球学报*, 2008, 29(6): 769–777.
Liu Guangshan, Li Dongmei, Yi Yong, et al. Radionuclide distribution in sediments and sedimentary rates in the Jiaozhou Bay[J]. *Acta Geoscientica Sinica*, 2008, 29(6): 769–777.
- [38] 陈锦芳, 刘广山, 黄奕普. 厦门潮间带表层沉积物天然放射系不平衡研究 [J]. *台湾海峡*, 2005, 24(3): 274–282.
Chen Jinfang, Liu Guangshan, Huang Yipu. Disequilibrium of natural decay series in sediments of intertidal mudflats of Xiamen[J]. *Journal of Oceanography in Taiwan Strait*, 2005, 24(3): 274–282.

- [39] 赵峰, 吴梅桂, 李冬梅, 等. 陆丰核电周边海域表层沉积物放射性核素比活度水平研究初探 [J]. 海洋环境科学, 2022, 41(1): 80–84.
Zhao Feng, Wu Meigui, Li Dongmei, et al. A preliminary study of radioactivity level of surface sediments in the coastal area of Lufeng nuclear power plant[J]. Marine Environmental Science, 2022, 41(1): 80–84.
- [40] 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.
- [41] 吴梅桂, 周鹏, 赵峰, 等. 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 [J]. 海洋环境科学, 2018, 37(1): 43–47.
Wu Meigui, Zhou Peng, Zhao Feng, et al. The concentration of γ radionuclides in surface marine sediments from Yangjiang nuclear power plant and its adjacent sea area, South China Sea[J]. Marine Environmental Science, 2018, 37(1): 43–47.
- [42] Liu Xinming, Lin Wuhui. Natural radioactivity in the beach sand and soil along the coastline of Guangxi Province, China[J]. *Marine Pollution Bulletin*, 2018, 135: 446–450.
- [43] 刘广山, 黄奕普, 陈敏, 等. 南海东北部表层沉积物天然放射性核素与 ^{137}Cs [J]. 海洋学报, 2001, 23(6): 76–84.
Liu Guangshan, Huang Yipu, Chen Min, et al. Specific activity and distribution of natural radionuclides and ^{137}Cs in surface sediments of the northeastern South China Sea[J]. Haiyang Xuebao, 2001, 23(6): 76–84.
- [44] 刘广山, 黄奕普, 陈敏, 等. 南沙海区表层沉积物放射性核素分布特征 [J]. 海洋科学, 2001, 25(8): 1–5.
Liu Guangshan, Huang Yipu, Chen Min, et al. Distribution features of radionuclides in surface sediments of Nansha Sea areas[J]. Marine Sciences, 2001, 25(8): 1–5.

Exploring and optimizing characterization of radionuclide fingerprint for tracking sediment source: Comparison of mangrove, seagrass, and coral reef ecosystems

Lin Wuhui^{1,5}, Du Yunfeng¹, Yu Kefu¹, Du Jinqiu², Mo Zhenni³, Li Yinghua³, He Xianwen⁴, Mo Minting¹

(1. School of Marine Sciences, Guangxi University/Guangxi Laboratory on the Study of Coral Reefs in the South China Sea, Nanning 530004, China; 2. National Marine Environmental Monitoring Center, Dalian 116023, China; 3. Guangxi Academy of Oceanography, Nanning 530022, China; 4. Radiation-Environment Management and Monitoring Station of Guangxi Zhuang Autonomous Region, Nanning 530022, China; 5. Polar and Marine Research Institute, Jimei University, Xiamen 361021, China)

Abstract: Sediment source is a key issue in sedimentology. Although sediment geochemistry is an important tool in sedimentology, the explorations and applications of radionuclides in sediment geochemistry are still limited. In this study, naturally occurring radionuclides (^{238}U , ^{226}Ra , ^{228}Ra , and ^{40}K) in sediments were simultaneously measured using a high-purity germanium γ -spectrometer in three typical ecosystems of mangrove, seagrass, and coral reefs. The distribution characteristics of radionuclides in sediments from the these ecosystems were discussed in one-dimensional view of activity level, two-dimensional view of radionuclide pairs and activity ratio, and three-dimensional view of ternary diagram of radionuclides to identify distinct sources of sediments. Ternary diagram of ^{238}U - ^{232}Th (^{228}Ra)- $^{40}\text{K}/10$ in sediments was applied in the China different seas for tracking distinct sediment sources. This study emphasized that the three-dimensional view of ternary diagram of ^{238}U - ^{232}Th (^{228}Ra)- $^{40}\text{K}/10$ comprehensively exhibited the information of activity level, composition, and spatial distribution area of radionuclides. In conclusion, ternary diagram of ^{238}U - ^{232}Th (^{228}Ra)- $^{40}\text{K}/10$ may be an optimized method for source identification in sediments and provide a supplement to the existing tools of geochemical proxies.

Key words: radionuclide; geochemical proxy; sediment source; mangrove; coral reefs; seagrass