

珊瑚礁区沉积物的极低放射性水平特征与成因

林武辉^{1,2}, 余克服^{1,2*}, 王英辉^{1,2}, 刘昕明³, 汪建君⁴, 宁秋云³, 李英花³

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. 国家海洋局海洋-大气化学与全球变化重点实验室, 厦门 361005

* 联系人, E-mail: kefuyu@scsio.ac.cn

2017-10-18 收稿, 2018-04-29 修回, 2018-05-02 接受, 2018-06-13 网络版发表

国家自然科学基金(91428203)、国家重大科学研究计划(2013CB956102)、广西“珊瑚礁资源与环境”八桂学者项目(2014BGXZGX03)、广西自然科学基金(2017GXNSFBA198096)和国家海洋局海洋-大气化学与全球变化重点实验室开放基金(GCMAC1606)资助

摘要 海洋沉积物作为放射性核素的归宿, 在全球不同海区均有沉积物放射性核素的研究报道, 然而珊瑚礁区却极少报道. 本研究选取南海的岸礁和环礁两种类型的珊瑚礁区, 采样站位跨越~1500 km(14°), 系统开展南海9个不同珊瑚礁区沉积物中放射性核素研究. 对比不同海区沉积物的放射性水平, 本研究发现珊瑚礁区沉积物的总放射性水平(等当量镭指数)只有其他海区沉积物和全球土壤总放射性水平的1%~10%, 环礁沉积物等当量镭指数平均值(3.97 Bq/kg)不到全球土壤平均值(108.70 Bq/kg)的5%, 珊瑚礁区沉积物具有极低的总放射性水平特征. 珊瑚礁区的沉积物同时具有低⁴⁰K、低²²⁶Ra和²²⁸Ra、低²²⁶Ra/²³⁸U活度比值的三大特征, 该特征源于珊瑚礁区的生物矿化-破碎风化而形成的生源沉积物, 显著不同于其他海区的岩石土壤风化-搬运而形成的陆源沉积物. 这些特征可以作为新的地球化学指标, 对传统元素(Al和Ti)、稀土元素、矿物组成等手段进行有益的补充, 指示珊瑚礁区水体悬浮物/沉积物中不同物质来源的贡献.

关键词 沉积物, 珊瑚礁, 南海, 放射性核素, 地球化学指标

放射性核素是一类危险物质, 对环境安全 and 人类健康构成威胁^[1,2]. 同时, 放射性核素也被作为指示剂示踪环境过程^[3~7]. 海洋沉积物作为放射性核素的归宿, 在全球不同海区都有报道^[8].

珊瑚礁生态系统是一种典型的海洋生态系统, 拥有极高的生产力和生物多样性, 是许多生物的栖息场所, 被誉为海洋中的“热带雨林”, 为人类提供重要的渔业资源^[9]. 近年来人类在珊瑚礁区进行潜水旅游休闲活动也在不断增长. 通过食物链传递引入的内照射和潜水活动引起的外照射途径, 放射性核素可以对人类构成一定的电离辐射威胁. 然而, 相对于其他海区, 国际上对珊瑚礁区放射性核素的报道较

为少见.

目前珊瑚礁区放射性核素主要基于珊瑚礁年代学和核污染两个方面而开展相关研究. 从珊瑚礁年代学的角度出发, 珊瑚礁区的珊瑚骨骼中放射性核素¹⁴C和²³⁰Th/²³⁸U具有一定的报道^[10,11]. 从核污染的角度出发, 珊瑚礁区的珊瑚骨骼中放射性核素⁹⁰Sr, ²³⁹⁺²⁴⁰Pu, ¹²⁹I, ²³⁶U也有报道^[12~14]. 但是, 国际上对珊瑚礁区沉积物中放射性核素研究极为匮乏, 特别是放射性核素⁴⁰K, ²²⁶Ra和²²⁸Ra. 这些都进一步限制珊瑚礁区沉积物中多种放射性核素(⁴⁰K, ²²⁶Ra, ²²⁸Ra, ²³⁸U)分布特征及其调控机制的认识, 比如: 本文所发现的Ra在礁区沉积物中的生物调控特征, 显著不

引用格式: 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. 科学通报, 2018, 63: 2173–2183

Lin W H, Yu K F, Wang Y H, et al. Extremely low radioactivity in marine sediment of coral reefs and its mechanism (in Chinese). Chin Sci Bull, 2018, 63: 2173–2183, doi: 10.1360/N972017-01101

同于礁区外沉积物和土壤的物理衰变过程。

沉积物是珊瑚礁系统的重要组成部分。珊瑚礁区沉积物中放射性核素的测量,将有助于了解放射性核素在珊瑚礁系统中的生物地球化学过程和归趋,有利于示踪珊瑚礁系统中的相关过程,并为今后海上漂浮核电站建设所引起的岛礁环境放射性评估提供一定的数据支撑。

南海珊瑚礁所形成的岛屿是我国重要的国土资源,珊瑚岛屿在我国南海具有重要的战略意义。本研究选取南海的岸礁和环礁两种类型的珊瑚礁区,采样站位跨越~1500 km(14个纬度),全面测量南海9个不同的珊瑚礁区海洋沉积物中多种放射性核素(^{40}K , ^{226}Ra , ^{228}Ra , ^{238}U)活度水平,对比不同海区的沉积物放射性核素活度,探索珊瑚礁区沉积物放射性核素的分布特征,结合传统元素(Al和Ti)、稀土元素、矿物组成等方面的证据揭示礁区沉积物中放射性核素

分布的调控机制。基于珊瑚礁区沉积物放射性核素的特征,本研究进一步提出利用低 ^{226}Ra 和 ^{228}Ra 、低 ^{40}K 、低 $^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$ 的活度比值的三大指标,指示珊瑚礁区水体悬浮物和沉积物的不同物质来源(陆源和生源)贡献。

1 材料与方法

1.1 样品采集与前处理

本研究在2015年5月~2017年7月期间,采用水肺潜水法,在水下原位采集南海珊瑚礁区的2 cm以浅的沉积物(图1),9个不同的采样站位依次包含:广东大亚湾(LA-2m)、广西涠洲岛(W5-1a)、海南三亚(LHT-D1)、西沙群岛(BJ01-03)、黄岩岛(HY2-2)、南沙群岛(SJ, XE, XY)、泰国普吉岛(T1)。采集后的沉积物放置于密封袋内,并冷冻带回实验室。根据珊瑚礁

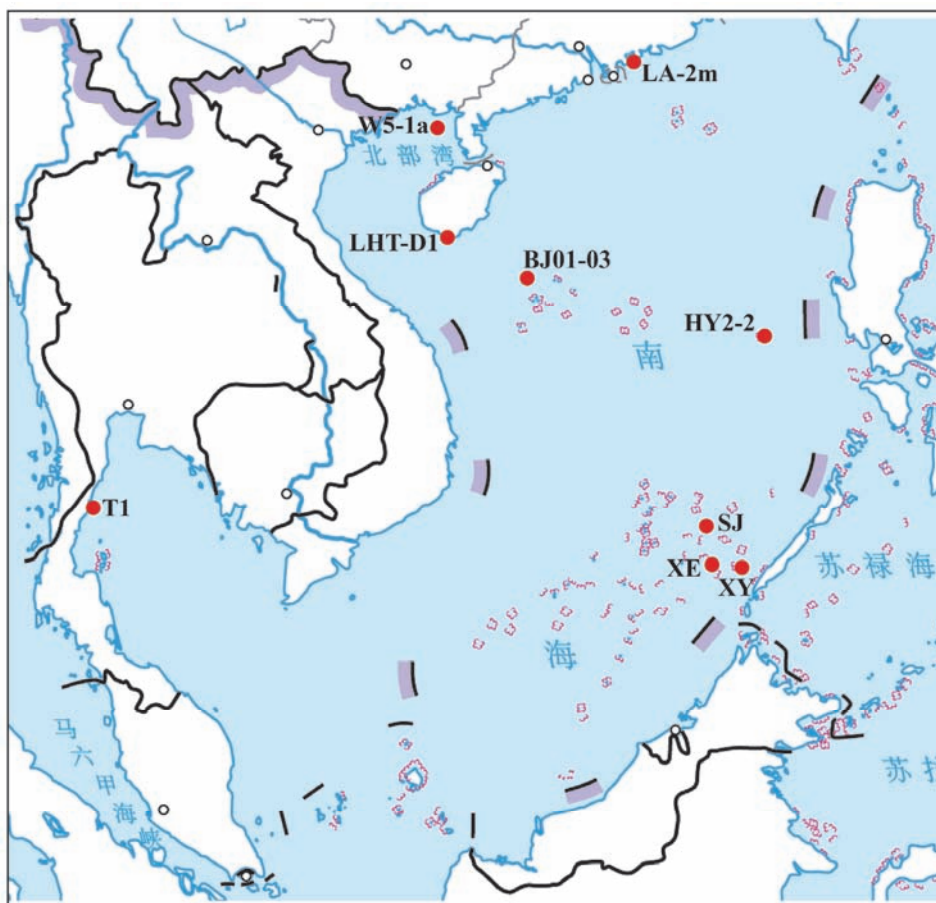


图1 (网络版彩色)南海9个不同珊瑚礁区沉积物的采样站位

Figure 1 (Color online) Station map of marine sediments collected from coral reefs in the South China Sea

离岸距离的分布特点, 本研究的采样站位可以进一步分为岸礁(LA-2m, W5-1a, LHT-D1, T1)和环礁(BJ01-03, HY2-2, SJ, XE, XY). 采样站位的具体经纬度详见表S1.

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 d, 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 , ^{226}Ra , ^{228}Ra , ^{40}K).

1.2 γ 谱测量

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%, 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. 沉积物标准来自国际原子能机构的爱尔兰海沉积物标准(IAEA385)和中国计量科学研究院(GBW08304a), 沉积物标准中的核素包含: ^{238}U , ^{232}Th , ^{228}Ra , ^{226}Ra , ^{137}Cs , ^{40}K , 沉积物标准源的信息参见文献[15,16]. 实验室定期开展本底和标准源的测量工作, 绘制质量控制图. 利用以上标准源参加国际原子能机构(IAEA)和国家海洋环境监测中心举办的实验室间放射性核素测量比对工作, 并顺利通过测验^[16]. 标准源信息和测量谱图见表S2和图S2.

^{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 全能峰进行计算, ^{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. 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:

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

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

公式中的 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; 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 代表仪器的上机测量时间. 特别指出, 珊瑚礁区的Ra和K含量很低, 为满足一定的不

确定度要求, 本研究的样品测量时间一般为2天, 显著长于土壤和其他海区沉积物的测量时间(0.5~1天). 由于铀系和钍系存在衰变链平衡, 且具有很长的半衰期(几亿年), 原生核素 ^{40}K 的半衰期也很长(几亿年), 采样时间至测量时间(1~2年)过程中的衰变校正可以忽略不计.

2 结果与讨论

2.1 珊瑚礁区沉积物的放射性核素

南海9个珊瑚礁区沉积物中的放射性核素活度列于表1. 本研究对珊瑚礁区沉积物 ^{238}U 的定量测量结果为22.10~38.18 Bq/kg, 与珊瑚中报道的元素U(2~4 $\mu\text{g/g}$)换算后的 ^{238}U 活度范围(24.9~49.8 Bq/kg)较为一致^[17,18]. 部分研究测量的南沙海域沉降物中元素U的含量为2.66 $\mu\text{g/g}$ ^[19], 换算成 ^{238}U 活度为33.1 Bq/kg, 也与本研究结果较为一致.

本研究关于珊瑚礁区沉积物 ^{40}K 的定量测量结果为2.15~153.95 Bq/kg, 其中岸礁的 ^{40}K 结果为4.93~153.95 Bq/kg, 环礁的 ^{40}K 结果为2.15~10.82 Bq/kg. 部分研究报道南海西沙环礁海域的沉积物中元素K的含量为16~415 $\mu\text{g/g}$, 换算后的 ^{40}K 活度为0.5~12 Bq/kg^[20]; 南海南沙环礁海域的元素K含量为200 $\mu\text{g/g}$, 换算后的 ^{40}K 活度为6.2 Bq/kg^[21]; 二者都与本研究在南海西沙和南沙环礁的 ^{40}K 结果(2.15~10.82 Bq/kg)一致.

Ra拥有较短的半衰期(最长的半衰期为1600 a), 元素浓度很低(本研究沉积物Ra活度为1~10 Bq/kg, 换算后的浓度大约为 10^{-8} ~ 10^{-7} $\mu\text{g/g}$, 远低于元素U和元素K). 基于元素测量(质谱法)的方法比较困难, 一定程度上造成Ra的数据较少. 一般Ra主要通过放射性仪器(γ 谱仪、 α 谱仪等)进行测量. 本研究进一步定量报道较为少见的沉积物中 ^{226}Ra 和 ^{228}Ra , 其中珊瑚礁海域沉积物中 ^{226}Ra 活度为1.64~9.39 Bq/kg, ^{228}Ra 活度为0.51~14.41 Bq/kg. 该结果显著低于南海海域珊瑚礁区外的沉积物中 ^{226}Ra 活度(22.7 Bq/kg)和 ^{228}Ra 活度(44.9 Bq/kg)^[22].

表1的沉积物中放射性核素平均活度顺序依次为: ^{238}U (28.96 Bq/kg) > ^{40}K (24.36 Bq/kg) > ^{228}Ra (5.08 Bq/kg) > ^{226}Ra (3.34 Bq/kg). 岸礁沉积物中放射性核素的整体活度都高于环礁的放射性核素, 特别是 ^{226}Ra , ^{228}Ra , ^{40}K .

表1 南海珊瑚礁区沉积物中的放射性核素活度(Bq/kg)

Table 1 Radioactivity in marine sediments collected from coral reefs in the South China Sea (Bq/kg)

类别	海区	站位	^{238}U	^{226}Ra	^{228}Ra	^{40}K
岸礁	广东	LA-2m	26.29±3.22	9.39±0.89	14.41±1.55	153.95±9.65
	广西	W5-1a	33.29±4.09	2.96±0.32	3.87±0.49	12.8±1.10
	海南	LHT-D1	32.17±4.11	3.02±0.40	4.42±0.67	23.09±2.13
	泰国	T1	29.27±2.61	4.99±0.44	5.52±0.97	4.93±0.37
岸礁平均活度			30.25±3.14	5.09±3.02	7.05±4.95	48.69±70.56
环礁	西沙	BJ01-03	22.10±2.74	1.47±0.19	0.63±0.12	3.36±0.54
	中沙	HY2-2	38.18±4.83	1.66±0.15	0.51±0.26	2.15±0.71
	南沙	XY	25.86±1.96	1.64±0.22	1.17±0.55	2.54±0.16
	南沙	SJ	29.86±2.65	2.67±0.39	1.16±0.54	5.65±0.43
	南沙	XE	23.64±1.67	2.31±0.22	1.66±0.58	10.82±0.46
环礁平均活度			27.93±6.43	1.95±0.52	1.15±0.73	4.90±3.57
整体平均活度			28.96±5.09	3.34±2.51	5.08±4.91	24.36±49.05

a) 不确定度采用1倍标准偏差, 置信度为63.7%

2.2 不同海区沉积物的放射性核素比较

海洋沉积物的放射性核素与其所处的环境密切相关. 表2列出我国黄海、东海、南海、马来西亚海域的沉积物天然放射性核素的分布情况, 同时给出北冰洋楚克奇海和南大洋的沉积物以及世界土壤中的天然放射性核素活度.

南海珊瑚礁区远离核事故或者核爆地点, 这些海域的人工放射性核素主要来源于20世纪50~60年代的大气核爆落下灰, 并且人工放射性活度通常较低. 常见的3种最主要的人工放射性核素为 ^{137}Cs , ^{90}Sr , $^{239+240}\text{Pu}$. 南海珊瑚礁区沉积物中 ^{137}Cs 活度低于高纯锗 γ 谱仪的方法检测限(Minimum Detection Activity < 0.2 Bq/kg)^[31], ^{90}Sr 活度大约为1 Bq/kg^[32], $^{239+240}\text{Pu}$ 活度大约为 10^{-2} Bq/kg^[33]. 因此未经历过核事故和核试验的南海珊瑚礁区沉积物中最主要的放射性核素是铀系天然放射性核素(^{238}U , ^{226}Ra , ^{228}Ra)和 ^{40}K .

不同海域沉积物中拥有多种不同活度的放射性核素. 本研究采用国际上常用的等当量镭指数(radium equivalent activity, Ra_{eq})计算和对比沉积物中多种放射性核素(^{226}Ra , ^{232}Th , ^{40}K)的整体放射性水平(公式(3))^[34]. 表2结果比较表明, 珊瑚礁区沉积物中 ^{238}U 活度与其他区域一致, ^{226}Ra , ^{228}Ra , ^{40}K 都比其他区域结果小1~2个数量级, 珊瑚礁区沉积物中整体放射性水平(等当量镭指数)是其他海区沉积物和全球土壤的整体放射性水平(等当量镭指数)的1%~10%. 本研究对南海环礁沉积物的等当量镭指数的平均值(3.97

Bq/kg)不到全球土壤平均值(108.70 Bq/kg)的5%, 具有极低的总放射性水平. 从等当量镭指数角度看, 岸礁沉积物的整体放射性水平(18.92 Bq/kg)高于环礁的整体放射性水平(3.97 Bq/kg). 岸礁和环礁两种珊瑚礁类型的沉积物总放射性水平也都低于远离人类活动的南大洋(76.92 Bq/kg)和北冰洋(70.62 Bq/kg).

$$Ra_{eq} = A_{Ra} + 1.43 \times A_{Th} + 0.077 \times A_K, \quad (3)$$

式中 A_{Ra} , A_{Th} , A_K 分别代表沉积物中 ^{226}Ra , ^{232}Th , ^{40}K 的活度, Ra_{eq} 单位为Bq/kg. 国际上通常使用 ^{228}Ra 活度保守性的替代 ^{232}Th 活度^[24,35~37].

2.3 珊瑚礁区沉积物放射性核素特征及机制

本研究与其他海区的结果对比发现(表2)^[27,31~37], 珊瑚礁区的沉积物放射性核素不同于土壤和珊瑚礁区外的沉积物中放射性核素, 具有显著的低 ^{226}Ra 和 ^{228}Ra 、低 ^{40}K 的特征.

土壤和珊瑚礁区外的海洋沉积物中 ^{226}Ra 和 ^{228}Ra 通常来自 ^{238}U 和 ^{232}Th 持续衰变. 然而, 本研究的珊瑚礁区沉积物中 ^{226}Ra 和 ^{228}Ra 主要并非来自于 ^{238}U 和 ^{232}Th 持续衰变而存在, 而是珊瑚虫生长过程中, 从海水直接吸收 ^{226}Ra 和 ^{228}Ra 而结合进入珊瑚骨骼, 进一步由于骨骼破碎而进入沉积物.

结合沉积物 ^{14}C 法获得的珊瑚礁区沉积速率($\sim 0.1 \text{ cm/a}$)^[38], 本研究的2 cm以浅表层沉积物年龄一般为10年左右的时间尺度(考虑表层扰动混合作用). $^{238}\text{U}/^{234}\text{U}$ 衰变成 ^{226}Ra 过程中, 需要经过中间核素

表 2 不同海区沉积物放射性水平比较(Bq/kg)

Table 2 Comparison of radioactivity in marine sediments collected from coral reefs and other sea regions (Bq/kg)

区域	^{238}U	^{226}Ra	^{228}Ra	^{40}K	Ra_{eq}	文献
环礁沉积物	27.93	1.95	1.15	4.90	3.97	本研究
岸礁沉积物	30.25	5.09	7.05	48.69	18.92	本研究
莱州湾	54.4	28.6	57.9	542	153.13	[23]
长江口	32.8	24.3	40.9	628	131.14	[24]
香港海域	44.1	32.5	48.1	625	149.41	[25]
马来西亚	ND	27	37	515	119.57	[26]
北冰洋	44.4	17.6	15	410	70.62	[27,28]
南大洋	ND	14	16	520	76.92	[29]
全球土壤平均值	35	35	30	400	108.70	[30]

^{230}Th , 该核素几乎不结合进入珊瑚^[17,39], 且该核素具有较长的半衰期(7.54×10^4 a), 2 cm以浅的表层沉积物在短时间尺度上(10 a左右)的衰变, 产生的 ^{226}Ra 的活度将极少. 根据公式(4), 计算获得的由于 ^{238}U 衰变产生的 ^{226}Ra 活度大约为 10^{-3} Bq/kg, 该结果比本研究 ^{226}Ra 活度(1.64~9.39 Bq/kg)低3个数量级左右.

$$A_{^{226}\text{Ra}} = A_{^{230}\text{Th}} = \frac{\lambda_{^{230}\text{Th}} \times A_{^{238}\text{U}}}{\lambda_{^{230}\text{Th}} - \lambda_{^{238}\text{U}}} \left(e^{-\lambda_{^{238}\text{U}} t} - e^{-\lambda_{^{230}\text{Th}} t} \right), \quad (4)$$

式中 t 代表 ^{14}C 法获得的沉积物年龄.

^{232}Th 核素很难进入珊瑚骨骼, 珊瑚骨骼中 ^{232}Th 的活度大约为 10^{-3} Bq/kg^[17,39], 10年后达到衰变平衡, ^{228}Ra 活度也应为 10^{-3} Bq/kg, 也远小于本研究 ^{228}Ra 的结果(0.51~14.41 Bq/kg).

因此, 珊瑚礁区沉积物中铀系(^{238}U)和钍系(^{232}Th)的物理衰变过程产生的 ^{226}Ra 和 ^{228}Ra 活度极为有限. 珊瑚骨骼中的 ^{226}Ra 和 ^{228}Ra 主要来自于珊瑚虫选择性的主动吸收海水中 ^{226}Ra 和 ^{228}Ra , 随着钙化过程的进行, 海水中 ^{226}Ra 和 ^{228}Ra 结合进入珊瑚骨骼后, 经过破碎风化过程而最终进入沉积物中.

大洋海水的 ^{226}Ra (1~3 Bq/m³)和 ^{228}Ra (1~10 Bq/m³)的活度较为稳定^[40], 珊瑚虫对海水 ^{226}Ra 和 ^{228}Ra 的生物富集因子(CF)都为~1000 L/kg^[41,42], 根据公式(5)和(6)可以获得珊瑚骨骼中 ^{226}Ra 和 ^{228}Ra 理论活度分别为: 1~3 Bq/kg和1~10 Bq/kg, 该结果与本研究的测量结果接近(表1).

$$^{226}\text{Ra}_{\text{c}} = ^{226}\text{Ra}_{\text{s}} \times \text{CF}_{^{226}\text{Ra}}, \quad (5)$$

$$^{228}\text{Ra}_{\text{c}} = ^{228}\text{Ra}_{\text{s}} \times \text{CF}_{^{228}\text{Ra}}, \quad (6)$$

式中 $^{226}\text{Ra}_{\text{c}}$ 和 $^{228}\text{Ra}_{\text{c}}$ 代表珊瑚骨骼中 ^{226}Ra 和 ^{228}Ra 活度, $^{226}\text{Ra}_{\text{s}}$ 和 $^{228}\text{Ra}_{\text{s}}$ 代表海水中 ^{226}Ra 和 ^{228}Ra 活度, $\text{CF}_{^{226}\text{Ra}}$ 和 $\text{CF}_{^{228}\text{Ra}}$ 代表珊瑚骨骼对 ^{226}Ra 和 ^{228}Ra 的生物富集因子.

因此, 珊瑚礁区沉积物中低 ^{226}Ra 和 ^{228}Ra 分布特征的原因并非是物理衰变过程, 而是珊瑚虫生长过程中忠实记录海水中 ^{226}Ra 和 ^{228}Ra 的生物过程. 谈根洪^[43]利用能量分辨率较低的NaI- γ 谱仪在南海西沙群岛的珊瑚砂测量结果与本研究的HPGe- γ 谱仪的测量结果一致. 因此, 源于珊瑚骨骼破碎风化的珊瑚礁区沉积物具有典型的生源特征, 以碳酸钙为主, 具有低 ^{226}Ra 和 ^{228}Ra .

岩石和岩石风化而成的土壤和海洋沉积物通常具有典型的陆源特征, 拥有较高的 ^{40}K 活度(400 Bq/kg)^[30]. 然而, 珊瑚礁海域的沉积物具有典型的低 ^{40}K 特征, 特别是南海环礁海域(4.90 Bq/kg).

远离大陆的南海大洋环礁(南沙、中沙、西沙), 珊瑚礁区沉积物主要来自于生源组分(碳酸盐为主), 陆源组分(硅酸盐)的贡献极为有限. 部分研究发现南沙珊瑚礁区测量海水中沉降颗粒物中的碳酸盐为主的生源物质比例大于80%^[21,44], 礁外输入的陆源物质一般小于10%, 其中硅酸盐组分几乎未检出^[19].

稀土元素是陆源物质的良好指示剂. 根据戈尔德施密特的分类, 稀土元素和元素K也同属于亲石元素(Lithophile)^[45]. 南海大洋的南沙环礁沉降物中稀土元素浓度(ΣREE)为1~2 $\mu\text{g/g}$ ^[46], 与其他珊瑚礁海域的稀土元素(ΣREE)研究结果接近(3.65 $\mu\text{g/g}$)^[47], 但是低于海南三亚岸礁的沉积物中稀土元素(ΣREE)的浓度(80 $\mu\text{g/g}$)^[48], 也远低于南海珊瑚礁区外的海洋沉积物中的稀土元素(ΣREE)浓度(166 $\mu\text{g/g}$)^[49].

这些基于稀土元素和矿物组分而获得的低陆源组分的现象也佐证本研究在南海大洋环礁的低 ^{40}K 特征.

表2对比也发现岸礁沉积物中的 ^{40}K 活度(48.69 Bq/kg)高于环礁的值(4.90 Bq/kg). 赵美霞等人^[50]利用X射线衍射分析在海南三亚岸礁海域的海水沉降颗粒物中发现石英、钾长石、伊利石的陆源组分, 该陆源物质的比例为~45.9%, 略高于礁区生源物质的比例(44.5%). 钾长石和伊利石都含有较高的K元素, 这些陆源物质将导致岸礁沉积物中较高的 ^{40}K 活度. 因此本研究在海南三亚岸礁区(48.69 Bq/kg)也测到高于南海大洋环礁(4.90 Bq/kg)的 ^{40}K 活度, 但低于其他珊瑚礁区外沉积物 ^{40}K 活度(400 Bq/kg). 该 ^{40}K 现象也与稀土元素的分布特征(礁外沉积物>岸礁沉积物>环礁沉积物)一致.

其他海区的沉积物主要来源于地壳岩石的风化, 通过河流、大气、冰川等途径, 搬运至海洋沉积物中, 特别是河口区、陆架区的海洋沉积物. 山东莱州湾、上海长江口、香港、马来西亚、北冰洋、南大洋地区的海洋沉积物放射性核素的水平与全球土壤平均值较为一致(表2), 也间接说明除珊瑚礁区以外的海洋沉积物主要来源途径是从陆地向海洋的土壤搬运. 因此, 珊瑚礁区外的其他海洋沉积物, 具有典型的陆源特征, 以硅酸盐为主, 具有与土壤接近的放射性核素水平. 珊瑚礁区沉积物经过生物活动的改造, 低 ^{226}Ra 和 ^{228}Ra 、低 ^{40}K 特征的相应机制如图2.

综上, 本研究的环境(西沙、中沙、南沙)沉积物样品具有典型的低 ^{226}Ra 和 ^{228}Ra 、低 ^{40}K 特征(表2); 我国近岸陆架区的海洋沉积物具有与全球土壤平均值一致的放射性核素分布特征; 岸礁沉积物的等当量镭指数(18.92 Bq/kg)介于环礁(3.97 Bq/kg)和全球土壤平均值(108.7 Bq/kg)之间, 本研究的岸礁离陆地

距离较近(图1), 其沉积物可能同时受到生源物质和陆源物质的双重影响. 对于岸礁沉积物, 放射性核素可能可以作为一种新手段, 识别定量不同来源(生源和陆源)的沉积物组分, 从而对传统的Al和Ti^[20]、稀土元素^[48]、矿物成分^[50]等指示手段进行有益的补充.

2.4 珊瑚礁区沉积物的 $^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$ 指纹

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^[9]. 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^[51]. 近岸珊瑚礁特别容易受到河流和人类活动的影响^[52], 大洋珊瑚礁的岛礁建设过程, 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^[53]. 同时, 珊瑚礁区物质向外输运也影响周边海域的沉积记录^[54]. 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的不同物质来源贡献, 示踪人类活动的影响以及珊瑚礁与周边海域的物质交换, 具有重要的意义.

$^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$ 的活度比值被视为是一种海洋沉积物来源的指示剂^[24,55]. 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^[56]、山东莱州湾^[23]、上海长江口^[24]、广东大亚湾^[15]、香港^[25]、广海湾^[57]、海南岛东部海域^[55], 都有独特的 $^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$ 的活度比值报道. 但是, 至今为止珊瑚礁区沉积物的 $^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$ 的活度比值未见报道.

本研究对比岸礁、环礁、其他海域沉积物中 $^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$ 的活度比值(图3). 珊瑚礁区外的海洋沉积物中 $^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$ 的活度比值主要分布在0.5~1之间. 环礁沉积物中 $^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$ 的活度比值均<0.1. 岸礁沉积物

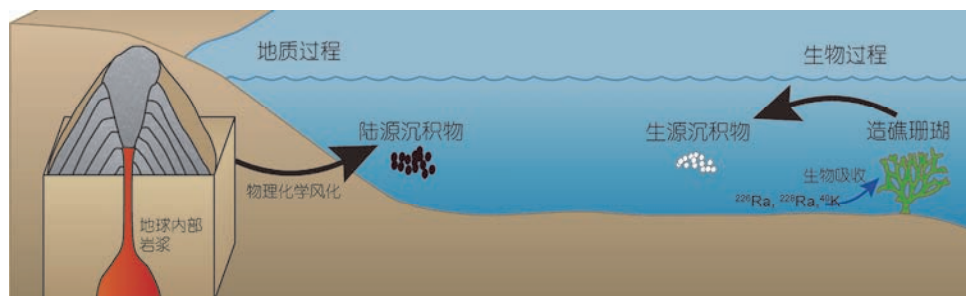


图2 (网络版彩色)珊瑚礁区(右)与其他海区(左)的沉积物放射性核素分布特征的机制

Figure 2 (Color online) Illustration of the distinct mechanisms of radioactivity in marine sediments collected from coral reefs and other sea regions

$^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$ 的活度比值在0.08~0.36之间, 广东大亚湾沉积物 $^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$ 的活度比值为0.36, 同时其 ^{40}K 活度也偏高(153.95 Bq/kg), 说明该岸礁受到陆源物质的影响。

造礁珊瑚吸收海水的 ^{226}Ra (1~3 Bq/m³)和 ^{238}U (40 Bq/m³)进入骨骼^[40], 大洋海水的 $^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$ 比值小于0.1, 同时造礁珊瑚对海水 ^{226}Ra 和 ^{238}U 的富集因子(CF)都为~1000 L/kg^[41,42], 因此根据公式(7)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(7)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^[58], 进而导致珊瑚礁区沉积物拥有独特的 $^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$ 端元(<0.1)。

$$\frac{{}^{226}\text{Ra}_c}{{}^{238}\text{U}_c} = \frac{{}^{226}\text{Ra}_s}{{}^{238}\text{U}_s} \times \frac{\text{CF}_{{}^{226}\text{Ra}}}{\text{CF}_{{}^{238}\text{U}}}, \quad (7)$$

式中 $^{238}\text{U}_c$ 和 $^{238}\text{U}_s$ 代表珊瑚骨骼和海水 ^{238}U 活度, $\text{CF}_{{}^{238}\text{U}}$ 代表珊瑚骨骼对 ^{238}U 的生物富集因子。

综上, 通过不同海区的沉积物的 $^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$ 的活度比值对比表明, 珊瑚礁区具有极低的 $^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$ 活度比值(<0.1)特征, 该比值结合 ^{40}K 的活度, 也可能作为新的

指示剂, 指示珊瑚礁区沉积物的不同端元贡献。

3 结论

本研究全面测量南海岸礁和环礁两种类型, 9个不同珊瑚礁区沉积物中放射性核素分布, 核素平均活度顺序依次为: ^{238}U (28.96 Bq/kg)> ^{40}K (24.36 Bq/kg)> ^{228}Ra (5.08 Bq/kg)> ^{226}Ra (3.34 Bq/kg)。由于陆源物质的影响, 岸礁沉积物的放射性水平高于环礁的结果。不同的海区沉积物中放射性核素对比表明, 珊瑚礁区的等当量镭指数是其他海区沉积物和全球土壤平均值的1%~10%, 本研究的南海环礁沉积物中的等当量镭指数平均值不到全球土壤平均值的5%, 珊瑚礁区沉积物具有低的总放射性水平特征。

珊瑚礁区的沉积物同时具有低 ^{226}Ra 和 ^{228}Ra 、低 ^{40}K 、低 $^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$ 的活度比值三大特征, 这些特征可以用于指示珊瑚礁区沉积物的不同端元贡献, 是传统元素(Al和Ti)、稀土元素、矿物组成等手段进行有益的补充。珊瑚礁区沉积物的这些特征源于珊瑚礁区的生物矿化-破碎风化而形成的生源沉积物, 显著不同于其他海区的岩石土壤风化-搬运而形成的陆源沉积物(图2)。

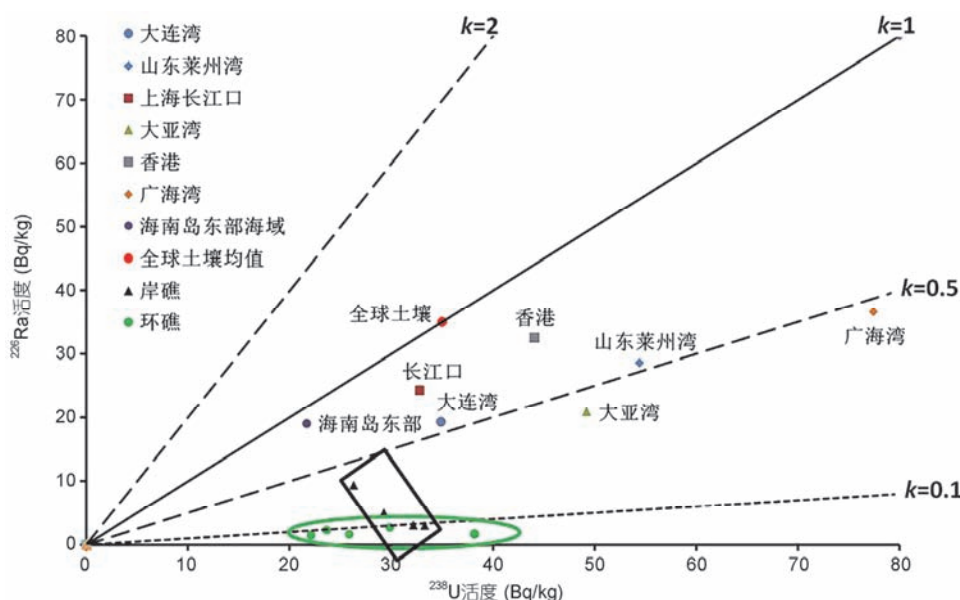


图3 (网络版彩色)海洋沉积物中 ^{226}Ra 和 ^{238}U 分布。椭圆形代表环礁的沉积物, 黑色长方形代表岸礁的沉积物。 k 值代表 $^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$ 的活度比值。本图原始数据详见表S1

Figure 3 (Color online) Relationship between ^{226}Ra and ^{238}U in marine sediments. The ellipse indicated marine sediments located in the atoll reefs. Marine sediments collected from the fringing reefs was represented by the black rectangle

致谢 感谢国家海洋局第三海洋研究所顾海峰研究员、郑新庆副研究员在采样方面的帮助,感谢何建华副研究员、余雯副研究员、门武副研究员、邓芳芳助理研究员、于涛研究员在样品测量方面的支持与帮助.感谢广西大学黄学勇、覃祯俊、莫敏婷等南海科学考察队员在样品采集和前处理方面的帮助.本文图1的审图号为GS(2018)2220.

参考文献

- 1 Johansen M P, Ruedig E, Tagami K, et al. Radiological dose rates to marine fish from the Fukushima Daiichi accident: The first three years across the North Pacific. *Environ Sci Technol*, 2015, 49: 1277–1285
- 2 Turekian K K. Humans and isotopes: Impacts and tracers of human interactions with the environment. In: Baskaran M, ed. *Handbook of Environmental Isotope Geochemistry*. Dordrecht: Springer, 2012. 33–37
- 3 Lin W H. Marine biological carbon pumps and their tracing using multi-isotope in the high latitude marginal seas (in Chinese). Doctor Dissertation. Beijing: Tsinghua University, 2015 [林武辉. 高纬度边缘海海洋生物泵的多同位素示踪研究. 博士学位论文. 北京: 清华大学, 2015]
- 4 Lin W H, Chen L Q, Yu W, et al. Burial fluxes of biogenic materials in the Bering Sea and the Chukchi Sea (in Chinese). *Chin J Polar Res*, 2016, 28: 194–202 [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. 极地研究, 2016, 28: 194–202]
- 5 Lin W, Chen L, Zeng S, et al. Residual β activity of particulate ^{234}Th as a novel proxy for tracking sediment resuspension in the ocean. *Sci Rep*, 2016, 6: 27069
- 6 Bi Q Q, Du J Z. Radio-analysis and its application in the marine environment (in Chinese). *J Nucl Radiochem*, 2015, 37: 193–206 [毕倩倩, 杜金洲. 海洋环境中放射性分析及其应用. 核化学与放射化学, 2015, 37: 193–206]
- 7 Huang Y P, Chen M. Progress in the isotope tracer technique for marine science (in Chinese). *J Xiamen Univ*, 2001, 40: 512–523 [黄奕普, 陈敏. 海洋同位素示踪技术研究进展. 厦门大学学报, 2001, 40: 512–523]
- 8 International Atomic Energy Agency. Worldwide marine radioactivity studies (WOMARS): Radionuclide levels in oceans and seas. Final Report of a Coordinated Research Project (IAEA-TECDOC-1429). Vienna: International Atomic Energy Agency, 2005
- 9 Moberg F, Folke C. Ecological goods and services of coral reef ecosystems. *Ecol Econ*, 1999, 29: 215–233
- 10 Yu K, Hua Q, Zhao J X, et al. Holocene marine ^{14}C reservoir age variability: Evidence from ^{230}Th -dated corals in the South China Sea. *Paleoceanogr*, 2010, 25: 375–387
- 11 Yu K F. Coral reefs in the South China Sea: Their response to and records on past environmental changes. *Sci China Earth Sci*, 2012, 55: 1217–1229
- 12 Bautista A T, Matsuzaki H, Siringan F P. Historical record of nuclear activities from ^{129}I in corals from the northern hemisphere (Philippines). *J Environ Radioact*, 2016, 164: 174–181
- 13 Froehlich M B, Chan W Y, Tims S G, et al. Time-resolved record of ^{236}U and $^{239,240}\text{Pu}$ isotopes from a coral growing during the nuclear testing program at Enewetak Atoll (Marshall Islands). *J Environ Radioact*, 2016, 165: 197–205
- 14 Toggweiler J, Trumbore S. Bomb-test ^{90}Sr in Pacific and Indian Ocean surface water as recorded by banded corals. *Earth Planet Sci Lett*, 1985, 74: 306–314
- 15 Zhou P, Li D, Li H, 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 Environ Radioact*, 2015, 145: 102–112
- 16 Harms A, Khanh P M, Blinova O, et al. IAEA proficiency tests for determination of radionuclides in sea water. *Appl Radiat Isot*, 2017, 126: 252–255
- 17 Clark T R, Roff G, Zhao J X, et al. U-Th dating reveals regional-scale decline of branching *Acropora* corals on the Great Barrier Reef over the past century. *Proc Natl Acad Sci USA*, 2017, 114: 10350–10355
- 18 Wang L, Ma Z, Sun Z, et al. U concentration and $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ of seawater from the Okinawa Trough and Indian Ocean using MC-ICPMS with SEM protocols. *Mar Chem*, 2017, 196: 71–80
- 19 Song J M, Li P C. Vertical transferring process of rare elements in coral reef lagoons of Nansha Islands, South China Sea (in Chinese). *Sci China Ser D-Earth Sci*, 1998, 41: 42–48 [宋金明, 李鹏程. 南沙珊瑚礁生态系中稀有元素的垂直通量. 中国科学D辑: 地球科学, 1997, 41: 354–359]
- 20 Liu Y, Sun L G, Luo Y H, et al. Records of terrigenous dust in lacustrine sediments from Dongdao Island, South China Sea (in Chinese). *Mar Geol Quat Geol*, 2013, 33: 1–8 [刘毅, 孙立广, 罗宇涵, 等. 南海湖泊沉积物中的陆源粉尘记录. 海洋地质与第四纪地质, 2013, 33: 1–8]

- 21 Song J M, Li P C. Biogeochemical process of major elements in sinking particulate of Nansha coral reef lagoons, the South China Sea (in Chinese). *Acta Oceanol Sin*, 1998, 20: 52–59 [宋金明, 李鹏程. 南沙群岛珊瑚礁潟湖垂直沉降颗粒物中主要元素的生物地球化学过程研究. *海洋学报*, 1998, 20: 52–59]
- 22 Liu G S, Huang Y P, Chen M, et al. Specific activity and distribution of natural radionuclides and ^{137}Cs in surface sediments of the northeastern South China Sea (in Chinese). *Acta Oceanol Sin*, 2001, 23: 76–84 [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 . *海洋学报*, 2001, 23: 76–84]
- 23 Wang Q, Song J, Li X, et al. Environmental radionuclides in a coastal wetland of the Southern Laizhou Bay, China. *Mar Pollut Bull*, 2015, 97: 506–511
- 24 Wang J, Du J, Bi Q. Natural radioactivity assessment of surface sediments in the Yangtze Estuary. *Mar Pollut Bull*, 2017, 114: 602–608
- 25 Yu K N, Guan Z J, Stokes M J, et al. Natural and artificial radionuclides in seabed sediments of Hong Kong. *Nucl Geophys*, 1994, 8: 45–48
- 26 Yii M W, Zaharudin A, Abdul-Kadir I. Distribution of naturally occurring radionuclides activity concentration in East Malaysian marine sediment. *Appl Radiat Isot*, 2009, 67: 630–635
- 27 Yang W, Chen M, Liu G, et al. Distribution of radionuclides at surface sediments in Chukchi Shelf (in Chinese). *Mar Environ Sci*, 2005, 24: 32–35 [杨伟锋, 陈敏, 刘广山, 等. 楚科奇海陆架区表层沉积物放射性核素的分布. *海洋环境科学*, 2005, 24: 32–35]
- 28 Alexander C R, Windom H L. Quantification of Natural Backgrounds and Anthropogenic Contaminants in a Pristine Arctic Environment: the Anadyr River Basin, Chukotka Peninsula, Russia. *Mar Pollut Bull*, 1999, 38: 276–284
- 29 Godoy J M, Schuch L A, Nordemann D J R, et al. ^{137}Cs , ^{226}Ra , ^{210}Pb and ^{40}K concentrations in Antarctic soil, sediment and selected moss and lichen samples. *J Environ Radioact*, 1998, 41: 33–45
- 30 UNSCEAR. Sources, Effects of Ionizing Radiation. In: *Unsear*, ed. Report to the General Assembly with annex B. New York: United Nations, 2000
- 31 Xu L, Liu X, Sun L, et al. Distribution of radionuclides in the guano sediments of Xisha Islands, South China Sea and its implication. *J Environ Radioact*, 2010, 101: 362–368
- 32 Lin W, Yu K, Wang Y. Can reef coral be a novel bioindicator for nuclear power plant? In: *The 4th Conference on Earth System Science*. 2016, 112
- 33 Lindahl P, Asami R, Iryu Y, et al. Sources of plutonium to the tropical Northwest Pacific Ocean (1943–1999) identified using a natural coral archive. *Geochim Cosmochim Acta*, 2011, 75: 1346–1356
- 34 Beretka J, Matthew P J. Natural radioactivity of Australian building materials, industrial wastes and by-products. *Health Phys*, 1985, 48: 87–95
- 35 Ravisankar R, Chandramohan J, Chandrasekaran A, et al. Assessments of radioactivity concentration of natural radionuclides and radiological hazard indices in sediment samples from the East coast of Tamilnadu, India with statistical approach. *Mar Pollut Bull*, 2015, 97: 419–430
- 36 Kritsanuwat R, Sahoo S K, Fukushi M, et al. Radiological risk assessment of ^{238}U , ^{232}Th and ^{40}K in Thailand coastal sediments at selected areas proposed for nuclear power plant sites. *J Radioanal Nucl Chem*, 2015, 303: 325–334
- 37 Eltaher A, Madkour H A. Distribution and environmental impacts of metals and natural radionuclides in marine sediments in-front of different wadies mouth along the Egyptian Red Sea Coast. *Appl Radiat Isot*, 2011, 69: 550–558
- 38 Zhao S P, Sun L G, Liu X D, et al. Using Sr/Ca and Mg/Ca ratios as source indicators of ornithogenic lacustrine sediments on coral island (in Chinese). *Quat Sci*, 2007, 27: 149–156 [赵三平, 孙立广, 刘晓东, 等. Sr/Ca, Mg/Ca: 珊瑚岛鸟粪沉积的物源指示计. *第四纪研究*, 2007, 27: 149–156]
- 39 Cobb K M, Charles C D, Cheng H, et al. U/Th-dating living and young fossil corals from the central tropical Pacific. *Earth Planet Sci Lett*, 2003, 210: 91–103
- 40 Lin W H, Chen L Q, He J H, et al. Review on monitoring marine radioactivity since the Fukushima Nuclear Accident (in Chinese). *China Environ Sci*, 2015, 35: 269–276 [林武辉, 陈立奇, 何建华, 等. 日本福岛核事故后的海洋放射性监测进展. *中国环境科学*, 2015, 35: 269–276]
- 41 Baskaran M. Dating of biogenic and inorganic carbonates using ^{210}Pb - ^{226}Ra disequilibrium method: A review. In: Baskaran M, ed. *Handbook of Environmental Isotope Geochemistry: Vol I*. Berlin: Springer, 2012. 789–809
- 42 Saha N, Webb G E, Zhao J X. Coral skeletal geochemistry as a monitor of inshore water quality. *Sci Total Environ*, 2016, 566: 652–684
- 43 Tan G. Environmental natural γ radioactive level of some Xisha Islands in the South China Sea (in Chinese). *Radiat Prot*, 1991, 11: 261–265 [谈根洪. 我国南海西沙若干岛屿的环境天然 γ 放射性水平. *辐射防护*, 1991, 11: 261–265]
- 44 Song J M. Paths of element vertical transport in the Nansha coral reef ecosystem, South China Sea (in Chinese). *Oceanol Limnol Sin*, 1999, 30: 1–5 [宋金明. 南沙珊瑚礁生态系中元素的垂直转移途径. *海洋与湖沼*, 1999, 30: 1–5]

- 45 White W M. Geochemistry. New York: John Wiley & Sons, 2013
- 46 Song J M. Vertical transformation processes of rare earth elements in the coral reef ecosystem of Nansha Islands waters, South China Sea (in Chinese). *Stud Mar Sin*, 1998, 40: 125–130 [宋金明. 南沙群岛珊瑚礁生态系统中稀土元素的垂直转移过程研究. 海洋科学集刊, 1998, 40: 125–130]
- 47 Al-Mikhlaifi A S. Rare earth elements in modern coral sands: An environmental proxy. *Environ Geol*, 2008, 54: 1145–1153
- 48 Wang Y, Shen J W, Wang X, et al. REE distribution pattern in the Xiaodonghai Fringing Reef-flat sediments off Sanya, Hainan Island and its environmental implications (in Chinese). *Mar Geol Quat Geol*, 2011, 31: 59–66 [王月, 沈建伟, 王旭, 等. 海南岛三亚小东海岸礁坪沉积物的稀土元素分布特征. 海洋地质与第四纪地质, 2011, 31: 59–66]
- 49 Liu J G, Chen Z, Yan W, et al. Geochemical characteristics of rare earth elements in the fine-grained fraction of surface sediment from South China Sea (in Chinese). *Earth Sci*, 2010, 35: 563–571 [刘建国, 陈忠, 颜文, 等. 南海表层沉积物中细粒组分的稀土元素地球化学特征. 地球科学, 2010, 35: 563–571]
- 50 Zhao M, Yu K, Shi Q, et al. Source, distribution and influencing factors of sediments on Luhuitou fringing reef, Northern South China Sea (in Chinese). *Chin Sci Bull*, 2013, 58: 1583–1589 [赵美霞, 余克服, 施祺, 等. 三亚鹿回头珊瑚礁区沉降物的来源、分布及影响因素. 科学通报, 2013, 58: 1583–1589]
- 51 Hughes T P, Barnes M L, Bellwood D R, et al. Coral reefs in the Anthropocene. *Nature*, 2017, 546: 82–90
- 52 McCulloch M, Fallon S, Wyndham T, et al. Coral record of increased sediment flux to the inner Great Barrier Reef since European settlement. *Nature*, 2003, 421: 727–730
- 53 Jones R, Bessellbrowne P, Fisher R, et al. Assessing the impacts of sediments from dredging on corals. *Mar Pollut Bull*, 2016, 102: 9–29
- 54 Tian Z L, Dai Y, Long A M, et al. Geochemical characteristics of rare earth elements in sediments of Nansha Islands sea area, South China Sea (in Chinese). *J Trop Oceanogr*, 2005, 24: 8–14 [田正隆, 戴英, 龙爱民, 等. 南沙群岛海域沉积物稀土元素地球化学研究. 热带海洋学报, 2005, 24: 8–14]
- 55 Huang D, Du J, Deng B, et al. Distribution patterns of particle-reactive radionuclides in sediments off eastern Hainan Island, China: Implications for source and transport pathways. *Con Shelf Res*, 2013, 57: 10–17
- 56 Du J Q, Guan D M, Yao Z W, et al. Distribution and environmental significances of radionuclides in sediments of Dalian coastal area (in Chinese). *China Environ Sci*, 2017, 37: 1889–1895 [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. 中国环境科学, 2017, 37: 1889–1895]
- 57 Zhao F, Wu M G, Zhou P, et al. Radionuclides in surface sediments from the Huangmaohai Estuary-Guanghai Bay and its adjacent sea area of the South China Sea (in Chinese). *J Trop Oceanogr*, 2015, 34: 77–82 [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. 热带海洋学报, 2015, 34: 77–82]
- 58 Hart D E, Kench P S. Carbonate production of an emergent reef platform, Warraber Island, Torres Strait, Australia. *Coral Reefs*, 2007, 26: 53–68

补充材料

表 S1 不同海区沉积物站位经纬度及其 ^{238}U 和 ^{226}Ra 的活度和 $^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$ 活度比值

表 S2 IAEA-385 和 GBW08304a 标准源中核素活度(Bq/kg)

图 S1 爱尔兰海沉积物放射性核素标准源(IAEA-385)和高纯锗伽玛谱仪测量谱图

本文以上补充材料见网络版 csb.scichina.com. 补充材料为作者提供的原始数据, 作者对其学术质量和内容负责.

Summary for “珊瑚礁区沉积物的极低放射性水平特征与成因”

Extremely low radioactivity in marine sediment of coral reefs and its mechanism

Wuhui Lin^{1,2}, Kefu Yu^{1,2*}, Yinghui Wang^{1,2}, Xinming Liu³, Jianjun Wang⁴,
Qiuyun Ning³ & Yinghua Li³

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 Laboratory of Global Change and Marine-Atmospheric Chemistry, State Oceanic Administration, Xiamen 361005, China

* Corresponding author, E-mail: kefuyu@scsio.ac.cn

Radionuclides are hazardous materials which impose ionizing radiation on humans and are valuable proxies for tracking environmental processes. Radionuclides are widely reported in global marine sediments, which are recognized as the final destination of radionuclides. As one of the typical marine ecosystems, coral reefs are “hotspots” of high biodiversity providing rich biological resources and significant tourist sites for humans. Seafood consumption and SCUBA diving would induce internal and external radiation on humans, respectively. However, radioactivity is rarely studied in coral reef ecosystems.

Here, we exhibited radionuclides in marine sediments collected from the fringing and atoll reefs with a latitudinal coverage of 14° (~1500 km) in the South China Sea (SCS). Naturally occurring radionuclides (⁴⁰K, ²²⁶Ra, ²²⁸Ra, and, ²³⁸U) were quantified by Standard River Sediment (GBW08304a) and were validated by Irish Sea Sediment (IAEA-385) using High Purity Germanium (HPGe) γ spectrometry (Canberra BE6530). The energy resolution of HPGe γ -spectrometry (~2 keV) is much better than that of NaI γ -spectrometry (~50 keV). Overall, radioactivity in marine sediments was in the order of ²³⁸U(28.96 Bq/kg) > ⁴⁰K(24.36 Bq/kg) > ²²⁸Ra(5.08 Bq/kg) > ²²⁶Ra(3.34 Bq/kg). Radioactivity was higher in marine sediments collected from the fringing reefs than the atoll reefs due to the influence of terrigenous minerals in the fringing reefs. The occurrence of terrigenous minerals was confirmed by the mineral components (K-feldspar, illite, and quartz) using X-ray diffraction analysis. Additionally, the rare earth elements (REE) are generally used to trace terrigenous inputs. In the present study, the ranking pattern of the ⁴⁰K activity was consistent with the concentration of REE in marine sediments (sediments outside the coral reef regions > sediments from fringing reefs > sediments from atoll reefs), giving supporting evidence of the influence of terrigenous minerals.

A comparison of radionuclides in marine sediments from coral reefs and other sea regions indicated that the radioactive level (Radium equivalent activity, Ra_{eq}) of marine sediment in coral reefs was only 1%–10% of that of other marine sediments and global soil. The value of Ra_{eq} in marine sediments collected from coral reefs (3–42 Bq/kg) was also lower than that in marine sediments collected from the pristine environment of the Arctic Ocean (70.62 Bq/kg) and Southern Ocean (76.92 Bq/kg). Particularly, the mean value of Ra_{eq} in marine sediments of the atoll reefs in the SCS (3.97 Bq/kg) was less than 5% of that in global average soil (108.70 Bq/kg). Therefore, radioactivity in marine sediment was extremely low in coral reefs relative to other sea regions.

Marine sediments in coral reefs had three unique characteristics of low ⁴⁰K activity, low ²²⁶Ra and ²²⁸Ra activity, and low ²²⁶Ra/²³⁸U ratio. It was worth noting that the abnormally low ²²⁶Ra/²³⁸U activity ratio (<0.1) of marine sediments was observed in the atoll reefs and was attributed to the biological process of active uptake of ²²⁶Ra and ²³⁸U from seawater by coral polyps rather than the ingrowth process of the ²³⁸U-²³⁰Th-²²⁶Ra decay chain. The mechanism of radioactive characteristics in marine sediments was attributed to the fragmentation and weathering of biominerals in coral reefs in contrast to the weathering and subsequent transport of soil and rocks in other marine sediments outside the coral reef region. These three characteristics have potential to be novel geochemical proxies for tracking particle dynamics in coral reefs in addition to other traditional approaches including the Al, Ti, REE, and mineral components.

sediment, coral reefs, South China Sea, radionuclide, geochemical proxy

doi: 10.1360/N972017-01101