

# 东海和冲绳沉积物中自生铀蓄积过程 及控制机理

王中良<sup>1,2\*</sup>, 刘丛强<sup>1</sup>, 朱兆洲<sup>1</sup>, 山田正俊<sup>2</sup>

(1. 中国科学院地球化学研究所 环境地球化学国家重点实验室, 贵州 贵阳 550002; 2. Nakaminato Laboratory for Marine Radioecology, National Institute of Radiological Sciences, Isozaki 3609, Hitachinaka, Ibaraki 311-1202, Japan)

**摘要:** 采用同位素稀释 ICP-MS 测定法, 对中国东海陆架及日本冲绳海槽的 6 个沉积物芯中 U 和 Th 的同位素地球化学行为进行了研究, 以了解氧化还原敏感元素 U 在近海次氧化性沉积物中的蓄积行为, 并评价其在全球海洋铀平衡中的意义。东海沉积物芯中,  $^{238}\text{U}$  浓度及  $^{238}\text{U}/^{232}\text{Th}$  比值随深度变化不明显。但是在冲绳海槽沉积物芯中,  $^{238}\text{U}$  浓度及  $^{238}\text{U}/^{232}\text{Th}$  比值在沉积芯表层氧化带显示较低值, 然后在次氧化层随深度增加而增加。 $^{230}\text{Th}$  和  $^{232}\text{Th}$  浓度在所有沉积物芯中基本不随深度变化。这些结果说明, 冲绳沉积物中有“自生铀”的蓄积过程发生, 蓄积速率约为  $(47 \pm 5) \sim (90 \pm 8) \text{ ng}/(\text{cm}^2 \cdot \text{a})$ , 与文献报道的世界其他海域次氧化性沉积区大致相当。进一步证明了 U 在近海次氧化性沉积区的蓄积对于全球海洋铀平衡有重要意义。“自生铀”的主要蓄积机制是海水 U(VI) 向沉积物迁移, 在还原条件下被还原为惰性的 U(IV) 并被吸附在沉积物固体相上。

**关键词:** 自生铀; 氧化还原; 沉积物; 蓄积速率; 东海; 冲绳海槽

中图分类号: P597; P595 文献标识码: A 文章编号: 0379-1726(2006)03-0240-09

## Precipitation of authigenic uranium and its controlling mechanism in sediments from the East China Sea and Okinawa Trough

WANG Zhong-liang<sup>1,2\*</sup>, LIU Cong-qiang<sup>1</sup>, ZHU Zhao-zhou<sup>1</sup> and Masatoshi YAMADA<sup>2</sup>

1. State Key Laboratory of Environmental Geochemistry, Institute of Geochemistry, Chinese Academy of Sciences, Guiyang 550002, China;  
2. Nakaminato Laboratory for Marine Radioecology, National Institute of Radiological Sciences, Isozaki 3609, Hitachinaka, Ibaraki 311-1202, Japan

**Abstract:** Concentrations of U and Th isotopes in the East China Sea and Okinawa Trough sediment cores were determined by isotope dilution inductively coupled plasma mass spectrometry (ICP-MS) to investigate the behavior of redox sensitive uranium in suboxic hemipelagic sediments and its significance in oceanic uranium balance.  $^{238}\text{U}$  concentrations and  $^{238}\text{U}/^{232}\text{Th}$  activity ratios in the East China Sea sediments showed no remarkable variation with depth. However,  $^{238}\text{U}$  and  $^{238}\text{U}/^{232}\text{Th}$  ratios in the Okinawa Trough sediments were low in the surface oxidizing layer but increased where the post-oxic condition was encountered. The distribution profiles of  $^{230}\text{Th}$  and  $^{232}\text{Th}$  concentrations were relatively constant with depth in both the Okinawa Trough and East China Sea sediment cores. These results suggested that there has been postdepositional precipitation of authigenic uranium within the suboxic Okinawa Trough sediment column. The postdepositional precipitation rates of authigenic uranium were estimated to be  $(47 \pm 5) \sim (90 \pm 8) \text{ ng}/(\text{cm}^2 \cdot \text{y})$ . These rates were comparable to those previously reported for several anoxic sediments and this removal of uranium in the oceanic budget increases the importance of the suboxic sediment sink. A mechanism controlling precipitation of uranium may be the downward diffusion of uranium U(VI), reduction to U(IV) and finally precipitation to the solid phase.

收稿日期(Received): 2005-06-21; 改回日期(Revised): 2005-09-19; 接受日期(Accepted): 2005-11-01

基金项目: 日本文部省科技振兴特别协助基金(MASFLEX, GCMAPS)

作者简介: 王中良(1970-), 男, 研究员, 环境地球化学专业。

\* 通讯作者(Corresponding author): WANG Zhong-liang, E-mail: wangzhongliang@vip.skleg.cn, Tel: +86-851-5895910

**Key words:** authigenic uranium; redox; sediment; accumulation rate; East China Sea; Okinawa Trough

## 0 引言

海水中, 铀主要以易溶的 U(VI) 的碳酸盐络合方式  $[UO_2(CO_3)_3]^{4-}$  存在<sup>[1]</sup>, 行为保守。但在合适的还原条件下, 就会发生 U(VI) 向 U(IV) 的还原反应<sup>[2-3]</sup>, 从而使铀在还原性沉积物中超常富集<sup>[4-23]</sup>。其可能的富集机制之一是, 上覆水体中溶解的 U(VI) 被还原并以不易溶的 U(IV) 方式沉降在沉积物固体相上<sup>[5, 8, 10-12, 14, 16-17, 20, 24-25]</sup>。另一种可能的机制是, 在富有机质的沉积物中, 铀被有机物质吸附或络合而富集在沉积物中<sup>[4, 6-7, 9]</sup>。Klinkhammer *et al.*<sup>[16]</sup> 认为富有机质的近海沉积物对铀的吸附过程可能也是一个受有机质分解过程驱动的无机反应。Zheng *et al.*<sup>[21]</sup> 认为海洋沉积物中铀的还原反应是 U(VI) 向 U(IV) 的无机还原过程和生物活化酶还原反应的综合结果。在全球海区, 次氧化性近海沉积区仅占 7% ~ 10%<sup>[26]</sup> 或  $6\% \pm 2\%$ <sup>[27]</sup>, 但是它们所蓄积的超常富集的铀却不容忽视<sup>[16-18, 26-27]</sup>。所以 Legeleux *et al.*<sup>[17]</sup> 和 Dunk *et al.*<sup>[27]</sup> 认为要较好地理解全球海洋铀平衡, 就需要详细地研究近海沉积物中铀的行为。中国东海是世界上最大的边缘海之一, 每年有大量陆源物质由长江和黄河带入<sup>[28-30]</sup>。长江每年输入 1.7 Mmol 的铀进入东海, 占全球河流铀输入量的四分之一, 黄河每年也输入 1.0 Mmol 的铀进入黄海、渤海及东海, 占全球河流铀输入量的六分之一<sup>[27, 31]</sup>。但是目前对东海及其附近海域沉积物中铀的研究还十分有限。本研究的基本目的是通过测定东海及冲绳海槽沉积物中  $^{234}U$ 、 $^{238}U$ 、 $^{230}Th$  和  $^{232}Th$  等的含量及其同位素比值, 探讨该区沉积物中铀的地球化学行为及其控制机理, 评价其在全球大洋铀平衡中的作用。

## 1 采样与分析方法

6 根沉积物芯分别采自长江口 (PN-12)、东海外陆架 (PN-8)、陆架边缘 (PN-5) 和冲绳海槽 (G-2、PN-3 和 SST-1), 使用沉降式复合管沉积物采样器采集。具体采样位置和区域地理概况见图 1 和表 1。由日本 R/V Kaiyo 调查船在 3 个航次内完成。沉积物芯采集后, 在船甲板上小心地切割成 1 ~ 2 cm 的片断, 沉积物样品性状描述见表 1。为了尽量减小采样

时样管壁摩擦可能带来的微弱扰动, 切片时进行修边。对于沉积物孔隙水中  $Mn^{2+}$ 、 $NO_3^-$ 、 $\Sigma CO_2$  和  $SiO_3^-$  的研究见 Kato *et al.*<sup>[32]</sup>。对沉积物蓄积速率的  $^{210}Pb$  测定见 Oguri *et al.*<sup>[33]</sup>。采用同位素稀释 ICP-MS 法对沉积物芯中  $^{238}U$ 、 $^{234}U$ 、 $^{232}Th$  和  $^{230}Th$  等同位素的浓度进行了测定。U 和 Th 的树脂柱分离方法由 Anderson *et al.*<sup>[34]</sup> 的方法改进而来。简述如下: 约 0.1 ~ 1.0 g 经干燥并称重的沉积物样品加入到 100 mL 聚四氟乙烯烧杯中, 分别加入 10 ng  $^{233}U$  (AEA Technology 92/233/23) 和 0.2 ng  $^{229}Th$  (AEA Technology 90/229/12) 同位素稀释剂以及经纯化的 10 mL 浓  $HNO_3$ 、5 mL 浓  $HF$  和 5 mL 浓  $HClO_4$ 。经高温消解后, 用 Bio-Rad AG 1-X8 阴离子交换树脂柱分离 U 和 Th, 最后用四极杆型 ICP-MS (HP-4500, Yokogawa Analytical Systems, Tokyo, Japan) 进行 U-Th 同位素测定。由于 U 和 Th 的分离非常彻底而且 ICP-MS 测定过程中氢化物生成率很低, 测定过程中  $^{232}ThH^+$  对  $^{233}U$  的质量数干扰可以忽略不计。检测限分别为:  $^{230}Th$   $2.5 \times 10^{-2}$  mBq/mL、 $^{232}Th$   $5 \times 10^{-7}$  mBq/mL、 $^{234}U$   $7 \times 10^{-3}$  mBq/mL 和  $^{238}U$   $2 \times 10^{-6}$  mBq/mL, 相对标准偏差 (RSD) 介于 2% ~ 5% 之间。测定结果见表 1。

## 2 结果

### 2.1 $^{238}U$ 、 $^{232}Th$ 和 $^{230}Th$ 的浓度

沉积物芯中  $^{238}U$  浓度随深度的变化趋势在东海和冲绳明显不同 (图 2)。东海沉积物中,  $^{238}U$  浓度随深度变化不大, 平均为 17.9 ~ 19.1 mBq/g, 与北太平洋深海沉积物<sup>[11, 16]</sup>、长岛海峡沉积物<sup>[35, 36]</sup> 及印度西海岸滨海沉积物<sup>[37]</sup> 的平均  $^{238}U$  浓度相当。冲绳海槽 3 个沉积物芯中  $^{238}U$  浓度的深度变化趋势大致相同, 首先在上部氧化层显示浓度较低但变化相对稳定的趋势, 然后在氧化层以下浓度随深度增加而增加。SST-1、PN-3 和 G-2 采样点沉积物氧化层深度变化范围分别为 0 ~ 12 cm、0 ~ 20 cm 和 0 ~ 3 cm。SST-1 点的  $^{238}U$  浓度在 20 cm 深度以下又变得相对稳定, 平均浓度约是上部氧化层的 1.5 倍。 $^{238}U$  在 SST-1 点的这一垂直变化趋势与赤道大西洋<sup>[38]</sup>、北太平洋<sup>[16]</sup>、大西洋东北海域<sup>[17, 19]</sup> 沉积物剖面上的变化趋势非常相似。在 PN-3 和 G-2 点下部沉积物中,

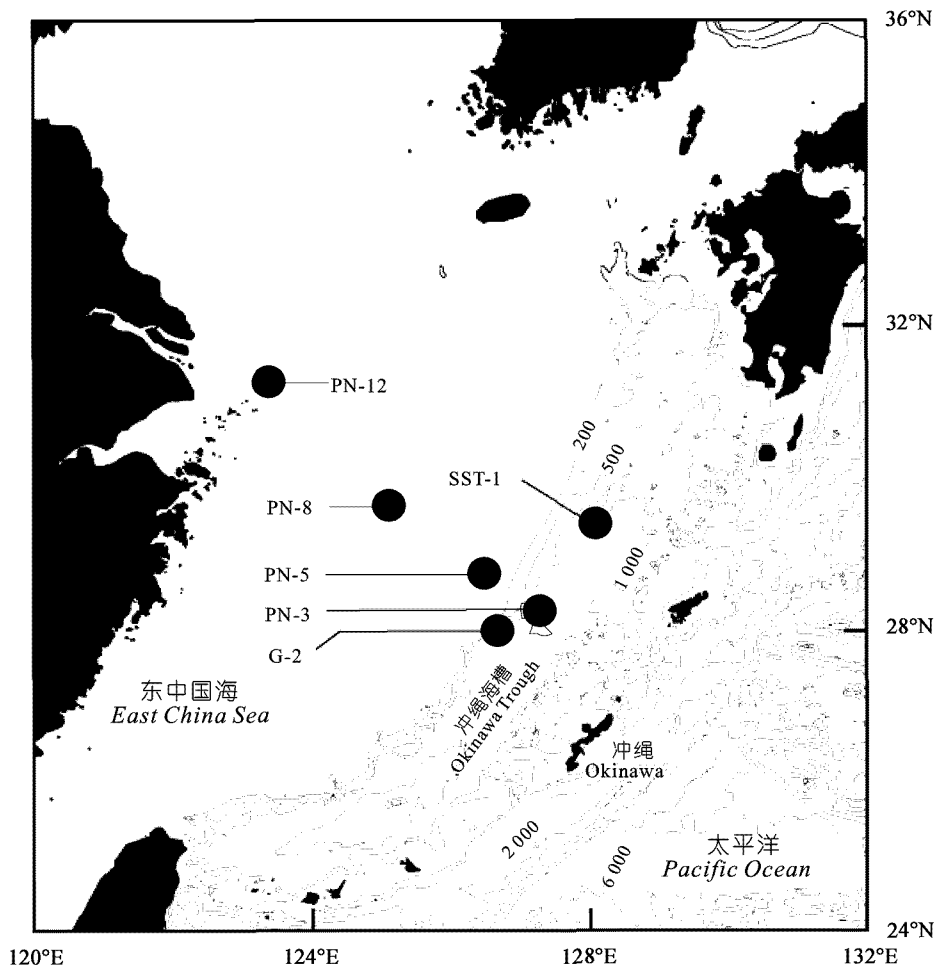


图1 采样位置图

Fig. 1 Map showing the sampling locations  
水深等深线单位为米。The isolines are isobath in m.

没有发现  $^{238}\text{U}$  的这种变化趋势, 根据 3 个沉积物芯中  $^{239} + ^{240}\text{Pu}$  浓度变化趋势可以断定这是由于在 PN-3 和 G-2 点所采集的沉积物芯较短所致<sup>[39]</sup>。

除了 G-2 点外, 东海及冲绳沉积物芯中  $^{232}\text{Th}$  和  $^{230}\text{Th}$  浓度基本上不随深度变化而变化(图 2), 但冲绳沉积物平均  $^{230}\text{Th}$  浓度相对较高, 大约是东海沉积物的 2 倍。平均  $^{232}\text{Th}$  浓度(33.9 ~ 38.1 mBq/g)也比东海(26.0 ~ 33.0 mBq/g)略高。除 PN-12 沉积物芯中显示了微弱的  $^{232}\text{Th}$  随深度增加趋势外, 其他站点的  $^{232}\text{Th}$  浓度基本处于一个大致相同的范围内, 而且没有显示在上部氧化层和下部次氧化层及还原层之间的明显差别。由于海洋沉积物中  $^{232}\text{Th}$  主要来源于陆源碎屑物质, 所以东海及冲绳沉积物中  $^{232}\text{Th}$  浓度随深度的变化趋势说明它们的主要碎屑物质来源大体上是一致的。从前人的研究来看, 认为东海陆架及冲绳海槽西侧物质主要来自中国大陆的结论也得到多数研究者的认可<sup>[40, 41]</sup>。

从横向空间分布趋势来说, 冲绳海槽沉积物氧

化层平均  $^{238}\text{U}$  浓度(17.6 ~ 22.5 mBq/g)比东海沉积物芯整个剖面上的平均浓度要稍微大些。 $^{232}\text{Th}$  的浓度也显示了微弱的自东海陆架向冲绳海槽的增加趋势。但是  $^{238}\text{U}/^{232}\text{Th}$  的比值自东海陆架至冲绳海槽是基本不变的。这说明  $^{238}\text{U}$  和  $^{232}\text{Th}$  的浓度自陆架向海槽的微弱增大主要反映沉积物的“粒度效应”, 而不是来源不同。“粒度效应”是指同一来源的颗粒物中, 较粗颗粒中微量元素的浓度相对较低的现象。从表 1 的沉积物性状描述中也可以证实自东海陆架至冲绳海槽, 沉积物粒度显示了自砂到细粒粘土的粗细变化。这是东海水体混合过程中, 陆源颗粒物在向深海迁移时, 水体颗粒物逐步发生沉降分异的结果。

## 2.2 $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ 、 $^{238}\text{U}/^{232}\text{Th}$ 和 $^{230}\text{Th}/^{232}\text{Th}$ 活度比

东海及冲绳沉积物芯中  $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$  和  $^{238}\text{U}/^{232}\text{Th}$  活度比随深度的变化趋势见图 3。 $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$  在各个剖面上基本不随深度变化而变化, 平均值大于 1.0,

表 1 中国东海及日本冲绳海槽沉积物芯中 U 和 Th 同位素的浓度及其比值

Table 1 Concentrations of U and Th isotopes and their activity ratios of sediment cores from the East China Sea and Okinawa Trough

深度 (cm)	$^{238}\text{U}$ (mBq/g)	$^{232}\text{Th}$ (mBq/g)	$^{230}\text{Th}$ (mBq/g)	$^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ 活度比	$^{238}\text{U}/^{232}\text{Th}$ 活度比	$^{230}\text{Th}/^{232}\text{Th}$ 活度比	性状描述
PN-12							
0~2	13.78 ± 1.18	26.29 ± 1.21	13.64 ± 0.82	0.98 ± 0.07	0.52	0.52	
2~4	14.95 ± 0.97	26.60 ± 0.91	15.98 ± 0.59	1.01 ± 0.08	0.56	0.60	
4~6	14.49 ± 1.08	31.42 ± 2.19	17.84 ± 1.47	1.23 ± 0.06	0.46	0.57	
6~8	16.85 ± 0.41	33.97 ± 1.33	25.04 ± 0.57	1.08 ± 0.04	0.50	0.74	站点位置
8~10	16.16 ± 0.80	26.27 ± 2.03	15.74 ± 1.51	1.17 ± 0.08	0.62	0.60	31°13.130'N
10~12	20.42 ± 0.79	28.06 ± 1.18	17.85 ± 0.63	1.02 ± 0.07	0.73	0.64	123°03.659'E
12~14	22.45 ± 0.59	28.74 ± 1.14	17.85 ± 0.52	1.12 ± 0.03	0.78	0.62	水深 50 m
14~16	21.93 ± 1.27	33.57 ± 1.20	18.75 ± 0.39	1.21 ± 0.07	0.65	0.56	沉积物芯长 22 cm
16~18	24.71 ± 1.12	36.76 ± 2.60	20.70 ± 1.39	1.01 ± 0.05	0.67	0.56	浅黄褐色细砂
18~20	22.24 ± 1.91	36.67 ± 2.98	21.60 ± 1.39	1.15 ± 0.06	0.61	0.59	
20~22	21.59 ± 1.06	33.03 ± 2.98	22.42 ± 1.41	1.18 ± 0.07	0.65	0.68	
PN-8							
0~2	15.37 ± 0.95	33.20 ± 2.76	20.50 ± 1.10	1.03 ± 0.03	0.46	0.62	
2~4	15.03 ± 0.73	30.58 ± 1.61	16.64 ± 1.20	1.08 ± 0.07	0.49	0.54	
4~6	16.54 ± 0.75	32.18 ± 1.54	18.17 ± 0.75	1.10 ± 0.07	0.51	0.56	站点位置
6~8	17.54 ± 0.64	35.50 ± 2.01	22.72 ± 1.17	1.13 ± 0.02	0.49	0.64	29°34.721'N
8~10	18.07 ± 0.78	34.48 ± 1.71	19.45 ± 0.66	1.08 ± 0.04	0.52	0.56	125°06.979'E
10~12	20.05 ± 1.06	31.01 ± 2.53	19.64 ± 1.61	1.13 ± 0.05	0.65	0.63	水深 87 m
12~14	18.98 ± 0.74	29.93 ± 1.01	19.19 ± 0.55	1.07 ± 0.03	0.63	0.64	沉积物芯长 23 cm
14~16	20.26 ± 0.92	32.78 ± 1.01	24.72 ± 0.34	1.11 ± 0.07	0.62	0.75	灰黄色极细至细粒砂
16~18	18.89 ± 1.87	31.70 ± 0.82	18.51 ± 0.65	1.06 ± 0.05	0.60	0.58	
18~20	16.74 ± 0.85	31.55 ± 1.35	17.06 ± 0.83	1.09 ± 0.04	0.53	0.54	
20~23	19.56 ± 1.30	39.66 ± 0.23	18.73 ± 1.23	1.07 ± 0.03	0.49	0.47	
PN-5							
0~2	18.04 ± 0.65	32.06 ± 2.53	19.98 ± 1.10	1.04 ± 0.03	0.56	0.62	
2~4	16.71 ± 0.96	22.22 ± 1.30	14.46 ± 1.21	1.03 ± 0.02	0.75	0.65	
4~6	16.53 ± 0.80	24.98 ± 1.63	15.71 ± 1.04	1.12 ± 0.06	0.66	0.63	站点位置
6~8	18.05 ± 0.91	24.22 ± 0.99	14.72 ± 0.61	1.04 ± 0.03	0.75	0.61	28°42.374'N
8~10	19.51 ± 1.24	23.19 ± 1.81	13.30 ± 0.72	1.18 ± 0.04	0.84	0.57	126°26.439'E
10~12	19.46 ± 1.50	21.76 ± 0.64	13.55 ± 0.75	1.08 ± 0.04	0.89	0.62	水深 127 m
12~14	19.99 ± 1.31	23.35 ± 1.39	14.02 ± 0.58	1.13 ± 0.06	0.86	0.60	沉积物芯长 20 cm
14~16	17.06 ± 0.51	32.06 ± 1.49	17.70 ± 1.17	1.13 ± 0.04	0.53	0.55	灰黄色极细至细粒砂
16~18	16.36 ± 1.13	27.43 ± 0.63	15.92 ± 0.37	1.17 ± 0.03	0.60	0.58	
18~20	18.54 ± 0.10	28.86 ± 0.97	15.47 ± 0.31	1.08 ± 0.02	0.64	0.54	
SST-1							
0~2	21.27 ± 1.02	38.52 ± 1.88	38.83 ± 1.95	1.21 ± 0.05	0.55	1.01	
2~4	24.21 ± 1.66	38.59 ± 2.81	39.63 ± 1.68	1.13 ± 0.08	0.63	1.03	
4~6	22.88 ± 1.09	36.33 ± 1.28	36.98 ± 1.30	1.03 ± 0.07	0.63	1.02	
6~8	21.24 ± 0.58	38.04 ± 1.72	37.93 ± 2.08	1.11 ± 0.08	0.56	1.00	
8~10	21.53 ± 0.51	33.77 ± 3.16	36.26 ± 2.80	1.02 ± 0.01	0.64	1.07	
10~12	23.57 ± 1.23	37.89 ± 2.87	36.34 ± 2.38	1.00 ± 0.04	0.62	0.96	
12~14	27.40 ± 1.41	39.64 ± 2.17	37.10 ± 1.99	1.04 ± 0.04	0.69	0.94	站点位置
14~16	28.47 ± 0.59	38.55 ± 1.61	36.21 ± 1.34	1.07 ± 0.06	0.74	0.94	28°22.798'N
16~18	29.92 ± 2.05	38.10 ± 2.82	39.34 ± 2.45	1.10 ± 0.03	0.79	1.03	127°23.071'E
18~20	33.68 ± 1.57	35.44 ± 3.12	34.54 ± 2.43	1.10 ± 0.06	0.95	0.97	水深 1 080 m
20~22	34.27 ± 2.48	35.67 ± 1.09	34.67 ± 1.18	1.08 ± 0.02	0.96	0.97	沉积物芯长 38 cm
22~24	32.70 ± 0.79	39.15 ± 1.27	38.24 ± 2.26	1.11 ± 0.03	0.84	0.98	0~5 cm 深褐色泥性粘土
24~26	36.56 ± 2.03	39.20 ± 1.32	38.27 ± 1.00	1.15 ± 0.07	0.93	0.98	5~38 cm 黄褐色淤性粘土
26~28	35.26 ± 1.68	39.58 ± 1.50	38.67 ± 1.59	1.08 ± 0.07	0.89	0.98	
28~30	35.05 ± 1.30	39.31 ± 1.71	36.11 ± 1.37	1.15 ± 0.02	0.89	0.92	
30~32	33.48 ± 2.07	40.82 ± 2.51	39.83 ± 2.03	1.12 ± 0.04	0.82	0.98	
32~34	34.96 ± 1.84	38.70 ± 2.08	35.17 ± 2.76	1.20 ± 0.10	0.90	0.91	
34~36	34.41 ± 2.34	39.55 ± 2.93	38.74 ± 3.45	1.16 ± 0.03	0.87	0.98	
36~38	33.61 ± 0.33	37.33 ± 3.65	35.56 ± 2.45	1.12 ± 0.03	0.90	0.95	

(续表 1)

深度 (cm)	<sup>238</sup> U (mBq/g)	<sup>232</sup> Th (mBq/g)	<sup>230</sup> Th (mBq/g)	<sup>234</sup> U/ <sup>238</sup> U 活度比	<sup>238</sup> U/ <sup>232</sup> Th 活度比	<sup>230</sup> Th/ <sup>232</sup> Th 活度比	性状描述
PN-3							
0~2	17.26 ± 0.70	35.85 ± 1.81	38.04 ± 2.16	1.09 ± 0.05	0.48	1.06	
2~4	18.73 ± 1.62	38.78 ± 1.54	42.66 ± 1.25	1.09 ± 0.02	0.48	1.10	
4~6	18.69 ± 0.85	36.47 ± 2.89	40.27 ± 3.65	1.10 ± 0.03	0.51	1.10	
6~8	17.85 ± 0.60	36.18 ± 2.96	38.72 ± 3.64	1.01 ± 0.06	0.49	1.07	
8~10	18.80 ± 0.76	28.01 ± 1.59	32.45 ± 2.02	1.18 ± 0.07	0.67	1.16	站点位置
10~12	16.46 ± 1.37	34.68 ± 2.05	37.45 ± 1.61	1.02 ± 0.03	0.47	1.08	28°06.419'N
12~14	17.15 ± 1.36	34.69 ± 1.80	38.10 ± 1.71	1.15 ± 0.05	0.49	1.10	127°20.998'E
14~16	16.94 ± 0.87	34.65 ± 0.90	36.86 ± 1.00	1.01 ± 0.04	0.49	1.06	水深 999 m
16~18	17.07 ± 0.68	36.21 ± 3.11	36.48 ± 3.31	1.13 ± 0.05	0.47	1.01	沉积物芯长 28 cm
18~20	17.34 ± 1.00	33.71 ± 2.37	36.30 ± 0.84	1.22 ± 0.09	0.51	1.08	0~13 cm 深黄色砂性淤泥
20~22	20.66 ± 1.23	34.24 ± 2.47	37.46 ± 3.31	1.13 ± 0.04	0.60	1.09	13~28 cm 深黄色淤泥
22~24	23.41 ± 0.09	30.53 ± 2.63	33.28 ± 1.98	1.00 ± 0.04	0.77	1.09	
24~26	28.22 ± 1.18	30.91 ± 3.07	31.83 ± 2.62	1.19 ± 0.06	0.91	1.03	
26~28	31.66 ± 1.72	30.28 ± 1.91	31.60 ± 3.07	1.06 ± 0.04	1.05	1.04	
G-2							
0~1	18.20 ± 0.74	32.39 ± 1.82	35.69 ± 1.86	0.98 ± 0.07	0.56	1.10	站点位置
1~2	19.39 ± 0.49	36.31 ± 0.60	33.60 ± 0.78	1.08 ± 0.03	0.53	0.93	27°59.900'N
2~3	18.49 ± 0.73	34.12 ± 1.82	32.00 ± 0.85	1.06 ± 0.04	0.54	0.94	126°44.614'E
3~4	23.91 ± 1.57	37.39 ± 1.65	43.02 ± 2.11	1.16 ± 0.03	0.64	1.15	水深 999 m
4~5	28.76 ± 1.31	38.97 ± 2.88	48.57 ± 1.94	1.12 ± 0.03	0.74	1.25	沉积物芯长 8 cm
5~6	28.39 ± 0.50	35.64 ± 2.48	46.07 ± 3.61	1.16 ± 0.02	0.80	1.29	0~3 cm 淤泥
6~7	32.58 ± 2.94	34.21 ± 3.14	50.49 ± 3.89	1.19 ± 0.05	0.95	1.48	3~8 cm 粘土质淤泥
7~8	39.03 ± 1.81	37.18 ± 2.11	51.95 ± 0.56	1.17 ± 0.02	1.05	1.40	

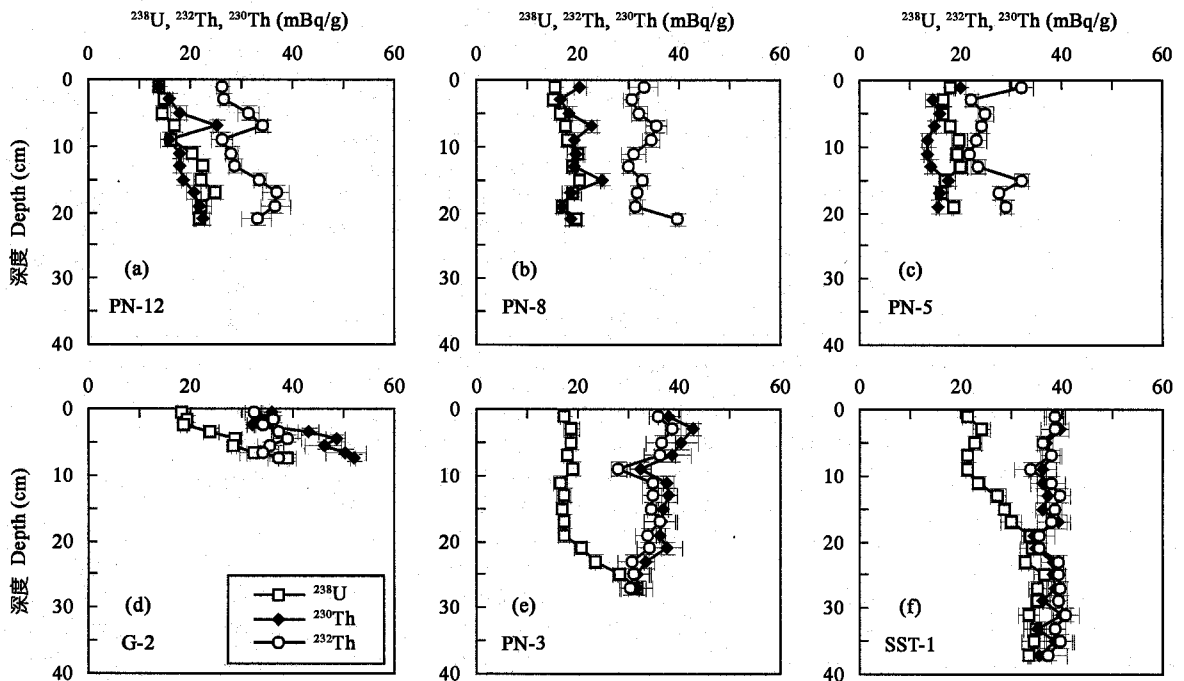
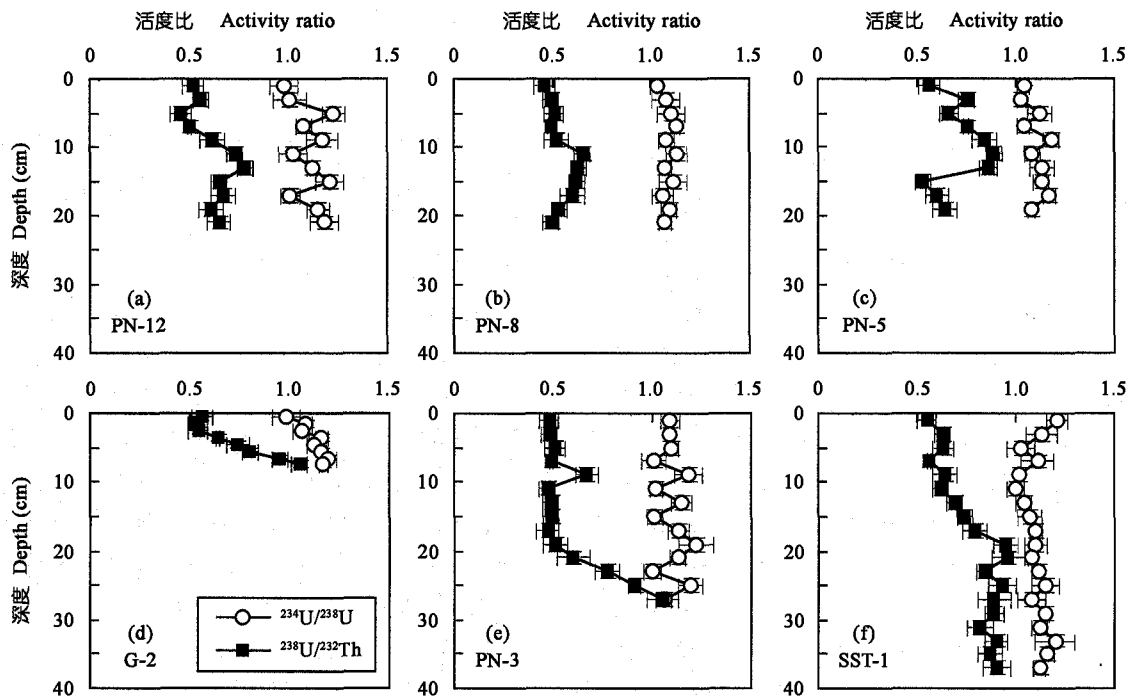


图 2 沉积物芯中 <sup>238</sup>U、<sup>230</sup>Th 和 <sup>232</sup>Th 浓度的垂直分布

Fig. 2 Vertical distributions of <sup>238</sup>U, <sup>230</sup>Th and <sup>232</sup>Th concentrations in sediment cores

介于  $1.06 \pm 0.02$  至  $1.10 \pm 0.05$  之间 (表 1)。海水中  $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$  比值约为  $1.14 \pm 0.03$ <sup>[42]</sup> 或  $1.144 \pm 0.002$ <sup>[43]</sup>, 而在碎屑物质中则小于 1.0。东海及冲绳沉积物芯中介于海水和碎屑物质之间的  $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$

比值说明有海水铀的加入, 这部分铀通常被称为“自生铀 (authigenic uranium)”。东海及冲绳沉积物剖面上, 除 G-2 点外,  $^{230}\text{Th}/^{232}\text{Th}$  比值基本上不随深度增加而变化 (图 4), 说明这些站点碎屑物质的来源在

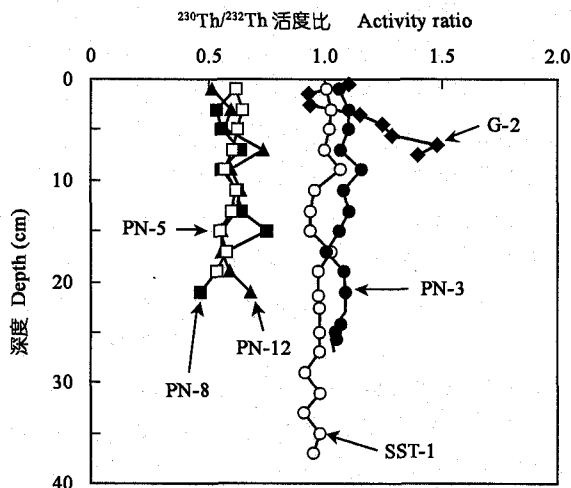
图 3 沉积物芯中  $^{238}\text{U}/^{232}\text{Th}$  和  $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$  活度比值的垂直分布Fig. 3 Vertical distributions of  $^{238}\text{U}/^{232}\text{Th}$  and  $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$  activity ratios in sediment cores

所采沉积物芯的沉积时间内,随时间变化不大。

$^{230}\text{Th}/^{232}\text{Th}$  平均比值在冲绳沉积物芯中比东海高(表 1 及图 4), 主要是因为海水  $^{234}\text{U}$  衰变产生的多余的  $^{230}\text{Th}$  加入所致。自然界中,  $^{238}\text{U}$ - $^{234}\text{U}$ - $^{230}\text{Th}$  是一个自然衰变系列,  $^{230}\text{Th}$  和  $^{234}\text{U}$  分别由  $^{234}\text{U}$  和  $^{238}\text{U}$  衰变而来。由于海水中  $^{238}\text{U}$  浓度的相对一致性, 可以认为单位海水体积内的  $^{230}\text{Th}$  的产生量是基本一致的。因此, 海洋及陆架沉积物中  $^{230}\text{Th}$  的蓄积通量

原则上是其上覆水体水深的函数, 同时又受到海水颗粒物在吸附  $^{230}\text{Th}$  并发生沉降的过程中颗粒物浓度、吸附效率和沉降速率等的差异的影响<sup>[44-46]</sup>。在  $^{230}\text{Th}$  用于海洋物质循环的研究中, 沉积物  $^{230}\text{Th}$  的蓄积量和通量的变化通常可以反映该海域的生产力的大小或颗粒物质量的多少<sup>[44-46]</sup>。本研究中, 冲绳海槽深度(约 1 000 m) 远比东海陆架(50~80 m) 大, 较细的粘土质颗粒物也比东海陆架的砂质颗粒物具有更好的吸附性能。所以冲绳海槽沉积物的  $^{230}\text{Th}/^{232}\text{Th}$  比值(约 1.0) 明显比东海陆架(约 0.5) 大。

东海沉积物芯中  $^{238}\text{U}/^{232}\text{Th}$  随深度增加显示不规则的微小变化(图 3), 平均为 0.55~0.71(表 1)。而在冲绳沉积物芯中则显示不同于东海的深度变化趋势。在 SST-1 点沉积物芯上部氧化层(0~12 cm)  $^{238}\text{U}/^{232}\text{Th}$  比值相对较低且变化不大, 平均为  $0.60 \pm 0.03$ , 在氧化还原转换层(12~18 cm, 处于氧化层和还原层之间, 显示氧化到还原过渡特征的沉积层) 增加到 0.95 以后基本上不再随深度变化而增加。如前所述,  $^{232}\text{Th}$  浓度和  $^{230}\text{Th}/^{232}\text{Th}$  比值反映了相对一致的碎屑物质来源,  $^{238}\text{U}$  浓度和  $^{238}\text{U}/^{232}\text{Th}$  比值在冲绳沉积物中随深度的增加则指示了有“自生铀”的沉积过程发生。 $^{238}\text{U}/^{232}\text{Th}$  比值在 PN-3 和 G-2 沉积物芯中的深度变化趋势与 SST-1 基本一致, 只是由于所采芯柱较短, 观察不到更深部的变化趋势。

图 4 沉积物芯中  $^{230}\text{Th}/^{232}\text{Th}$  活度比值的垂直分布Fig. 4 Vertical distributions of  $^{230}\text{Th}/^{232}\text{Th}$  activity ratios in sediment cores

### 3 讨论

#### 3.1 冲绳海槽沉积物中“自生铀”的沉积机制

SST-1 站点, 沉积物孔隙水中  $Mn^{2+}$ 、 $NO_3^-$  和  $NH_4^+$  以及沉积物  $^{238}U$  浓度随深度的变化趋势见图 5。孔隙水  $Mn^{2+}$ 、 $NO_3^-$  和  $NH_4^+$  浓度数据引自 Kato *et al.* [32]。 $Mn^{2+}$  在 0~3 cm 浓度几乎为 0  $\mu mol/L$ , 3~7 cm 随深度增加而增加, 7 cm 以下则随深度增加而降低。孔隙水  $NO_3^-$  浓度在 0~4 cm 迅速降低, 在 4 cm 以下基本检测不到。 $NH_4^+$  浓度在 3 cm 以上几乎为 0, 然后随深度增加而增加, 自 3~4 cm 时的 3  $\mu mol/L$  增加到 29~30 cm 左右的 108  $\mu mol/L$ 。 $NH_4^+$  浓度的这种变化趋势主要由有机碳的分解所致 [32]。有机质的分解可以引起以下顺序的氧化反应:  $O_2$ 、 $NO_3^-$ 、Mn 和活性 Fe 氧化物、 $SO_4^{2-}$  [47]。铀受还原反应控制自孔隙水向沉积物固体相的析出可以从  $NO_3^-$  近乎被完全还原和 Mn 被完全还原后发生 [26]。Zheng *et al.* [21] 认为在 Fe(III) 还原为 Fe(II) 发生时的氧化还原条件下, 绝大多数的铀被还原。从图 5 可以看出,  $^{238}U$  在沉积物上部氧化层显示较低而相对稳定的浓度值, 但在氧化层以下, Mn 的还原反应达到最大以后 (7~8 cm 峰值以下),  $^{238}U$  开始发生还原反应, 其浓度随深度增加而增加, 然后在 20 cm 以

下又变得相对稳定。这种剖面分布模式说明了自生铀的稳定吸附过程, 通常并不显示  $^{238}U$  浓度峰值, 而是在氧化层以下随深度增加显示稳定的  $^{238}U$  浓度增加趋势 [11, 24, 38]。所以, 冲绳海槽沉积物中铀的沉积过程及其控制机理可以描述如下: 正六价的 U(VI) 自上覆海水向下扩散, 然后穿过水和沉积物界面及沉积物上部氧化层后, 被还原为惰性的正四价的 U(IV) 并沉积在沉积物固体相上。

如前所述, 由于本文所研究的 6 根沉积物芯除 SST-1 外都普遍偏短, 所以只有冲绳海槽的 3 根沉积物芯观察到了氧化层向还原层的转换, 取自东海陆架的 3 个沉积物芯并没有显示类似的铀富集跃变面。事实上, 一般海区沉积物中氧化还原条件随深度变化的分区性是基本相似的, 只是表现深度有所差别。这种深度差别通常与上覆水体深度和沉积物的物质组成 (如有机质含量的高低和沉积物粒度等) 等有关。东海陆架 (50~80 m) 比冲绳海槽 (1 000 m) 具有相对较浅的水深和较低的有机质含量且较粗的沉积物组成, 因此东海陆架沉积物的氧化还原转换层及其下面的还原层位可能存在于相对较深的沉积层位。

#### 3.2 东海及冲绳沉积物中铀及“自生铀”的蓄积速率

沉积物中铀的沉降蓄积速率可以通过沉积物蓄积速率 [ $g/(cm^2 \cdot a)$ ] 乘以  $^{238}U$  平均浓度 ( $mBq/g$ ) 估算出来。东海 3 个站点的沉积物蓄积速率引自 Oguri *et al.* [33], 结果显示, 铀的蓄积速率在 PN-5、PN-8 和 PN-12 站点分别为 3.97  $mBq/(cm^2 \cdot a)$  [319  $ng/(cm^2 \cdot a)$ ]、3.76  $mBq/(cm^2 \cdot a)$  [302  $ng/(cm^2 \cdot a)$ ] 和 34.3  $mBq/(cm^2 \cdot a)$  [2 750  $ng/(cm^2 \cdot a)$ ]。长江口站点大约是东海外陆架和陆架边缘的 10 倍。结合 PN-5、PN-8 和 PN-12 站点  $^{239+240}Pu$  和  $^{210}Pb_{ex}$  数据, Wang *et al.* [39] 认为沉积物快速混合过程是决定东海沉积物微量元素剖面分布特征的最主要过程, 这种快速的蓄积和混合会稀释进入沉积物的自生铀 [15], 所以在东海 3 个沉积物剖面所采长度范围内, 既没有显示  $^{238}U$  浓度的显著增加, 也没有显示  $^{238}U/^{232}Th$  比值的明显增加。冲绳沉积物中铀的蓄积速率也可以通过同样的方法估算。由于 SST-1、PN-3 和 G-2 站点的沉积物蓄积速率没有报道, 我们借用与 SST-1 非常近的 F-2 站点 (28°37.93'N, 127°12.87'E, 水深 1 000 m) 的沉积物蓄积速率 0.049  $g/(cm^2 \cdot a)$  以及与 PN-3 和 G-2 站点非常近的 SST-2 站点 (28°08.27'N, 127°12.89'E, 水深 1 095 m) 的

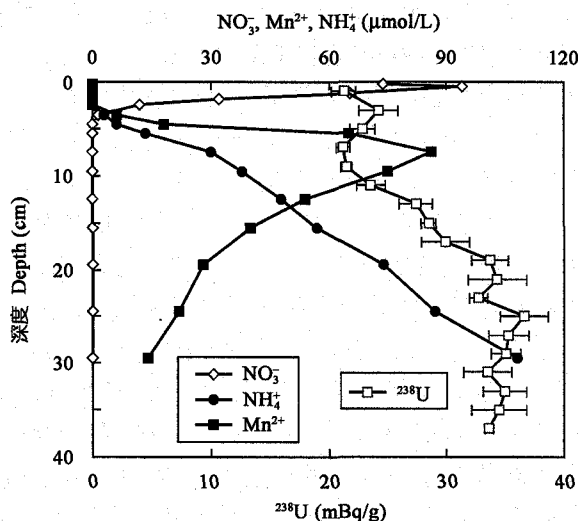


图 5 SST-1 站点沉积物孔隙水中  $Mn^{2+}$ 、 $NO_3^-$  和  $NH_4^+$  及沉积物  $^{238}U$  浓度的垂直变化趋势

Fig. 5 Vertical profiles of  $Mn^{2+}$ ,  $NO_3^-$  and  $NH_4^+$  concentrations in the pore water and  $^{238}U$  concentrations in the solid phase of sediment core at Stn. SST-1

孔隙水数据引自 Kato *et al.* [32]。

Data in the pore water are cited from Reference [32].

蓄积速率  $0.055 \text{ g}/(\text{cm}^2 \cdot \text{a})$  来进行计算<sup>[33]</sup>。结果显示冲绳沉积物上部氧化层铀的蓄积速率约为  $0.97 \sim 1.10 \text{ mBq}/(\text{cm}^2 \cdot \text{a})$ , 大约是东海外陆架及陆架边缘铀蓄积速率的四分之一。而在 SST-1、PN-3 和 G-2 站点沉积物次氧化层及还原层中的铀的蓄积速率分别为  $1.69 \text{ mBq}/(\text{cm}^2 \cdot \text{a})$  [ $136 \text{ ng}/(\text{cm}^2 \cdot \text{a})$ ]、 $1.74 \text{ mBq}/(\text{cm}^2 \cdot \text{a})$  [ $140 \text{ ng}/(\text{cm}^2 \cdot \text{a})$ ] 和  $2.15 \text{ mBq}/(\text{cm}^2 \cdot \text{a})$  [ $172 \text{ ng}/(\text{cm}^2 \cdot \text{a})$ ]。

根据氧化层和还原层不同的铀蓄积速率, 我们就可以计算出冲绳沉积物中“自生铀”的蓄积速率, 其在 SST-1、PN-3 和 G-2 站点分别为  $> (0.59 \pm 0.06) \text{ mBq}/(\text{cm}^2 \cdot \text{a})$  [ $> (47 \pm 5) \text{ ng}/(\text{cm}^2 \cdot \text{a})$ ]、 $> (0.77 \pm 0.10) \text{ mBq}/(\text{cm}^2 \cdot \text{a})$  [ $> (62 \pm 8) \text{ ng}/(\text{cm}^2 \cdot \text{a})$ ] 和  $> (1.12 \pm 0.10) \text{ mBq}/(\text{cm}^2 \cdot \text{a})$  [ $> (90 \pm 8) \text{ ng}/(\text{cm}^2 \cdot \text{a})$ ]。这与黑海<sup>[15, 21, 26]</sup>、长岛海峡<sup>[48]</sup>、Cariaco 海沟<sup>[21, 26]</sup> 以及加利福尼亚陆架<sup>[16, 22]</sup> 等沉积物中的计算值大致相当。基于冲绳海槽面积  $1.5 \times 10^{15} \text{ cm}^2$  ( $1000 \text{ km} \times 150 \text{ km}$ ) 和铀的蓄积速率, 我们可以计算出该海域沉积物中铀的蓄积总量约为  $(2.0 \sim 2.6) \times 10^8 \text{ g/a}$ , 而报道的长江和黄河的输入铀约为  $6.45 \times 10^8 \text{ g/a}$ <sup>[27, 31]</sup>。所以, 蓄积在冲绳海槽沉积物中的铀约占东亚两条大河总输入铀量的 30% ~ 40%, 是铀的一个重要的汇。

## 4 结 论

本文关于东海及冲绳海槽沉积物中 U-Th 同位素地球化学的研究, 为研究海洋沉积物中铀的沉降过程及蓄积机理提供了重要信息, 对于探讨海洋铀平衡也有重要意义。在次氧化性的冲绳海槽沉积物中,  $^{238}\text{U}$  浓度及  $^{238}\text{U}/^{232}\text{Th}$  比值在沉积物上部氧化层相对较低, 然后在氧化还原转换层及还原层随深度增加而增加, 说明了有明显的“自生铀”的加入。“自生铀”的沉降蓄积机理为: 海水中的 U(VI) 穿过海水与沉积物界面及沉积物上部氧化层, 在次氧化层及还原层被还原为惰性的 U(IV), 并在沉积物固体相沉积下来。其蓄积速率约为  $(47 \pm 5) \sim (90 \pm 8) \text{ ng}/(\text{cm}^2 \cdot \text{a})$ , 与文献报道的黑海、长岛海峡、Cariaco 海沟和加利福尼亚陆架等次氧化性或还原性沉积区大致相当。进一步证明了铀在近海次氧化性沉积区的析出在全球海洋铀平衡中占有重要位置。

特别感谢日本学术振兴会 (JSPS) 给予的博士后工作支持。

## 参考文献 (References):

- [1] Langmuir D. Uranium solution-mineral equilibria at low temperatures with applications to sedimentary ore deposits [J]. *Geochim Cosmochim Acta*, 1978, 42(6, part 1): 547-569.
- [2] Cochran J K, Carey A E, Sholkovitz E R, Surprenant L D. The geochemistry of uranium and thorium in coastal marine sediments and sediments pore waters [J]. *Geochim Cosmochim Acta*, 1986, 50(5): 663-680.
- [3] Cochran J K. The oceanic chemistry of the uranium- and thorium-series nuclides [M] // Ivanovich M, Harmon R S. *Uranium-Series Disequilibrium: Applications to Earth, Marine, and Environmental Sciences*. Oxford: Clarendon Press, 1992: 334-395.
- [4] Veeh H H. Deposition of uranium from the ocean [J]. *Earth Planet Sci Lett*, 1967, 3: 145-150.
- [5] Bonatti E, Fisher D E, Joensuu O, Rydell H S. Postdepositional mobility of some transition elements, phosphorus, uranium and thorium in deep sea sediments [J]. *Geochim Cosmochim Acta*, 1971, 35(2): 189-201.
- [6] Kolodny Y, Kaplan I R. Deposition of uranium in the sediment and interstitial water of an anoxic fjord [C] // *Proceedings of Symposium on Hydrogeochemistry and Biogeochemistry (vol. 1)*. Washington D C: Clarke Company, 1973: 418-442.
- [7] Mo T, Suttle A D, Sackett W M. Uranium concentrations in marine sediments [J]. *Geochim Cosmochim Acta*, 1973, 37(1): 35-51.
- [8] Veeh H H, Calvert S E, Price N B. Accumulation of uranium in sediments and phosphorites on the South West African shelf [J]. *Mar Chem*, 1974, 2(3): 189-202.
- [9] Degens E T, Khoo F, Michaelis W. Uranium anomaly in Black Sea sediments [J]. *Nature*, 1977, 269(5629): 566-569.
- [10] Carpenter R, Peterson M L, Bennett J T, Somayajulu B L K. Mixing and cycling of uranium, thorium and  $^{210}\text{Pb}$  in Puget Sound sediments [J]. *Geochim Cosmochim Acta*, 1984, 48(10): 1949-1963.
- [11] Yamada M, Tsunogai S. Postdepositional enrichment of uranium in sediment from the Bering Sea [J]. *Mar Geol*, 1984, 54(3/4): 263-276.
- [12] Anderson R F. Redox behavior of uranium in an anoxic marine basin [J]. *Uranium*, 1987, 3(2-4): 145-164.
- [13] Huh C A, Zahnle D L, Small L F, Noshkin V E. Budgets and behaviors of uranium and thorium series isotopes in Santa Monica Basin sediments [J]. *Geochim Cosmochim Acta*, 1987, 51(6): 1743-1754.
- [14] Tsunogai S, Nagao S, Watanabe S, Takahashi Y, Suzuki K, Yamada M, Harada K. Uranium in coastal sediments of Tokyo Bay and Funka Bay [J]. *J Oceanogr*, 1990, 46(5): 211-218.
- [15] Barnes C E, Cochran J K. Geochemistry of uranium in Black Sea sediments [J]. *Deep-Sea Res*, 1991, 38(S2A): S1237-S1254.
- [16] Klinkhammer G P, Palmer M R. Uranium in the oceans: Where it goes and why [J]. *Geochim Cosmochim Acta*, 1991, 55(7): 1799-1806.
- [17] Legeleux F, Reyss J-L, Bonte P, Organo C. Concomitant



- enrichments of uranium, molybdenum and arsenic in suboxic continental margin sediments [J]. *Oceanol Acta*, 1994, 17(4): 417 - 429.
- [18] Morford J L, Emerson S. The geochemistry of redox sensitive trace metals in sediments [J]. *Geochim Cosmochim Acta*, 1999, 63 (11/12): 1 735 - 1 750.
- [19] Thomson J, Nixon S, Croudace I W, Pedersen T F, Brown L, Cook G T, MacKenzie A B. Redox-sensitive element uptake in north-east Atlantic Ocean sediments (Benthic Boundary Layer Experiment sites) [J]. *Earth Planet Sci Lett*, 2001, 184(2): 535 - 547.
- [20] Chaillou G, Anschutz P, Lavaux G, Schäfer J, Blanc G. The distribution of Mo, U, and Cd in relation to major redox species in muddy sediments of the Bay of Biscay [J]. *Mar Chem*, 2002, 80 (1): 41 - 59.
- [21] Zheng Y, Anderson R F, van Geen A, Fleisher M Q. Remobilization of authigenic uranium in marine sediments by bioturbation [J]. *Geochim Cosmochim Acta*, 2002, 66(10): 1 759 - 1 772.
- [22] McManus J, Berelson W M, Klinkhammer G P, Hammond D E, Holm C. Authigenic uranium: Relationship to oxygen penetration depth and organic carbon rain [J]. *Geochim Cosmochim Acta*, 2005, 69(1): 95 - 108.
- [23] Elbaz-Poulichet F, Seidel J L, Jézéquel D, Metzger E, Prévot F, Simonucci C, Sarazin G, Viollier E, Etcheber H, Jouanneau J M, Weber O, Radakovitch O. Sedimentary record of redox-sensitive elements (U, Mn, Mo) in a transitory anoxic basin (the Thau lagoon, France) [J]. *Mar Chem*, 2005, 95(3/4): 271 - 281.
- [24] Barnes C E, Cochran J K. The geochemistry of uranium in marine sediments [M] // Guary J C, Guegueniat P, Pentreath R J. *Radionuclides: A Tool for Oceanography*. London: Elsevier Applied Science, 1988: 162 - 170.
- [25] Anderson R F, Lehuray A P, Fleisher M Q, Murray J W. Uranium deposition in Saanich Inlet sediments, Vancouver Island [J]. *Geochim Cosmochim Acta*, 1989, 53(9): 2 205 - 2 213.
- [26] Barnes C E, Cochran J K. Uranium removal in oceanic sediments and the oceanic U balance [J]. *Earth Planet Sci Lett*, 1990, 97 (1/2): 94 - 101.
- [27] Dunk R M, Mills R A, Jenkins W J. A reevaluation of the oceanic uranium budget for the Holocene [J]. *Chem Geol*, 2002, 190(1 - 4): 45 - 67.
- [28] Milliman J D, Meade R H. World-wide delivery of river sediment to the oceans [J]. *J Geol*, 1983, 91(1): 1 - 21.
- [29] Beardsley R C, Limeburner R, Yu H, Cannon G A. Discharge of the Changjiang (Yangtze River) into the East China Sea [J]. *Cont Shelf Res*, 1985, 4(1/2): 57 - 76.
- [30] Milliman J D, Beardsley R C, Yang Z-S, Limeburner R. Modern Huanghe-derived muds on the outer shelf of the East China Sea: Identification and potential transport mechanisms [J]. *Cont Shelf Res*, 1985, 4(2): 175 - 188.
- [31] Palmer M R, Edmond J M. Uranium in river water [J]. *Geochim Cosmochim Acta*, 1993, 57(20): 4 947 - 4 955.
- [32] Kato Y, Terunuma Y, Hijikata Y, Minami H, Iseki K. Benthic recycling and fluxes of biophile elements in the East China Sea [J]. *Geochem J*, submitted for publication.
- [33] Oguri K, Matsumoto E, Yamada M, Saito Y, Iseki K. Sediment accumulation rates and budgets of depositing particles of the East China Sea [J]. *Deep-Sea Res II*, 2003, 50(2): 513 - 528.
- [34] Anderson R F, Fleer A P. Determination of natural actinides and plutonium in marine particulate material [J]. *Anal Chem*, 1982, 54(7): 1 142 - 1 147.
- [35] Aller R C, Cochran J K.  $^{234}\text{Th}/^{238}\text{U}$  disequilibrium in near-shore sediment: Particle reworking and diagenetic time scales [J]. *Earth Planet Sci Lett*, 1976, 29(1): 37 - 50.
- [36] Aller R C, Benninger L K, Cochran J K. Tracking particle-associated processes in nearshore environments by use of  $^{234}\text{Th}/^{238}\text{U}$  disequilibrium [J]. *Earth Planet Sci Lett*, 1980, 47(2): 161 - 175.
- [37] Borole D V, Krishnaswami S, Somayajulu B L K. Uranium isotopes in rivers, estuaries and adjacent coastal sediments of western India: Their weathering, transport and oceanic budget [J]. *Geochim Cosmochim Acta*, 1982, 46(2): 125 - 137.
- [38] Thomson J, Wallace H E, Colley S, Toole J. Authigenic uranium in Atlantic sediments of the last glacial stage — A diagenetic phenomenon [J]. *Earth Planet Sci Lett*, 1990, 98(2): 222 - 232.
- [39] Wang Z-L, Yamada M. Plutonium activities and  $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$  atom ratios in sediment cores from the East China Sea and Okinawa Trough: Sources and inventories [J]. *Earth Planet Sci Lett*, 2005, 233(3/4): 441 - 453.
- [40] 赵一阳. 中国渤海沉积物中铀的地球化学 [J]. *地球化学*, 1980, 9(1): 101 - 105.  
Zhao Yi-yang, Geochemistry of uranium in sediments of Bohai Gulf, China [J]. *Geochimica*, 1980, 9(1): 101 - 105 (in Chinese with English abstract).
- [41] 吴明清, 王贤觉. 东海沉积物的稀土和微量元素 [J]. *地球化学*, 1991, 20(1): 40 - 46.  
Wu Ming-qing, Wang Xian-jue. Rare-earth and trace elements in the East China Sea sediments [J]. *Geochimica*, 1991, 20(1): 40 - 46 (in Chinese with English abstract).
- [42] Ku T L, Knauss K G, Mathieu G G. Uranium in open oceans: Concentration and isotopic composition [J]. *Deep-Sea Res*, 1977, 24(11): 1 005 - 1 017.
- [43] Chen J H, Edwards R L, Wasserburg G J.  $^{238}\text{U}$ ,  $^{234}\text{U}$  and  $^{232}\text{Th}$  in seawater [J]. *Earth Planet Sci Lett*, 1986, 80(3/4): 241 - 251.
- [44] Zhang L, Chen M, Yang W F, Xing N, Li Y P, Qiu Y S, Huang Y P. Size-fractionated thorium isotopes ( $^{228}\text{Th}$ ,  $^{230}\text{Th}$ ,  $^{232}\text{Th}$ ) in surface waters in the Jiulong River estuary, China [J]. *J Environ Radio*, 2004, 78(2): 199 - 216.
- [45] Guo L D, Santschi P H, Baskaran M, Zindler A. Distribution of dissolved and particulate  $^{230}\text{Th}$  and  $^{232}\text{Th}$  in seawater from the Gulf of Mexico and off Cape Hatteras as measured by SIMS [J]. *Earth Planet Sci Lett*, 1995, 133(1/2): 117 - 128.
- [46] Baskaran M. Scavenging of thorium isotopes in the arctic regions: Implications for the fate of particle-reactive pollutants [J]. *Mar Pollution Bull*, 2001, 42(1): 16 - 22.
- [47] Froelich P N, Klinkhammer G P, Bender M L, Luedtke N A, Heath G R, Cullen D, Dauphin P, Hammond D, Hartman B. Early oxidation of organic matter in pelagic sediments of the eastern equatorial Atlantic: suboxic diagenesis [J]. *Geochim Cosmochim Acta*, 1979, 43(7): 1 075 - 1 090.
- [48] Barnes C E, Cochran J K. Uranium geochemistry in estuarine sediments: Controls on removal and release processes [J]. *Geochim Cosmochim Acta*, 1993, 57(3): 555 - 569.