

学校编码: 10384

分类号_____密级_____

学号: 22420101151322

UDC _____

厦 门 大 学

硕 士 学 位 论 文

$^{234}\text{Th}/^{238}\text{U}$ 不平衡法研究南海北部陆架区颗粒有机碳的跨陆架输运

Utilization of $^{234}\text{Th}/^{238}\text{U}$ disequilibrium to study the transport of particulate organic carbon across the shelf in the northern South China Sea

彭诗云

指导教师姓名: 蔡平河 教授

专 业 名 称: 海洋化学

论文提交日期: 2013 年 10 月

论文答辩时间: 2013 年 11 月

学位授予日期:

答辩委员会主席: _____

评 阅 人: _____

2013 年 11 月

厦门大学学位论文原创性声明

本人呈交的学位论文是本人在导师指导下，独立完成的研究成果。本人在论文写作中参考其他个人或集体已经发表的研究成果，均在文中以适当方式明确标明，并符合法律规范和《厦门大学研究生学术活动规范（试行）》。

另外，该学位论文为（ ）课题（组）的研究成果，获得（ ）课题（组）经费或实验室的资助，在（ ）实验室完成。（请在以上括号内填写课题或课题组负责人或实验室名称，未有此项声明内容的，可以不作特别声明。）

声明人（签名）：

年 月 日

厦门大学学位论文著作权使用声明

本人同意厦门大学根据《中华人民共和国学位条例暂行实施办法》等规定保留和使用此学位论文，并向主管部门或其指定机构送交学位论文（包括纸质版和电子版），允许学位论文进入厦门大学图书馆及其数据库被查阅、借阅。本人同意厦门大学将学位论文加入全国博士、硕士学位论文共建单位数据库进行检索，将学位论文的标题和摘要汇编出版，采用影印、缩印或者其它方式合理复制学位论文。

本学位论文属于：

1.经厦门大学保密委员会审查核定的保密学位论文，
于 年 月 日解密，解密后适用上述授权。

2.不保密，适用上述授权。

（请在以上相应括号内打“√”或填上相应内容。保密学位论文应是已经厦门大学保密委员会审定过的学位论文，未经厦门大学保密委员会审定的学位论文均为公开学位论文。此声明栏不填写的，默认为公开学位论文，均适用上述授权。）

声明人（签名）：

年 月 日

摘要

生源颗粒有机碳 (POC) 的跨陆架输运通量在很大程度上表征了陆架海区生物泵的运作效率, 反映了陆架海区对大气 CO₂ 的净固碳能力。利用 ²³⁴Th/²³⁸U 不平衡法可以观测水体 ²³⁴Th 输出通量, 结合沉积物中过剩 ²³⁴Th 的沉积通量, 建立合理的模型, 我们便可以估算 ²³⁴Th 的跨陆架输运通量, 进而评估颗粒有机碳 (POC) 跨陆架输出通量。本论文采用小体积海水二氧化锰共沉淀法测定水体中总 ²³⁴Th 的活度, 利用新设计的简化流程的方法测量沉积物中过剩的 ²³⁴Th 活度。样品于 2012 年 8 月期间采自南海北部等深线 200 米以内的陆架区域。在以该区域为研究对象时, 采用 ²³⁴Th/²³⁸U 不平衡法研究颗粒有机碳跨陆架输运机制, 揭示跨陆架输运方式的存在及其输运通量之量值, 为更合理的诠释南海陆架区的碳循环过程提供新的参考及数据支持。

在研究区域 200 米以浅的陆架海区, 分析了 Chl a、TSM、POC 与 ²³⁴Th/²³⁸U 垂直剖面分布后, 我们发现: 所有站位的水体都存在颗粒物清除而引起的 ²³⁴Th 亏损现象, 其 ²³⁴Th/²³⁸U 比值在 0.06-1.07 之间。大致的表现是, 近岸区域与水层底部的 ²³⁴Th/²³⁸U 比值小, 颗粒物对 ²³⁴Th 的清除程度较大; 离岸越远, 颗粒物对 ²³⁴Th 的清除程度降低; 水深达到 200 米时, 在 75-100 米附近出现 ²³⁴Th/²³⁸U 的平衡。在所有站位, 近底层都会出现较之上层更大的 ²³⁴Th 的亏损现象, 与底部 TSM 高值相对应, 表明可能存在着底部颗粒物再悬浮的现象。叶绿素 a 的分布则表明底部的高颗粒物浓度由再悬浮而非浮游生物现场生产引起的, 但是高的 TSM 值不一定对应高的 POC 值。同时, POC、TSM 与 ²³⁴Th/²³⁸U 的剖面图也暗示底部再悬浮颗粒物存在着沿陆架向外输运的趋势。

陆架区水体的 ²³⁴Th 输出通量分布存在着空间差异性, 主要表现为在 75-100 米区域有较大的通量值, 而近岸由于水深较浅、远岸由于颗粒物丰度等因素的影响, 其 ²³⁴Th 的亏损通量相对较小。水体中 ²³⁴Th 的亏损通量范围在 435±17 - 2984±80 dpm/m²/d 之间, 平均值为 1849±75 dpm/m²/d。

对南海陆架区沉积物中的 ²³⁴Th 分布进行了分析与测量。我们发现表层的 ²³⁴Th 存在着过剩的现象, 且主要存在于沉积物表层 0-4cm, 其分布主要受控于生物扰动等过程。研究区域的水动力因素及沉积物的性质影响着沉积物中过剩 ²³⁴Th 的分布。在等深线 100 米以浅的区域表层沉积物主要为泥质区, 存在着 ²³⁴Th

过剩现象；等深线 100-200 米的砂质区域并未观测到 ^{234}Th 的过剩。对整个陆架区的调查发现，沉积物中 ^{234}Th 过剩量的范围在 $67\pm 30 - 1832\pm 167 \text{ dpm/m}^2/\text{d}$ 之间，平均值为 $800\pm 99 \text{ dpm/m}^2/\text{d}$ 。

基于水体 ^{234}Th 的亏损与其在沉积物中过剩的量，首次对南中国海北部陆架区的 ^{234}Th 的跨陆架输出通量进行了分析与定量。陆架区 ^{234}Th 通量在断面分布上比较均匀，在不同的等深线上则存在较大的差异，等深线 50-100 米区域贡献了主要的输出量。通过对陆架区 ^{234}Th 的收支平衡进行分析，建立一个关于 ^{234}Th 的稳态箱式模型，发现南海北部陆架区存在着 ^{234}Th 的跨陆架输出过程。

最后，我们通过对埋藏系数 (FF_{Th}) 与输出系数 (EF_{Th}) 的讨论分析，发现近 60% 的埋藏系数是集中在 1:2 到 1:4 之间，表明沉积物中埋藏的 ^{234}Th 的量为水体总亏损量的 25-50% 左右；而大约 50-75% 的 ^{234}Th 以颗粒物为载体，由陆架区向外输送到陆坡或更远的海盆区。结合跨陆架输出的 ^{234}Th 通量与陆架区的 $\text{POC}/^{234}\text{Th}$ 比值，估算出 POC 的跨陆架输出通量为 $6.8\pm 0.99\times 10^7 \text{ mmol C/m/d}$ 。该部分向外输运的颗粒有机碳有利于其在更深海水层位甚至在深海沉积物中埋藏，这对于陆架区乃至整个南海海域的碳埋藏以及大气二氧化碳浓度的调控，存在着重要的意义。

关键词： $^{234}\text{Th}/^{238}\text{U}$ 不平衡；沉积物 ^{234}Th 过剩； ^{234}Th 亏损；POC；跨陆架输运

Abstract

The efficiency of the biological pump over the continental shelf is largely modulated by the transport of biogenic particulate organic carbon (POC) across the shelf and represents the capacity of net carbon sequestration of atmospheric CO₂ in the shelf area. ²³⁴Th/²³⁸U disequilibrium was used to quantify ²³⁴Th export flux from the water column. In combination with the depositional flux of ²³⁴Th on the seafloor, we established a 1-D mass balance model to estimate the flux of ²³⁴Th (and hence particulate organic carbon export flux) across the shelf. We used the small-volume manganese dioxide coprecipitation method to measure total ²³⁴Th activity in seawater, and a modified protocol to measure the excess of ²³⁴Th activity in sediment. Samples were collected from the northern South China Sea shelf in August 2012. ²³⁴Th/²³⁸U disequilibrium was used to quantify the magnitude of the transport flux of POC and to study the mechanisms that control the transport of POC across the shelf. This study will provide a new reference and is helpful for understanding carbon cycling in the South China Sea.

Over the continental shelf, we found that ²³⁴Th removal phenomenon was evident in all of the water column, with the ²³⁴Th/²³⁸U ratio varying between 0.06 to 1.07. The ²³⁴Th/²³⁸U ratio in the nearshore area and in the bottom was relatively small. With distance offshore, the removal of ²³⁴Th on particles decreased. At all stations, the deficit of ²³⁴Th appeared to be more pronounced in the bottom than in the surface water. This low ²³⁴Th signal corresponded to high TSM values in the bottom water and indicates that resuspension of particles may occur in the bottom of the shelf. The chlorophyll a distribution suggests that the high particle concentrations were more likely to be caused by resuspension than by in-situ biological production. Notably, high TSM value may not necessarily correspond to high POC concentration. Overall, the depth profiles of POC, TSM and ²³⁴Th/²³⁸U suggest that particle resuspension may lead to the transport of POC across the shelf. The export flux of ²³⁴Th over the continental shelf was characterized by large spatial variability. It varied

between 435 ± 17 - 2984 ± 80 dpm/m²/d, with a mean value of 1849 ± 75 dpm/m²/d.

²³⁴Th excess was found in the surface of 0-4 cm sediment of the South China Sea shelf. The penetration of ²³⁴Th into sediment is controlled mainly by bioturbation. In the study area, hydrodynamic and the nature of sediment affect the inventory of excess ²³⁴Th in sediment. The inventory of ²³⁴Th excess in sediment ranges from 67 ± 30 dpm/m²/d to 1832 ± 167 dpm/m²/d, with a mean value of 800 ± 99 dpm/m²/d.

Based on the ²³⁴Th export flux from the water column and the depositional flux in sediment, we calculated the ²³⁴Th export flux across the continental shelf in the northern South China Sea. The distribution of ²³⁴Th flux along isobath was relatively uniform. Overall, lateral transport of ²³⁴Th occurred mainly in the region with a water depth of 50-100 meter. Through the analysis of the balance of ²³⁴Th in the shelf, a one-dimensional (1-D) steady state of ²³⁴Th box model was established. It was inferred that there was a mechanism of ²³⁴Th transport across the continental shelf in the northern South China Sea.

Finally, through an analysis of focusing factor (FFTh) and exporting factor (EFTh), we found that about 60% of FFTh values fell in the range of 1:2-1:4, suggesting that only 25-50% of the total export of ²³⁴Th deposited in sediment. About 50-75% of ²³⁴Th was thus transported in a form of particulate matter from the shelf to the slope and/or further offshore to the deep basin. With ²³⁴Th export flux and POC/²³⁴Th ratio, we estimated the cross-shelf transport flux of POC to be $6.8 \pm 0.99 \times 10^7$ mmol C/m/d. This offshore transport process makes POC more conducive to be sequestered in the deep sea or even in sediment, and is thus important for the regulation of CO₂ concentration in the study area.

Keywords: ²³⁴Th/²³⁸U disequilibrium; excess ²³⁴Th in sediment; ²³⁴Th deficit; POC; transport across the shelf

目 录

摘要.....	I
Abstract	III
第一章 绪论	1
1.1 ^{234}Th 在海洋水体及沉积物中的应用.....	1
1.1.1 ^{234}Th 在海洋水体中的应用.....	1
1.1.2 ^{234}Th 在沉积物中的应用.....	3
1.2 陆架海区颗粒有机碳通量的研究意义与现状.....	4
1.3 南海陆架区颗粒有机碳 (POC) 的跨陆架输运.....	6
1.4 本论文的研究内容和目标.....	9
1.5 论文框架.....	10
第二章 研究区域及方法	11
2.1 研究区域概况.....	11
2.1.1 南海的气候、水文特征.....	12
2.1.2 南海北部的水团与环流.....	13
2.1.3 南海沉积物分布.....	15
2.2 航次采样情况.....	16
2.3 分析方法.....	17
2.3.1 沉积物中过剩 ^{234}Th 的测量.....	17
2.3.2 颗粒态 ^{234}Th 的测定.....	18
2.3.3 总态 ^{234}Th 的测定.....	19
2.3.4 POC 的测定.....	20
2.3.5 含水率的测定.....	20
2.4 数据质量控制.....	20
2.4.1 过剩 ^{234}Th 测量的质量控制.....	20
2.4.2 ^{234}Th 的质量控制.....	21
2.4.3 POC 测定质量控制.....	22
第三章 南海北部陆架区水体 ^{234}Th 的亏损与沉积物 ^{234}Th 的过剩	23
3.1 水体中 ^{234}Th 的断面分布.....	23
3.1.1 航次调查期间的水文特征.....	23
3.1.2 南海北部陆架区 Chl-a、TSM 与 POC 的分布.....	24
3.1.3 水柱中的 $^{234}\text{Th}/^{238}\text{U}$ 不平衡.....	27

3.2 南海北部陆架区沉积物中 ^{234}Th 的过剩.....	28
3.2.1 沉积物含水率的分布.....	28
3.2.2 过剩 ^{234}Th 的垂向分布.....	29
3.3 水体 ^{234}Th 的输出通量.....	31
3.4 ^{234}Th 的沉积通量.....	32
3.5 陆架区水体与沉积物 ^{234}Th 的不平衡.....	33
第四章 南海北部陆架区 ^{234}Th 的输出通量与颗粒有机碳的跨陆架输运	35
4.1 陆架区 ^{234}Th 的分布.....	35
4.1.1 断面上 ^{234}Th 的分布.....	35
4.1.2 等深线上 ^{234}Th 的分布.....	36
4.2 ^{234}Th 收支平衡的分析.....	37
4.2.1 水体交换对 ^{234}Th 通量影响.....	37
4.2.2 ^{234}Th 的收支平衡.....	38
4.3 ^{234}Th 的埋藏系数 (FF_{Th}).....	40
4.3 陆架有机碳的输出.....	42
5 章 结论与展望	44
5.1 本论文总结与结论.....	44
5.2 尚未解决的科学问题和工作展望.....	45
参考文献.....	47
附录.....	56
致谢.....	57

Contents

Abstract in Chinese	I
Abstract in English.....	III
Chapter 1 Introduction	1
1.1 ^{234}Th application in sea water and sediment	1
1.1.1 ^{234}Th application in sea water	1
1.1.2 ^{234}Th application in sediment.....	3
1.2 The significance and status of study on POC flux in the marginal seas.....	4
1.3 Particulate organic carbon (POC) transport across the shelf in the South China Sea.....	6
1.4 Objectives of this study.....	9
1.5 Structure of this thesis.....	10
Chapter 2 Study area and methods.....	11
2.1 Study area.....	11
2.1.1 Climate and hydrological characteristics in the South China Sea.....	12
2.1.2 Meteorological system and water mass of the South China Sea	13
2.1.3 Distribution of sediment in the South China Sea.....	15
2.2 Sample collection.....	16
2.3 Measurement methods.....	17
2.3.1 Analyses of excess ^{234}Th in sediment	17
2.3.2 Particulate ^{234}Th analyses	18
2.3.3 Total ^{234}Th analyses	19
2.3.4 POC analyses	20
2.4 Quality analysis and quality control	20
2.4.1 Quality control for excess ^{234}Th	20
2.4.2 Quality control for ^{234}Th	21
2.4.3 Quality control for POC.....	22
Chapter 3 The deficit of ^{234}Th in water column and excess of ^{234}Th in sediment in the northern South China Sea shelf.....	23
3.1 Section profile of ^{234}Th in the water column	23
3.1.1 Hydrography during the survey	23
3.1.2 Chl-a、TSM and POC distributions in the South China Sea shelf.....	24
3.1.3 $^{234}\text{Th}/^{238}\text{U}$ disequilibrium in the water column.....	27
3.2 Excess of ^{234}Th in sediment in the northern South China Sea shelf.....	28
3.2.1 Water content distribution in sediment	28
3.2.2 Vertical distribution of excess ^{234}Th	29
3.3 Export flux of ^{234}Th in the water column.....	31

3.4 Depositional flux of ^{234}Th	32
3.5 The imbalance of ^{234}Th in the water column and sediment on the shelf	33
Chapter 4 ^{234}Th export flux and POC transport across the shelf in the northern South China Sea	35
4.1 ^{234}Th distribution on the shelf	35
4.1.1 ^{234}Th distribution in section	35
4.1.2 ^{234}Th distribution in isobath	36
4.2 ^{234}Th budget analyses	37
4.2.1 Effect of water exchange on ^{234}Th flux estimates.....	37
4.2.2 ^{234}Th budget	38
4.3 ^{234}Th focusing factor (FF_{Th})	40
4.3 Transport of POC in the shelf	42
Chapter 5 conclusions	42
5.1 Conclusion	44
5.2 Prospect.....	45
Reference	47
Appendix.....	56
Acknowledgement	57

图表目录

图 1.1	铀系与钍系的衰变链及其同位素的半衰期图表.....	2
图 1.2	^{234}Th 在水体中的主要应用	3
图 1.3	海洋生物泵示意图.....	5
图 1.4	陆架海区颗粒物质的主要传输路径示意图.....	7
图 2.1	南海海底地貌图.....	12
图 2.2	南海北部东亚季风和洋流系统.....	14
图 2.3	南海的沉积物粒径分布图.....	16
图 2.4	2012 年夏季南海航次采样站位图.....	17
图 2.5	过剩 ^{234}Th 的整体回收率.....	21
图 3.1	2012 年 8 月南海北部陆架区 A、E7 与 QD 三个断面的水体温盐分布....	24
图 3.2	2012 年 8 月南海北部陆架区 A、E7 与 QD 三个断面的叶绿素 a、TSM 与 POC 的分布.....	26
图 3.3	南海北部陆架区 $^{234}\text{Th}/^{238}\text{U}$ 的活度比值垂直分布.....	27
图 3.4	南海北部陆架区 A、E7 与 QD 三个断面的 $^{234}\text{Th}/^{238}\text{U}$ 的活度比值的断面 分布.....	28
图 3.5	南海北部陆架区沉积物中含水率的分布.....	29
图 3.6	南海北部陆架区沉积物过剩 ^{234}Th 的分布.....	30
图 3.7	南海北部陆架水体 ^{234}Th 输出通量分布图.....	32
图 3.8	南海北部陆架 ^{234}Th 沉积通量分布图.....	33
图 3.9	南海北部陆架 ^{234}Th 输出通量与 ^{234}Th 沉积通量分布图.....	34
图 4.1	南海北部陆架区 ^{234}Th 通量的断面分布图与沿不同等深线的分布图.....	36
图 4.2	陆架区 ^{234}Th 的平均来源项 (J_{def} 和 J_{cs})、去除项 (J_{sed}) 和离岸输出项 (J_{exp})	39
图 4.3	南海北部陆架区沉积物中 ^{234}Th 沉积通量与水体 ^{234}Th 输出通量的关系 图.....	41
图 4.4	南海陆架区水体中 ^{234}Th 的输出系数分布.....	42
附表 3.1	2012 年 8 月南海北部陆架区采样站位盐度、温度、 ^{234}Th 与 ^{238}U 活度、	

Chl-a、TSM 及 POC 浓度.....	59
附表 3.2 2012 年 8 月南海北部陆架区采样站位沉积物表层过剩 ^{234}Th 活度分布、 含水率、孔隙度与粒径.....	62
表 4.1 南海陆架区 ^{234}Th 收支平衡.....	40

厦门大学博硕士论文摘要库

Figures and Tables

Figure 1.1 The Uranium and Thorium series isotope and the half-lives of each isotope.....	2
Figure 1.2 An overview of some of the major applications of ^{234}Th in the aquatic systems	3
Figure 1.3 Biological pump in the ocean	5
Figure 1.4 Examples of particle-important transport processes along continental margins.....	7
Figure 2.1 A chart of the South China Sea with topographical features of the seabed.....	12
Figure 2.2 The North East Asia monsoon and ocean current system in the South China Sea.....	14
Figure 2.3 Map of sediment characteristics in the South China Sea.....	16
Figure 2.4 Sampling locations during the summer cruise of the South China Sea in 2012.....	17
Figure 2.5 The overall yields of $^{234}\text{Th}_{\text{xs}}$	21
Figure 3.1 Distribution of temperature (left panel) and salinity (right panel) in the South China Sea during the summer cruise.....	24
Figure 3.2 Distribution of Chl-a, TSM and POC in the South China Sea during the summer cruise.....	26
Figure 3.3 Depth profiles of ^{234}Th in the shelf of the northern South China Sea.....	27
Figure 3.4 A contour of ^{234}Th in the shelf of the northern South China Sea.....	28
Figure 3.5 Distribution of sediment water content in the shelf of northern South China Sea.....	29
Figure 3.6 Distribution of excess ^{234}Th in sediment in the shelf of the northern South China Sea.....	30
Figure 3.7 Distribution of ^{234}Th export flux in the shelf of the northern South China Sea.....	32
Figure 3.8 Distribution of ^{234}Th depositional flux in the shelf of the northern South China Sea.....	33
Figure 3.9 Distribution of ^{234}Th export flux and depositional flux in the shelf of the	

northern South China Sea.....	34
Figure 4.1 Section and isobaths distribution of ^{234}Th flux in the shelf in the northern South China Sea.....	36
Figure 4.2 Average supply rate (J_{def} and J_{cs}), removal rate (J_{sed}), and off-shelf export rate (J_{exp}) of ^{234}Th over the northern South China Sea shelf.....	39
Figure 4.3 Plot of ^{234}Th depositional flux against water column deficit of ^{234}Th for the north South China Sea shelf.....	41
Figure 4.4 The distribution of the ^{234}Th export factor from the water column in the South China Sea shelf.....	42
Table 3.1 Salinity, Temperature, ^{234}Th and ^{238}U activities, and POC concentration at the stations of the northern South China Sea.....	59
Table 3.2 ^{234}Th excess activities (dpm/g dry sediment), as well as water content, porosity and grain size in the near-surface sediment of the South China Sea shelf.....	62
Table 4.1 ^{234}Th budget for the South China Sea shelf (unit: dpm/m ² /d).....	40

第一章 绪论

提要:

本章主要阐述陆架海区颗粒有机碳(POC)的研究意义与现状,介绍 ^{234}Th 在海洋沉积物中与水体中的应用,接着重点讨论南海北部陆架区颗粒有机碳(POC)的跨陆架输运,最后提出本论文的主要研究内容、目标及结构框架。

1.1 ^{234}Th 在海洋水体及沉积物中的应用

海水中含有 U 的 3 种同位素 ^{238}U 、 ^{235}U 、 ^{234}U , 分别属于(4n+2)和(4n+3)天然放射系, 其半衰期分别为: 4.5×10^9 y、 7.04×10^8 y、 2.45×10^5 y, 与 ^{232}Th 系称为三大天然放射系(图 1.1), 在地球化学研究中, 习惯通称为铀系(Broecker and Peng, 1982)。对于铀系不平衡法的研究和应用, 将为一系列重要的海洋学过程提供准确可靠的时标或难能可贵的天然示踪剂(黄奕普, 2000)。U 在开阔大洋主要以 $\text{UO}_2(\text{CO}_3)_3^{4-}$ 的负电形式存在, 与同呈电负性的颗粒相斥, 所以 ^{238}U 难以被其吸附, 研究表明大洋海水中 $\leq 0.1\%$ 的 ^{238}U 以颗粒态的形式存在 (Hodge et al., 1979), 即 ^{238}U 基本没有颗粒活性而呈保守性, 与海水中的盐度呈现良好的线性关系(Chen et al., 1986)。

1.1.1 ^{234}Th 在海洋水体中的应用

^{234}Th 是使用最为广泛的用来研究海洋颗粒循环的示踪剂, Bhat 等人在 1969 年开创性的论文提出: ^{234}Th 在陆架边缘海区活度较低, 在较浅的 50-200m 的深度即可与其母体 ^{238}U 达到长期平衡。在海洋环境中, 利用颗粒活性的 ^{234}Th 对其溶解性的母体 ^{238}U 的亏损现象, 可以表征颗粒物的清除速率、沉积物捕集器效率、表层沉积物的混合及颗粒物在垂直与水平方向上的输送速率等(Waples et al., 2006)。

Degree papers are in the "[Xiamen University Electronic Theses and Dissertations Database](#)". Full texts are available in the following ways:

1. If your library is a CALIS member libraries, please log on <http://etd.calis.edu.cn/> and submit requests online, or consult the interlibrary loan department in your library.
2. For users of non-CALIS member libraries, please mail to etd@xmu.edu.cn for delivery details.

厦门大学博硕士论文摘要库