

学校编码: 10384

分类号_____密级_____

学号: 22420060153336

UDC_____

厦 门 大 学
博 士 学 位 论 文

中国边缘海 ^{210}Po 、 ^{210}Pb 地球化学行为
及其应用

Geochemical behaviors of ^{210}Po and ^{210}Pb and their
application in the China marginal seas

马 嫻

指导教师姓名: 陈 敏 教授

专 业 名 称: 海 洋 化 学

论文提交日期: 2013 年 08 月

论文答辩时间: 2013 年 11 月

学位授予日期: 2013 年 月

答辩委员会主席: _____

评 阅 人: _____

2013 年 08 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的其他个人或集体的研究成果,均在文中以明确方式标明,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(厦门大学海洋与地球学院同位素海洋化学)课题(组)的研究成果,获得(厦门大学海洋与地球学院同位素海洋化学)课题(组)经费或实验室的资助,在(厦门大学海洋与地球学院同位素海洋化学)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

目 录

摘 要	I
Abstract.....	III
第一章 绪 论	1
1.1 海洋颗粒动力学研究的重要性	1
1.2 ^{210}Po - ^{210}Pb 不平衡在海洋学研究中的应用	2
1.2.1 海洋真光层POC、PON输出通量的估算	2
1.2.2 近岸海域颗粒物的运移	5
1.2.3 海洋食物链中物质的传输	7
1.2.4 硫族元素生物地球化学循环及固氮作用的示踪研究	7
1.2.5 近岸沉积物的年代测定	8
1.2.6 海洋有机体中 ^{210}Po 的时间变化及其与环境变化的关系	10
1.3 本研究内容和目标	10
第二章 研究方法	12
2.1 研究海区及样品采集	12
2.1.1 研究海区	12
2.1.2 样品采集	15
2.2 ^{210}Po 、 ^{210}Pb 的测定	16
2.2.1 ^{210}Po 、 ^{210}Pb 测定方法评述	16
2.2.2 ^{210}Po 、 ^{210}Pb 的富集、分离、纯化和测定	18
2.2.3 ^{210}Po 、 ^{210}Pb 比活度的计算	20
2.3 POC的测定	20
2.4 温度、盐度的测定	21
2.5 ^{210}Po 、 ^{210}Pb 清除模型	21
2.5.1 ^{210}Pb 的稳态不可逆清除模型	22
2.5.2 ^{210}Pb 的非稳态不可逆清除模型	23
2.5.3 ^{210}Po 的稳态不可逆清除模型	23
2.5.4 ^{210}Po 的非稳态不可逆清除模型	25

第三章 北部湾湾口区海水中 ^{210}Po 、 ^{210}Pb 的季节变化	26
3.1 引言	26
3.2 样品采集与分析	27
3.2.1 样品采集	27
3.2.2 分析方法	27
3.3 温度、盐度的分布	33
3.4 颗粒有机碳 (POC) 的分布	36
3.5 ^{210}Po 的含量与分布	38
3.5.1 春季	38
3.5.2 夏季	39
3.5.3 秋季	40
3.5.4 冬季	42
3.6 ^{210}Pb 的含量与分布	43
3.6.1 春季	43
3.6.2 夏季	44
3.6.3 秋季	46
3.6.4 冬季	47
3.7 ^{210}Po 、 ^{210}Pb 活度浓度和 $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$) _{A.R.} 的季节变化	49
3.7.1 ^{210}Po 、 ^{210}Pb 活度浓度的季节变化及其影响因素	49
3.7.2 $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$) _{A.R.} 的季节变化及其影响因素	53
3.8 ^{210}Po 清除、迁出速率及POC的输出通量	59
3.8.1 稳态和非稳态模型得到的 ^{210}Po 清除、迁出速率结果的比较	59
3.8.2 ^{210}Po 清除、迁出速率的季节变化	62
3.8.3 ^{210}Po 停留时间的季节变化	62
3.8.4 ^{210}Po 的垂向输出通量	63
3.8.5 POC垂向输出通量	64
3.9 结论	65
第四章 东海和南黄海 $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$ 不平衡的研究	66
4.1 引言	66

4.2 样品采集	68
4.3 温度、盐度的分布	82
4.4 颗粒有机碳 (POC) 的分布	89
4.5 ^{210}Po 、 ^{210}Pb 的分布	94
4.5.1 夏季	94
4.5.2 秋季	104
4.5.3 冬季	112
4.6 $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$ 不平衡	118
4.6.1 夏季	119
4.6.2 秋季	119
4.6.3 冬季	122
4.7 $^{210}\text{Pb}/^{226}\text{Ra}$ 不平衡	124
4.7.1 夏季	124
4.7.2 冬季	126
4.8 ^{210}Po 、 ^{210}Pb 、 $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$) _{A.R.} 和 $^{210}\text{Pb}/^{226}\text{Ra}$) _{A.R.} 的季节变化及其影响因素	127
4.8.1 ^{210}Po 、 ^{210}Pb 的季节变化	127
4.8.2 $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$) _{A.R.} 的季节变化	129
4.8.3 $^{210}\text{Pb}/^{226}\text{Ra}$) _{A.R.} 的季节变化	129
4.8.4 大气沉降的影响	130
4.8.5 黑潮水的影响	131
4.8.6 长江径流的影响	132
4.8.7 沉积物再悬浮的影响	132
4.9 ^{210}Po 清除、迁出速率	134
4.9.1 稳态模型与非稳态模型结果的比较	134
4.9.2 ^{210}Po 清除迁出速率的季节变化	141
4.10 POC的输出通量	144
4.10.1 ^{210}Po 垂向输出通量	144
4.10.2 POC垂向输出通量	145
4.11 结论	146

第五章 南海北部海域 $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$ 不平衡的研究	147
5.1 引言	147
5.2 样品采集	148
5.3 温度、盐度的分布	153
5.4 颗粒有机碳 (POC) 的分布	154
5.5 ^{210}Pb 的含量与分布	162
5.5.1 溶解态 ^{210}Pb	162
5.5.2 颗粒态 ^{210}Pb	164
5.5.3 总 ^{210}Pb	166
5.6 ^{210}Po 的含量与分布	168
5.6.1 溶解态 ^{210}Po	168
5.6.2 颗粒态 ^{210}Po	171
5.6.3 总 ^{210}Po	173
5.7 $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$ 不平衡	176
5.8 表层水中各相态 ^{210}Po 和 ^{210}Pb 的停留时间	182
5.9 表层清除、迁出过程中 ^{210}Po 、 ^{210}Pb 的分馏因子	189
5.10 停留时间及分馏因子的影响因素	190
5.10.1 POC浓度	190
5.10.2 PN浓度	190
5.11 结论	193
第六章 结论	194
6.1 ^{210}Po 和 ^{210}Pb 的季节变化	194
6.2 ^{210}Po 和 ^{210}Pb 的空间变化	194
6.3 ^{210}Po 清除迁出作用及POC输出通量的季节变化	197
6.4 ^{210}Po 和 ^{210}Pb 活度浓度及 ^{210}Po 清除迁出作用的影响因素	197
6.5 不足与展望	197
参 考 文 献	199
附录：在学期间所做的主要工作	211
致 谢	214

Contents

Abstract in Chinese.....	I
Abstract in English	III
Chapter 1 Introduction.....	1
1.1 Importance of the study of particle dynamics in the ocean	1
1.2 Application of ^{210}Po-^{210}Pb disequilibria in marine environments.....	2
1.2.1 Evaluation of POC and PON export fluxes from euphotic zone	2
1.2.2 Particle transport in coastal zone	5
1.2.3 Material transfer along the food chain in the ocean	7
1.2.4 Tracing the biogeochemical cycles of sulfur group elements and nitrogen fixing	7
1.2.5 Chronology of the coastal sediments	8
1.2.6 The relation between temporal variation of ^{210}Po in marine organisms and change in environments.....	10
1.3 Projects of this thesis.....	10
Chapter 2 Methodology	12
2.1 Study area and sampling	12
2.1.1 Study area	12
2.1.2 Sampling	15
2.2 Measurement of ^{210}Po and ^{210}Pb	16
2.2.1 Review of ^{210}Po and ^{210}Pb measurements	16
2.2.2 Enrichment, separation, purification and determination of ^{210}Po and ^{210}Pb	18
2.2.3 Calculations.....	20
2.3 Measurement of POC concentration.....	20
2.4 Measurement of temperature and salinity.....	21
2.5 Scavenging models for ^{210}Po and ^{210}Pb.....	21

2.5.1 Steady state irreversible model for ^{210}Pb	22
2.5.2 Nonsteady state irreversible model for ^{210}Pb	23
2.5.3 Steady state irreversible model for ^{210}Po	23
2.5.4 Nonsteady state irreversible model for ^{210}Po	25
Chapter 3 Seasonal variations of ^{210}Po and ^{210}Pb in the water column at the mouth of the Beibu Gulf	26
3.1 Introduction.....	26
3.2 Sampling and analysis	27
3.2.1 Sampling	27
3.2.2 Method	27
3.3 Distribution of temperature and salinity	33
3.4 Distribution of POC concentration	36
3.5 Activity concentrations of ^{210}Po	38
3.5.1 Spring	38
3.5.2 Summer	39
3.5.3 Fall.....	40
3.5.4 Winter	42
3.6 Activity concentrations of ^{210}Pb	43
3.6.1 Spring.....	43
3.6.2 Summer	44
3.6.3 Fall.....	46
3.6.4 Winter	47
3.7 Temporal variations of ^{210}Po and ^{210}Pb and $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$ activity ratios	49
3.7.1 Temporal variations of ^{210}Po and ^{210}Pb and their influencing factors	49
3.7.2 Temporal variations of $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$ activity ratios and their influencing factors.....	53
3.8 Scavenging and removal rates of ^{210}Po and POC export flux.....	59
3.8.1 Scavenging and removal rates of ^{210}Po by SS and NSS models	59

3.8.2 Temporal variations of scavenging and removal rates of ^{210}Po	62
3.8.3 Temporal variations of the residence times of ^{210}Po	62
3.8.4 Removal flux of ^{210}Po	63
3.8.5 POC export flux	64
3.9 Conclusions	65
Chapter 4 Disequilibria between ^{210}Po and ^{210}Pb in the East China Sea and the Southern Yellow Sea.....	66
4.1 Introduction	66
4.2 Sampling	68
4.3 Distribution of temperature and salinity	82
4.4 Distribution of POC concentration	89
4.5 Distribution of ^{210}Po and ^{210}Pb activity concentrations	94
4.5.1 Summer	94
4.5.2 Fall	104
4.5.3 Winter	112
4.6 Disequilibria between ^{210}Po and ^{210}Pb	118
4.6.1 Summer	119
4.6.2 Fall	119
4.6.3 Winter	122
4.7 Disequilibria between ^{210}Pb and ^{226}Ra	124
4.7.1 Summer	124
4.7.2 Winter	126
4.8 Seasonal variations of ^{210}Po and ^{210}Pb , $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb})_{\text{A.R.}}$ and $^{210}\text{Pb}/^{226}\text{Ra})_{\text{A.R.}}$ and their influencing factors	127
4.8.1 Temporal variations of ^{210}Po and ^{210}Pb activity concentrations ...	127
4.8.2 Temporal variations of $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb})_{\text{A.R.}}$	129
4.8.3 Temporal variations of $^{210}\text{Pb}/^{226}\text{Ra})_{\text{A.R.}}$	129
4.8.4 Effect of atmospheric deposition	130
4.8.5 Effect of Kuroshio waters	131

4.8.6 Effect of the Yangtz River runoff.....	132
4.8.7 Effect of sedimentary remineralization.....	132
4.9 Scavenging and removal rates of ^{210}Po	134
4.9.1 Comparision between the NSS and SS models.....	134
4.9.2 Temporal variations of scavenging and removal rates of ^{210}Po	141
4.10 POC export flux	144
4.10.1 Removal flux of ^{210}Po	144
4.10.2 POC export flux	145
4.11 Conclusion.....	146
Chapter 5 Disequilibria between ^{210}Po and ^{210}Pb in the northern South China Sea	147
5.1 Introduction.....	147
5.2 Sampling	148
5.3 Distribution of temperature and salinity	153
5.4 Distribution of POC concentration	154
5.5 Distribution of ^{210}Pb activity concentration	162
5.5.1 Dissolved ^{210}Pb	162
5.5.2 Particulate ^{210}Pb	164
5.5.3 Total ^{210}Pb	166
5.6 Distribution of ^{210}Po activity concentration.....	168
5.6.1 Dissolved ^{210}Po	168
5.6.2 Particulate ^{210}Po	171
5.6.3 Total ^{210}Po	173
5.7 Disequilibria between ^{210}Po and ^{210}Pb	176
5.8 Residence times of ^{210}Po and ^{210}Pb in surface water	182
5.9 Fractionation factors between ^{210}Po and ^{210}Pb during savenging and removal process	189
5.10 Influencing factors for residence times and fractionation.....	190
5.10.1 POC concentration.....	190

5.10.2 PN concentration.....	190
5.11 Conclusion.....	193
Chapter 6 Conclusion	194
6.1 Temporal variation of ^{210}Po and ^{210}Pb	194
6.2 Spatial variation of ^{210}Po and ^{210}Pb	194
6.3 Temporal variations of scavenging and removal process and POC export flux.....	197
6.4 Influencing factors	197
6.5 Shortcomings and outlook.....	197
References	199
Appendixes	211
Acknowledgements	214

摘 要

本研究通过对北部湾湾口、南黄海、东海、南海北部海域进行的共计 10 个航次的调查、采样及分析,对海水中 ^{210}Pb 和 ^{210}Po 活度浓度的时空分布特征进行研究,并利用模型估算出 ^{210}Po 的清除迁出速率、停留时间、垂向迁出通量以及 POC 输出通量。得到主要结果如下:

1) 北部湾溶解态和总 ^{210}Pb 活度浓度春、夏季较秋、冬季高,颗粒态刚好相反,春、夏季低于秋、冬季。溶解态和总 ^{210}Po 活度浓度秋季最低,其余三个季节变化较小,但夏季各层次之间活度浓度变化比较明显;颗粒态 ^{210}Po 活度浓度秋季最高,冬季最低,春、夏季居中,且二者相接近。各站位近底层溶解态 ^{210}Pb 活度浓度随离岸距离的增加而增加,颗粒态 ^{210}Pb 活度浓度随离岸距离的增加而减小。多数站位总态 $(^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb})_{\text{A.R.}}$ ($T^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb})_{\text{A.R.}}$ 随深度增加而增加, $T^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb})_{\text{A.R.}}$ 在不同季节呈现不同的分布趋势,但因受径流、水体混合等因素的影响,其变化没有明显的规律性。

2) 在北部湾湾口海域,稳态清除模型得到的 ^{210}Po 输出通量比非稳态模型更为合理。由此计算出 ^{210}Po 和 ^{210}Pb 的停留时间和 POC 的输出通量,其中 H17 站和 H12 站的 POC 输出通量于春、夏两季较高,H14 站在冬、春两季较高,离岸最远的 J82 站则为春、秋两季较高。

3) 在南黄海和东海海域,陆坡区中层水体 ^{210}Po 和 ^{210}Pb 活度浓度的分布明显受到黑潮水的影响。陆架区颗粒态是 ^{210}Po 和 ^{210}Pb 的主要存在形式,而陆坡区则以溶解态为主。夏季期间,各相态 ^{210}Po 和 ^{210}Pb 活度浓度在不同深度变化较大。秋、冬季时,由于水体混合作用强烈,在不受黑潮水影响的站位上, ^{210}Po 和 ^{210}Pb 活度浓度在整个水柱中分布较为均匀。

4) 在南黄海和东海海域,由非稳态模型计算的结果显示,2006.07-2007.01 期间, ^{210}Po 的清除、迁出速率和输出通量均要小于 2007.01-2007.11 期间的结果,停留时间则较长。由 $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$ 不平衡估算得到的 POC 输出通量介于 $-258.99-2379.08 \text{ mmolC/m}^2/\text{a}$ 之间,2006.07-2007.01 期间同一站位的 POC 输出通量低于 2007.01-2007.11 期间的结果。

5) 在南海北部海域,溶解态 ^{210}Po 活度浓度占总 ^{210}Po 的比例呈现由近岸到外海增加的特征,与颗粒物浓度的空间变化有关。

6) 溶解态 ^{210}Po 平均停留时间略低于溶解态 ^{210}Pb 的平均停留时间, 而颗粒态 ^{210}Po 平均停留时间与颗粒态 ^{210}Pb 平均停留时间接近或更长。在清除迁出过程中, 清除过程所导致的 ^{210}Po 、 ^{210}Pb 分馏效应不明显, 但迁出过程可导致 ^{210}Po 、 ^{210}Pb 的明显分馏。

关键词: 中国边缘海; $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$ 不平衡; 颗粒动力学; 停留时间; 季节变化

厦门大学博硕士学位论文摘要库

Abstract

Activity concentrations of ^{210}Pb and ^{210}Po in China marginal seas, including the Beibu Gulf, the southern Yellow Sea, the East China Sea and the northern South China Sea, were determined. The spatial and temporal distribution of them was depicted. The scavenging and removal rates, residence times, removal flux of ^{210}Po and POC export flux were calculated by steady-state (SS) and non-steady-state (NSS) models. The major results we obtained were as follows:

1) In the Beibu Gulf, dissolved and total ^{210}Pb activity concentrations were higher in spring and summer than those in fall and winter. The seasonal pattern of particulate ^{210}Pb was opposite to that of dissolved ^{210}Pb . The dissolved and total ^{210}Po activity concentrations were the lowest in fall, while particulate ^{210}Po activity concentrations were the highest in fall and the lowest in winter. Dissolved ^{210}Pb at the bottom layer in most stations increased with distance from the shore, while particulate ^{210}Pb decreased. Total $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$ activity ratios increased with increasing depth, and showed different trends in different seasons at most stations.

2) Removal fluxes of ^{210}Po estimated by SS model were more reasonable than those by NSS model in the Beibu Gulf. POC export fluxes derived by ^{210}Po - ^{210}Pb disequilibria were the highest in spring.

3) In the southern Yellow Sea and the East China Sea, ^{210}Pb and ^{210}Po activity concentrations at the mid-layer in the slope region were significantly affected by Kuroshio waters. The particulate ^{210}Pb and ^{210}Po was the dominate phase in the shelf while dissolved form dominated in the slope. The activity concentrations of ^{210}Po and ^{210}Pb varied largely with depth in summer, while little vertical variations at stations without the influence of Kuroshio in fall and winter due to the enhanced water mixing.

4) In the southern Yellow Sea and the East China Sea, the scavenging and removal rates and removal fluxes of ^{210}Po during summer to winter were lower than those during winter to fall by NSS model, while the residence times of ^{210}Po was opposite. The POC export fluxes estimated from $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$ disequilibria ranged from -258.99 to 2379.08 $\text{mmolC}/\text{m}^2/\text{a}$, with a lower flux from summer to winter than that

from winter to fall.

5) In the northern South China Sea, the proportions of dissolved ^{210}Po to total ^{210}Po increased from the inshore to the deep basin, indicating the effect of the particle concentrations.

6) The mean residence time of dissolved ^{210}Po was slightly lower than that of ^{210}Pb in the northern South China Sea, while the mean residence time of particulate ^{210}Po was close to or longer than that of ^{210}Pb . There was no significant fractionation between dissolved ^{210}Po and ^{210}Pb during scavenging process, but a significant fractionation between particulate ^{210}Po and ^{210}Pb was observed during removal process.

Key words: China marginal seas; $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$ disequilibria; particle dynamics; residence time; seasonal variation

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