

南沙海域表层水中 $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$ 不平衡 及其海洋学意义*

杨伟锋 黄奕普** 陈敏 张磊 李鸿宾 刘广山 邱雨生

(① 厦门大学海洋系, 厦门 361005; ② 近海海洋环境科学国家重点实验室, 厦门 361005)

摘要 对南沙海域表层水中溶解态($<0.45\ \mu\text{m}$)和颗粒态($>0.45\ \mu\text{m}$) ^{210}Po 和 ^{210}Pb 进行了研究. 结果表明, 南沙海域表层水中溶解态和颗粒态 ^{210}Po 平均比活度分别为 $0.61\ \text{Bq}/\text{m}^3$ ($n=24$)和 $0.43\ \text{Bq}/\text{m}^3$ ($n=23$). 溶解态和颗粒态 ^{210}Pb 平均比活度分别为 $1.66\ \text{Bq}/\text{m}^3$ ($n=24$)和 $0.23\ \text{Bq}/\text{m}^3$ ($n=23$). 颗粒态 ^{210}Pb 比活度约占总 ^{210}Pb 比活度的12%, 与开阔大洋相应值吻合; 而颗粒态 ^{210}Po 占总 ^{210}Po 的比例约40%, 明显高于开阔大洋和富营养海域. 根据稳态不可逆模型得到总 ^{210}Po 和 ^{210}Pb 的停留时间分别为0.82和1.16 a. 清除过程中 ^{210}Po 和 ^{210}Pb 的平均分馏因子由清除速率常数法和固-液分配系数法计算分别为5.42和6.69, 揭示了 ^{210}Po 和 ^{210}Pb 从溶解相清除至颗粒相的过程中发生了明显的分馏. 进一步的研究证明了南沙海域 ^{210}Po 和 ^{210}Pb 的分馏主要由微生物控制, 与富营养海域的分馏机制不同: 在富营养海域, 浮游植物颗粒和粪粒充当 ^{210}Po 和 ^{210}Pb 清除和迁出过程的主要载体, ^{210}Po 和 ^{210}Pb 的分馏主要发生于浮游植物颗粒和粪粒对两核素的清除过程; 在寡营养南沙海域, 由于浮游植物颗粒和粪粒的相对贫乏, 使微生物对 ^{210}Po 的清除作用相对突出, 并在此过程中使 ^{210}Po 和 ^{210}Pb 产生明显的分馏效应. 这与寡营养的马尾藻海的研究结果极为相似, 进一步证实寡营养海域和富营养海域 ^{210}Po 生物地球化学行为和循环路径的差异. 这表明 ^{210}Po 可能是研究与微生物有关的海洋学过程, 尤其是研究硫族元素(S, Se, Te和Po)生物地球化学循环的有用示踪剂.

关键词 南沙海域 ^{210}Po ^{210}Pb 不平衡 清除 微生物

^{210}Po ($T_{1/2}=138.4\ \text{d}$)是 ^{210}Pb ($T_{1/2}=22.3\ \text{a}$)的蜕变子 的动力学研究^[1]. 通常根据 ^{226}Ra - ^{210}Pb - ^{210}Po 之间的不平衡来研究不同时间尺度的海洋学过程. Rama等^[2]首

收稿日期: 2004-06-22; 接受日期: 2004-11-29

* 国家自然科学基金(批准号: 40576037, 90411016, 40376021)和南沙“十五”国家专项基金(2001DIA50041-4-303)资助项目

** 联系人, E-mail: yphuang@jingxian.xmu.edu.cn

次发现海洋表层水体 ^{210}Pb 过剩于其母体 ^{226}Ra , 并得出结论: 表层水体 ^{210}Pb 主要来源于气溶胶 ^{210}Pb 的沉降. 但后来的研究发现表层海水中 ^{210}Pb 含量远低于大气输入的期望水平, 因此, 海洋工作者推测 ^{210}Pb 沉降到表层海水后会在 2 年内随颗粒物沉降迁出. Shannon 等^[3]和 Tsunogai 等^[4]发现在生物地球化学循环中, ^{210}Po 比 ^{210}Pb 更为活跃. 尽管 ^{210}Po 的半衰期小于 ^{210}Pb , $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$ 不平衡现象普遍存在, 如开阔大洋表层海水的典型 $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$ 比值为 0.5^[5-7]. ^{210}Pb 通常易被无机颗粒所吸附^[8], 而 ^{210}Po 更容易被微生物吸收, 然后被微型动物摄食, 进而被更高营养级海洋生物所富集^[9-12], 如浮游动物中 $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$ 比值通常为 12^[3,13,14]. ^{210}Po 和 ^{210}Pb 与颗粒物亲和力之间的差异导致表层海水中两核素在清除和迁出过程中发生分馏, 但早期的多数研究都是利用表层水体中总的 ^{210}Po 和 ^{210}Pb 不平衡来进行示踪研究, 近年来对于表层海水溶解相和颗粒相中 ^{210}Po 和 ^{210}Pb 的不平衡研究逐渐增多^[12,15-17], 但大多数研究都是富营养海域和中等营养状况的海域, 而且没有对 ^{210}Po 和 ^{210}Pb 从溶解相清除至颗粒相以及颗粒物的沉降迁出过程中的分馏作用进行研究. 迄今对寡营养海域 ^{210}Po 和 ^{210}Pb 的研究甚少, 仅见 Kim^[12] 对寡营养的马尾藻海进行了研究, 而且得出了与富营养海域完全不同的结果. Kim^[12] 认为在寡营养海域微生物如蓝细菌对 Po 等硫族元素的吸收(或摄取)导致 ^{210}Po 相对于其母体 ^{210}Pb 的严重亏损, 这一研究结果表明, 对于微生物在硫族元素生物地球化学循环中的作用的研究, ^{210}Po 示踪研究将起着独特而重要的作用.

南沙海域具有营养盐贫乏、初级生产力低等特征, 有着特殊的生态环境. 但迄今国内外尚没有对南沙表层水体的 ^{210}Po 和 ^{210}Pb 进行过全面、系统的研究, 只有 Nozaki 等^[8] 测试过两个表层水样的总 ^{210}Po 和总 ^{210}Pb , 林瑞芬等^[18] 报道过两个站位(水深 100 和 135 m) 总 ^{210}Po 的深度分布. “十五”期间, 我们开展了南沙海域 ^{210}Po 和 ^{210}Pb 的研究, 获得了多方面重要结果, 本文着重报道其表层水中的 $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$ 不平衡.

1 样品的采集与分析

海水和颗粒物样品由中国科学院南海海洋研究

所“实验 3”号科考船 2002 年 5 月南沙“十五”航次采集, 样品采集的相关资料见表 1. 样品均为表层水样, 每个站位采集 20 升海水, 为了减少颗粒下沉、分解和吸附在采样瓶的表面上, 采样后立即过滤, 用 0.45 μm 的增强型混合纤维素(CN-CA)膜分成颗粒相和溶解相, 滤膜冷冻保存带回实验室处理, 取过滤后的海水(~10 升)装入聚乙烯桶, 用浓 HCl 酸化至 pH 约为 1, 然后密封带回陆上实验室处理. 测站的温度、盐度、水深和 Chl.a 数据(752 型紫外分光光度计测量)由中国科学院南海海洋研究所提供.

颗粒态和溶解态 ^{210}Po , ^{210}Pb 的富集、分离、纯化和测量见 Yang 等^[19]. 简述如下: 滤液中加入 50 mg Fe^{3+} 载体、20 mg Pb^{2+} 载体和 1 dpm ^{209}Po 标准溶液, 搅拌均匀, 平衡 24 h 后, 用浓氨水调节 pH 约为 9.0, 形成 $\text{Fe}(\text{OH})_3$ 沉淀, 静置过夜, 弃去上层清液, 离心收集沉淀, 然后用盐酸溶解并加入定量的抗坏血酸和柠檬酸钠, 调节 pH 为 1.5, 在 85°C 下将 ^{209}Po 和 ^{210}Po 自沉积于银片上, 用于 α 能谱测量; 颗粒物经 HF, HNO_3 和 HClO_4 混合酸消化后按与溶解态相同的程序分离、测定 ^{210}Po . 并对样品采集至第一次分离 ^{210}Po 期间 ^{210}Pb 生长的 ^{210}Po 进行校正. ^{210}Po 自沉积后的溶液放置约 1 年后, 进行 ^{210}Po 的第二次自沉积, 测量 ^{210}Pb 生长的 ^{210}Po , 进而计算 ^{210}Pb 比活度. 用原子吸收光谱法测定稳定 Pb 回收率. 文中给出的结果均已对衰变与生长时间、第一次 ^{210}Po 自沉积后残留的 ^{210}Po 和 ^{209}Po 、试剂空白、仪器本底、误差等进行了校正, 计数统计误差为 $\pm 1\sigma$.

2 结果

2.1 溶解态 ^{210}Po 和 ^{210}Pb 的含量水平

表 2 给出了 24 个测站溶解态(D)、颗粒态(P)、总(T) ^{210}Po 和 ^{210}Pb 的比活度($T=D+P$)及各相态 $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$ 的活度比值(Activity Ratio, 缩写为 A. R.). 溶解态 ^{210}Po (即 $D^{210}\text{Po}$) 的比活度介于 0.11~1.73 Bq/m^3 之间, 平均值为 0.61 Bq/m^3 , 约占总 ^{210}Po ($T^{210}\text{Po}$) 的 60%, 低于赤道太平洋^[20] (0.78 ~ 1.8 Bq/m^3)、印度洋中部和东部^[21] (0.92 ~ 1.32 Bq/m^3) 和 Masqué 等^[17] 在地中海西北部表层水体的结果 (0.48 ~

表 1 南沙海域表层水采样站位及相关参数

站号	纬度(N)	经度(E)	温度/°C	盐度	水深/m	Chl.a/mg · m ⁻³	采样日期
NS1	11°59.711'	110°59.869'	29.650	33.630	2856	0.038	2002-05-09
NS2	11°59.504'	111°59.826'	29.608	33.470	4126		2002-05-10
NS3	12°00.096'	112°59.863'	29.662	33.480	4314	0.034	2002-05-10
NS4	11°59.473'	113°59.805'	29.751	33.673	4358		2002-05-10
NS5	11°11.872'	113°59.812'	29.742	33.401	3748	0.036	2002-05-10
NS6	10°18.000'	114°00.000'	29.633	33.538	1320		2002-05-11
NS7	09°35.010'	113°57.754'	29.951	33.647	2282	0.031	2002-05-11
NS13	09°59.665'	110°28.776'	29.948	33.381	2558	0.039	2002-05-12
NS14	09°23.720'	111°23.586'	30.096	33.593	1758		2002-05-12
NS15	08°55.668'	111°57.672'	29.949	33.454	1420	0.036	2002-05-13
NS16	08°29.900'	111°23.934'	29.873	33.518	1458		2002-05-13
NS19	08°23.849'	110°18.125'	29.975	33.599	342		2002-05-13
NS23	08°30.000'	108°48.000'	29.851	33.567	116	0.047	2002-05-14
NS37	05°25.325'	113°52.566'	30.764	33.038	1355	0.069	2002-05-19
NS40	06°48.070'	115°12.113'	30.750	33.072	1410	0.047	2002-05-19
NS41	06°53.930'	114°30.198'	30.796	31.963	2890		2002-05-19
NS42	07°09.338'	114°02.640'	30.194	33.321	1735	0.047	2002-05-20
NS43	07°48.024'	113°29.727'	30.266	33.620	1720		2002-05-20
NS44	08°18.187'	114°05.737'	30.269	33.709	1488	0.048	2002-05-20
NS49	12°00.068'	116°42.031'	30.062	33.652	2662		2002-05-23
NS50	08°12.183'	116°23.822'	30.052	33.758	1745	0.049	2002-05-21
NS58	12°00.233'	116°06.050'	30.052	33.661	3039		2002-05-23
NS59	12°00.064'	115°30.145'	29.930	33.497	4368		2002-05-23
NS60	12°00.086'	114°42.122'	29.840	33.547	4369	0.048	2002-05-23

1.92 Bq/m³). D²¹⁰Pb的比活度介于 0.87~2.51 Bq/m³ 之间, 平均值为 1.66 Bq/m³, 略高于Masqué 等^[17]在地中海西北部表层水体的结果(0.72 ~ 1.83 Bq/m³), 约占总 ²¹⁰Pb(T²¹⁰Pb)的 87%, 明显高于D²¹⁰Po所占比例. 显然, 南沙海域表层水中的 ²¹⁰Po和 ²¹⁰Pb均主要以溶解态存在, 表现为开阔大洋的特征. D²¹⁰Po/D²¹⁰Pb)_{A,R} 介于 0.10~0.99 之间, 平均为 0.37(表 2).

2.2 颗粒态 ²¹⁰Po 和 ²¹⁰Pb 的含量水平

颗粒态 ²¹⁰Po(即P²¹⁰Po)的比活度介于 0.19~0.75 Bq/m³ 之间, 平均值为 0.43 Bq/m³(表 2), 与华盛顿沿岸^[22](0.18 ~ 0.85 Bq/m³)和挪威Framvaren峡湾^[23](0.41 Bq/m³)P²¹⁰Po比活度一致, 高于地中海西北部表层水体P²¹⁰Po比活度^[17](0.11 ~ 0.39 Bq/m³). P²¹⁰Po约占T²¹⁰Po的 40%, 此结果明显高于富营养海域P²¹⁰Po所占的比例(红海 30%^[24]; 孟加拉湾<15%^[25]; 西北地中海 21%^[17]). P²¹⁰Pb比活度介于 0.16~0.39 Bq/m³ 之间, 平均为 0.23 Bq/m³(表 2), 明显高于地中

海西北部P²¹⁰Pb比活度^[17](0.025 ~ 0.064 Bq/m³). P²¹⁰Po/P²¹⁰Pb)_{A,R}介于 0.86~2.99 之间, 平均为 1.90(表 2).

2.3 总 ²¹⁰Po 和 ²¹⁰Pb 的含量水平

研究海域T²¹⁰Po比活度介于 0.42 ~ 2.09 Bq/m³, 平均值为 1.04 Bq/m³(表 2), 约为Nozaki等^[8]冬季在南海南部陆架两个测站得到的T²¹⁰Po比活度(0.5 Bq/m³)的两倍, 而与其在新加坡附近海域得到的T²¹⁰Po比活度相当. T²¹⁰Pb比活度介于 1.16~2.79 Bq/m³, 平均值为 1.90 Bq/m³(表 2), 高于Nozaki等^[8]得到的南海南部陆架两个测站的T²¹⁰Pb 比度(0.67 Bq/m³), 但低于邢娜¹⁾在相同海域 4~5 月份得到的结果(介于 1.53~6.98 Bq/m³, 平均为 2.42 Bq/m³). 显然, T²¹⁰Pb比活度高于T²¹⁰Po比活度. 研究海域 T²¹⁰Po/T²¹⁰Pb)_{A,R} 介于 0.22~1.07 之间, 平均为 0.56(表 2), 与典型的开阔大洋表层水T²¹⁰Po/T²¹⁰Pb)_{A,R}0.5 一致^[5~7].

1) 邢娜. 海水中 ²²⁶Ra, ²²⁸Ra 及 ²¹⁰Pb 的分布及其应用. 厦门大学硕士论文, 2002, 87~95

表 2 南沙海域表层水中 ^{210}Po , ^{210}Pb 的比活度及 $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$ 的 A.R.^{a)}

站号	D^{210}Po	P^{210}Po	T^{210}Po	D^{210}Pb	P^{210}Pb	T^{210}Pb	$^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$ A.R.		
							D	P	T
	Bq/m ³								
NS1	1.73 ± 0.19	0.37 ± 0.04	2.10 ± 0.19	1.74 ± 0.15	0.22 ± 0.02	1.96 ± 0.15	0.99 ± 0.14	1.68 ± 0.25	1.07 ± 0.13
NS2	0.60 ± 0.06	0.46 ± 0.04	1.06 ± 0.08	2.21 ± 0.18	0.22 ± 0.02	2.43 ± 0.18	0.27 ± 0.04	2.09 ± 0.30	0.44 ± 0.04
NS3	0.56 ± 0.06	0.49 ± 0.05	1.06 ± 0.08	2.47 ± 0.20	0.32 ± 0.03	2.79 ± 0.20	0.23 ± 0.63	1.53 ± 0.21	0.38 ± 0.04
NS4	0.74 ± 0.08	0.27 ± 0.03	1.01 ± 0.08	1.71 ± 0.15	0.21 ± 0.02	1.92 ± 0.15	0.43 ± 0.06	1.28 ± 0.21	0.53 ± 0.06
NS5	0.38 ± 0.04	—	—	1.60 ± 0.14	—	—	0.24 ± 0.03	—	—
NS6	0.53 ± 0.06	0.33 ± 0.07	0.86 ± 0.09	1.34 ± 0.10	0.31 ± 0.06	1.65 ± 0.12	0.40 ± 0.05	1.06 ± 0.29	0.52 ± 0.07
NS7	0.67 ± 0.07	0.42 ± 0.04	1.09 ± 0.08	1.43 ± 0.12	0.17 ± 0.02	1.60 ± 0.12	0.47 ± 0.06	2.47 ± 0.32	0.68 ± 0.07
NS13	0.64 ± 0.07	0.44 ± 0.05	1.08 ± 0.08	1.62 ± 0.16	0.16 ± 0.02	1.78 ± 0.16	0.40 ± 0.06	2.75 ± 0.38	0.60 ± 0.07
NS14	0.26 ± 0.03	0.33 ± 0.04	0.60 ± 0.05	2.51 ± 0.20	0.20 ± 0.02	2.71 ± 0.20	0.11 ± 0.02	1.65 ± 0.27	0.22 ± 0.02
NS15	0.87 ± 0.08	0.50 ± 0.05	1.38 ± 0.10	1.72 ± 0.14	0.19 ± 0.02	1.91 ± 0.14	0.51 ± 0.06	2.63 ± 0.37	0.72 ± 0.08
NS16	0.51 ± 0.05	0.37 ± 0.04	0.88 ± 0.07	2.06 ± 0.17	0.25 ± 0.03	2.32 ± 0.17	0.25 ± 0.03	1.48 ± 0.23	0.38 ± 0.04
NS19	0.59 ± 0.06	0.55 ± 0.06	1.14 ± 0.08	1.62 ± 0.15	0.20 ± 0.02	1.82 ± 0.15	0.36 ± 0.05	2.75 ± 0.37	0.63 ± 0.07
NS23	0.77 ± 0.08	0.31 ± 0.04	1.08 ± 0.09	1.37 ± 0.12	0.21 ± 0.02	1.58 ± 0.12	0.56 ± 0.07	1.47 ± 0.23	0.68 ± 0.08
NS37	0.11 ± 0.03	0.31 ± 0.02	0.42 ± 0.04	0.87 ± 0.09	0.29 ± 0.03	1.16 ± 0.10	0.12 ± 0.04	1.07 ± 0.14	0.36 ± 0.04
NS40	0.67 ± 0.07	0.69 ± 0.06	1.36 ± 0.09	1.41 ± 0.13	0.23 ± 0.03	1.64 ± 0.13	0.48 ± 0.06	2.99 ± 0.42	0.83 ± 0.09
NS41	0.39 ± 0.04	0.37 ± 0.04	0.75 ± 0.06	1.08 ± 0.11	0.39 ± 0.04	1.47 ± 0.11	0.36 ± 0.05	0.94 ± 0.16	0.51 ± 0.06
NS42	0.49 ± 0.05	0.62 ± 0.07	1.12 ± 0.09	1.31 ± 0.14	0.27 ± 0.04	1.58 ± 0.14	0.38 ± 0.05	2.30 ± 0.39	0.71 ± 0.08
NS43	0.48 ± 0.05	0.19 ± 0.02	0.67 ± 0.06	1.42 ± 0.12	0.22 ± 0.02	1.63 ± 0.12	0.34 ± 0.05	0.86 ± 0.13	0.41 ± 0.04
NS44	0.42 ± 0.06	0.30 ± 0.03	0.71 ± 0.06	1.43 ± 0.11	0.27 ± 0.02	1.69 ± 0.11	0.29 ± 0.04	1.11 ± 0.15	0.42 ± 0.04
NS49	0.97 ± 0.10	0.38 ± 0.05	1.36 ± 0.11	1.69 ± 0.13	0.16 ± 0.02	1.85 ± 0.13	0.57 ± 0.07	2.37 ± 0.41	0.73 ± 0.08
NS50	0.45 ± 0.05	0.44 ± 0.04	0.89 ± 0.07	1.39 ± 0.12	0.17 ± 0.02	1.57 ± 0.12	0.32 ± 0.04	2.59 ± 0.41	0.57 ± 0.06
NS58	1.17 ± 0.12	0.31 ± 0.04	1.48 ± 0.13	1.84 ± 0.14	0.20 ± 0.02	2.05 ± 0.14	0.63 ± 0.08	1.55 ± 0.23	0.72 ± 0.08
NS59	0.36 ± 0.04	0.61 ± 0.10	0.96 ± 0.10	1.77 ± 0.15	0.24 ± 0.04	2.02 ± 0.16	0.20 ± 0.03	2.54 ± 0.54	0.48 ± 0.06
NS60	0.23 ± 0.03	0.75 ± 0.09	0.98 ± 0.09	2.27 ± 0.22	0.29 ± 0.03	2.55 ± 0.22	0.10 ± 0.02	2.59 ± 0.41	0.38 ± 0.05

a) 表中 D, P 和 T 分别表示溶解态、颗粒态和总的比活度或活度比值(T=D+P)

3 讨论

3.1 表层水体的 $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$ 及 $^{210}\text{Pb}/^{226}\text{Ra}$ 不平衡

研究海域 ^{226}Ra 的比活度介于 0.82~1.98 Bq/m³ 之间, 平均为 1.1 Bq/m³[26,27]。本研究得到的 ^{210}Pb 平均比活度高于 ^{226}Ra 的比活度, 体现了开阔大洋表层水体 ^{210}Pb 过剩于母体 ^{226}Ra 的特征。开阔大洋表层水体 ^{210}Pb 主要来源于携带 ^{210}Pb 的气溶胶的干、湿沉降(主要为湿沉降), 表层水体 ^{226}Ra 现场衰变产生的 ^{210}Pb (通过 ^{222}Rn 及其短寿命子体衰变)贡献小。南沙海域的年降雨量属世界的高值区和东南亚的雨峰区[28], 且该海域的平均降雨量没有明显的季节差异, 南部海区的降雨量更高, 其年平均降雨量为 2813.50 mm, 因此, 南沙海域表层水体呈现 ^{210}Pb 明显过剩于 ^{226}Ra 的特征是不难理解的。

表层水体的 ^{210}Po 主要由其母体 ^{210}Pb 的衰变产生, 大气沉降过程带来的 ^{210}Po 很少(大气沉降 ^{210}Po /

^{210}Pb)_{A.R.} 约为 0.1), 一般都被忽略[8,13]。而表层水体 ^{210}Po 和 ^{210}Pb 的迁出主要通过其自身的衰变和清除、沉降过程。一般地, ^{210}Po 对颗粒有机物的亲和力比 ^{210}Pb 更强[5,7,29], 微生物也会吸收 ^{210}Po [12], 然后被浮游动物摄食, 进而向高营养级传递, 故随营养级的上升 $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$ 比值愈来愈大[30], 而 ^{210}Pb 则是被颗粒物和生物体表面所吸附。因此, $\text{P}^{210}\text{Po}/\text{P}^{210}\text{Pb}$ A.R. 大于 1(平均为 1.90), $\text{D}^{210}\text{Po}/\text{D}^{210}\text{Pb}$ A.R. 小于 1, 体现了开阔大洋和深海区的特征。

3.2 表层水体各相态 ^{210}Po 和 ^{210}Pb 的停留时间

停留时间是了解和量度 ^{210}Po 与 ^{210}Pb 在各相态及各贮库中地球化学行为的重要指标。根据质量平衡关系, 可以建立如下表层水体中各相态 ^{210}Po 和 ^{210}Pb 随时间变化的关系方程:

$$\partial A_{\text{DPb}}/\partial t = \lambda_{\text{Pb}}(E + A_{\text{Ra}} - A_{\text{DPb}}) - k_{\text{DPb}}A_{\text{DPb}}, \quad (1)$$

$$\partial A_{\text{DPo}}/\partial t = \lambda_{\text{Po}}(A_{\text{DPb}} - A_{\text{DPo}}) - k_{\text{DPo}}A_{\text{DPo}}, \quad (2)$$

$$\partial A_{\text{PPb}}/\partial t = k_{\text{DPb}}A_{\text{DPb}} - \lambda_{\text{Pb}}A_{\text{PPb}} - k_{\text{PPb}}A_{\text{PPb}}, \quad (3)$$

$$\partial A_{\text{PPo}}/\partial t = k_{\text{DPo}}A_{\text{DPo}} + \lambda_{\text{Po}}A_{\text{PPb}} - \lambda_{\text{Po}}A_{\text{PPo}} - k_{\text{PPo}}A_{\text{PPo}}, \quad (4)$$

$$\partial A_{\text{TPb}}/\partial t = \lambda_{\text{Pb}}(E + A_{\text{Ra}} - A_{\text{TPb}}) - k_{\text{TPb}}A_{\text{TPb}}, \quad (5)$$

$$\partial A_{\text{TPo}}/\partial t = \lambda_{\text{Po}}(A_{\text{TPb}} - A_{\text{TPo}}) - k_{\text{TPo}}A_{\text{TPo}}. \quad (6)$$

上述(1)和(2)式为溶解态 ^{210}Pb 和 ^{210}Po 的质量平衡方程, 式中 λ_{Pb} 和 λ_{Po} 分别为 ^{210}Pb 和 ^{210}Po 的衰变常数(分别为 0.031 和 1.83 a^{-1}), A_{Ra} , A_{DPb} 和 A_{DPo} 分别代表 ^{226}Ra , D^{210}Pb 和 D^{210}Po 的比活度(Bq/m^3), k_{DPb} 和 k_{DPo} 分别为 D^{210}Pb 和 D^{210}Po 清除(scavenging)至颗粒相的一级速率常数(a^{-1}). E 为大气沉降对表面混合层贡献的有效 ^{210}Pb 浓度(Bq/m^3), 由于大气沉降对混合层 ^{210}Pb 的贡献受 ^{210}Pb 的沉降通量 $I(\text{dpm} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{a}^{-1})$ 和混合层厚度 $h(\text{m})$ 的影响, 因此,

$$E = I/(10^{-4} \cdot 60 \cdot h \cdot \lambda_{\text{Pb}}), \quad (7)$$

上式中 10^{-4} 表示厚度为 1 m 、表面积 1 cm^2 的上层海水体积为 10^{-4} m^3 , 60 为放射性活度单位 Bq 和 dpm 之间的换算因子.

方程(3)和(4)为 P^{210}Pb 和 P^{210}Po 的质量平衡方程, A_{PPb} 和 A_{PPo} 分别代表 P^{210}Pb 和 P^{210}Po 的比活度(Bq/m^3), k_{PPb} 和 k_{PPo} 分别为 P^{210}Pb 和 P^{210}Po 迁出(removal)或沉降的一级速率常数(a^{-1}). 方程(5)和(6)是总 ^{210}Po 和 ^{210}Pb 的质量平衡方程, A_{TPb} 和 A_{TPo} 分别代表 T^{210}Pb 和 T^{210}Po 的比活度(Bq/m^3). 研究期间, 南沙处于季风转型期, 表层海流流速很小, 且在南沙海域中部形成补偿性中部逆流^[31], 平流和扩散的影响很小. 因此, 上述方程忽略了扩散和平流过程的影响. 稳态条件下得到各相态 ^{210}Pb 和 ^{210}Po 的停留时间:

$$\tau_{\text{DPb}} = 1/k_{\text{DPb}} = A_{\text{DPb}}/\lambda_{\text{Pb}}/(E + A_{\text{Ra}} - A_{\text{DPb}}), \quad (8)$$

$$\tau_{\text{DPo}} = 1/k_{\text{DPo}} = A_{\text{DPo}}/\lambda_{\text{Po}}/(A_{\text{DPb}} - A_{\text{DPo}}), \quad (9)$$

$$\tau_{\text{PPb}} = 1/k_{\text{PPb}} = A_{\text{PPb}}/(k_{\text{DPb}} \cdot A_{\text{DPb}} - \lambda_{\text{Pb}} \cdot A_{\text{PPb}}), \quad (10)$$

$$\tau_{\text{PPo}} = 1/k_{\text{PPo}} = A_{\text{PPo}}/[k_{\text{DPo}} \cdot A_{\text{DPo}} + \lambda_{\text{Po}} \cdot (A_{\text{PPb}} - A_{\text{PPo}})], \quad (11)$$

$$\tau_{\text{TPb}} = 1/k_{\text{TPb}} = A_{\text{TPb}}/\lambda_{\text{Pb}}/(E + A_{\text{Ra}} - A_{\text{TPb}}), \quad (12)$$

$$\tau_{\text{TPo}} = 1/k_{\text{TPo}} = A_{\text{TPo}}/\lambda_{\text{Po}}/(A_{\text{TPb}} - A_{\text{TPo}}). \quad (13)$$

根据本航次的温盐数据, 混合层深度约为 40 m . 研究海区表层海水 ^{226}Ra 比活度水平分布基本均匀, 平均放射性比度为 $1.1 \text{ Bq}/\text{m}^3$, 并且没有明显的年际变化^[26,27]. 根据 Feitcher 等^[32] 的三维模型计算得南海的 ^{210}Pb 大气输入通量约为 $0.4 \text{ dpm} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{a}^{-1}$, Turekian 等^[33] 研究表明赤道太平洋($15^\circ\text{S} \sim 15^\circ\text{N}$) ^{210}Pb 大气输入通量为 $0.2 \sim 0.5 \text{ dpm} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{a}^{-1}$, 本文采用 0.4

$0.4 \text{ dpm} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{a}^{-1}$ 的大气输入通量, 与 Nozaki 等^[8] 计算南海 ^{210}Pb 停留时间采用的数值相同. 按(8)~(13)式计算得出的 τ 值列于表 3 中.

南沙海域表层水体 D^{210}Pb 的停留时间介于 $0.52 \sim 1.55 \text{ a}$ 之间, 平均值为 1.01 a (表 3), 计算值落入文献报道的范围内($0.5 \sim 2.5 \text{ a}$)^[5,6,8,17,34~36]. D^{210}Po 的停留时间介于 $0.06 \sim 0.95 \text{ a}$, 平均为 0.34 a , 位于一些报道值的下限($0.3 \sim 1.6 \text{ a}$)^[5,6,17,21,35]. D^{210}Pb 的停留时间明显高于 D^{210}Po 的停留时间, 佐证了 D^{210}Po 比 D^{210}Pb 更迅速地被清除至颗粒相.

P^{210}Pb 平均停留时间为 0.14 a ($\sim 50 \text{ d}$)(表 3)明显高于 Masqué 等^[17] 在西北地中海沿岸得到的结果($0.039 \pm 0.003 \text{ a}$), 反映了沿岸海域 ^{210}Pb 的迁出较开阔大洋迅速, 这与沿岸颗粒物含量高于开阔大洋相吻合. P^{210}Po 的平均停留时间为 0.34 a (表 3), 明显大于 P^{210}Pb 停留时间, 这与溶解态恰好相反, 揭示了 ^{210}Po 可能被微生物吸收^[12], 然后被浮游动物摄食, 进而向高的营养级传递, 所以停留较长时间, 并非象 ^{210}Pb 主要随浮游植物颗粒物直接沉降迁出表层. 事实上, 一些研究已表明 ^{210}Po 会被海洋生物体所富集^[9,10,37].

3.3 寡营养海域微生物在 ^{210}Po 和 ^{210}Pb 生物地球化学循环中的作用

在富营养海域, 初级生产力高, 产生的浮游植物颗粒就多(高 Chl.a), 浮游植物颗粒对 ^{210}Po 和 ^{210}Pb 的清除和迁出起着重要作用. Nozaki 等^[20] 证实北太平洋 ^{210}Po 的迁出速率常数与叶绿素含量呈良好的正相关关系. 翌年, Nozaki 等^[8] 对北半球若干海域进行研究后也发现 ^{210}Po 的迁出速率常数与 Chl.a 之间都存在良好的正相关关系. 但在寡营养海域, 由于浮游植物颗粒相对贫乏(低 Chl.a), 致使微生物颗粒对 ^{210}Po 的清除作用相对突出. Kim^[12] 对寡营养的马尾藻海研究表明: 细菌对 ^{210}Po 的清除导致了 P^{210}Po 占 T^{210}Po 的 $15 \sim 75\%$, 远高于高生产力海域的相应值(如孟加拉湾, $< 15\%$)^[25]. 本研究中寡营养南沙海域 P^{210}Po 占 T^{210}Po 的份额高达 40% , 这也许意味着微生物在寡营养海域的 ^{210}Po 及其他硫族元素生物地球化学循环中起着重要作用.

表 3 南沙海域表层水中各相态 ^{210}Pb 和 ^{210}Po 停留时间及清除、迁出过程的分馏因子

站号	τ_{DPb}	τ_{PPb}	τ_{TPb}	τ_{DPo}	τ_{PPo}	τ_{TPo}	f_S	f_R	α
	a								
NS1	1.06	0.13	1.20						1.69
NS2	1.35	0.14	1.50	0.20	0.18	0.42	6.65	0.74	7.70
NS3	1.52	0.20	1.73	0.16	0.15	0.33	9.49	1.29	6.75
NS4	1.04	0.13	1.17	0.42	0.16	0.61	2.49	0.79	2.97
NS5	0.97			0.17			5.69		
NS6	0.81	0.19	1.00	0.36	0.23	0.59	2.26	0.82	2.69
NS7	0.86	0.10	0.97	0.48	0.45	1.17	1.79	0.23	5.27
NS13	0.98	0.10	1.08	0.36	0.34	0.84	2.75	0.28	6.96
NS14	1.55	0.12	1.68	0.06	0.09	0.16	24.5	1.45	15.93
NS15	1.04	0.12	1.16	0.56	0.51	1.42	1.87	0.23	5.20
NS16	1.26	0.15	1.42	0.18	0.14	0.33	7.00	1.09	5.98
NS19	0.98	0.12	1.11	0.31	0.44	0.92	3.14	0.28	7.55
NS23	0.83	0.13	0.96	0.70	0.34	1.18	1.18	0.38	2.63
NS37	0.52	0.17	0.70	0.08	0.23	0.31	6.57	0.76	8.45
NS40	0.85	0.14	0.99	0.49	1.35	2.65	1.72	0.10	6.31
NS41	0.65	0.24	0.89	0.31	0.28	0.57	2.10	0.83	2.63
NS42	0.79	0.16	0.96	0.33	0.72	1.33	2.42	0.23	6.14
NS43	0.86	0.13	0.99	0.28	0.11	0.38	3.07	1.25	2.55
NS44	0.86	0.16	1.03	0.23	0.17	0.40	3.80	0.98	3.78
NS49	1.03	0.10	1.13	0.74	0.42	1.52	1.39	0.23	4.14
NS50	0.84	0.10	0.95	0.26	0.36	0.72	3.21	0.29	7.99
NS58	1.12	0.12	1.25	0.95	0.30	1.42	1.17	0.40	2.44
NS59	1.08	0.15	1.23	0.14	0.32	0.49	7.71	0.46	12.50
NS60	1.39	0.18	1.57	0.06	0.26	0.34	22.6	0.69	25.52
平均值	1.01	0.14	1.16	0.34	0.34	0.82	5.42	0.63	6.69

3.3.1 清除速率常数计算 ^{210}Po 和 ^{210}Pb 的分馏因子

根据方程(8)~(11)中的 k_{DPb} , k_{DPo} , k_{PPo} 和 k_{PPb} 可以计算 D^{210}Po 和 D^{210}Pb 清除到颗粒相过程中的分馏因子 f_S 和沉降迁出过程的分馏因子 f_R ^[81]:

$$f_S = k_{\text{DPo}} / k_{\text{DPb}}, \quad (14)$$

$$f_R = k_{\text{PPo}} / k_{\text{PPb}}. \quad (15)$$

结果表明 f_S 介于 1.17~24.5 之间, 平均为 5.42(表 3)。显然在 D^{210}Po 和 D^{210}Pb 清除至颗粒相的过程中, 母、子体发生了明显的分馏。

3.3.2 固液分配系数计算 ^{210}Po 和 ^{210}Pb 的分馏因子

^{210}Po 和 ^{210}Pb 在颗粒相和溶解相之间的分配可用条件分配系数 K_d 计算, 如下:

$$K_d = (\text{PA}) / (\text{DA} \cdot \text{SPM}), \quad (16)$$

上式中 PA 和 DA 分别代表颗粒态和溶解态核素 A 的放

射性比活度 (Bq/m^3), SPM 为颗粒物浓度 (g/m^3)。那么, 在固-液分配过程中, ^{210}Po 和 ^{210}Pb 的分馏因子可由下式计算^[38]:

$$\alpha = K_{d, \text{Po}} / K_{d, \text{Pb}}, \quad (17)$$

根据(17)式获得的 α 值列于表 3 中。

由以上两种方法计算得到的清除过程的分馏因子较为一致, 相关性良好 ($R = 0.87$), 说明本文的结果是可靠的。

那么, 寡营养南沙海域 ^{210}Po 和 ^{210}Pb 的分馏是类似于富营养海域, 由浮游植物控制抑或类似于寡营养的马尾藻海, 受微生物的支配? 在 f_S 和 α 对 Chl.a 作图(图 1)后发现, 浮游植物并不是 f_S 的主要调控因素, 而且所研究的海水样品均为大洋水, 也没有见到研究海区内有上升流的报道, 因此, 必然有其它颗粒物在 ^{210}Po 和 ^{210}Pb 清除过程中使 ^{210}Po 和 ^{210}Pb 发生了明显的分馏。在收集到的颗粒物中除浮游植物外, 可能还有无机颗粒物、浮游动物和微生物, 已有的研究

表明: (1) 所研究海域属深海海域, 陆源无机颗粒物很少, 且陆源颗粒物对 ^{210}Pb 较 ^{210}Po 有更强的亲和力 [81]; (2) 沈鹤琴等 [39] 夏季对南沙海域的调查结果表明低 Chl.a 含量对应着较高的异养细菌(属微生物)含量(表层水异养细菌平均含菌量介于 9~57 CFU/mL 之间), 我们采样的时间正是夏季, 因此, 收集到的颗粒物中有较高含量的微生物; (3) 根据以往对南沙海域的研究 [39-43], 微生物在颗粒物中占有较大份额; (4) 在寡营养的马尾藻海, 细菌(微生物)吸收 ^{210}Po 而后被浮游动物摄食, 进而向高营养级传递 [12], 故浮游动物通过摄食微生物对 ^{210}Po 和 ^{210}Pb 进行不同程度的富集。因此, 寡营养的南沙海域 ^{210}Po 和 ^{210}Pb 之间的分馏极可能由微生物引起。

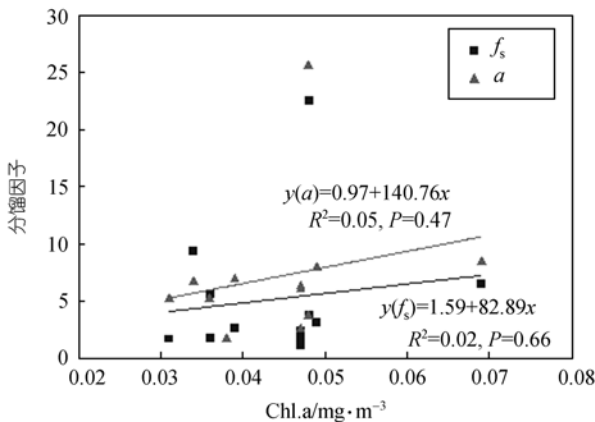


图 1 清除过程 ^{210}Po 和 ^{210}Pb 的分馏因子(f_s 和 α)与 Chl.a 的关系

3.3.3 微生物在 ^{210}Po 生物地球化学循环中的作用

根据传统观念, 寡营养海域颗粒物含量低, 那么 P^{210}Po 占 T^{210}Po 的比例应该小于富营养海域。但本研究在低初级生产力、低颗粒含量的寡营养海域得到的 P^{210}Po 占总 T^{210}Po 的份额(平均约为 40%)却明显高于高生产力、高颗粒含量的富营养海域(红海 30% [24]; 孟加拉湾 < 15% [25]; 西北地中海 21% [17]), 而 P^{210}Pb 在 T^{210}Pb 所占比例(约 12%)却与富营养海域一致, 进一步反映了寡营养海域微生物对 ^{210}Po 和 ^{210}Pb 的分馏作用。Lalli 等 [44] 曾指出: 在寡营养海区, 细菌是微生物的主体。因此, 通过研究细菌在 ^{210}Po 生物地球化学循环过程中的作用, 有助于了解微生物对 ^{210}Po 及其他

硫族元素(S, Se和Te)生物地球化学循环过程的影响。Harada 等 [45] 对佛罗里达地下水研究发现 ^{210}Po 从溶解态转移至颗粒态(>0.2 μm)与硫细菌(sulfur bacteria)活动密切相关, 而 ^{210}Pb 并没有相应的变化。Cherrier & Burnett [46] 的实验室实验结果表明细菌能有效地从水中吸收 D^{208}Po , 将其转化成颗粒态, 并且会将 ^{208}Po 作为 S 的替代物而吸收。上述结果证实微生物在某些环境中会对 ^{210}Po 及其他硫族元素(S, Se和Te)的生物地球化学循环起到重要作用。Kim [12] 对寡营养的马尾藻海进行研究发现, 在 2000 m 以浅, ^{210}Po 相对于母体 ^{210}Pb 的异常亏损缘自细菌对 ^{210}Po 的吸收, 然后被浮游动物摄食, 进而向高的营养级传递, 而不是因为颗粒物对 ^{210}Po 的沉降迁出, 并且由于细菌对 ^{210}Po 的富集导致了 P^{210}Po 占 T^{210}Po 的 15%~75%, 远高于高生产力海域的相应值(如孟加拉湾, 小于 15% [25]), 与本研究成果极为相似, 进一步佐证了南沙海域 ^{210}Po 和 ^{210}Pb 的分馏极可能由微生物引起。此外, Kim [12] 还发现蓝细菌(cyanobacteria)对马尾藻海上层水体 ^{210}Po 的迁出起着重要作用。

综上所述, 本研究和 Kim 的研究结果可能揭示了海洋环境中 ^{210}Po 和 ^{210}Pb 发生分馏的两种机制: (1) 在富营养海区, 丰富的浮游植物颗粒物在 ^{210}Po 和 ^{210}Pb 的清除和迁出过程中起主导作用, 因此, ^{210}Po 和 ^{210}Pb 的分馏也主要由浮游植物引起; (2) 在生物生产力低的寡营养海域, 由于浮游植物颗粒相对贫乏, 致使微生物对 ^{210}Po 的清除和迁出作用相对凸显出来, 微生物成为 ^{210}Po 的清除和迁出的主要载体, 并且导致 ^{210}Po 和 ^{210}Pb 发生明显的分馏效应。

鉴于 ^{210}Po 的固-液分配及 ^{210}Po - ^{210}Pb 不平衡与微生物的密切关系, ^{210}Po 可能成为硫族元素(S, Se, Te 和 Po)生物地球化学循环研究的有用示踪剂。

4 结论

通过对寡营养南沙海区各相态 ^{210}Po 和 ^{210}Pb 的含量水平、停留时间及微生物在 Po 等硫族元素生物地球化学循环过程中作用的研究, 得以下结论:

(1) 南沙海域表层水中 D^{210}Po 和 D^{210}Pb 的放射性比活度分别介于 0.11~1.73 和 0.87~2.51 Bq/m^3 之间。 P^{210}Po 和 P^{210}Pb 的比活度分别介于 0.19~0.75 和

0.16~0.39 Bq/m³ 之间。

(2) D²¹⁰Po 和 P²¹⁰Po 的平均停留时间均为 0.34 a, D²¹⁰Pb 和 P²¹⁰Pb 的平均停留时间分别为 1.01 和 0.14 a。

(3) 在固-液分配过程中, ²¹⁰Po 和 ²¹⁰Pb 的分馏因子, 由清除速率常数和固液分配系数两种方法计算的结果, 分别为 5.42 和 6.69, 雄辩地说明南沙海域这对母、子体在清除过程中发生了明显的分馏, 它们有着不同的生物地球化学循环路径。

(4) ²¹⁰Po 和 ²¹⁰Pb 的分馏机制随海域而异: 在富营养海域, 浮游植物颗粒充当 ²¹⁰Po 和 ²¹⁰Pb 清除和迁出的主要载体; 但在寡营养海域, 由于浮游植物颗粒相对贫乏, 微生物凸显为 ²¹⁰Po 清除和迁出的主要载体, 并使 ²¹⁰Po 和 ²¹⁰Pb 在此过程中发生明显的分馏。这为应用 ²¹⁰Po 研究与微生物有关的海洋学过程, 特别是 S 族元素(S, Se, Te 和 Po)的生物地球化学循环奠定了重要的基础。

致谢 美国阿拉斯加大学国际北极研究中心郭劳动博士为本项研究提供了重要的条件保证, 并对本文提出许多中肯的修改意见, 中国科学院南海海洋研究所黄良民教授研究组的蔡创华研究员提供了叶绿素数据, 样品的采集得到中国科学院南海海洋研究所、中国科学院海洋研究所和同济大学等单位出海人员及“实验 3 号”船长、全体船员的有力支持和帮助, 作者谨此一并表示衷心的感谢。

参 考 文 献

- Nozaki Y. The systematic of U/Th decay series nuclides in ocean water. *Reviews in Aquatic Science*, 1991, 4: 75~105
- Rama, Koide M, Goldberg E D. Lead-210 in natural waters. *Science*, 1961, 134: 98~99
- Shannon L V, Cherry R D, Orren M J. Polonium-210 and lead-210 in the marine environment. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 1970, 34: 701~711
- Tsunogai S, Nozaki Y. Lead-210 and polonium-210 in surface water of the Pacific. *Geochemical Journal*, 1971, 5: 165~173
- Bacon M P, Spencer D W, Brewer P G. Pb-210/Ra-226 and Po-210/Pb-210 disequilibria in seawater and suspended particulate matter. *Earth and Planetary Science Letters*, 1976, 32: 277~296
- Nozaki Y, Thomson J, Turekian K K. The distribution of Pb-210 and Po-210 in the surface waters of the Pacific Ocean. *Earth and Planetary Science Letters*, 1976, 32: 304~312
- Cochran J K. The oceanic chemistry of the uranium and thorium-series nuclides. In: Ivanovich M, Harmon R S, eds. *Uranium-series disequilibrium—applications to earth, marine, and environmental sciences*. Second Edition. Oxford: Clarendon Press, 1992, 334~395
- Nozaki Y, Dobashi F, Kato Y, et al. Distribution of Ra isotopes and the ²¹⁰Pb and ²¹⁰Po balance in surface seawaters of the mid Northern Hemisphere. *Deep-Sea Research I*, 1998, 45:1263~1284[DOI]
- Heyraud M, Fowler S W, Beasley T M, et al. Polonium-210 in euphausiids: a detailed study. *Marine Biology*, 1976, 34: 127~136
- Fowler S W, Knauer G A. Role of large particles in the transport of elements and compounds through the oceanic water column. *Progress in Oceanography*, 1986, 16: 147~194[DOI]
- Cherry R D, Heyraud M. Polonium-210 in selected categories of marine organisms: interpretation on the basis of an unstructured marine food web model. In: Guary J C, Guegueniat P, Pentreath R J, eds. *Radionuclides: a Tool for Oceanography*. Amsterdam: Elsevier Applied Science, 1992. 362~372
- Kim G. Large deficiency of polonium in the oligotrophic ocean's interior. *Earth and Planetary Science Letters*, 2001, 192: 15~21[DOI]
- Turekian K K, Kharkar D P, Thomson J. The fates of Pb-210 and Po-210 in the ocean surface. *Journal De Recherches Atmosphériques*, 1974, 639~646
- Kharkar D P, Thomson J, Turekian K K, et al. Uranium and thorium decays series nuclides in plankton from the Caribbean. *Limnology and Oceanography*, 1976, 21: 294~299
- Hong G-H, Park S-K, Baskaran M, et al. Lead-210 and polonium-210 in the winter well-mixed turbid waters in the mouth of the Yellow Sea. *Continental Shelf Research*, 1999, 19: 1049~1064[DOI]
- Baskaran M, Santschi P H. Particulate and dissolved ²¹⁰Pb activities in the shelf and slope regions of the Gulf of Mexico waters. *Continental Shelf Research*, 2002, 22: 1493~1510[DOI]
- Masqué P, Sanchez-Cabeza J A, Bruach J M, et al. Balance and residence times of ²¹⁰Pb and ²¹⁰Po in surface waters of the north-western Mediterranean Sea. *Continental Shelf Research*, 2002, 22: 2127~2146[DOI]
- 林瑞芬, 卫克勤, 张之庚, 等. 海水中某些放射性核素的测定. 南沙群岛及其邻近海区综合调查研究报告(一), 下卷. 北京: 科学出版社, 1989. 416~420
- 杨伟锋, 陈敏, 黄奕普, 等. 九龙江河口区不同粒径 ²¹⁰Po 的输-迁出速率及其意义. *科学通报*, 2003, 48(17): 1872[摘要][PDF]
- Nozaki Y, Zhang J, Takeda A. ²¹⁰Pb and ²¹⁰Po in the equatorial Pacific and the Bering Sea: the effects of biological productivity and boundary scavenging. *Deep-Sea Research II*, 1997, 44(9-10): 2203~2220[DOI]
- Cochran J K, Bacon M P, Krishnaswami S, et al. ²¹⁰Po and ²¹⁰Pb distribution in the central and eastern Indian Ocean. *Earth and Planetary Science Letters*, 1983, 65: 433~452[DOI]
- Shell W R. Concentrations, physico-chemical states and mean residence times of ²¹⁰Po and ²¹⁰Pb in marine and estuarine waters.

- Geochimica et Cosmochimica Acta, 1977, 41: 1019~1031
- 23 Swarzenski P W, McKee B A, Scrensen K, et al. ^{210}Pb and ^{210}Po , manganese and iron cycling across the $\text{O}_2/\text{H}_2\text{S}$ interface of a permanently anoxic fjord: Framvaren, Norway. *Marine Chemistry*, 1999, 67: 199~217[DOI]
- 24 Chung Y, Finkel R C, Kim K. ^{226}Ra , ^{210}Pb and ^{210}Po in the Red Sea. *Earth and Planetary Science Letters*, 1982, 58: 213~224[DOI]
- 25 Sarin M M, Rengarajan R, Somayajulu B L K. Natural radionuclide in the Arabian Sea and Bay of Bengal: distribution and evaluation of particle scavenging processes. In: *Proc Indian Acad Sci (Earth Planet Sci)*, 1994, 103: 211~235
- 26 黄奕普, 陈性保, 姜德盛, 等. 1994 航次南沙海域 ^{226}Ra 的分布与变化. 南沙群岛海域的同位素海洋化学. 北京: 海洋出版社, 1996. 79~88
- 27 谢永臻, 黄奕普, 邱雨生, 等. 南沙海域表层水中 ^{226}Ra 的分布. 南沙群岛海域的同位素海洋化学. 北京: 海洋出版社, 1996. 63~69
- 28 赵焕庭编. 南沙群岛自然地理. 北京: 科学出版社, 1996. 1~2, 42~46, 152~155, 193~201
- 29 Tanaka N, Takeda Y, Tsunogai S. Biological effect of removal of Th-234, Po-210 and Pb-210 from surface water in Funka Bay, Japan. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 1983, 47: 1783~1790[DOI]
- 30 Heyraud M, Cherry R D. Correlation of Po-210 and Pb-210 enrichments in the sea-surface microlayer with neuston biomass. *Continental Shelf Research*, 1983, 1: 283~293[DOI]
- 31 Shaw P-T, Chao S Y. Surface circulation in the South China Sea. *Deep-Sea Research I*, 1994, 41(11/12): 1663~1683[DOI]
- 32 Feitcher J, Brost R A, Heimann M. Three-dimensional modeling of the concentration and deposition of ^{210}Pb aerosols. *Journal of Geophysical Research*, 1991, 96: 22447~22460
- 33 Turekian K K, Nozaki Y, Benninger L K. Geochemistry of atmosphere radon and radon products. *Annual Reviews of Earth and Planetary Sciences*, 1977, 5: 227~255
- 34 Nozaki Y, Tsunogai S. ^{226}Ra , ^{210}Pb and ^{210}Po disequilibria in the Western North Pacific. *Earth and Planetary Science Letters*, 1976, 32: 313~321
- 35 Spencer D W, Bacon M P, Brewer P G. The distribution of Pb-210 and Po-210 in the North Sea. *Thalassia Jugoslavica*, 1980, 16: 125~154
- 36 Nozaki Y, Tsubota H, Kasemsupaya V, et al. Residence times of surface water and particle-reactive ^{210}Pb and ^{210}Po in the East China and Yellow Seas. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 1991, 55: 1265~1272[DOI]
- 37 Cherry R D, Heyraud M. Polonium-210 and lead-210 in Antarctic marine biota and sea water. *Marine Biology*, 1987, 96: 441~449[DOI]
- 38 Chase Z, Anderson R F, Fleisher M Q, et al. The influence of particle composition and particle flux on scavenging of Th, Pa and Be in the ocean. *Earth and Planetary Science Letters*, 2002, 204: 25~229
- 39 沈鹤琴, 蔡创华, 周毅频, 等. 南沙群岛海区异养细菌的生态分布. 南沙群岛及其邻近海区海洋生物研究论文集(二). 北京: 海洋出版社, 1991. 1~17
- 40 沈鹤琴, 周毅频, 蔡创华, 等. 南沙群岛海区异养弧菌的生态分布. 南沙群岛及其邻近海区海洋生物研究论文集(二). 北京: 海洋出版社, 1991. 18~33
- 41 蔡创华, 沈鹤琴, 周毅频, 等. 冬季南沙群岛及其邻近海区异养细菌分布特征. 南沙群岛及其邻近海区海洋生物分类区系与生物地理研究 I. 北京: 海洋出版社, 1994. 1~11
- 42 周毅频, 沈鹤琴, 蔡创华. 冬季南沙群岛及其邻近海区弧菌初步调查. 南沙群岛及其邻近海区海洋生物分类区系与生物地理研究 I. 北京: 海洋出版社, 1994. 12~26
- 43 沈鹤琴, 蔡创华, 周毅频. 南沙群岛西部海区冬季弧菌多样性初步研究. 南沙群岛及其邻近海区海洋生物多样性研究 II. 北京: 海洋出版社, 1996. 1~10
- 44 Lalli C M, Parsons T R. *Biological Oceanography: An Introduction*, New York: Pergamon, 1994. 301
- 45 Harada K, Burnett W C, Larock P A. Polonium in Florida groundwater and its possible relationship to the sulfur cycle and bacteria. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 1989, 53: 143~150[DOI]
- 46 Cherrier J, Burnett W C. Uptake of polonium and sulfur by bacteria. *Geomicrobiology Journal*, 1995, 13: 103~115