

# 九龙江河口区溶解态、颗粒态 铀同位素的地球化学行为

陈敏 黄奕普 邱雨生 陈性保 陈飞舟 蔡平河

(厦门大学海洋系, 厦门, 361005)

**摘要** 对九龙江河口区枯、丰水期水体中溶解态、颗粒态铀同位素地球化学行为的研究表明, 溶解态铀与盐度存在良好的正相关关系, 证实枯、丰水期该河口区水体中的铀均呈保守行为。在低盐度区域( $S < 10$ ),  $^{238}\text{U}$  主要以颗粒态形式存在, 颗粒态  $^{238}\text{U}$  所占份额随盐度增加而降低。 $^{238}\text{U}$  之条件分配系数介于  $1.2 \times 10^3 \sim 1.5 \times 10^5 \text{ dm}^3/\text{kg}$  之间, 它与盐度呈负相关关系, 但与悬浮颗粒物浓度无相关关系存在。枯水期悬浮颗粒物上  $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$  与盐度的负相关关系为河口区悬浮颗粒物中  $^{234}\text{U}$  的优先萃取理论提供了有力的证据。

**关键词**  $^{238}\text{U}$  溶解态 颗粒态 九龙江口

**中国图书分类号** P734.2

铀在河口区的地球化学行为至今仍是一个尚未完全了解的问题。许多研究表明铀在河口区随盐度的变化呈保守或近保守的行为<sup>[1~5]</sup>, 因而河口区既非铀的源, 亦非铀的汇, 其间铀的分布由海水与河水的混合作用所控制。然而最近对几个河口的调查表明铀在河水/海水混合过程中存在着迁出或输入作用, Maeda 与 Windom(1982)<sup>[6]</sup>报道了 U 迁出与河水径流量之间的关系, 将铀的迁出归因于有机物含量的季节变化; Caroll 与 Moore(1994)<sup>[7]</sup>和 Swarzenski 等(1991)<sup>[8]</sup>分别研究了刚果的 Brahmaputra 河口与亚马逊河口铀的地球化学行为, 发现低盐度区域(Ganges/Brahmaputra 河口为  $S < 12$ , 亚马逊河口为  $S < 10.0$ )溶解态铀的浓度低于理论混合线, Caroll 与 Moore(1994)<sup>[7]</sup>将其归因于氧化还原电位的变化使 U 被沉积物所吸附, 而 Swarzenski 等(1995)<sup>[9]</sup>认为是胶体在其中起着关键的作用。Mckee 等(1987)<sup>[10]</sup>的研究结果则表现出另一种情形: 亚马逊河陆架表层水与底层水中的铀浓度高于理论混合线, 作者认为这是自沉积物间隙水向上覆水体输入铀形成的。以上这些研究为铀的非保守行为提供了证据。此外, 对河口区水体中颗粒态铀地球化学行为的研究也是海洋铀地球化学循环研究中相当薄弱的环节。本文选择九龙江河口区为研究对象, 旨在探明该河口区溶解态、颗粒态铀的地球化学行为, 并探讨其固/液分配特征。

## 1 样品采集与分析

九龙江是福建省第二大河流, 由北溪、西溪和南溪 3 条支流组成, 流域面积约  $11\,909 \text{ km}^2$ ,

- 国家自然科学基金资助项目(49676296号)。陈敏, 男, 1970年4月出生, 博士, 副研究员。  
本文于1998年8月26日收到。

年径流量约 11.746Gm<sup>3</sup>, 河水经河口南边的 2 个人海口汇入河口区。九龙江河口区系东西向的沉溺河口, 河口区口小腹大, 口门宽 4km, 腹内宽 8km, 其间众多的沙洲把九龙江水成分许多叉道, 河水主要沿南岸入海。九龙江丰水期和枯水期分别在 6 月和 12 月, 径流量的改变影响着水体盐度的季节变化。江口悬浮颗粒物浓度平均为 65mg/dm<sup>3</sup>, 洪水期可高达 100 mg/dm<sup>3</sup>以上。本研究于 1995 年 7 月 10 日(JA 航次)和 1995 年 12 月 18 日(JB 航次)乘厦门大学“海洋 1 号”船分别采集了不同盐度区的表层海水。站位分布如图 1a、1b 所示。溶解态、颗粒态铀同位素的分析与测定方法详见文献[11]。

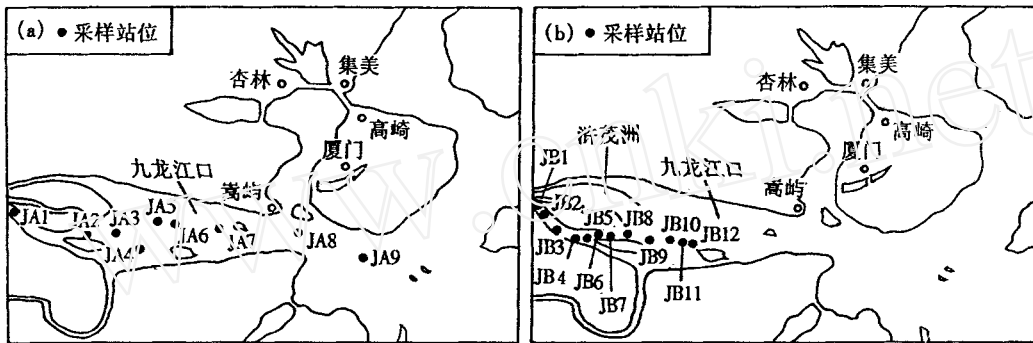


图 1 九龙江口采样站位分布

(a) JA 航次:1995 年 7 月 10 日航次;(b) JB 航次:1995 年 12 月 18 日航次

Fig.1 Sampling stations in the Jiulongjiang estuary

(a) JA Cruise: July 10, 1995; (b) JB Cruise: Dec. 18, 1995

## 2 结果与讨论

### 2.1 溶解态铀及其同位素组成

2 个航次实测的溶解态<sup>238</sup>U 比度及<sup>234</sup>U/<sup>238</sup>U)<sub>A.R.</sub>见表 1。在丰水期(7 月份)航次中, 样品

表 1 九龙江河口区溶解态<sup>238</sup>U 比度及<sup>234</sup>U/<sup>238</sup>U)<sub>A.R.</sub>

Tab.1 Specific activities of dissolved <sup>238</sup>U and <sup>234</sup>U/<sup>238</sup>U)<sub>A.R.</sub> in Jiulongjiang Estuary

站号	盐度 S	<sup>238</sup> U 比度 (Bq/m <sup>3</sup> )	<sup>234</sup> U/ <sup>238</sup> U) <sub>A.R.</sub>	站号	盐度 S	<sup>238</sup> U 比度 (Bq/m <sup>3</sup> )	<sup>234</sup> U/ <sup>238</sup> U) <sub>A.R.</sub>
JA-1	0	1.23±0.10	1.31±0.12	JB-3	3.72	5.05±0.22	1.01±0.05
-2	0.59	1.62±0.07	1.04±0.05	-4	5.92	7.23±0.28	1.16±0.04
-3	2.15	2.42±0.10	1.15±0.05	-5	10.48	12.72±0.50	1.05±0.04
-4	6.149	5.87±0.20	1.13±0.04	-6	12.03	14.80±0.57	1.13±0.04
-5	16.388	18.45±0.65	1.16±0.03	-7	11.99	17.08±0.62	1.01±0.03
-6	18.302	23.58±0.75	1.12±0.02	-8	16.60	19.10±0.73	1.12±0.03
-7	20.469	28.20±1.00	1.18±0.02	-9	18.68	26.93±0.95	1.09±0.03
-8	25.784	31.37±1.13	1.15±0.02	-10	25.61	31.58±0.87	1.14±0.02
-9	28.071	38.55±1.15	1.09±0.02	-11	27.92	32.45±1.37	1.14±0.03
JB-1	0.60	0.97±0.08	1.15±0.12	-12	30.52	34.73±1.22	1.07±0.02
-2	1.21	1.80±0.10	1.07±0.08	-13	31.75	35.27±0.98	1.13±0.02

盐度从 0 变化至 28.071, 相应的溶解态<sup>238</sup>U 比活度从 1.23 增加至 38.55Bq/m<sup>3</sup>; 在九龙江枯水季节(12 月份), 淡水径流量明显减少, 因而随距河端距离的增加, 盐度的变化梯度明显大

于丰水季节(图 1a、1b 及表 1), 该航次样品盐度变化范围为 0.60~31.75, 溶解态<sup>238</sup>U 比度介于 1.42~35.27Bq/m<sup>3</sup> 之间。从表 1 及图 2、3 可以看出, 溶解态<sup>238</sup>U 浓度与盐度呈线性正相关关系, 2 个航次回归分析的相关系数均很高, 分别为 0.992(7 月)和 0.991(12 月)。如果将这些线性关系外推至标准大洋水的盐度值(35), 可得到<sup>238</sup>U 的比度分别为 43.55Bq/m<sup>3</sup> 和 39.60 Bq/m<sup>3</sup>。与文献值(40.70Bq/m<sup>3</sup>)<sup>[12]</sup>相吻合。尽管 JA 航次拟合线的截距为负值(图 2), 但我们没有充分的论据说明铀呈非保守行为。综合 2 个航次的结果, 我们认为九龙江河口区的铀在丰水期、枯水期均呈现保守行为, 其分布受水体盐度的制约。

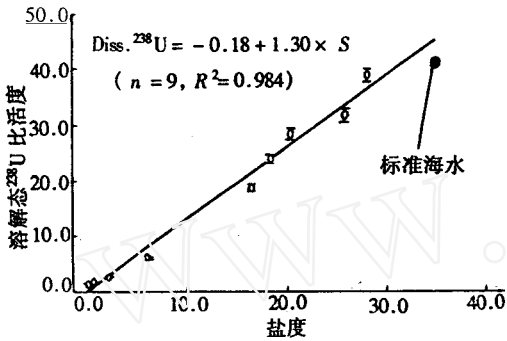


图 2 九龙江河口区夏季溶解态<sup>238</sup>U 与盐度的关系  
Fig. 2 Specific activities of dissolved <sup>238</sup>U vary with salinity in Jiulongjiang Estuary for Cruise JA

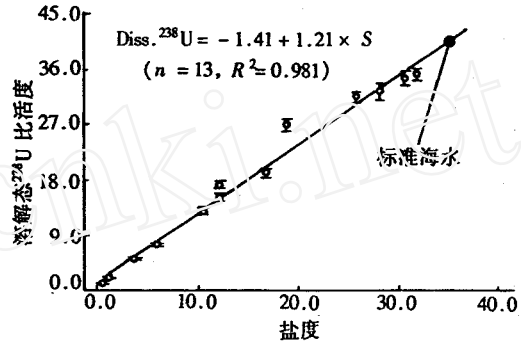


图 3 九龙江河口区冬季溶解态<sup>238</sup>U 与盐度的关系  
Fig. 3 Specific activities of dissolved <sup>238</sup>U vary with salinity in Jiulongjiang Estuary for Cruise JB

由 JA 航次的实测值及 JB 航次的外推值可知九龙江河水中溶解态<sup>238</sup>U 比度约为 1.17 Bq/m<sup>3</sup>, 且丰水期与枯水期的含量差别不大。该数值比世界上大多数河流的<sup>238</sup>U 含量来得低<sup>[1, 2, 13]</sup>, 且明显低于 Turekian 与 Chan(1971)<sup>[14]</sup>在计算大洋水<sup>238</sup>U 物料平衡时所采用的河流平均含量(3.67Bq/m<sup>3</sup>), 但与亚马逊河、刚果河、里奥普雷托河的结果<sup>[3]</sup>相近。九龙江河水中<sup>234</sup>U/<sup>238</sup>U)<sub>A.R.</sub> 为 1.31, 与其他研究者的结果相一致<sup>[15, 16]</sup>, 导致河水中<sup>234</sup>U 过剩于<sup>238</sup>U 的原因可能包括岩石风化过程中<sup>234</sup>U 优先沥滤、<sup>238</sup>U $\alpha$  衰变时的反冲作用或 $\alpha$  反冲径迹的淋滤等。

### 2.2 颗粒态<sup>238</sup>U 及其同位素组成

表 2 给出 JA、JB 航次各样品的总悬浮颗粒物浓度 TSM、颗粒态<sup>238</sup>U 比度及其<sup>234</sup>U/<sup>238</sup>U)<sub>A.R.</sub>。2 个航次颗粒态<sup>238</sup>U 平均比度分别为 0.101Bq/g(悬浮物)和 0.088Bq/g(悬浮物), 高于已报道的数值(0.033~0.067Bq/g)<sup>[10]</sup>, 这反映出九龙江流域的地质、水文学特征。福建是花岗岩广布的地区, 而花岗岩中通常含有较为丰富的铀, 因此在九龙江河口区出现高的颗粒态铀含量便不足为奇。2 个航次颗粒态<sup>238</sup>U 比度随盐度的变化情形有所不同(图 4、5), 在丰水期与枯水期, 单位体积海水中颗粒态(P)<sup>238</sup>U 的含量均随盐度的增加呈下降趋势, 其中部份站位出现的峰值(JA 航次 S=20.469 样及 JB 航次 S=12.03 样)估计与沉积物再悬浮导致的颗粒物浓度增加有关, 当以单位重量悬浮物作为基准时, 丰水期颗粒态<sup>238</sup>U 含量与盐度呈线性负相关关系(图 4); 而枯水期的变化情况较为复杂, 在 S<24 的区域, 颗粒态<sup>238</sup>U 比度与盐度不存在相关性, 在高盐区域, 颗粒态<sup>238</sup>U 含量急剧下降至海端的 0.044Bq/g(悬浮物), 造成这种差异的原因可能与沉积物再悬浮、河水携泥沙量及颗粒物组成的季节变化有关, 当粒

径小的陆源颗粒物质(高铀含量)被外海水中的颗粒物(低铀含量)所稀释时,可观察到颗粒态 $^{238}\text{U}$ 含量随盐度增加而下降的趋势。

表 2 九龙江河口区颗粒态 $^{238}\text{U}$ 比度及其 $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$  A.R.

Tab. 2 Specific activities of particulate  $^{238}\text{U}$  and  $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$  A.R. in Jiulongjiang Estuary

样品编号	TSM (mg/dm <sup>3</sup> )	单位体积海水中 P( $^{238}\text{U}$ ) 比度 (Bq/m <sup>3</sup> )	单位重量悬浮物中 $^{238}\text{U}$ 比度 (Bq/g)	颗粒态 $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ A.R.
JA1	24.30	4.38±0.18	0.180±0.008	1.12±0.05
JA2	41.70	4.18±0.15	0.100±0.004	1.07±0.04
JA3	30.15	4.62±0.17	0.153±0.006	1.12±0.04
JA4	24.65	3.15±0.12	0.128±0.005	1.13±0.05
JA5	36.55	2.87±0.10	0.078±0.003	1.15±0.04
JA6	31.10	2.63±0.12	0.085±0.004	1.04±0.05
JA7	110.00	8.58±0.32	0.111±0.003	1.08±0.05
JA8	47.20	1.83±0.07	0.039±0.001	1.17±0.06
JA9	18.10	1.22±0.07	0.067±0.004	1.10±0.07
JB1	98.40	9.07±0.35	0.092±0.004	0.94±0.04
JB2	76.80	5.67±0.22	0.074±0.003	1.07±0.04
JB3	43.20	3.40±0.15	0.079±0.003	0.96±0.05
JB4	28.90	2.27±0.12	0.078±0.004	0.85±0.06
JB5	32.80	2.75±0.13	0.084±0.004	0.90±0.05
JB6	60.90	5.70±0.23	0.094±0.004	0.92±0.04
JB7	24.90	2.50±0.13	0.100±0.005	0.89±0.06
JB8	21.10	1.85±0.10	0.088±0.005	0.80±0.06
JB9	17.20	1.80±0.10	0.105±0.006	0.86±0.06
JB10	9.40	1.38±0.10	0.147±0.011	0.64±0.07
JB11	7.40	0.57±0.03	0.076±0.004	0.99±0.08
JB12	9.50	0.78±0.05	0.082±0.005	0.68±0.08
JB13	31.90	1.40±0.07	0.044±0.002	0.77±0.05

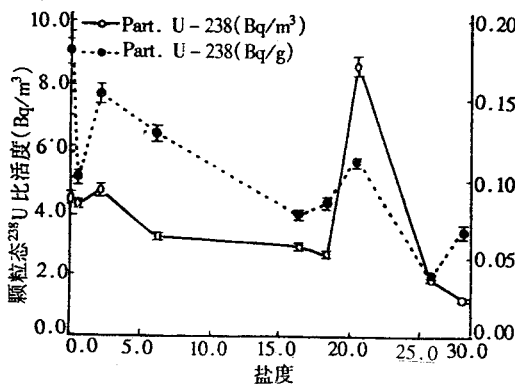


图 4 九龙江河口区 JA 航次颗粒态 $^{238}\text{U}$ 比度与盐度的关系

Fig. 4 Specific activities of particulate  $^{238}\text{U}$  vary with salinity in Jiulongjiang Estuary for Cruise JA

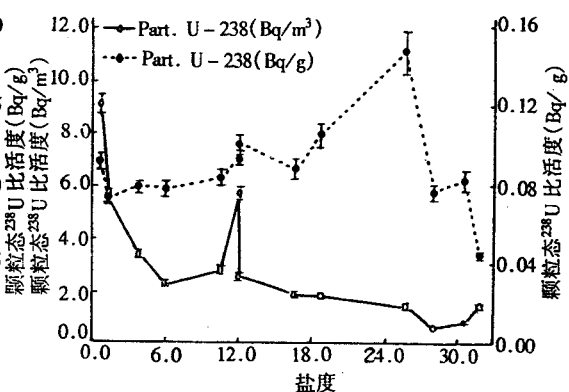


图 5 九龙江河口区 JB 航次颗粒态 $^{238}\text{U}$ 比度与盐度的关系

Fig. 5 Specific activities of particulate  $^{238}\text{U}$  vary with salinity in Jiulongjiang Estuary for Cruise JB

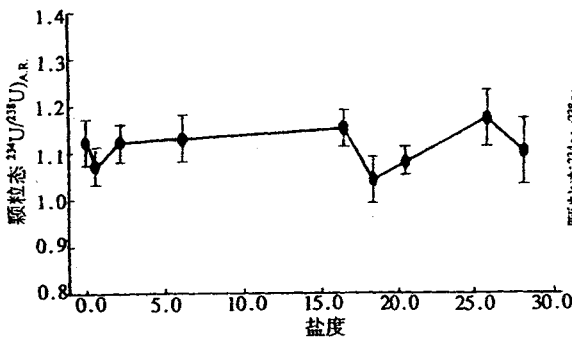


图 6 九龙江河口区 JA 航次颗粒态  $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$  A.R. 与盐度的关系

Fig. 6 Particulate  $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$  A.R. vary with salinity in Jiulongjiang Estuary for Cruise JA

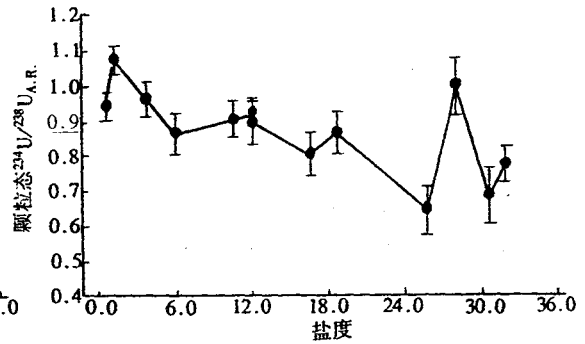


图 7 九龙江河口区 JB 航次颗粒态  $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$  A.R. 与盐度的关系

Fig. 7 Particulate  $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$  A.R. vary with salinity in Jiulongjiang Estuary for Cruise JB

图 6、7 分别描绘了 JA、JB 航次颗粒态  $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$  A.R. 与盐度的关系。丰水期颗粒物中  $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$  A.R. 介于 1.04~1.17 之间, 平均为 1.11, 稍低于溶解相中的  $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$  A.R., 但比已报道的 0.9~1.0 之间的数值<sup>[16]</sup>明显来得高。造成这一现象的原因尚不清楚, Scott(1982)<sup>[16]</sup>曾观察到苏万尼河、里奥格兰德河与佩科斯河悬浮颗粒物中异常高的  $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$  A.R. (分别为 1.39, 1.16 和 1.23), 对河水进行的化学性质测定表明, 苏万尼河悬浮颗粒物含有机碳高达 4%, Rosholt 等(1966)<sup>[17]</sup>曾指出, 排水不畅的表土层中丰富的有机质会使  $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$  A.R. 大于 1, 这种物质转移至水体中会使悬浮物中的  $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$  A.R. 增高。然而里奥格兰德河与佩科斯河悬浮物中的有机质含量均不高, 但  $\text{CaCO}_3$  含量高得出人意料, Scott(1982)<sup>[16]</sup>推测悬浮物中高的  $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$  A.R. 可能与碳酸盐的共沉淀有关。对九龙江河口区而言, 丰水期颗粒态  $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$  A.R. 的高值也许与丰水期河口区有机质含量增加有关, 但其确切原因, 尚待进一步的研究。

与丰水季节不同, 枯水期九龙江河口区悬浮物中的  $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$  A.R. 均小于平衡值 1.0, 我们认为, 悬浮颗粒中  $^{238}\text{U}$  粒子衰变时的反冲作用使一部份  $^{234}\text{Th}$  离开悬浮颗粒进入到溶液中, 再经  $\beta$  衰变而成  $^{234}\text{U}$ , 同时, 由于  $^{238}\text{U}$  衰变的反冲作用, 使  $^{234}\text{U}$  原子在晶格中重新排列, 位于矿物结构不稳定的格架中, 比  $^{238}\text{U}$  更易被水淋滤带走。由于悬浮物中更多的  $^{234}\text{U}$  转移到水中引起悬浮颗粒物质  $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$  A.R. 小于 1。从图 6 可以看出, 在低盐度区域, 颗粒态  $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$  A.R. 较接近于平衡值 1.0, 而在高盐度区域 ( $S > 12$ ),  $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$  A.R. 已明显低于平衡值。对大洋环境中铀收支平衡稳态箱式模型的计算结果表明, 除河流输送的溶解铀外, 必须有另外的  $^{234}\text{U}$  来源以维持大洋水中  $^{234}\text{U}$  的过剩<sup>[10]</sup>, 一种可能的来源是深海沉积物间隙水  $^{234}\text{U}$  的扩散<sup>[18]</sup>, Ku 等(1977)<sup>[12]</sup>证实由间隙水中扩散来的  $^{234}\text{U}$  足以平衡其大洋中相对于稳态的缺乏量, 但 Somayajulu 与 Church(1973)<sup>[19]</sup>和 Cochran 与 Krishnaswami(1981)<sup>[20]</sup>的结果则倾向于认为  $^{234}\text{U}$  会从海水转移至沉积物中, 尽管对产生这种差异的原因尚不明确, 但看来  $^{234}\text{U}$  这一来源尚未完全确证。另一种可能的来源是河流悬浮颗粒物中的  $^{234}\text{U}$  被海水现场沥取出来<sup>[16]</sup>。事实上对红粘土浸取实验<sup>[18]</sup>已证实在该过程中  $^{234}\text{U}$ 、 $^{238}\text{U}$  会产生明显的分馏作用, 然而一直缺乏直接的证据证实这种来源的重要性, 作者的结果恰好填补了这一空白, 为该论点提供了有力的佐

证。从 $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ 的分布看,悬浮颗粒物中 $^{234}\text{U}$ 的优先萃取作用主要发生在盐度较高( $S > 20$ )的区域。

### 2.3 $^{238}\text{U}$ 在溶解相、颗粒相间的分配及其 $K_d$ 值

众多研究表明,开阔大洋水中颗粒态 $^{238}\text{U}$ 的含量很低<sup>[12,21]</sup>,但在河口海区,由于河流将许多来自土壤的悬浮颗粒物输送至此,可以预计河口区颗粒态 $^{238}\text{U}$ 的含量理应较高。图8描绘了JA、JB航次颗粒态 $^{238}\text{U}$ 含量占总铀含量份额( $f_p$ )随盐度的变化关系。在丰水期,由河流输送至九龙江口的 $^{238}\text{U}$ 有78%是与颗粒物相结合的,随着盐度的增加,单位体积海水中的颗粒态 $^{238}\text{U}$ 含量逐渐降低(图8),至 $S=28.071$ 时,仅有3%的 $^{238}\text{U}$ 以颗粒态形式存在;枯水期单位体积海水中颗粒态 $^{238}\text{U}$ 含量与盐度的关系与丰水期相似,但在河端,颗粒态 $^{238}\text{U}$ 占总 $^{238}\text{U}$ 含量的90.4%,较丰水期来的高,之后 $f_p$ 急剧降低至中盐度区( $S=10\sim 12$ )的约20%,在 $S > 27$ 的海水中,颗粒态 $^{238}\text{U}$ 含量仅占2~3%。

铀在溶解相及颗粒相之间的分配可用条件分配系数 $K_d$ 来描述,如下式:

$$K_d = (A_{Pu} \cdot 10^6) / (A_{Du} \cdot \text{TSM}) \dots\dots (1)$$

其中 $A_{Pu}$ , $A_{Du}$ 分别代表颗粒态、溶解态 $^{238}\text{U}$ 的放射性比度( $\text{Bq}/\text{m}^3$ ),TSM代表总悬浮颗粒物浓度( $\text{mg}/\text{dm}^3$ ),由此计算出的分配系数 $K_d$ 的单位为 $\text{dm}^3/\text{kg}$ ,显然,铀的条件分配系数大小与颗粒物浓度、颗粒物组成及铀的化学形态、浓度等因素有关,它可反映出固、液相物理化学性质的变化。由式(1)计算出的 $K_d$ 值示于表3中。九龙江河口区表层水中 $^{238}\text{U}$ 的条件分配系数介于 $1.24 \times 10^3 \sim 1.46 \times 10^5 \text{dm}^3/\text{kg}$ 之间,平均为 $2.3 \times$

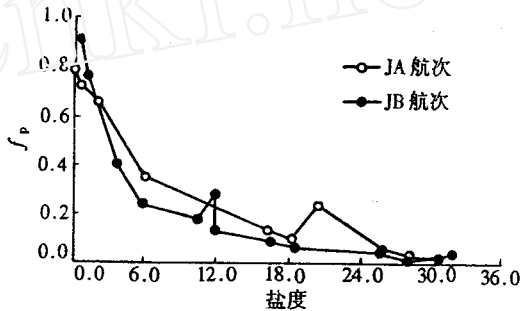


图8 九龙江河口区 $^{238}\text{U}$ 之 $f_p$ 与盐度的关系

Fig. 8 Relationship between  $f_p$  of  $^{238}\text{U}$  and salinity in Jiulongjiang Estuary

$10^4 \text{dm}^3/\text{kg}$ . Swarzenski等(1995)<sup>[9]</sup>从亚马逊河陆架表层水中获得 $^{238}\text{U}$ 之 $K_d$ 值介于 $2.6 \times 10^3 \sim 1.5 \times 10^6$ 之间,Kershaw与Young(1988)<sup>[22]</sup>曾报道爱尔兰海 $^{238}\text{U}$ 的 $K_d$ 值变化范围为750~3000,与我们的结果相吻合。

表3 九龙江河口区 $^{238}\text{U}$ 相间分配及其 $K_d$ 值

Tab. 3 The participation and  $K_d$  of  $^{238}\text{U}$  in Jiulongjiang Estuary

站位	$f_p$ (%)	$f_d$ (%)	$K_d$ ( $\text{dm}^3/\text{kg}$ )	$\log(K_d)$	站位	$f_p$ (%)	$f_d$ (%)	$K_d$ ( $\text{dm}^3/\text{kg}$ )	$\log(K_d)$
JA-1	78.0	22.0	$1.46 \times 10^5$	5.194	JB-3	40.2	59.8	$1.56 \times 10^4$	4.193
JA-2	72.1	27.9	$6.20 \times 10^4$	4.792	JB-4	23.8	76.2	$1.08 \times 10^4$	4.035
JA-3	65.6	34.4	$6.34 \times 10^4$	4.802	JB-5	17.8	82.2	$6.59 \times 10^3$	3.819
JA-4	34.9	65.1	$2.18 \times 10^4$	4.338	JB-6	27.8	72.2	$6.32 \times 10^3$	3.801
JA-5	13.4	86.6	$4.25 \times 10^3$	3.628	JB-7	12.8	87.2	$5.88 \times 10^3$	3.769
JA-6	10.0	90.0	$3.59 \times 10^3$	3.555	JB-8	8.8	91.2	$4.59 \times 10^3$	3.662
JA-7	23.3	76.7	$2.77 \times 10^3$	3.442	JB-9	6.3	93.7	$3.88 \times 10^3$	3.589
JA-8	5.5	94.5	$1.24 \times 10^3$	3.093	JB-10	4.2	95.8	$4.66 \times 10^3$	3.668
JA-9	3.0	97.0	$1.74 \times 10^3$	3.242	JB-11	1.7	98.3	$2.36 \times 10^3$	3.373
JB-1	90.4	9.6	$9.53 \times 10^4$	4.979	JB-12	2.2	97.8	$2.37 \times 10^3$	3.375
JB-2	75.9	24.1	$4.10 \times 10^4$	4.613	JB-13	3.8	96.2	$1.24 \times 10^3$	3.095

图 9、10 分别给出了  $\log K_d$  与盐度、TSM 之间的关系。 $K_d$  值随着盐度的增加而不断降低(图 9),如果铀是与颗粒物内部晶格进行配位络合的话,可以预料  $K_d$  值将不随盐度(离子强度)的变化而变化,然而正如众多研究结果所证实的那样,铀实际上是络合在颗粒物的外表面上的<sup>[23,24]</sup>,因此颗粒物所结合的铀量会反映出河口离子强度的变化。从图 10 可以看出, $K_d$  与 TSM 之间不存在相关关系,与颗粒活性核素<sup>234</sup>Th 不同,“颗粒物浓度效应”并未表现在<sup>238</sup>U 这一核素上。

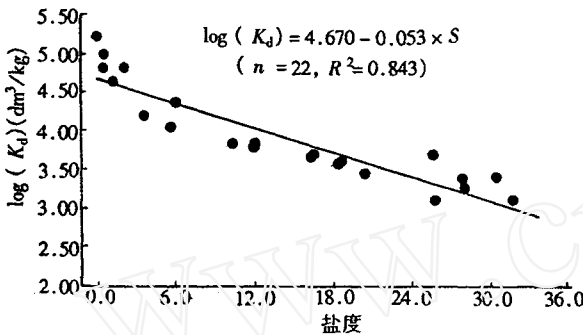


图 9 九龙江河口区<sup>238</sup>U 之  $K_d$  值与盐度的关系  
Fig. 9 Variations of  $K_d$  of <sup>238</sup>U with salinity in Jiulongjiang Estuary

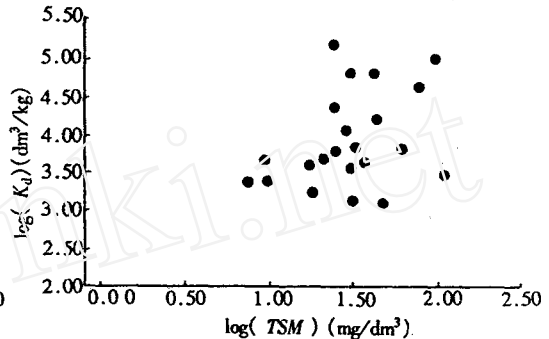


图 10 九龙江河口区<sup>238</sup>U 之  $K_d$  值与 TSM 的关系  
Fig. 10 Variations of  $K_d$  of <sup>238</sup>U with TSM in Jiulongjiang Estuary

### 3 结论

(1) 枯、丰水期九龙江河口溶解态<sup>238</sup>U 与  $S$  均呈良好的线性正相关关系,表明该河口水体中的溶解态铀呈保守行为。

(2) 在低盐度区域,铀同位素主要以颗粒态存在,其所占份额随盐度增加而降低。

(3) <sup>238</sup>U 之条件分配系数  $K_d$  介于  $1.2 \times 10^3 \sim 1.5 \times 10^5 \text{ dm}^3/\text{kg}$  之间, $K_d$  与盐度呈负相关关系,但与悬浮颗粒物浓度(TSM)无明显相关关系,证实铀同位素不存在“颗粒物浓度效应”。

(4) 枯、丰水期悬浮颗粒物中<sup>234</sup>U/<sup>238</sup>U)<sub>A.R.</sub> 的分布迥然不同,丰水期颗粒态<sup>234</sup>U/<sup>238</sup>U)<sub>A.R.</sub> 平均为 1.11,枯水期则小于平衡值 1.0,且随盐度增加其偏离平衡值的程度加大,说明河流悬浮颗粒物中的<sup>234</sup>U 可被海水现场优先沥取,证实了大洋水中<sup>234</sup>U 这一来源的重要性。

### 参考文献

- Martin J M, Meybeck M, Pusset M. Uranium behavior in the Zaire Estuary. *Neth. J. Sea Res.* 1978, 12: 338~344
- Borole D V, Krishnaswami S, Somayajulu B L K. Uranium isotopes in rivers, estuaries and adjacent coastal sediments of W. India: Their weathering, transport and oceanic budget. *Geochim. Cosmochim. Acta*, 1982, 46: 125~137
- Cochran J K. The oceanic chemistry of the U- and Th-series nuclides. In: Ivanovich M and Harmon R S (eds.), *Uranium Series Disequilibrium: Applications to Environmental Problems*. Clarendon Press, Oxford. 1982. 384~430

- 4 Toole J, Baxter M S, Thomson J. The behaviour of uranium isotopes with salinity change in three U. K. estuaries. *Estuarine Coast. Shelf Sci.*, 1987, 25: 283~297
- 5 Somayajulu B L K, Martin J M, Eisma D et al. Geochemical studies in the Godavari Estuary, India. *Mar. Chem.*, 1993, 43:83~93
- 6 Maeda M, Windom H L. Behavior of uranium in two estuaries of the southeastern United States. *Mar. Chem.*, 1982, 11:427~436
- 7 Carroll J, Moore W S. Uranium removal during low discharge in the Ganges—Brahmaputra mixing zone. *Geochim. Cosmochim. Acta*, 1994, 58:4 987~4 995
- 8 Swarzenski P W, Mckee B A, Booth J G. Uranium geochemistry on the Amazon Shelf: seasonal differences in source functions and dissolved/colloidal partitioning of uranium isotopes. *EOS*, 1991, 72:64
- 9 Swarzenski P W, Mckee B A, Booth J G. Uranium geochemistry on the Amazon Shelf: chemical phase partitioning and cycling across a salinity gradient. *Geochim. Cosmochim. Acta*, 1995, 59(1):7~18
- 10 Mckee B A, DeMaster D J, Nittrouer C A. Uranium geochemistry on the Amazon shelf: Evidence for uranium release from bottom sediments. *Geochim. Cosmochim. Acta*, 1987, 51:2 779~2 786
- 11 陈敏, 黄奕普, 邱雨生. 天然铀系中 $^{238}\text{U}$ 、 $^{234}\text{Th}$ 的富集、纯化与测定. 同位素, 1997, 10(4):199~204
- 12 Ku T L, Klauss K G, Mathieu G G. Uranium in open oceans: concentration and isotopic composition. *Deep-Sea Res.*, 1977, 24:1 005~1 017
- 13 Spalding R F, Sackett W M. Uranium runoff from the Gulf of Mexico distributive province: Anomalous concentrations. *Science*, 1972, 175:629~631
- 14 Turekian K K, Chan L A. The marine geochemistry of the uranium isotopes, Th-230 and Pa-231. In: Bransfelt A O and Steinnes E (eds.), *Activation analysis in geochemistry and Cosmochemistry*. Universitetsforlaget Oslo., 1971. 311~320
- 15 Moore W S. Amazon and Mississippi river concentrations of uranium, thorium and radium isotopes. *Earth Planet. Sci. Lett.*, 1967, 2:231~234
- 16 Scott M R. The chemistry of U and Th series nuclides in rivers. In: Ivanovich M and Harmon R S (eds.), *Uranium Series Disequilibrium: Application to Environmental Problems*. Clarendon. 1982. 181~201
- 17 Rosholt J N, Doe B R, Tatsumoto N. Evolution of the isotopic composition of uranium and thorium in soil profiles. *Bull. Geol. Soc. Amer.*, 1966, 77:987~1 004
- 18 Ku T L. An evaluation of the  $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$  method as a tool for dating pelagic sediments. *J. Geophys. Res.*, 1965, 70:3 457~3 474
- 19 Somayajulu B L K, Church T M. Radium, thorium and uranium isotopes in the interstitial water from the Pacific ocean sediment. *J. Geophys. Res.*, 1973, 78:4 529~4 531
- 20 Cochran J K, Krishnaswami S. Radium, thorium, uranium and  $^{210}\text{Pb}$  in deep-sea sediments and sediment pore waters from the north equatorial Pacific. *Am. J. Sci.*, 1981, 280:849~889
- 21 Anderson R F. Concentration, vertical flux and remineralization of particulate uranium in seawater. *Geochim. Cosmochim. Acta*, 1982, 46:1 293~1 299
- 22 Kershaw P, Young A. Scavenging of  $^{234}\text{Th}$  in eastern Irish Sea. *J. Environ. Radioactivity*, 1988, 6:1~23
- 23 Giblin A M, Batts B D, Swaine D J. Laboratory simulation studies of uranium mobility in natural waters. *Geochim. Cosmochim. Acta*, 1981, 45:699~709
- 24 Mann D K, Wong G T H. "Strongly-bound" uranium in marine waters: occurrence and analytical



implications. *Mar. Chem.*, 1993, 42: 25~37

## Geochemical behavior of dissolved and particulate uranium isotopes in Jiulongjiang estuary

Chen Min, Huang Yipu, Qiu Yusheng, Chen Xingbao, Chen Feizhou and Cai Pinghe  
(*Department of Oceanography, Xiamen University, Xiamen, 361005*)

### Abstract

The geochemical behavior of dissolved and particulate uranium isotopes during spring and dry seasons in Jiulongjiang estuary have been studied. Conservation behavior during estuary mixing in both seasons is shown by linear uranium-salinity plots.  $^{238}\text{U}$  in low salinity region ( $S < 10$ ) is largely incorporated into filterable particles. The percentages of particulate to total  $^{238}\text{U}$  in seawaters decrease with salinity. The conditional distribution coefficients for  $^{238}\text{U}$  ranged from  $1.2 \times 10^3 \sim 1.5 \times 10^5 \text{ dm}^3/\text{kg}$ , which are inversely correlated with salinity, but not with particle concentrations. The inversely correlation between  $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$  A.R. in particles and salinity provides evidence for the preferential leaching of particulate  $^{234}\text{U}$  in estuary.

**KEYWORDS**  $^{238}\text{U}$ , Dissolved, Particulate, Jiulongjiang Estuary