

doi:10.3799/dqkx.2011.106

中国东海的²²⁴Ra

门 武^{1,2}, 刘广山^{1*}, 陈 敏¹, 黄奕普¹

1. 厦门大学海洋与环境学院, 福建厦门 361005

2. 国家海洋局海洋大气化学与全球变化重点实验室, 福建厦门 361005

摘要: 用锰纤维富集—射气法测量了东海水体中的²²⁴Ra, 研究了东海夏季和冬季水体中²²⁴Ra的水平与垂直分布, 夏季²²⁴Ra比活度为<LLD~5.88 Bq/m³, 平均值为0.85 Bq/m³; 冬季为<LLD~7.50 Bq/m³, 平均值为0.72 Bq/m³; 两个季节表层水²²⁴Ra的分布趋势大致相同, 随着离岸距离的增加, 水体中²²⁴Ra的活度很快降低, 高²²⁴Ra浓度海区位于离岸100 km的范围内, 为0.5~7.5 Bq/m³. 黑潮流²²⁴Ra活度最低, <0.13 Bq/m³. 中部陆架水中的²²⁴Ra浓度为0.13~0.50 Bq/m³. 东海水体中的²²⁴Ra呈现为2种不同的垂直分布形式. 利用一维稳态模型, 由水体中²²⁴Ra的水平分布计算出该海域的水平涡动扩散系数为(7.1~88.9)×10⁶ cm²/s, 垂直涡动扩散系数为2.18~163 cm²/s. 利用²²⁴Ra的垂直分布估算了浙江沿岸上升流的流速, 夏季为(8.4~13.3)×10⁻³ cm/s, 冬季为(16.3~16.8)×10⁻³ cm/s.

关键词: 东海; ²²⁴Ra; 水体混合; 上升流; 海洋地质; 地球化学.

中图分类号: P736

文章编号: 1000-2383(2011)06-0999-10

收稿日期: 2011-03-18

²²⁴Ra in the Seawater of the East China Sea

MEN Wu^{1,2}, LIU Guang-shan^{1*}, CHEN Min¹, HUANG Yi-pu¹

1. College of Oceanography and Environmental Science, Xiamen University, Xiamen 361005, China

2. Key Laboratory of Global Change and Marine-Atmospheric Chemistry of State Oceanic Administration (SOA),
Third Institute of Oceanography of State Oceanic Administration (SOA), Xiamen 361005, China

Abstract: ²²⁴Ra in the seawater of the East China Sea (ECS) were measured using Mn-fiber adsorption—emanation method. The content level and distribution feature of ²²⁴Ra in sea water in summer and winter were studied. The ²²⁴Ra activities were <LLD~5.88 Bq/m³ with an average of 0.85 Bq/m³ in the summer and <LLD~7.50 Bq/m³ with an average of 0.72 Bq/m³ in the winter. Both seasons ²²⁴Ra in the surface water have similar distribution and decreased rapidly with the increasing distance from the coast. The high ²²⁴Ra activity at 0.5~7.5 Bq/m³ is located within 30~100 km offshore and the lowest activity at <0.13 Bq/m³ was in the Kuroshio Current. The ²²⁴Ra concentrations in the middle shelf are 0.13~0.5 Bq/m³. The vertical distributions showed two different characteristics. The horizontal and vertical eddy diffusion coefficients calculated by the one-dimensional state model of ²²⁴Ra were (7.1~88.9)×10⁶ cm²/s and 2.18~163 cm²/s, respectively. The upwelling rates off Zhejiang were calculated using ²²⁴Ra vertical distribution, which varied between (8.4~13.3)×10⁻³ cm/s in the summer and (16.3~16.8)×10⁻³ cm/s in the winter.

Key words: East China Sea; ²²⁴Ra; water mixing; upwelling rate; marine geology; geochemistry.

镭同位素已广泛应用于海洋学研究(Cochran, 1992; Krishnaswami, 2001; 门武等, 2010). ²²⁴Ra半衰期3.66 d, 是研究几天到几周时间尺度海洋学过程的理想示踪剂(Levy and Moore, 1985; Krishnaswami, 2001), 可以用来研究河流—河口—海洋

的水体交换(Elsinger and Moore, 1983; Moore and Todd, 1993; Torgersen et al., 1996; 陈性保等, 1999), 近岸水与陆架水相互作用(Moore, 2000; Colbert and Hammond, 2007), 沉积物间隙水与上覆水的交换(Bollinger and Moore, 1984; Webster

et al., 1994; Krest and Harvey, 2003), 浅海水的垂直混合(陈性保等, 1998; Hougham and Moran, 2007)等海洋学过程。

东海为西太平洋边缘海, 是欧亚大陆和北太平洋之间的过渡带, 大量的陆源天然和人工物质通过东海进入太平洋或在东海沉积下来, 因此从全球生物地球化学循环的角度, 人们已认识到东海是一个极为重要的海区, 人们需要估算近海陆源污染物和营养盐向开阔海域的输运(胡敦欣和杨作升, 2001; Zhang, 2002; Iseki *et al.*, 2003). 在东海, 主要流系是顺岸流(孙湘平, 2006), 陆源物质经东海垂直于主流方向进入太平洋, 涡动扩散可能是近岸物质向开阔海域输运的主要方式. 至今人们还没有很好的办法定量估算近岸溶解态物质向开阔海域的输运通量, 而海洋中的镭同位素提供了方法(Moore, 2000).

海洋中的镭同位素主要来源于海底沉积物的释出和河口区颗粒物的解析, 一旦进入水体主要以溶解态的形式存在于海水中, 可以用作示踪剂研究水体混合过程(Cochran, 1992; Krishnaswami, 2001). 一般认为进入海水的镭同位素受混合输运和衰变平衡的控制, 形成于稳态质量平衡条件. 随离源地距离的增加, 水平方向为离岸距离, 垂直方向为离海水—沉积物界面距离, 海水中的镭同位素浓度逐渐降低. 模型化海水中镭同位素的分布可以计算出海水的混合速率——涡动扩散系数和平流速度. 利用混合速率参数和溶解态物质——污染物与营养盐的浓度, 可以计算出输运通量.

Nozaki *et al.* (1989, 1991) 对东海部分水体的²²⁶Ra 和²²⁸Ra 进行了研究, Zhang *et al.* (2007) 用²²⁶Ra 估算了长江冲淡水、黑潮水对东海陆架水的贡献. 还没看到研究东海²²⁴Ra 和利用²²⁴Ra 研究东海海洋学问题的报道. 本工作用锰纤维富集法采样, 射气法测量了东海水体中的²²⁴Ra, 研究了海水中²²⁴Ra 的分布及相关的海洋学问题.

1 方法

1.1 采样站位

分别于 2006 年 7 月(夏季航次)和 2007 年 1 月(冬季航次)在东海采集了海水样品, 采样站位如图 1 所示. 共设 7 个采样断面, 其中 5 个断面起点在中国大陆近岸海域, 垂直于岸线向外海辐射. 04 断面在长江口至济州岛连线上; 05 断面从长江口向东南

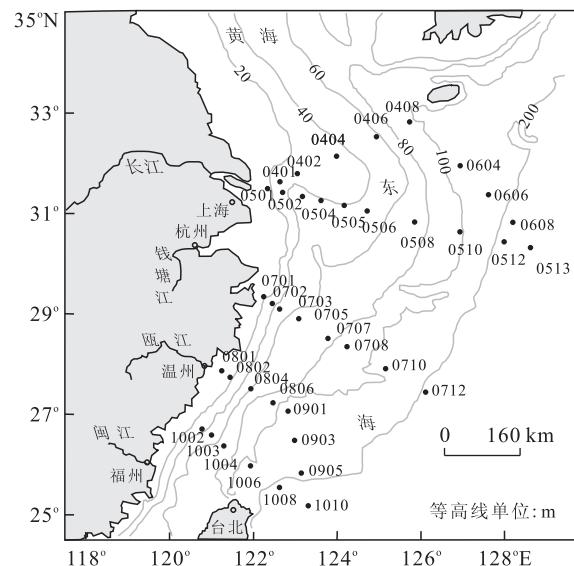


图 1 采样站位

Fig. 1 Sampling stations

方向辐射至黑潮流域($30.33^{\circ}\text{N}, 128.62^{\circ}\text{E}$); 06 断面连接 04 和 05 断面东端; 07 断面从浙江象山县近海向东南辐射至黑潮流域($27.46^{\circ}\text{N}, 126.12^{\circ}\text{E}$); 08 断面起点在浙江温州市洞头列岛东部海域, 向东南辐射, 在拐向($27.08^{\circ}\text{N}, 122.8^{\circ}\text{E}$)东南偏南方向形成 09 断面, 与 10 断面交于 1010 站; 10 断面从福建霞浦近海向东南辐射至台湾东部海域($25.18^{\circ}\text{N}, 123.29^{\circ}\text{E}$).

文中用 4 位数表示站位, 前 2 位是断面编号, 后 2 位是所在断面的站位编号, 站位号前的英文字母 S 表示夏季航次, W 表示冬季航次.

1.2 样品采集与测量

样品用自制的采样装置采集. 该装置由潜水泵、流量计和 3 个串接的采样柱构成, 整体组装在一起, 可放入水下 70 m. 采样时, 将采样装置放入欲采样的水深, 通过与甲板连接的电缆接通电源. 潜水泵抽水, 依次通过流量计和 A、B、C 3 个采样柱, 水流速度约为 5 L/min, 采样持续时间为 20~30 min, 采集的水样体积由流量计读数计算得到, 采样体积为 80~200 L. 3 个采样柱中, A 柱用来过滤海水中的颗粒物, B、C 是两个锰纤维柱, 内径为 3 cm, 长为 50 cm, 内装 30 g 锰纤维, B 柱用来测量样品中的镭同位素活度, 串接的 C 柱用来确定镭同位素的富集效率. 富集效率用下式计算得到(刘广山等, 2004):

$$\epsilon_e = 1 - \frac{A_c}{A_b}, \quad (1)$$

式(1)中, ϵ_e 为富集效率, A_b 和 A_c 分别为 B 柱和 C 柱样品中镭同位素的活度.

如果现场条件允许,分别测量B柱和C柱的²²⁴Ra,用式(1)计算富集效率,如果现场时间比较紧张,则在实验室测量B柱和C柱中的²²⁶Ra或²²⁸Ra活度,计算富集效率。

用连续射气法测量²²⁴Ra(Smith *et al.*, 1988; 黄奕普等,2001),本研究直接将富集柱作为扩散管进行测量。采样结束后,甩干水份,将样品柱接入测量系统进行计数测量。用氮气作为载气,气流速度为300 mL/min,计数时间为1~2 h。样品计数前后,同样气流速度下,测量同样时间的本底计数。从样品计数中减去两次本底计数平均值作为样品净计数。样品净计数除以测量效率得到样品中的²²⁴Ra活度。测量结果校正到采样时间。用活度为2.92 Bq 的²³²U-²²⁸Th-²²⁴Ra平衡源对测量系统进行效率刻度,活度误差通过误差传递计算得到,包括采样体积误差、样品计数误差、本底计数误差和效率误差。

2 东海²²⁴Ra的含量水平

东海水体中的²²⁴Ra测定结果列于表1和表2。表中同时列出站位的经纬度、离岸距离、水深、采样深度、现场温度、盐度和浊度。其中离岸距离是由站位经纬度计算得到的;采样深度是采样时潜水泵在海平面下的位置,由放下水泵的缆绳估算得到;温度、盐度和浊度是船上CTD与浊度计报出的数据。表中<LLD表示样品中的²²⁴Ra活度低于探测下限。表1和表2中活度误差为 1σ 置信度水平。

夏季航次东海水体中的²²⁴Ra比活度为<LLD~5.88 Bq/m³,平均值为0.85 Bq/m³;冬季航次为<LLD~7.50 Bq/m³,平均值为0.72 Bq/m³。对表层水进行的统计分析结果给出:东海夏季表层水²²⁴Ra活度是0.09~3.68 Bq/m³,平均为0.74 Bq/m³,冬季是<LLD~7.50 Bq/m³,平均为0.79 Bq/m³。

3 讨论

3.1 东海²²⁴Ra的分布与源项分析

源与输运过程决定了海洋中镭同素的分布,反过来从其在水体中的分布可以推演水体中镭同位素的源与输运过程。海洋中的镭同位素主要来源于海底沉积物释出和河流输入。其中河流的输入包括溶解态和颗粒态两部分(Krishnaswami, 2001)。

3.1.1 东海表层水²²⁴Ra的分布与近岸输入 东海表层水²²⁴Ra的分布如图2所示。夏季和冬季东海表层水²²⁴Ra的分布趋势大致相同。按²²⁴Ra的浓度水平可以将整个研究海区分为沿岸流区、中部陆架区和黑潮流区。3个海区的²²⁴Ra浓度水平差异极为明显。

在离岸100 km以内的沿岸流区,²²⁴Ra浓度大于0.5 Bq/m³,具有整个东海最高的²²⁴Ra浓度,而且随离岸距离的增加,表层水²²⁴Ra浓度迅速降低。该海区各站位的盐度符合沿岸水的条件(表1,表2)。东海沿岸流由北向南流,是由长江、钱塘江的入海径流与海水混合而成,沿途还有瓯江、闽江等河流的加入,具有低盐的特性,主要分布在长江口及其以南的浙闽沿岸(毛汉礼等,1964)。夏季采样的0401站、0501-0504站、0702站、0801站和冬季采样的0501站、0701站、0802站和0804站,以及1002站位于沿岸流区。本研究的采样站位大都已离岸有一定的距离,离岸最近的0701站离岸也有30 km。所以研究海区高²²⁴Ra浓度是近岸海区侧向输运来的,近岸海区水体中的²²⁴Ra则可能是海底沉积物释出和陆源颗粒物解析的。因为几个²²⁴Ra浓度特别高的站位都具有高的颗粒物浓度(表1,表2),²²⁴Ra浓度与浊度有较好的相关性(图3a),也说明水体中颗粒物对²²⁴Ra浓度有一定的贡献。0501站具有高的²²⁴Ra浓度可能是由于该站水深较浅造成的。另外该站离长江口最近,也使其具有高比例的长江输入淡水,低盐度和高²²⁴Ra浓度说明长江对东海²²⁴Ra具有有意义的贡献。

²²⁴Ra浓度与盐度的相关性较差(图3b),说明淡水输入的溶解态的²²⁴Ra不是影响东海水体²²⁴Ra浓度的主要因素,近岸高颗粒物浓度是影响水体中²²⁴Ra浓度的主要因素,当然这些颗粒物也可能是通过淡水输入的。实际上人们也只是在河口区发现水体中的镭同位素浓度与盐度之间存在强烈的依赖关系(Webster *et al.*, 1995),但也不是线性关系,而本研究的大部分站位离河口已很远,所以水体中²²⁴Ra的浓度与盐度的关系不明显。

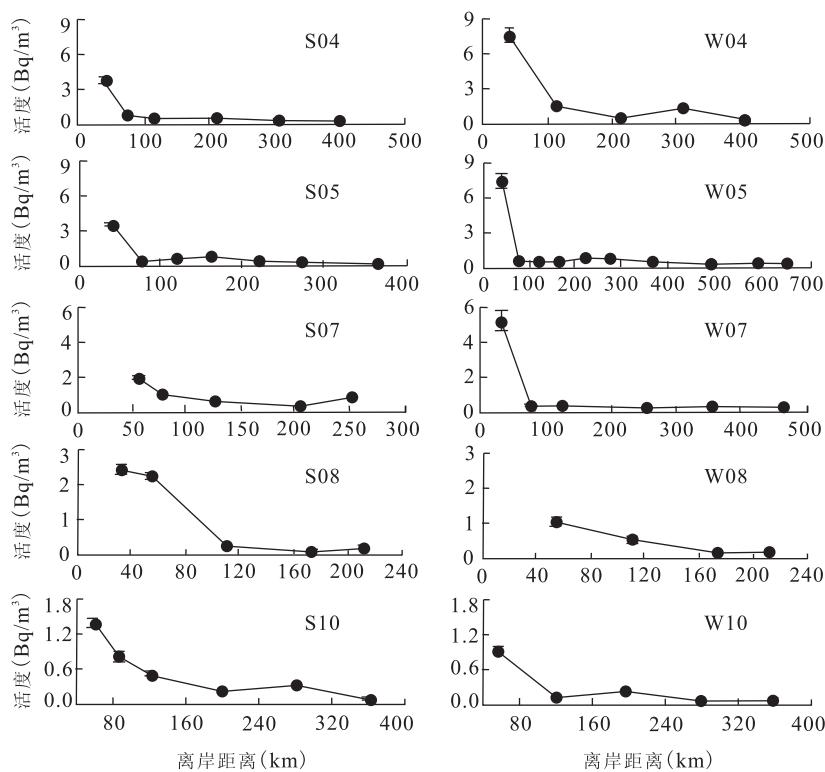
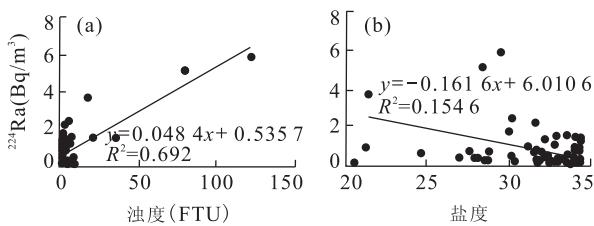
黑潮流具有低的²²⁴Ra浓度。0608、0512、0513、0712和1010站位于黑潮流区,黑潮流水体²²⁴Ra主要来源于母体²²⁸Ra通过²²⁸Th的现场衰变, Nozaki *et al.* (1989)测得的黑潮流区的²²⁸Ra活度在<LLD~0.35±0.03 Bq/m³范围,本研究²²⁴Ra活度范围为<LLD~0.13±0.02 Bq/m³,为研究海区最低。²²⁴Ra活度低于²²⁸Ra,是由于²²⁸Th是颗粒活性

表1 夏季航次东海水体中的²²⁴Ra浓度Table 1 ²²⁴Ra concentrations in the seawater of the East China Sea during summer cruise

站位	纬度 (°N)	经度 (°E)	离岸距离 (km)	水深 (m)	层位 (m)	温度(℃)	盐度	浊度(FTU)	²²⁴ Ra (Bq/m ³)
S0401	31.64	122.65	72.8	35	0	25.41	24.59	1.16	0.69±0.03
S0402	31.80	123.05	113.4	43	0	25.31	28.55	0.64	0.35±0.02
S0404	32.14	124.00	210.3	44	0	22.53	28.65	0.40	0.35±0.02
S0406	32.53	124.94	308.1	59	0	22.21	30.37	0.40	0.25±0.02
S0406	32.53	124.94	308.1	59	10	21.21	30.15	0.37	0.53±0.03
S0406	32.53	124.94	308.1	59	20	13.16	32.29	0.64	0.54±0.03
S0406	32.53	124.94	308.1	59	30	11.96	32.81	1.95	1.15±0.06
S0406	32.53	124.94	308.1	59	50	11.95	32.92	35.47	1.58±0.08
S0408	32.83	125.74	400.4	94	0	21.42	31.68	0.28	0.18±0.02
S0408	32.83	125.74	400.4	94	10	21.28	31.69	0.28	0.36±0.02
S0408	32.83	125.74	400.4	94	30	14.34	32.98	0.24	0.22±0.02
S0408	32.83	125.74	400.4	94	50	14.17	34.11	5.78	0.35±0.02
S0408	32.83	125.74	400.4	94	75	14.17	34.11	7.45	1.58±0.08
S0501	31.50	122.33	40.8	15	0	25.64	21.36	17.46	3.68±0.18
S0501	31.50	122.33	40.8	15	5	22.46	28.41	80.53	5.15±0.26
S0501	31.50	122.33	40.8	15	12	22.16	29.53	122.16	5.88±0.30
S0502	31.42	122.71	76.5	42	0	25.24	26.97	0.55	0.51±0.02
S0503	31.34	123.17	121.0	37	0	24.65	27.59	0.52	0.80±0.02
S0504	31.26	123.61	164.7	50	0	25.41	28.82	0.18	0.79±0.04
S0505	31.17	124.18	220.1	49	0	25.91	27.98	0.31	0.43±0.02
S0506	31.06	124.72	272.7	51	0	25.16	28.07	0.67	0.41±0.02
S0508	30.84	125.86	368.4	75	0	22.08	32.45	0.70	0.12±0.01
S0508	30.84	125.86	368.4	75	10	21.60	32.62	0.61	0.31±0.02
S0508	30.84	125.86	368.4	75	30	20.68	32.70	0.55	0.24±0.02
S0508	30.84	125.86	368.4	75	50	17.52	33.51	6.11	0.43±0.02
S0508	30.84	125.86	368.4	75	65	17.41	33.58	21.07	1.63±0.08
S0702	29.21	122.46	54.9	56	0	24.34	29.99	1.56	1.86±0.08
S0703	29.10	122.64	76.6	55	0	24.45	31.20	1.84	1.01±0.05
S0703	29.10	122.64	76.6	55	10	23.68	31.50	1.54	0.81±0.04
S0703	29.10	122.64	76.6	55	20	20.07	34.31	0.61	0.84±0.04
S0703	29.10	122.64	76.6	55	30	19.82	34.39	2.02	0.94±0.05
S0703	29.10	122.64	76.6	55	50	19.82	34.39	3.01	1.51±0.07
S0705	28.91	123.09	124.6	70	0	25.82	32.36	0.89	0.56±0.03
S0705	28.91	123.09	124.6	70	10	25.82	32.37	0.95	0.62±0.03
S0705	28.91	123.09	124.6	70	30	24.95	34.08	0.64	0.45±0.03
S0705	28.91	123.09	124.6	70	50	20.08	34.37	4.18	0.40±0.02
S0705	28.91	123.09	124.6	70	64	19.98	34.38	4.95	1.29±0.07
S0707	28.52	123.78	204.8	78.6	0	27.95	32.89	0.21	0.29±0.01
S0708	28.36	124.24	252.5	96	0	28.00	31.97	0.24	0.78±0.04
S0708	28.36	124.24	252.5	96	10	28.00	31.96	0.24	0.32±0.02
S0708	28.36	124.24	252.5	96	30	24.56	33.99	0.24	0.01±0.01
S0708	28.36	124.24	252.5	96	50	23.91	34.09	0.18	<LLD
S0708	28.36	124.24	252.5	96	65	23.48	34.05	0.15	0.25±0.01
S0708	28.36	124.24	252.5	96	75	19.94	34.35	0.70	1.04±0.05
S0801	27.87	121.25	33.3	18	0	24.41	30.22	5.50	2.47±0.13
S0802	27.75	121.45	55.3	29	0	26.69	31.66	2.53	2.28±0.11
S0804	27.51	121.94	110.1	78	0	26.91	32.82	0.37	0.28±0.01
S0806	27.24	122.48	172.4	98	0	28.51	34.44	0.95	0.14±0.01
S0901	27.08	122.83	211.4	110	0	29.15	33.36	0.18	0.22±0.01
S0903	26.49	122.99		0		28.66	34.15	0.15	0.12±0.01
S0905	25.84	123.15		0		29.58	34.29	0.09	0.25±0.01
S1002	26.72	120.78	57.2	50	0	25.45	32.22	0.98	1.39±0.07
S1003	26.59	121.00	83.1	67	0	27.30	31.62	0.76	0.84±0.11
S1004	26.38	121.30	120.5	79	0	28.18	33.07	8.42	0.51±0.04
S1004	26.38	121.30	120.5	79	10	26.22	32.97	8.43	0.20±0.02
S1004	26.38	121.30	120.5	79	30	25.76	33.21	8.42	0.33±0.03
S1004	26.38	121.30	120.5	79	50	24.91	33.70	1.02	0.58±0.03
S1004	26.38	121.30	120.5	79	60	24.61	34.02	2.15	0.84±0.04
S1004	26.38	121.30	120.5	79	75	24.59	34.02	4.73	1.00±0.05
S1006	25.98	121.93	199.1	110	0	28.65	33.08	0.16	0.21±0.01
S1008	25.55	122.62	281.5	815	0	28.11	33.56	6.06	0.32±0.02
S1008	25.55	122.62	281.5	815	10	27.15	33.65	5.49	0.17±0.01
S1008	25.55	122.62	281.5	815	30	25.51	33.93	5.68	0.19±0.01
S1008	25.55	122.62	281.5	815	50	24.37	34.08	5.43	0.17±0.01
1010	25.19	123.32	360.5	1769	0	29.58	34.29	0.09	0.09±0.01
范围值						111.95~29.58	21.36~34.44	0.09~122.16	<LLD~5.88
平均值						23.45	32.05	6.13	0.85

表2 冬季航次东海水体中的²²⁴Ra浓度Table 2 ²²⁴Ra concentrations in the seawater of the East China Sea during winter cruise

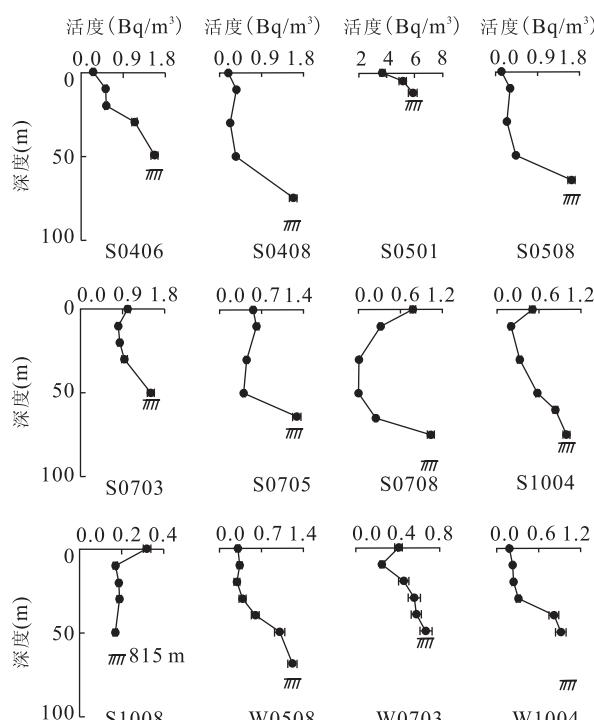
站位	纬度 (°N)	经度 (°E)	离岸距离 (km)	水深 (m)	层位 (m)	温度(℃)	盐度	浊度(FTU)	²²⁴ Ra (Bq/m ³)
W0402	31.78	123.05	113.4	41	0	10.64	32.51	6.96	1.43±0.14
W0404	32.12	124.00	210.3	45	0	9.89	32.23	4.64	0.47±0.05
W0406	32.53	124.93	308.1	58	0	12.49	33.98	5.86	1.28±0.11
W0408	32.87	125.83	400.4	101	0	15.87	34.35	1.34	0.38±0.03
W0501	31.50	122.33	40.8	15	0	8.24	29.79	53.36	7.50±0.62
W0502	31.42	122.70	76.5	41	0	14.5	33.89	6.84	0.50±0.04
W0503	31.34	123.16	121.0	40	0	12.97	33.43	5.62	0.41±0.03
W0504	31.26	123.61	164.7	51	0	13.5	33.60	3.05	0.37±0.05
W0505	31.16	124.18	220.1	47	0	13.24	33.54	5.86	0.81±0.07
W0506	31.06	124.72	272.7	51	0	13.53	33.64	8.67	0.71±0.07
W0508	30.84	125.69	368.4	76	0	15.64	33.98	4.88	0.31±0.03
W0508	30.84	125.69	368.4	76	10	15.64	33.98	5.13	0.34±0.04
W0508	30.84	125.69	368.4	76	20	15.65	33.98	5.74	0.29±0.05
W0508	30.84	125.69	368.4	76	30	15.66	33.98	5.98	0.39±0.06
W0508	30.84	125.69	368.4	76	40	15.66	33.98	5.98	0.60±0.07
W0508	30.84	125.69	368.4	76	50	15.66	33.98	5.98	1.01±0.09
W0508	30.84	125.69	368.4	76	69	15.69	34.00	6.72	1.22±0.08
W0510	30.64	126.94	489.9	101	0	17.44	34.19	0.37	0.16±0.01
W0512	30.44	127.96	590.2	404	0	19.03	34.59		0.13±0.02
W0513	30.33	128.62	654.7	854	0	18.45	34.56		<LLD
W0604	31.96	126.94		114	0	17.86	34.49	0.12	0.10±0.01
W0606	31.39	127.62		131	0	18.14	34.47		0.08±0.01
W0608	30.83	128.21		517	0	18.83	34.60		0.07±0.01
W0701	29.34	122.25	30.0	16	0	9.32	28.72	217.3	5.29±0.51
W0703	29.07	122.62	76.6	53	0	13.37	33.73	3.3	0.41±0.04
W0703	29.07	122.62	76.6	53	10	13.36	33.73	3.18	0.25±0.02
W0703	29.07	122.62	76.6	53	20	13.43	33.74	3.42	0.46±0.05
W0703	29.07	122.62	76.6	53	30	13.55	33.79	3.54	0.56±0.06
W0703	29.07	122.62	76.6	53	40	13.63	33.83	3.85	0.58±0.05
W0703	29.07	122.62	76.6	53	50	13.72	33.86	4.15	0.67±0.06
W0705	28.91	123.09	124.6	69	0	16.17	34.57	1.59	0.43±0.04
W0708	28.36	124.24	252.5	97	0	17.32	34.51	0.98	0.20±0.02
W0710	27.91	125.16	355.8	107	0	18.61	34.66	0.86	0.25±0.03
W0712	27.46	126.12	462.8	820	0	22.09	34.68		0.12±0.02
W0802	27.75	121.44	55.3	29	0	11.48	30.78	3.05	1.06±0.11
W0804	27.48	121.91	110.1	79	0	16.85	33.70	0.49	0.50±0.05
W0806	27.24	122.48	172.4	95	0	19.61	34.40	0.12	0.14±0.01
W0901	27.08	122.83	211.4	111	0	19.36	34.65	0.12	0.17±0.02
W1002	26.72	120.78	57.2	52	0	11.85	30.87	1.59	0.98±0.09
W1004	26.38	121.30	120.5	80	0	16.11	33.18	0.61	0.18±0.01
W1004	26.38	121.30	120.5	80	10	15.94	33.18	0.73	0.23±0.01
W1004	26.38	121.30	120.5	80	20	15.80	33.18	1.90	0.24±0.02
W1004	26.38	121.30	120.5	80	30	15.75	33.16	2.81	0.31±0.03
W1004	26.38	121.30	120.5	80	40	15.70	33.16	1.89	0.82±0.07
W1004	26.38	121.30	120.5	80	50	15.75	33.16	2.69	0.92±0.08
W1006	25.98	121.95	199.1	104	0	21.75	34.57		0.28±0.03
W1008	25.55	122.62	281.5	750	0	24.35	34.47		0.03±0.00
W1010	25.18	123.29	360.5	1770	0	24.57	34.66		0.03±0.01
范围值					8.24~24.57	28.72~34.68	0.12~217.34	<LLD~7.50	
平均值					15.70	33.60	10.03	0.72	

图2 各断面表层水²²⁴Ra的分布(S代表夏季,W代表冬季)Fig. 2 ²²⁴Ra distributions in the surface water of the East China Sea图3 东海²²⁴Ra的浓度与浊度(a)和盐度(b)的关系Fig. 3 Correlations between ²²⁴Ra concentration and turbidity (a) or salinity (b) in the seawater of the East China Sea

核素,可以解释为颗粒物对²²⁸Th清除造成²²⁴Ra与²²⁸Ra之间的衰变不平衡。

东海的主要水体位于中部陆架区,在该海区跃层将水体分为上层水与下层水体,下层水通过涡动扩散将沉积物中释出的²²⁴Ra向上层输运。在跃层之上则是近岸的高浓度通过侧向混合向远离岸线方向运移。包括台湾暖流在内,沿岸水与黑潮水的混合形成中²²⁴Ra浓度的陆架水。陆架水的²²⁴Ra浓度约在0.2~0.5 Bq/m³之间。

3.1.2 东海²²⁴Ra的垂直分布与沉积物释出 两个航次东海水体²²⁴Ra的垂直分布如图4所示。可分2种分布模式:(1)从表层起²²⁴Ra浓度随水深增加呈

图4 东海²²⁴Ra的垂直分布Fig. 4 The vertical distributions of ²²⁴Ra in the East China Sea

增加趋势,大部分站位接近水底时,活动增加较快,S0406、S0408、S0501、S0508和W1004属于这种分

布。(2)上层水和底层水²²⁴Ra浓度高,中间层²²⁴Ra较低,这种模式说明水体中不仅有沉积物向上扩散的²²⁴Ra,侧向输入也是影响²²⁴Ra分布的重要因素,S0703、S0705、S0708、S1004和W0703属于这种分布;S1008也可能属于这一种分布。

在水深大于温跃层的海区,由于跃层分隔,跃层以上的混合层的镭同位素主要来源于近岸水体的侧向混合,而陆架区底层沉积物是跃层以下水体²²⁴Ra的主要来源。而且从图4可以直观地看出,除S0708和S1008外,其余站位的侧向输运的贡献比沉积物释出的贡献小。

尽管底层水中具有相对高的²²⁴Ra浓度,但是,除0501站外,各个站的底层水²²⁴Ra浓度最高也仅1.6 Bq/m³,远低于近岸几个高浓度站表层水的²²⁴Ra浓度,这是由于在东海,近岸海区大多数沉积物为软泥,即细粒沉积物(胡敦欣和杨作升,2001),可能释放出较高通量的²²⁴Ra;而其他海区大多为细沙或粉沙,具有低的镭同位素解析通量,水体中的²²⁴Ra可能主要源于水体中²²⁸Ra衰变产生的²²⁸Th清除至海底后,衰变产生的²²⁴Ra向上扩散的结果,所以也有从沉积物水界面向上浓度逐渐降低的趋势。

S0708站的分布可以得出结论(图4),在中层30~50 m深度,由于黑潮次表层水入侵,形成极低²²⁴Ra浓度的水体。

3.2 ²²⁴Ra示踪的东海水体的混合过程

由于源项的原因,海洋中、近岸浅海或深海底层水体具有高的镭同位素浓度,本研究结果证明这一点(图2,图4)。这些高浓度的镭同位素源于海底沉积物释出,进入水体后,在水平方向向开阔海域输运,在垂直方向向远离沉积物水界面的上层水输运。

3.2.1 涡动扩散描述方法 海洋学研究中,应用放射性核素作为示踪剂研究水体混合总是将放射性核素的分布作为输运过程和放射性衰变平衡处理。放射性核素活度A随时间t和离源地距离x的变化,用以下平衡方程表示(Moore, 2000):

$$\frac{dA}{dt} = K \frac{\partial^2 A}{\partial x^2} - V \frac{\partial A}{\partial x} - \lambda A, \quad (2)$$

式(2)中,K是涡动扩散系数(cm²/s),V是平流速度(cm/s)。如果海水中²²⁴Ra的分布仅受涡动扩散的控制,例如表层水的分布仅受水平涡动作用的影响,垂直分布仅受垂直涡动扩散的影响,在稳态条件下,式(2)可以简化为:

$$K \frac{\partial^2 A}{\partial x^2} = \lambda A, \quad (3)$$

该方程的解为:

$$A = A_0 e^{-\sqrt{\frac{\lambda}{K}} \cdot x}, \quad (4)$$

式(4)中,A₀为x=0时²²⁴Ra的活度(Bq/m³),A为x时²²⁴Ra的活度(Bq/m³),λ为²²⁴Ra的衰变常数(s⁻¹)。

3.2.2 东海垂直于岸线的水体涡动扩散 由图2各断面²²⁴Ra的分布可以看出,²²⁴Ra浓度在近岸100 km以内降到很低,所以²²⁴Ra能示踪的空间尺度在离岸100 km的距离范围内。这个结论与在美国东南近海南大西洋湾的结论一致(Levy and Moore, 1985; Rama *et al.*, 1987; Moore, 2000),用每个断面近岸的几个站的数据拟合式(4),计算出各断面水平涡动扩散系数列于表3。夏季,04、07和08断面水平涡动扩散系数非常接近,05断面扩散系数最低,10断面最高;冬季各断面差异较大,除10断面外,各断面冬季航次水平涡动扩散系数均高于夏季航次,仅10断面夏季的水平涡动扩散系数大于冬季。

表3 东海水体的水平涡动扩散系数(10⁶ cm²/s)

Table 3 Horizontal eddy diffusion coefficients of the East China Sea

断面	夏季	冬季
04	21.8	42.2
05	7.1	17.9
07	27.8	31.5
08	24.0	72.4
10	88.9	30.5
范围值	7.1~88.9	17.9~72.4
平均值	33.9	38.9

以上计算忽略了平流作用的影响,但在实际情况却不能忽略,如果平流的方向和扩散的方向是一致的,忽略平流作用得出的表观涡动扩散系数将大于真实情况下的涡动扩散系数。冬季水平涡动扩散系数大于夏季可能是由冬夏季两种方向不同的季风造成的。东海的夏季风从海洋吹向陆地,在风的作用下形成向岸方向的流;冬季风比夏季强烈,常有8级以上西北风伴随寒潮南下,在风的作用下,形成离岸方向的流,致使冬季的表观涡动扩散系数高于夏季。

3.2.3 垂直涡动扩散 利用稳态模型计算得到的垂直涡动扩散系数列于表4,范围值为2.18~163 cm²/s。从表中可以看出0703站垂直涡动扩散系数最高,除0703站以外,其余站位的垂直涡动扩散系数在2.18~32.40 cm²/s之间,0408、0508和夏

表4 东海水体的垂直涡动扩散系数(cm^2/s)

Table 4 Vertical eddy diffusion coefficients of the East China Sea

站位	夏季	冬季
0406	16.9	
0408	28.0	
0501	15.3	
0508	22.0	22.5
0703	84.6	163.0
0705	3.14	
0708	2.18	
1004	32.4	18.0

季1004站较高,大于 $20\text{ cm}^2/\text{s}$,0705、0708站比较低,小于 $10\text{ cm}^2/\text{s}$. 0508站夏冬两季的垂直涡动扩散系数极为接近,0703站冬季的垂直涡动扩散系数大于夏季. 与水平涡动扩散类似,10断面的1004站夏季垂直涡动扩散系数大于冬季.

3.2.4 浙江沿岸上升流速率的估算 20世纪60年代毛汉礼等(1964)就提出,浙江沿岸存在上升流,后被海洋观测和分析所证实,近年来通过卫星照片更进一步证实了上升流的存在. 后经科学家研究认为浙江沿岸上升流是潮、风和台湾暖流等作用下经过复杂的动力学过程形成的,利用物理模型进行了各因子作用的探讨,并对流速进行了估算(胡敦欣等,1980; 潘玉球等,1985; 刘先炳和苏纪兰,1991; 黄祖珂等,1996; 罗义勇和俞光耀,1998; 胡明娜和赵朝方,2008).

表4中0703站的垂直涡动扩散系数比其他站位高出几倍,该站位处于浙江沿岸的上升流区(胡敦欣等,1980; 潘玉球等,1985; 孙湘平,2006),可能是由于上升流的存在使得表观的涡动扩散系数较高,图5的07断面夏季航次的温盐分布也说明该断面存在上升流. 假设东海具有相同水平的垂直涡动扩

散系数,亦即0703站的垂直涡动扩散系数与其他海区相同,则可以利用 ^{224}Ra 的分布和其他站位的垂直涡动扩散系数估算得该站的上升流速度.

存在涡动扩散和平流的情况下稳态条件的质量平衡方程(2)变为:

$$K \frac{\partial^2 A}{\partial x^2} - V \frac{\partial A}{\partial x} - \lambda A = 0, \quad (5)$$

该方程的解为:

$$A = A_0 e^{-\eta x}, \quad (6)$$

式(6)中:

$$\eta = \frac{\sqrt{V^2 + 4K\lambda} - V}{2K}. \quad (7)$$

利用0703站 ^{224}Ra 的分布数据拟合得到 η 值,将其和其他站位的夏季 K 的范围值 $2.18 \sim 32.40\text{ cm}^2/\text{s}$ 代入式(7),得出夏季 V 的范围为 $(8.4 \sim 13.3) \times 10^{-3}\text{ cm/s}$; 将冬季的涡动扩散系数 $18.0 \sim 22.5\text{ cm}^2/\text{s}$ 代入式(7)得到的 V 值为 $(16.3 \sim 16.8) \times 10^{-3}\text{ cm/s}$. 胡敦欣等(1980)计算给出浙江沿岸上升流的流速为 $(4.4 \sim 11.6) \times 10^{-3}\text{ cm/s}$,笔者的结果与其一致.

4 结语

(1)用射气法测定了东海水体中的 ^{224}Ra . 结果给出东海夏季 ^{224}Ra 比活度为 $<\text{LLD} \sim 5.88\text{ Bq/m}^3$, 平均值为 0.85 Bq/m^3 ; 冬季 ^{224}Ra 比活度为 $<\text{LLD} \sim 7.50\text{ Bq/m}^3$, 平均值为 0.72 Bq/m^3 .

(2)两个季节表层水 ^{224}Ra 的水平分布变化趋势大致相同,随着离岸距离的增加,水体中 ^{224}Ra 的活度很快降低, ^{224}Ra 高活度海区位于离岸 100 km 范围内,浓度水平为 $0.5 \sim 7.5\text{ Bq/m}^3$; 陆架水 ^{224}Ra 浓度在 $0.2 \sim 0.5\text{ Bq/m}^3$ 范围; 黑潮流 ^{224}Ra 活度在整个海域最低,浓度 $<0.13\text{ Bq/m}^3$.

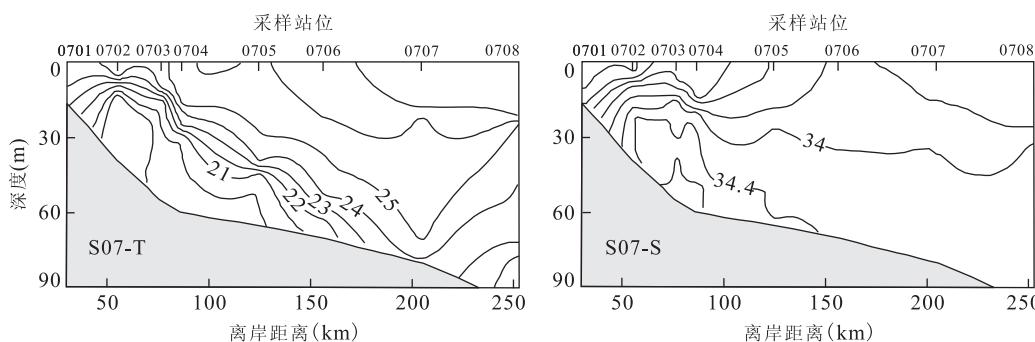


图5 07断面温盐等值分布

Fig. 5 The contour distributions of temperature and salinity in transect 07

(3)夏季东海的水平涡动扩散系数为(7.1~88.9)×10⁶ cm²/s,冬季为(17.9~72.4)×10⁶ cm²/s,冬季水平涡动扩散系数平均高于夏季,季风是形成这种不同的主要因素。夏季东海垂直涡动扩散系数为2.18~84.60 cm²/s,冬季为18.0~163.0 cm²/s。

(4)估算了浙江沿岸上升流的流速,夏季为(8.4~13.3)×10⁻³ cm/s,冬季为(16.3~16.8)×10⁻³ cm/s。²²⁴Ra可能是研究近岸浅海上升流的有用的示踪剂。

致谢:感谢东方红二号考察船船员和科学家对本研究的采样工作和理化参数资料给予的支持和帮助。

References

- Bollinger, M. S. , Moore, W. S. , 1984. Radium fluxes from a salt marsh. *Nature*, 309: 444—446. doi: 10. 1038/309444a0
- Chen, X. B. , Huang, Y. P. , Xie, Y. Z. , et al. , 1999. Distribution of ²²⁴Ra in the Jiulong Estuarine waters and its application. *Acta Oceanologica Sinica*, 21(4): 54—61 (in Chinese with English abstract).
- Chen, X. B. , Xie, Y. Z. , Huang, Y. P. , et al. , 1998. Profiles of ²²⁴Ra in the Xiamen bay waters and its application. *Acta Oceanologica Sinica*, 20(6): 50—57 (in Chinese with English abstract).
- Cochran, J. K. , 1992. The oceanic chemistry of the U- and Th-series nuclides in the ocean. In: Ivanovich, M. I. , Harmon, R. S. , eds., Uranium-series disequilibrium: application to earth, marine, and environmental science (Second edition). Clarendon Press, Oxford, 364—375.
- Colbert, S. L. , Hammond, D. E. , 2007. Temporal and spatial variability of radium in the coastal ocean and its impact on computation of nearshore cross-shelf mixing rates. *Continental Shelf Research*, 27(10—11): 1477—1500. doi: 10. 1016/j.csr. 2007. 01. 003
- Elsinger, R. J. , Moore, W. S. , 1983. ²²⁴Ra, ²²⁸Ra, and ²²⁶Ra in Winyah bay and Delaware bay. *Earth and Planetary Science Letters*, 64(3): 430—436. doi: 10. 1016/0012—821X(83)90103—6
- Hougham, A. L. , Moran, S. B. , 2007. Water mass ages of coastal ponds estimated using ²²³Ra and ²²⁴Ra as tracers. *Marine Chemistry*, 105(3—4): 194—207. doi: 10. 1016/j.marchem. 2007. 01. 013
- Hu, D. X. , Lü, L. H. , Xiong, Q. C. , et al. , 1980. Studies on the upwelling of Zhejiang. *Chinese Science Bulletin*, (3): 131—133 (in Chinese).
- Hu, D. X. , Yang, Z. S. , 2001. The key processes for marine fluxes of the East China Sea. China Ocean Press, Beijing (in Chinese).
- Hu, M. N. , Zhao, C. F. , 2008. Upwelling in Zhejiang coastal areas during summer detected by satellite observations. *Journal of Remote Sensing*, 12(2): 297—304 (in Chinese with English abstract).
- Huang, Y. P. , Xie, Y. Z. , Chen, X. B. , et al. , 2001. A new method for rapid concentration and determination of ²²⁴Ra in seawater. *Journal of Xiamen University (Natural Science)*, 40(3): 699—705 (in Chinese with English abstract).
- Huang, Z. K. , Yu, G. Y. , Luo, Y. Y. , et al. , 1996. Numerical modeling of tide induced upwelling in coastal areas of the East China Sea. *Journal of Ocean University of Qingdao*, 26(4): 405—412 (in Chinese with English abstract).
- Iseki, K. , Okamura, K. , Kiyomoto, K. , 2003. Seasonality and composition of downward particulate fluxes at the continental shelf and Okinawa Trough in the East China Sea. *Deep Sea Research Part II: Topical Studies in Oceanography*, 50(2): 457—473. doi: 10. 1016/S0967—0645(02)00468-X
- Krest, J. M. , Harvey, J. W. , 2003. Using natural distributions of short-lived radium isotopes to quantify groundwater discharge and recharge. *Limnology and Oceanography*, 48(1): 290—298. doi: 10. 4319/lo. 2003. 48. 1. 0290
- Krishnaswami, S. , 2001. Uranium thorium series isotopes in ocean profiles. In: Steele, J. H. , Thorpe, S. A. , Turekian, K. K. , eds., Encyclopedia of ocean sciences. Academic Press, London, 3146—3156.
- Levy, D. M. , Moore, W. S. , 1985. ²²⁴Ra in continental shelf waters. *Earth and Planetary Science Letters*, 73(2—4): 226—230. doi: 10. 1016/0012—821X(85)90071—8
- Liu, G. S. , Yang, W. F. , Jia, C. X. , et al. , 2004. Rapid concentration in-situ and γ spectrum analysis of radium isotopes in large volume seawater. *Nuclear Techniques*, 27(2): 116—121 (in Chinese with English abstract).
- Liu, X. B. , Su, J. L. , 1991. The numerical study on the upwelling of Zhejiang and the coastal front. *Acta Oceanologica Sinica*, 13(3): 305—314 (in Chinese).
- Luo, Y. Y. , Yu, G. Y. , 1998. Numerical studies of wind and TWC driven upwelling in coastal areas of the East China Sea. *Journal Ocean University of Qingdao (Natural Science)*, 28(4): 536—542 (in Chinese with English abstract).
- Mao, H. L. , Ren, Y. W. , Wan, G. M. , 1964. A preliminary investigation on the application of using T-S diagrams

- for a quantitative analysis of the watermasses in the shallow water area. *Oceanologia et Limnologia Sinica*, 6(1): 1—21 (in Chinese with English abstract).
- Men, W., Liu, G. S., Chen, Z. G., et al., 2010. Progress of radium isotopes applications to oceanography research. *Advances in Earth Science*, 25(1): 33—42 (in Chinese with English abstract).
- Moore, W. S., 2000. Determining coastal mixing rates using radium isotopes. *Continental Shelf Research*, 20(15): 1993—2007. doi: 10.1016/S0278-4343(00)00054-6
- Moore, W. S., Todd, J. F., 1993. Radium isotopes in the Orinoco Estuary and eastern Caribbean Sea. *Journal of Geophysical Research*, 98(C2): 2233—2244. doi: 10.1029/92JC02760
- Nozaki, Y., Kasemsupaya, V., Tsubota, H., 1989. Mean residence time of the shelf water in the East China and the Yellow Seas determined by $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ measurements. *Geophysical Research Letters*, 16(11): 1297—1300. doi: 10.1029/GL016i011p01297
- Nozaki, Y., Tsubota, H., Kasemsupaya, V., et al., 1991. Residence times of surface water and particle-reactive ^{210}Pb and ^{210}Po in the East China and Yellow seas. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 55(5): 1265—1272. doi: 10.1016/0016-7037(91)90305-O
- Pan, Y. Q., Xu, D. R., Xu, J. P., 1985. The front structure, variation and causes of upwelling off Zhejiang. *Acta Oceanologica Sinica*, 7(4): 401—411 (in Chinese).
- Rama, , Todd, J. F., Butts, J. L., et al., 1987. A new method for the rapid measurement of ^{224}Ra in the natural waters. *Marine Chemistry*, 22(1): 43—54. doi: 10.1016/0304-4203(87)90047-8
- Smith, M. R., Lautensleger, A. W., Laul, J. C., 1988. A new method for the determination of radium-228, thorium-228, and radium-224 in groundwaters via thoron (radon-220). *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 123(1): 107—119. doi: 10.1007/BF02036384
- Sun, X. P., 2006. Regional marine in China offshore. China Ocean Press, Beijing, 106—109 (in Chinese).
- Torgersen, T., Turekian, K. K., Turekian, V. C., et al., 1996. ^{224}Ra distribution in surface and deep water of Long Island Sound: sources and horizontal transport rates. *Continental Shelf Research*, 16(12): 1545—1559. doi: 10.1016/0278-4343(96)00003-9
- Webster, I. T., Hancock, G. J., Murray, A. S., et al., 1994. Use of radium isotopes to examine pore-water exchange in an estuary. *Limnology and Oceanography*, 39(8): 1917—1927. doi: 10.4219/lo.1994.39.8.1917
- Webster, I. T., Hancock, G. J., Murray, A. S., 1995. Modeling the effect of salinity on radium desorption from sediments. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 59(12): 2469—2476. doi: 10.1016/0016-7037(95)00141-7
- Zhang, J., 2002. Biogeochemistry of Chinese estuarine and coastal waters: nutrients, trace metals and biomarkers. *Regional Environmental Change*, 3(1—3): 65—76. doi: 10.1007/s10113-001-0039-3
- Zhang, L., Liu, Z., Zhang, J., et al., 2007. Reevaluation of mixing among multiple water masses in the shelf: an example from the East China Sea. *Continental Shelf Research*, 27(15): 1969—1979. doi: 10.1016/j.csr.2007.04.002
- ### 附中文参考文献
- 陈性保, 黄奕普, 谢永臻, 等, 1999. 九龙江河口区水体中 ^{224}Ra 的分布及其应用. *海洋学报*, 21(4): 54—61.
- 陈性保, 谢永臻, 黄奕普, 等, 1998. 厦门湾海水中的 ^{224}Ra 的深度分布特征及其应用. *海洋学报*, 20(6): 50—57.
- 胡敦欣, 吕良洪, 熊庆成, 等, 1980. 关于浙江沿岸上升流的研究. *科学通报*, (3): 131—133.
- 胡敦欣, 杨作升, 2001. 东海海洋通量关键过程. 北京: 海洋出版社.
- 胡明娜, 赵朝方, 2008. 浙江近海夏季上升流的遥感观测与分析. *遥感学报*, 12(2): 297—304.
- 黄奕普, 谢永臻, 陈性保, 等, 2001. 海水中 ^{224}Ra 快速富集和测定的新方法. *厦门大学学报(自然科学版)*, 40(3): 699—705.
- 黄祖珂, 俞光耀, 罗义勇, 等, 1996. 东海沿岸潮致上升流的数值模拟. *青岛海洋大学学报*, 26(4): 405—412.
- 刘广山, 杨伟峰, 贾成霞, 等, 2004. 大体积海水镭同位素现场快速富集与 γ 谱直接测定. *核技术*, 27(2): 116—121.
- 刘先炳, 苏纪兰, 1991. 浙江沿岸上升流和沿岸锋面的数值研究. *海洋学报*, 13(3): 305—314.
- 罗义勇, 俞光耀, 1998. 风和台湾暖流引起东海沿岸上升流数值计算. *青岛海洋大学学报(自然科学版)*, 28(4): 536—542.
- 毛汉礼, 任允武, 万国铭, 1964. 应用 T-S 关系定量地分析浅海水团的初步研究. *海洋与湖沼*, 6(1): 1—21.
- 门武, 刘广山, 陈志刚, 等, 2010. 长期同位素在海洋学研究中的应用及进展. *地球科学进展*, 25(1): 33—42.
- 潘玉球, 徐端蓉, 许建平, 1985. 浙江沿岸上升流区的锋面结构、变化及其原因. *海洋学报*, 7(4): 401—411.
- 孙湘平, 2006. 中国近海区域海洋. 北京: 海洋出版社, 106—109.