

doi:10.3799/dqkx.2013.060

用镭同位素评价海水滞留时间及海底地下水排泄

刘花台, 郭占荣, 袁晓婕, 李开培, 章 斌

厦门大学环境与生态学院, 福建厦门 361005

摘要: 海底地下水排泄(submarine groundwater discharge, SGD)难以直接测量, 镭同位素和氡-222 等天然示踪剂使得间接评价 SGD 通量成为可能. 为了评价五缘湾的水体滞留时间和 SGD 通量, 实测了湾内海水、湾外海水和地下水中²²⁴Ra 和²²⁶Ra 的活度, 利用²²⁴Ra 和²²⁶Ra 半衰期的差异, 采用²²⁴Ra 与²²⁶Ra 的活度比值计算湾内水团的年龄和平均滞留时间, 利用²²⁴Ra 和²²⁶Ra 的质量平衡模型计算 SGD 通量. 五缘湾 13 个站位的水团年龄在 0.6~2.4 d 之间, 湾顶水团年龄相对较大, 平均海水滞留时间 1.4 d. 地下水输入五缘湾的²²⁴Ra 和²²⁶Ra 通量分别为 5.17×10^6 Bq/d 和 5.28×10^6 Bq/d, 将该通量用地下水端元的活度转换为 SGD 通量分别是 $0.21 \text{ m}^3/\text{m}^2/\text{d}$ (²²⁴Ra 平衡模型) 和 $0.23 \text{ m}^3/\text{m}^2/\text{d}$ (²²⁶Ra 平衡模型), 两种模型的结果较接近, 其平均值 $0.22 \text{ m}^3/\text{m}^2/\text{d}$ 可作为五缘湾的海底地下水排泄通量.

关键词: 海底地下水排泄; 海水; 镭同位素; 滞留时间; 五缘湾; 水文地质.

中图分类号: P641

文章编号: 1000-2383(2013)03-0599-08

收稿日期: 2012-01-17

Utility of Radium Isotopes for Evaluating Residence Time and Submarine Groundwater Discharge

LIU Hua-tai, GUO Zhan-rong, YUAN Xiao-jie, LI Kai-pei, ZHANG Bin

College of the Environment and Ecology, Xiamen University, Xiamen 361005, China

Abstract: It's very difficult to measure submarine groundwater discharge (SGD) directly, but naturally occurring radium isotopes and radon tracers make it possible to estimate SGD fluxes indirectly. In order to evaluate the residence time of seawater and SGD fluxes in Wuyuan Bay, Xiamen, China, we measured the ²²⁴Ra and ²²⁶Ra activities in the bay water, open ocean seawater and groundwater, calculated the water parcel ages and average residence time in the Bay based on the differences in half-life between ²²⁴Ra and ²²⁶Ra, and estimated the SGD fluxes via the mass balance on ²²⁴Ra and ²²⁶Ra. The water parcel ages range from 0.6 to 2.4 d among thirteen sampling stations, with an average residence time of 1.4 d. The water parcel ages in the bay head relatively get older than those in the bay mouth. The calculated ²²⁴Ra and ²²⁶Ra fluxes driven by SGD are 5.17×10^6 Bq/d and 5.28×10^6 Bq/d, respectively. Both radium fluxes are further converted into SGD fluxes by dividing the activities of groundwater end-member to be $0.21 \text{ m}^3/\text{m}^2/\text{d}$ (²²⁴Ra mass balance model) and $0.23 \text{ m}^3/\text{m}^2/\text{d}$ (²²⁶Ra mass balance model), respectively. The calculated results from two models are so close that their average of $0.22 \text{ m}^3/\text{m}^2/\text{d}$ can be considered as SGD fluxes in Wuyuan Bay.

Key words: submarine groundwater discharge; seawater; radium isotopes; residence time; Wuyuan Bay; hydrogeology.

海底地下水排泄(submarine groundwater discharge, 简称 SGD)是指从海底(高潮线以下)进入海域的所有水流, 不管这些水流的物质组成、来源和驱动力是什么, 都包括由水力梯度驱动的陆源地下淡水输入, 以及由潮汐泵、波浪和密度梯度驱动的再循环海水输入(Burnett *et al.*, 2003). SGD 的排泄速

度受到内陆地下水的补给速度、下伏地层的岩性、结构和构造以及海岸带海洋学过程的控制. 因为存在多种多样自然因素和人为因素(如降水量、潮汐、风暴、地下水开采等)的影响, SGD 存在时空变化性. 海水的潮涨潮落引起滨海含水层中地下水位有规律的波动, 同时潮汐的涨落在滨海含水层地下水与海

基金项目: 国家自然科学基金项目(Nos. 40672166, 41072174).

作者简介: 刘花台(1967—), 女, 副教授, 主要从事海岸带水文地质研究. E-mail: lht@xmu.edu.cn

水的相互作用中扮演着重要的角色(Li and Jiao, 2003; Li *et al.*, 2008). 海底地下水排泄量中陆源地下淡水的份额很不确定,在 4%~40%之间变化,海底地下水排泄量的准确估计对正确评估地下水在全球水循环中所起的作用具有重要意义(李海龙等, 2011).

海底地下水排泄的研究近年来在科学界引起大家越来越浓厚的兴趣,不仅意识到 SGD 输入的水量很可观,而且还意识到 SGD 输入化学物质的能力也很强. 地下水相对于海水更富集化学物质(如营养盐、金属等),即使少量的 SGD 也可以输入很可观的营养盐和其他化学物质,这些化学物质最终将影响敏感的海岸带环境的生物地球化学循环,还可能导致诸如富营养化的生态环境问题(Garcia *et al.*, 2008).

理想的 SGD 示踪剂应该具有在地下水中的浓度高于海水中的浓度、化学行为保守和容易测量 3 个特点(Moore and Oliveira, 2008), 镭的 4 种同位素(^{223}Ra , ^{224}Ra , ^{226}Ra , ^{228}Ra)和 ^{222}Rn 恰好具备这样的特性. 近十多年来被成功地用来识别和量化各种类型海岸带的海底地下水排泄(Burnett *et al.*, 2006; Povinec *et al.*, 2006, 2008)、确定沿海水体和河口水体的滞留时间(Moore, 2000; Moore *et al.*, 2006)、量化地下水输送到海域环境的营养盐和痕量金属等(Wasta and Kim, 2011).

海底地下水排泄是陆源地下淡水和再循环海水的混合物,还混合了地下淡水和再循环海水与含水层及沉积物水-岩作用的产物,来自不同含水层或沉积物的 SGD 进入海水后,就会显示不同的化学信号(Rapaglia *et al.*, 2010). 镭和氡示踪剂的最大优点是能够从区域时空尺度上有效地综合海岸带水体中的 SGD 信号(Moore and Oliveira, 2008).

镭同位素的半衰期存在较大差异(^{223}Ra , $t_{1/2} = 11.4\text{ d}$; ^{224}Ra , $t_{1/2} = 3.66\text{ d}$; ^{226}Ra , $t_{1/2} = 1600\text{ a}$; ^{228}Ra , $t_{1/2} = 5.75\text{ a}$),这是利用镭同位素活度比值(activity ratio, AR)计算近岸海域中水团年龄的理论基础. 海域中水团的活度比值是输入源(如地下水等)活度比值和年龄的函数,如果将地下水输入的同位素活度比值近似看作常数,那么海域中水团的活度比值将随着年龄的增加而减小(Moore *et al.*, 2006). 水团的年龄可以用来判断输入的海域物质稀释和扩散的快慢,还可以判断水团运移的方向和速度(Moore, 2000).

滞留时间是表征海岸带水体更新快慢的一个重

要参数,滞留时间的长短决定进入水体中物质的归宿、决定水体中的元素是否有足够的时间停留下来影响生物地球化学过程(Rapaglia *et al.*, 2010). 海岸带水体的水质一定程度上受制于滞留时间,有研究表明海湾水体滞留时间与脱氮作用有直接关系(Dettmann, 2001). 量化滞留时间有利于了解敏感的海岸带系统的污染负荷(Hougham and Moran, 2007).

本文首先利用 ^{224}Ra 与 ^{226}Ra 的活度比值计算五缘湾的水体滞留时间,然后利用滞留时间构建镭质量平衡模型中的混合损失项,最后给出分别利用 ^{224}Ra 和 ^{226}Ra 质量平衡模型计算的五缘湾海底地下水排泄通量.

1 研究区概况

五缘湾位于厦门岛的东北部,是筓筓港一钟宅断裂带因新构造期的断裂和断块活动发育成的断陷港(图 1). 平均潮位时,五缘湾水域面积 2.03 km^2 ,从湾顶到湾口,水深逐渐从 1.5 m 加深到 4.5 m . 湾内表层沉积物以粉砂和细砂为主,从湾顶至湾口沉积物颗粒逐渐变粗.

五缘湾所在区域属于典型的亚热带海洋性气候. 降水主要受季风控制,有明显的干湿季之分,4~9 月份为雨季,10 月至翌年 1 月为旱季. 多年平均降水量 1188.4 mm . 全年盛行偏东风,年平均风速 $3.4\text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$,夏季盛行风向为 SE,冬季盛行风向为 NE-ESE.

五缘湾的涨潮历时为 6.117 h ,落潮历时为 6.300 h ,潮汐属于规则半日潮. 平均潮差 4.01 m ,最大潮差 6.11 m ,最小潮差 2.28 m . 外海涌浪仅影响湾口附近水域,对湾内和湾顶的影响较小. 湾内波浪主要为湾内小风区形成的波浪. 湾内海水通过潮汐涨落与外海海水发生交换.

五缘湾没有河流输入,淡水输入主要是地下水,而地下水的主要补给源是大气降水. 五缘湾地域内广泛发育着第四系的冲洪积层、海积层和风化残积层,地下水类型以松散岩类的孔隙水为主,水量较为丰富. 地下水埋深在 $1\sim 3\text{ m}$ 左右,地下水位动态主要受气候因素的控制,一般情况下,水位在 3 月中旬开始上升,9 月逐渐下降,5~8 月为高水位期,12 月至翌年 2 月为低水位期. 该区地势较平坦,水力梯度较小,地下水径流速度缓慢,以蒸发方式和向海域径流方式排泄.

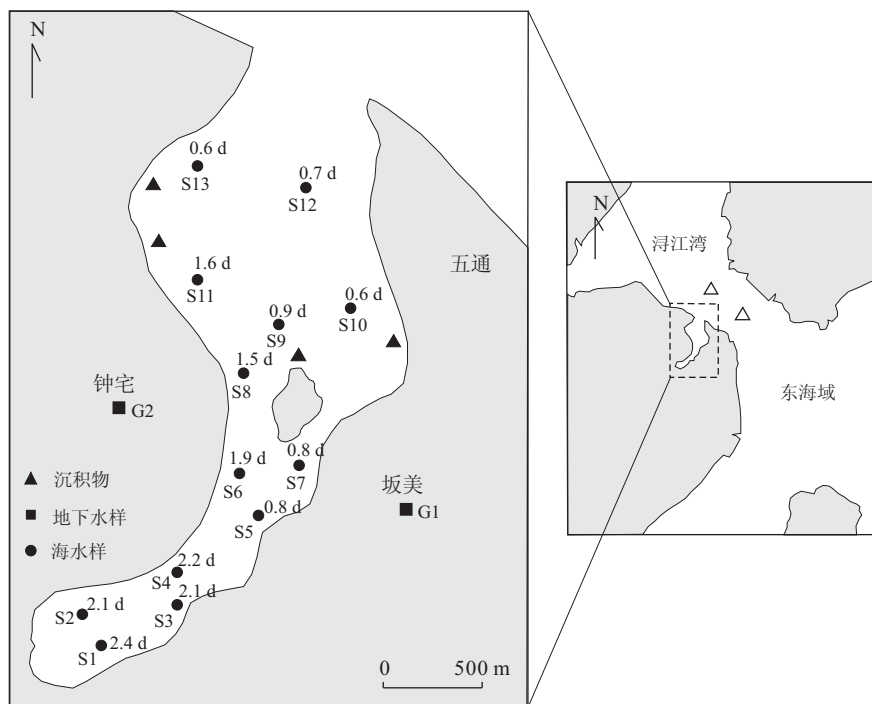


图1 五缘湾地理位置及取样点分布

Fig. 1 Sketch map of Wuyuan Bay and sampling stations

△. 湾外海水样

2 取样与测量

2.1 水样采集

2010年1月18日,采集五缘湾内海水样13个,并采集湾外海水样2个(图1)。水样均采自于海面之下1 m左右深度,取样体积为40 L。2010年3月22日,在五缘湾东岸的坂采集1个井水样(G1),井深4.0 m左右,在西岸的钟宅采集1个井水样(G2),井深2.5 m左右(图1),每个井水样体积为15 L。所有水样的盐度在现场用盐度计(Jenco Instruments Co., Ltd., Model 3250)测定。

2.2 沉积物采集和培养

2010年3月22日,在五缘湾潮间带的低潮线附近采集4个沉积物样(图1),样品直径约35 cm,高度约20 cm,缓慢移入到培养桶中,尽量减小对样品的扰动。沉积物样运回实验室后,按照Beck *et al.* (2007)的培养方法,分别进行了1 d、4 d、7 d、10 d、13 d、16 d和19 d时间段的室内培养。每个时段开始前,沿桶壁缓慢地加入15 L无镭海水;每个时段结束时,富集上覆水中的镭并测量其活度,然后再加入新的无镭海水进行下一时段的培养,最后根据7个时间段的实测活度与理论方程的拟合,确定沉积物中镭的扩散通量(郭占荣等,2011)。

2.3 镭的富集和测量

水样运回室内后,立即对水样中的镭进行富集。采用的方法是 MnO_2 纤维富集法(郭占荣等,2008),即利用虹吸方式让水样以200~250 mL/min的流速通过 MnO_2 纤维富集筒来富集镭。富集完成后,取出吸附了镭的锰纤维,甩干水分,然后装入扩散管内,立即测量 ^{224}Ra 活度。

测量镭活度的仪器为中核(北京)核仪器厂生产的FD-125型氡钍仪。 ^{224}Ra 活度的测量采用 ^{220}Rn 连续射气闪烁计数法,误差小于±8%(黄奕普等,2001)。 ^{224}Ra 测量完毕,将装有 MnO_2 纤维的扩散管两端密封,放置7 d以上,测量 ^{226}Ra 的活度。 ^{226}Ra 活度的测量采用 ^{222}Rn 直接射气闪烁计数法,误差小于±10%(谢永臻等,1994)。

3 结果与讨论

3.1 镭同位素的分布规律

五缘湾没有河流输入,其淡水输入主要是湾底的地下水排泄。因为五缘湾周边的居民全部用上了自来水,所以过去使用的水井大部分被报废或填埋,笔者在五缘湾的东岸和西岸各找到一口仍在一直使用的、适合取样的水井。地下水样的 ^{224}Ra 和 ^{226}Ra 的

活度较大,东岸地下水样(G1)中 ^{224}Ra 和 ^{226}Ra 的活度分别为 14.27 Bq/m^3 和 6.21 Bq/m^3 ,西岸地下水样(G2)中 ^{224}Ra 和 ^{226}Ra 的活度分别为 10.82 Bq/m^3 和 13.46 Bq/m^3 (表1).

五缘湾外海水的 ^{224}Ra 和 ^{226}Ra 活度最小,比地下水的活度小1个数量级.两个湾外海水样的活度很接近, ^{224}Ra 活度平均值 $1.41\pm 0.06\text{ Bq/m}^3$, ^{226}Ra 活度平均值 $1.58\pm 0.14\text{ Bq/m}^3$ (表1).理论上,湾外开阔海域海水中的 ^{224}Ra 基本来自于海底沉积物中母体 ^{228}Th 的生产,因为 ^{224}Ra 的半衰期($t_{1/2}=3.66\text{ d}$)较短,地下水输入的 ^{224}Ra 运移到湾外基本已衰变殆尽;但对于 ^{226}Ra 却不同,因为 ^{226}Ra 的半衰期($t_{1/2}=1600\text{ a}$)较长,湾外开阔海域海水中仍然存在一些过剩的 ^{226}Ra (来自地下水),即母体 ^{230}Th 不支持的 ^{226}Ra .

五缘湾内海水的 ^{224}Ra 和 ^{226}Ra 活度略大于湾外海水的活度,但远小于地下水的活度. ^{224}Ra 活度介于 $2.16\sim 4.17\text{ Bq/m}^3$,平均 $2.99\pm 0.73\text{ Bq/m}^3$ ($n=13$), ^{226}Ra 活度介于 $2.05\sim 4.71\text{ Bq/m}^3$,平均 $3.05\pm 0.84\text{ Bq/m}^3$ ($n=13$)(表1).虽然从湾顶到湾口 ^{224}Ra 与 ^{226}Ra 的活度看不出明显的规律,但 ^{224}Ra 、 ^{226}Ra 的活度分别与盐度存在良好的线性关系(图2).分析知其原因是五缘湾的淡水输入主要是地下水,镭的净来源也主要是地下水,沉积物扩散输入的镭较少(见下文).所以,湾内海水可以近似看作是地下水和湾外海水的保守混合,从而使得 ^{224}Ra 和 ^{226}Ra 活度与盐度有较好的线性关系.

3.2 湾内地下水输入分析

湾内13个水样的 ^{224}Ra 和 ^{226}Ra 活度的比值(AR)分布范围 $0.83\sim 1.16$,平均 AR 为 0.90 (图3).从图3发现,G2号地下水样落在 0.90 AR 线的附近,两个湾外海水样几乎落在 0.90 AR 线上.但是,G1号地下水样偏离 0.90 AR 线较远.因为湾内海水可以近似看作是地下水和湾外海水的保守混合,理论上,地下水和湾外海水的 AR 与湾内海水的平均 AR 接近,可是G1号地下水样偏离 0.90 AR 线较远,这说明五缘湾沿岸可能存在两种不同类型的地下水,而且排泄到五缘湾中的淡水以G2号地下水样代表的地下水为主.那么,五缘湾是否存在不同类型的地下水?为了搞清楚取样井所在的含水层情况,笔者专门进行了走访调查,但是井的历史太久了,没有资料记载.通过查阅研究区域内的工程勘察资料,发现五缘湾的含水层类型主要有冲洪积层、风化残积层和海积层.所以,推测五缘湾可能存在3种

表1 水样的 ^{224}Ra 、 ^{226}Ra 活度和盐度

Table 1 Measured ^{224}Ra , ^{226}Ra activity and salinity in the water samples

水样	编号	$^{224}\text{Ra}(\text{Bq/m}^3)$	$^{226}\text{Ra}(\text{Bq/m}^3)$	盐度
湾内海水	S1	4.13	4.71	26.2
	S2	3.73	4.06	26.2
	S3	3.47	3.77	27.1
	S4	3.31	3.65	29.3
	S5	4.17	3.76	26.9
	S6	2.29	2.77	29.0
	S7	3.26	2.95	28.2
	S8	2.06	2.37	30.3
	S9	2.78	2.54	30.6
	S10	2.63	2.29	30.8
	S11	2.16	2.53	30.5
	S12	2.32	2.05	30.5
	S13	2.60	2.25	30.7
湾外海水	O1	1.37	1.48	31.0
	O2	1.45	1.68	30.9
地下水	G1	14.27	6.21	0.4
	G2	10.82	13.46	0.5

类型的地下水,即冲洪积层孔隙水、风化残积层孔隙水和海积层孔隙水.

根据镭的特性,冲洪积层、风化残积层中地下水的 ^{226}Ra 活度理论上大于海积层中地下水的 ^{226}Ra 活度.原因是含水层颗粒上的镭遇到咸水很容易解吸到咸水中. ^{226}Ra 从沉积物颗粒上解吸后,其再生很缓慢,因其母体 ^{230}Th 的半衰期($7.5\times 10^4\text{ a}$)特别长.但是, ^{224}Ra 则可以不断地通过母体的衰变而再生,因其母体 ^{228}Th 的半衰期(1.91 a)较短.因此,经过咸水冲刷的含水层,其 ^{226}Ra 活度一般较低.从实测的2个地下水样来看,G1号地下水样的 ^{226}Ra 活度较小(图3),推测该水样可能采集于海积层,其形成时期经过咸水冲刷,而G2号水样可能采集于冲洪积层或风化残积层.但风化残积层的富水性一般较差,因此,G2号水样最有可能采集于冲洪积层.

输入五缘湾的地下淡水中是否以G2号代表的地下水为主?笔者用三端元线性混合模型回答该问题.假设输入五缘湾内的镭分别来自于G1号代表的地下水、G2号代表的地下水、湾外海水这3个端元,忽略沉积物扩散的镭,且认为湾内海水是这3个端元的保守混合.于是,得到如下三端元线性混合模型:

$$f_1 + f_2 + f_3 = 1, \quad (1)$$

$$^{224}\text{Ra}_{\text{G1}} \cdot f_1 + ^{224}\text{Ra}_{\text{G2}} \cdot f_2 + ^{224}\text{Ra}_{\text{out}} \cdot$$

$$f_3 = ^{224}\text{Ra}_{\text{Bay}}, \quad (2)$$

$$^{226}\text{Ra}_{\text{G1}} \cdot f_1 + ^{226}\text{Ra}_{\text{G2}} \cdot f_2 + ^{226}\text{Ra}_{\text{out}} \cdot$$

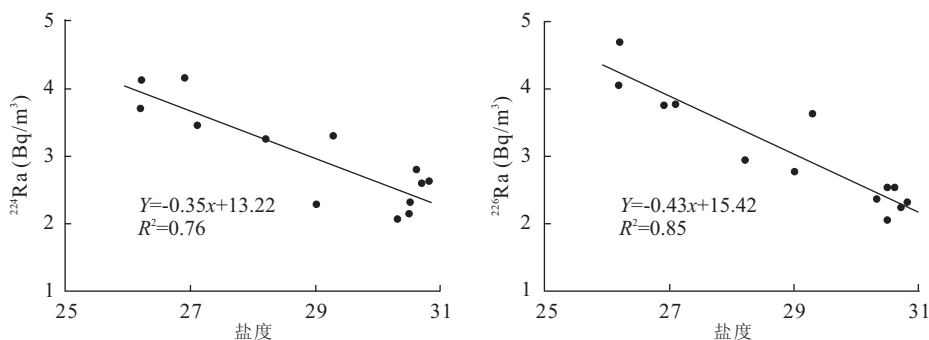


图 2 ²²⁴Ra 和 ²²⁶Ra 活度与盐度的线性关系

Fig. 2 The relation of ²²⁴Ra and ²²⁶Ra activities versus salinity

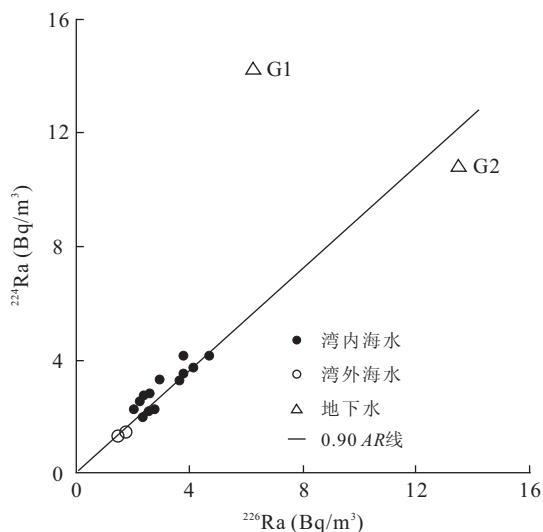


图 3 湾内海水与湾外海水、地下水的²²⁴Ra 与²²⁶Ra 活度比值对比

Fig. 3 ²²⁴Ra and ²²⁶Ra activities ratio in bay water compared with seawater outside bay and groundwater

$$f_3 = \frac{{}^{226}\text{Ra}_{\text{Bay}}}{{}^{226}\text{Ra}_{\text{G1}} + {}^{226}\text{Ra}_{\text{G2}} + {}^{226}\text{Ra}_{\text{out}}}$$

式中: f_1 、 f_2 、 f_3 分别是 G1 号代表的地下水、G2 号代表的地下水、湾外海水的混合比例系数; ${}^{224}\text{Ra}_{\text{G1}}$ 、 ${}^{226}\text{Ra}_{\text{G1}}$ 分别是 G1 号代表的地下水的²²⁴Ra 和²²⁶Ra 活度(Bq/m³); ${}^{224}\text{Ra}_{\text{G2}}$ 、 ${}^{226}\text{Ra}_{\text{G2}}$ 分别是 G2 号代表的地下水的²²⁴Ra 和²²⁶Ra 活度(Bq/m³); ${}^{224}\text{Ra}_{\text{out}}$ 、 ${}^{226}\text{Ra}_{\text{out}}$ 分别是湾外海水的²²⁴Ra 和²²⁶Ra 活度(Bq/m³); ${}^{224}\text{Ra}_{\text{Bay}}$ 、 ${}^{226}\text{Ra}_{\text{Bay}}$ 分别是湾内海水的²²⁴Ra 和²²⁶Ra 活度(Bq/m³)。

将数据代入该模型解得 f_1 、 f_2 、 f_3 分别为 0.045、0.106、0.849, 表明地下水与湾外海水的混合比例约是 15 : 85. 进一步分析可知, 在总的地下水输入量中, G1 号代表的地下水输入量占 29.8%, 而 G2 号代表的地下水输入量占 70.2%. 由此可见, 五缘湾地下淡水输入中确实是以 G2 号代表的地下水

为主, 且在五缘湾镭的净输入量(湾外海水在涨潮时输入镭, 在落潮时又带走镭, 所以湾外海水中的镭不属于净输入)中, 也是以 G2 号代表的地下水为主。

3.3 湾内海水滞留时间

用镭同位素评价水体的滞留时间(residence age), 其基本思想和出发点是计算水团的年龄. 水团的年龄是指某一水团(water parcel)自从进入海域以来到达某一位置所经历的时间(Monsen *et al.*, 2002), 如地下水流入海洋就可以看作一个水团, 到达海域中不同位置就有不同的年龄. 地下水源源不断地进入海域, 可以看作有众多水团输入。

滞留时间是针对半封闭海域(海湾、河口或泄湖)中的水团而言的, 是指某一水团从进入半封闭海域开始到离开半封闭海域进入开阔海域所需要的时间(Monsen *et al.*, 2002). 因为从海湾不同部位流入的地下水团到达湾口所需要的时间不一样, 所以一般计算平均滞留时间. 在实际应用中, 首先计算每个站位水团的年龄, 然后取全部站位水团年龄的平均值作为平均滞留时间。

Moore *et al.* (2006) 提出采用镭计算滞留时间的方法. 该方法假设研究海域处于稳定态, 镭的输入与损失达到平衡状态. 于是, 可以写出下列²²⁴Ra 的平衡方程:

$$F({}^{224}\text{Ra}) = I({}^{224}\text{Ra})(\lambda_{224} + 1/t), \quad (4)$$

式中: $F({}^{224}\text{Ra})$ 是输入研究海域中的总²²⁴Ra 通量(Bq/d); $I({}^{224}\text{Ra})$ 是研究海域中²²⁴Ra 库(Inventory)(Bq); λ_{224} 是²²⁴Ra 的衰变常数(0.189/d); t 是滞留时间(d).

对于²²⁶Ra, 也可以写出类似平衡方程, 但可忽略其衰变:

$$F({}^{226}\text{Ra}) = I({}^{226}\text{Ra})(1/t). \quad (5)$$

公式(4)除以公式(5)得:

$$F\left(\frac{^{224}\text{Ra}}{^{226}\text{Ra}}\right) = \frac{I(^{224}\text{Ra})(\lambda_{224} + 1/t)}{I(^{226}\text{Ra})(1/t)}. \quad (6)$$

将公式(6)进行转换可得滞留时间:

$$t = \frac{F(^{224}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}) - I(^{224}\text{Ra}/^{226}\text{Ra})}{I(^{224}\text{Ra}/^{226}\text{Ra})\lambda_{224}}, \quad (7)$$

式中: $F(^{224}\text{Ra}/^{226}\text{Ra})$ 是输入研究海域中的总 ^{224}Ra 通量与总 ^{226}Ra 通量的比值, $I(^{224}\text{Ra}/^{226}\text{Ra})$ 是研究海域中 ^{224}Ra 库与 ^{226}Ra 库的比值。

如果研究海域中镭的净输入来源主要是地下水,即地下水输入的 ^{224}Ra 通量和 ^{226}Ra 通量占优势,那么可以用地下水的 ^{224}Ra 与 ^{226}Ra 通量的比值代替 $F(^{224}\text{Ra}/^{226}\text{Ra})$,又因为近似认为地下水的输入流量不变,所以,可以用地下水的 ^{224}Ra 与 ^{226}Ra 活度的比值代替 $F(^{224}\text{Ra}/^{226}\text{Ra})$ (Moore *et al.*, 2006)。同样,因为近似认为研究海域的水体积不变,所以,用海域中水样的 ^{224}Ra 与 ^{226}Ra 活度的比值可以代替 $I(^{224}\text{Ra}/^{226}\text{Ra})$ 。

将地下水样的 ^{224}Ra 与 ^{226}Ra 比值和湾内每个站位的 ^{224}Ra 与 ^{226}Ra 比值代入公式(7),获得 13 个站点处水团的滞留时间在 0.6~2.4 d 之间(图 1),平均滞留时间为 1.4 d。湾顶滞留时间较大,这与湾顶水体交换条件相对较差的实际情况是相符合的。湾西岸中部个别点(S6、S8 和 S11)的滞留时间略偏大,分析其原因可能是局部海底地形阻碍了水体交换。

笔者将上述方法计算的滞留时间与经典的纳潮量方法计算结果进行了比对和验证。纳潮量(tidal prism)方法是评价半封闭海域(海湾、河口或泄湖)水体滞留时间最常用的方法,其适用条件是:(1)涨潮进来的海水能够与半封闭海域中水体充分混合;(2)流入半封闭海域的河流径流量或地下水排泄量相对于纳潮量非常小,甚至可以忽略;(3)纳潮量足够大,以至于能充分稀释半封闭海域的水体,不会引起半封闭海域外海水的水质变化;(4)潮汐属于正规半日潮(Monsen *et al.*, 2002)。

Moore *et al.* (2006)提出用纳潮量计算水体滞留时间的公式:

$$T_w = \frac{VT}{(1-b)P}, \quad (8)$$

式中: P 是纳潮量(m^3); T_w 是潮汐周期(d); V 是半封闭海域的平均水体积(m^3),也就是在平均潮位时的水体积; b 是回流因子(return flow factor),无量纲,介于 0.0~1.0 之间,是指退潮时流出半封闭海域的海水在涨潮时又返回的那部分体积与纳潮量的比值。

Moore *et al.* (2006)将回流因子(b)定义为退潮时流速与涨潮时流速的差值的比率:

$$b = \frac{\nu_{M2} - U}{\nu_{M2} + U}, \quad (9)$$

式中: ν_{M2} 是涨潮流速与退潮流速的平均值(m/s); U 是净流速,即涨潮流速与退潮流速的差值(m/s)。

由五缘湾的平均涨潮流速 0.48 m/s ,平均退潮流速 0.39 m/s (许苏清等, 2003),可知 $\nu_{M2} = 0.44 \text{ m/s}$, $U = 0.09 \text{ m/s}$,代入公式(9)计算获得回流因子为 0.66。

五缘湾的条件也符合应用纳潮量方法计算水体的滞留时间,其中 $V = 5.91 \times 10^6 \text{ m}^3$, $T = 0.52 \text{ d}$, $P = 7.67 \times 10^6 \text{ m}^3$,代入公式(8)得到滞留时间为 1.2 d,略小于用镭同位素方法计算的平均滞留时间 1.4 d,偏小的原因可能是,纳潮量方法一般会低估滞留时间,因为现实中很难满足水体的充分混合(Monsen *et al.*, 2002)。

3.4 海底地下水排泄

为了评价五缘湾的海底地下水排泄通量,需要先知道地下水在海湾镭库中的贡献。假设五缘湾海域处于稳定状态,那么海域中镭的源项与汇项两者之间应该是平衡的。对于五缘湾来说,镭的源项包括地下水输入、沉积物扩散输入,镭的汇项包括与外海低活度海水的混合损失和镭自身衰变损失。除了地下水输入外,其他源汇项容易确定,于是,五缘湾内可建立如下的 ^{224}Ra 平衡方程:

$$^{224}\text{Ra}_{\text{GW}} = \left[\frac{(^{224}\text{Ra}_{\text{bay}} - ^{224}\text{Ra}_{\text{sea}}) \times V_{\text{bay}}}{T_w} \right] + \left[^{224}\text{Ra}_{\text{bay}} \times V_{\text{bay}} \times \lambda_{224} \right] - \left[^{224}\text{Ra}_{\text{sed}} \times A_{\text{bay}} \right], \quad (10)$$

式中: $^{224}\text{Ra}_{\text{GW}}$ 是地下水输入的 ^{224}Ra 通量(Bq/d); $^{224}\text{Ra}_{\text{bay}}$ 是湾内海水的 ^{224}Ra 活度(Bq/m^3); $^{224}\text{Ra}_{\text{sea}}$ 是湾外海水中 ^{224}Ra 的活度(Bq/m^3); V_{bay} 是湾内水体积(m^3); T_w 是湾内水体滞留时间(d); $^{224}\text{Ra}_{\text{sed}}$ 是沉积物的镭扩散通量($\text{Bq/m}^2/\text{d}$); A_{bay} 是湾内水面面积(m^2)。

对于五缘湾内的 ^{226}Ra 通量,可以给出类似的平衡方程,但忽略其衰变项(Charette *et al.*, 2001):

$$^{226}\text{Ra}_{\text{GW}} = \left[\frac{(^{226}\text{Ra}_{\text{bay}} - ^{226}\text{Ra}_{\text{sea}}) \times V_{\text{bay}}}{T_w} \right] - \left[^{226}\text{Ra}_{\text{sed}} \times A_{\text{bay}} \right]. \quad (11)$$

公式(10)和(11)中各参数的取值是: $^{224}\text{Ra}_{\text{bay}} = 2.99 \text{ Bq/m}^3$, $^{226}\text{Ra}_{\text{bay}} = 3.05 \text{ Bq/m}^3$, $^{224}\text{Ra}_{\text{sea}} = 1.41 \text{ Bq/m}^3$, $^{226}\text{Ra}_{\text{sea}} = 1.58 \text{ Bq/m}^3$, $V_{\text{bay}} = 5.91 \times 10^6 \text{ m}^3$, $A_{\text{bay}} = 2.03 \times 10^6 \text{ m}^2$, $T_w = 1.4 \text{ d}$,

$$^{224}\text{Ra}_{\text{sed}}=0.45\text{ Bq/m}^2/\text{d}, ^{226}\text{Ra}_{\text{sed}}=0.03\text{ Bq/m}^2/\text{d}.$$

将数据代入公式(10)和(11)计算得到地下水输入的 ^{224}Ra 和 ^{226}Ra 通量分别为 $5.17\times 10^6\text{ Bq/d}$ 和 $5.28\times 10^6\text{ Bq/d}$ 。很显然,地下水输入的镭通量远大于沉积物扩散输入的镭通量,沉积物扩散输入的 ^{224}Ra 和 ^{226}Ra 通量分别为 $9.12\times 10^5\text{ Bq/d}$ 和 $6.08\times 10^4\text{ Bq/d}$,可见,地下水是五缘湾中镭净输入的主要贡献者。

用地下水输入的镭通量除以地下水端元中镭的活度就可以转化为海底地下水排泄通量。笔者实测的地下水中镭活度的加权平均值(G1号代表的地下水的权重取0.3,G2号代表的地下水的权重取0.7)作为地下水端元的代表,并认为五缘湾整个湾底都存在海底地下水排泄,因为五缘湾面积较小,整个湾底都存在海底地下水排泄是可能的。所以,用下面公式计算五缘湾单位面积的海底地下水排泄通量 $F_{\text{SGD}}(\text{m}^3/\text{m}^2/\text{d})$:

$$F_{\text{SGD}} = \frac{\text{Ra}_{\text{GW}}}{C_{\text{GW}} \times A_{\text{bay}}}, \quad (12)$$

式中: Ra_{GW} 是地下水输入的 ^{224}Ra 或 ^{226}Ra 通量(Bq/d), C_{GW} 是地下水端元的 ^{224}Ra 或 ^{226}Ra 活度(Bq/m^3)。

将数据代入公式(12),利用 ^{224}Ra 通量计算的海底地下水排泄通量为 $0.21\text{ m}^3/\text{m}^2/\text{d}$,利用 ^{226}Ra 通量计算的海底地下水排泄通量为 $0.23\text{ m}^3/\text{m}^2/\text{d}$ 。两种模型的计算结果很接近,说明采用的计算方法正确,结果比较可信。笔者在五缘湾还同时用氦-222评价了海底地下水排泄通量(未发表),用氦-222评价的海底地下水动态排泄通量介于 $0.09\sim 0.29\text{ m}^3/\text{m}^2/\text{d}$,本次 ^{224}Ra 和 ^{226}Ra 平衡模型的计算结果正好落在该范围之内,说明镭同位素方法与氦-222方法两者之间做到较好的相互验证,更增加了五缘湾海底地下水排泄通量计算结果的可靠性。因此,我们取两者平均值 $0.22\text{ m}^3/\text{m}^2/\text{d}$ 作为五缘湾的海底地下水排泄通量。

4 结论

^{224}Ra 和 ^{226}Ra 两者半衰期的差异是利用其活度比值计算水团年龄的理论基础,利用水团年龄可以进一步分析水体滞留时间,进而分析海湾水体的交换速度和更新快慢。五缘湾的水体平均滞留时间是1.4d,与开阔外海的水交换总体比较快,即五缘湾的水体更新比较快,相对来说,越靠近湾口水交替

越快。

在已知水体平均滞留时间的情况下,可以利用滞留时间计算湾内海水与湾外低活度海水的混合损失,这为构建镭同位素的质量平衡模型创造了条件。构建源汇项平衡的关键是识别和量化主要的源项和汇项。五缘湾的条件相对比较简单,除了地下水输入外,其他源项和汇项容易确定,汇项与源项之差即归属于地下水输入。由镭同位素质量平衡模型计算获得五缘湾的平均海底地下水排泄通量为 $0.22\text{ m}^3/\text{m}^2/\text{d}$ 。

References

- Beck, A. J., Rapaglia, J. P., Cochran, J. K., et al., 2007. Radium Mass-balance in Jamaica Bay, NY: Evidence for a Substantial Flux of Submarine Groundwater. *Marine Chemistry*, 106(3-4): 419-441. doi: 10.1016/j.marchem.2007.03.008
- Burnett, W. C., Aggarwal, P. K., Aureli, A., et al., 2006. Quantifying Submarine Groundwater Discharge in the Coastal Zone Via Multiple Methods. *Science of the Total Environment*, 367(2-3): 498-543. doi: 10.1016/j.scitotenv.2006.05.009
- Burnett, W. C., Bokuniewicz, H., Huettel, M., et al., 2003. Groundwater and Pore Water Inputs to the Coastal Zone. *Biogeochemistry*, 66(1-2): 3-33. doi: 10.1023/B: BIOG.0000006066.21240.53
- Charette, M. A., Buesseler, K. O., Andrews, J. E., 2001. Utility of Radium Isotopes for Evaluating the Input and Transport of Groundwater-Derived Nitrogen to a Cape Cod Estuary. *Limnol. Oceanogr.*, 46(2): 465-470.
- Dettmann, E. H., 2001. Effect of Water Residence Time on Annual Export and Denitrification of Nitrogen in Estuaries: A Model Analysis. *Estuaries*, 24(4): 481-490. doi: 10.2307/1353250
- Garcia-Solsona, E., Masque, P., Garcia-Orellana, J., et al., 2008. Estimating Submarine Groundwater Discharge around Isola La Cura, Northern Venice Lagoon (Italy), by Using the Radium Quartet. *Marine Chemistry*, 109(3-4): 292-306. doi: 10.1016/j.marchem.2008.02.007
- Guo, Z. R., Huang, L., Liu, H. T., et al., 2008. Estimating Submarine Inputs of Groundwater to a Coastal Bay Using Radium Isotopes. *Acta Geoscientica Sinica*, 29(5): 647-652 (in Chinese with English abstract).
- Guo, Z. R., Huang, L., Yuan, X. J., et al., 2011. Estimating Submarine Groundwater Discharge to Jiulong River Estuary Using Ra Isotopes. *Advances in Water Science*, 22(1): 118-125 (in Chinese with English abstract).

- Hougham, A. L., Moran, S. B., 2007. Water Mass Ages of Coastal Ponds Estimated Using ^{223}Ra and ^{224}Ra as Tracers. *Marine Chemistry*, 105(3-4): 194-207. doi: 10.1016/j.marchem.2007.01.013
- Huang, Y. P., Xie, Y. Z., Chen, X. B., et al., 2001. A New Method for Rapid Concentration and Determination of ^{224}Ra in Seawater. *Journal of Xiamen University: Natural Science*, 40(3): 699-705 (in Chinese with English abstract).
- Li, H. L., Boufadel, M. C., Weaver, J. W., 2008. Tide-Induced Seawater-Groundwater Circulation in Shallow Beach Aquifers. *Journal of Hydrology*, 352(1-2): 211-224. doi: 10.1016/j.jhydrol.2008.01.013
- Li, H. L., Jiao, J. J., 2003. Tide-Induced Seawater-Groundwater Circulation in a Multi-Layered Coastal Leaky Aquifer System. *Journal of Hydrology*, 274(1-4): 211-224. doi: 10.1016/S0022-1694(02)00413-4
- Li, H. L., Wan, L., Jiao, J. J., 2011. Hot Issues in the Study of Coastal Hydrogeology. *Advances in Earth Science*, 26(7): 685-694 (in Chinese with English abstract).
- Monsen, N. E., Cloern, J. E., Luzzas, L. V., 2002. A Comment on the Use of Flushing Time, Residence Time, and Age as Transport Time Scales. *Limnol. Oceanogr.*, 47(5): 1545-1553.
- Moore, W. S., 2000. Ages of Continental Shelf Water Determined from ^{223}Ra and ^{224}Ra . *Journal of Geophysical Research*, 105(C9): 22117-22122. doi: 10.1029/1999JC000289
- Moore, W. S., Blanton, J. O., Joye, S. B., 2006. Estimates of Flushing Times, Submarine Groundwater Discharge, and Nutrient Fluxes to Okatee Estuary, South Carolina. *Journal of Geophysical Research*, 111(C9): 1-14. doi: 10.1029/2005JC003041
- Moore, W. S., Oliveira, J. D., 2008. Determination of Residence Time and Mixing Processes of the Ubatuba, Brazil, Inner Shelf Waters Using Natural Ra Isotopes. *Estuarine, Coastal and Shelf Science*, 76(3): 512-521. doi: 10.1016/j.ecss.2007.07.042
- Povinec, P. P., Aggarwal, P. K., Aureli, A., et al., 2006. Characterisation of Submarine Groundwater Discharge Offshore South-Eastern Sicily. *Journal of Environmental Radioactivity*, 89(1): 81-101. doi: 10.1016/j.jenvrad.2006.03.008
- Povinec, P. P., Oliveira, J. D., Braga, E. S., et al., 2008. Isotopic, Trace Element and Nutrient Characterization of Coastal Waters from Ubatuba Inner Shelf Area, South-Eastern Brazil. *Estuarine, Coastal and Shelf Science*, 76(3): 522-542. doi: 10.1016/j.ecss.2007.07.041
- Rapaglia, J., Ferrarin, C., Zaggia, L., et al., 2010. Investigation of Residence Time and Groundwater Flux in Venice Lagoon: Comparing Radium Isotope and Hydrodynamical Models. *Journal of Environmental Radioactivity*, 101(7): 571-581. doi: 10.1016/j.jenvrad.2009.08.010
- Wasta, H., Kim, G., 2011. Submarine Groundwater Discharge (SGD) as a Main Nutrient Source for Benthic and Water-Column Primary Production in a Large Intertidal Environment of the Yellow Sea. *Journal of Sea Research*, 65(1): 103-113. doi: 10.1016/j.seares.2010.08.001
- Xie, Y. Z., Huang, Y. P., Shi, W. Y., et al., 1994. Simultaneous Concentration and Determination of ^{226}Ra , ^{228}Ra in Natural Waters. *Journal of Xiamen University: Natural Science*, 33(Suppl.): 86-90 (in Chinese with English abstract).
- Xu, S. Q., Pan, W. R., Zhang, G. R., et al., 2003. Computation of the Sea-Water Exchange in Xunjiang Bay. *Journal of Xiamen University: Natural Science*, 42(5): 629-632 (in Chinese with English abstract).

附中文参考文献

- 郭占荣, 黄磊, 刘花台, 等, 2008. 镭同位素示踪隆教湾的海底地下水排泄. *地球学报*, 29(5): 647-652.
- 郭占荣, 黄磊, 袁晓婕, 等, 2011. 用镭同位素评价九龙江河口区的地下水输入. *水科学进展*, 22(1): 118-125.
- 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.
- 李海龙, 万力, 焦赳赳, 2011. 海岸带水文地质学研究中的几个热点问题. *地球科学进展*, 26(7): 685-694.
- 谢永臻, 黄奕普, 施文远, 等, 1994. 天然水体中 ^{226}Ra , ^{228}Ra 的联合富集与测定. *厦门大学学报: 自然科学版*, 33(增刊): 86-90.
- 许苏清, 潘伟然, 张国荣, 等, 2003. 浔江湾海水交换时间的计算. *厦门大学学报: 自然科学版*, 42(5): 629-632.