

DOI: CNKI 32-1309/P. 20110114. 1722. 000

用镭同位素评价九龙江河口区的地下水输入

郭占荣, 黄磊, 袁晓婕, 刘花台, 李开培

(厦门大学海洋与环境学院, 福建 厦门 361005)

摘要: 为评价九龙江河口区的地下水输入量及其输送的营养盐数量, 建立了天然存在的镭同位素²²⁴Ra和²²⁶Ra的质量平衡模型。镭的源项考虑了河流的输入、河流悬浮颗粒的解吸、沉积物再悬浮颗粒的解吸、沉积物扩散输入、涨潮时外海的输入和地下水的输入; 镭的汇项考虑了镭的放射性衰变, 以及退潮时河口水的输出。根据镭的质量平衡计算, 地下水输入的镭通量约占河口区镭总输入通量的 41.9% ~ 56.9%, 转换成地下水输入量为 1.65 亿 ~ 1.83 亿 m³/d 该地下水输入量是河流径流输入量的 4 倍多。以陆源地下淡水占总的地下水输入量的 10% 考虑, 计算获得营养盐输入通量分别为 461 万 mol/d (DN)、22 万 mol/d (DIP)、694 万 mol/d (DSi), 它们分别约是河流输入营养盐通量的 23% (DN)、28% (DIP)、77% (DSi)。结果表明九龙江河口的地下水输入量及其所输送的营养盐相当可观, 所输入的营养盐是海域富营养化的潜在影响因素, 在未来的河口环境管理中应引起重视。

关键词: 地下水; 海水; 海底地下水排泄; 放射性同位素; 镭; 营养盐; 河口; 九龙江

中图分类号: P641.3 文献标志码: A 文章编号: 1001-6791(2011)01-0118-08

全球海洋中陆源地下水输入量只占河流径流输入量的 6% ~ 10%, 但其输送的溶解物质却是河流输入的 50% 左右, 因为通常地下水中的溶解物质的浓度相对较高^[1-2]。海底地下水排泄为营养盐和污染物通过海底进入海洋提供了一条传输通道, 同时也为人类产生的各种物质通过海底进入海洋提供了一条重要通道。这样, 海底地下水排泄就通过给河口和海湾增加营养盐、金属、碳及其它溶解化学物质来影响河口和海湾的生物地球化学过程^[3]。

沿岸地下水中营养盐浓度通常高于河口水和海水, 少量的海底地下水排泄有可能输入大量的营养盐到河口或海湾。尤其是具有不平衡的 N/P 比率的受污染的沿岸地下水输入到河口或海湾中, 其对近海海洋生态系统有着严重的影响^[4,6]。富含营养盐的地下水输入是近岸海域富营养化的一个重要影响因素^[5], 它能引起浮游生物和有害海藻的过度繁殖^[4,6]。因此, 在河口和近岸海域中不能忽视地下水输入的化学物质, 即使是地下水输入量很小也不可小视^[7]。

海底地下水排泄的评价一般使用 3 种方法, 即直接测量法、地球化学示踪法和水文地质模型法^[2,8]。示踪法中通常使用铀-钍衰变系列的放射性同位素, 包括²²³Ra、²²⁴Ra、²²⁶Ra、²²⁸Ra^[3,9]和²²²Rn^[10-11]。之所以这些地球化学示踪剂能有效地用来评价海底地下水排泄, 是因为它们在地下水中的活度通常高于在地表水(海水、河水等)中的活度, 而且每个示踪剂的源和汇较容易测量或计算。这些示踪剂可以评价总的海底地下水排泄, 但通常不能区分出陆源地下淡水和再循环海水。研究证实这些示踪剂可以有效地用于多种空间尺度的河口或海湾的海底地下水排泄的研究^[8]。地下水向海底的排泄在时空上是不均一的、多变的, 利用上述示踪剂评价海底地下水排泄的优势是可以消除小尺度地下水输入变化的影响^[2,7]。

镭的 4 个同位素(²²³Ra、²²⁴Ra、²²⁶Ra、²²⁸Ra)被认为是一组强有力的量化海底地下水排泄的天然示踪

收稿日期: 2010-03-03 网络出版时间: 2011-01-14

网络出版地址: <http://www.cnki.net/kms/detail/32-1309.P.20110114.1722.000.html>

基金项目: 国家自然科学基金资助项目 (40672166)

作者简介: 郭占荣 (1965-), 男, 内蒙古鄂尔多斯人, 教授, 博士, 主要从事水文地质方面研究。

E-mail: gz@xmu.edu.cn

剂^[3,9,12]。在淡水环境中镭同位素牢固地吸附在固体颗粒物上,但随着盐度的增加地下水的离子强度也增加,镭就从颗粒上解吸而释放到咸水中^[13-14]。在地下咸水中镭同位素的活度通常比在地表水、海水中的活度高几个数量级,而且其在咸水环境(盐沼、河口、海湾等)中的化学行为是保守的。一旦来自河流、外海、底部沉积物以及其它方面的镭同位素的贡献确定了,那么输入该系统总的海底地下水排泄就可以利用过量的镭同位素活度来量化^[3]。

1 研究区简况

九龙江河口区位于厦门湾西海域,是福建省第二大河流九龙江的入海口。九龙江河口,口小腹大,腹部最宽处约 7~8 km,口门宽仅 3.5 km(图 1)。河口北侧为侵蚀-剥蚀台地,广泛分布着花岗岩风化后的残积红土层;南侧为丘陵,主要出露燕山期花岗岩类岩石,局部有侏罗纪南园组火山沉积岩分布;西侧为冲海积平原(漳州平原)。河口底部地形向口门倾斜,坡度约 1%~2%。河口底部沉积物以细砂和粉砂为主^[15]。

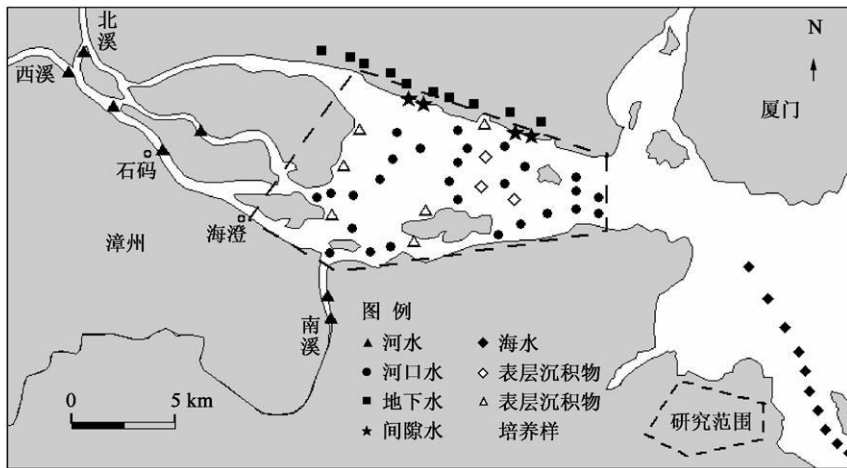


图 1 九龙江河口地理位置及水样和沉积物取样点

Fig 1 Location of Jiulong River estuary and sampling sites of water and sediment

九龙江多年平均入海径流量约为 148 亿 m^3 ,它由 3 条支流(南溪、西溪、北溪)组成。丰水期 4~9 月的径流量约占全年径流量的 67%,枯水期 10 月至翌年 3 月的径流量仅占全年径流量的 33%。河流悬移质含沙量年平均 $210 g/m^3$ ^[15]。

九龙江河口区的潮汐以正规半日潮为主,平均潮汐周期为 12h40min,最大潮差 6.4m,最小潮差 1.0m,平均潮差 4.0m 左右^[16],平均纳潮量为 3.68 亿 m^3 ,潮流界大致在海澄与石码之间。河口区的波浪以风浪为主,外海传人的涌浪占次要地位,风浪的常浪向为 E-SE,最大波高 1.9m,平均波高约 0.5m。

研究区的气候属于亚热带海洋性季风气候。多年平均降雨量为 1140mm,降雨主要集中在 4~9 月,其降雨量约占全年的 75%。降水形式 3~6 月为锋面雨,7~9 月为台风雨。

2 研究方法

2.1 取样

(1) 水样采集 2007 年 9 月 28 日和 2008 年 6 月 23 日,两个航次共采集河流(南溪、西溪和北溪)水样 11 个,其中 7 个用于测定河水中镭的活度,4 个用于进行河流悬浮颗粒中镭的解吸实验;2007 年 9 月 28 日、10 月 19 日和 2008 年 6 月 23 日,3 个航次共采集河口水样 27 个;2008 年 12 月 13 日,1 个航次采集九龙江外海水样品 10 个;2009 年 4 月 22 日,在河口区近岸的水井中,采集 10 个地下水样;2009 年 4 月 1 日,

在河口区的潮间带, 挖坑(约 80 cm 深度)采集潮间带地下水样品 4 个。水样采样点见图 1。除了潮间带地下水样, 其它的水样都采自水体表层 1 m 深左右。每个水样都装满 60 L 的塑料桶, 运回实验室进行测量和分析。水样的盐度在现场用盐度计(Jenco Instruments Co., Ltd., Model 3250)测定。

(2) 沉积物样采集 2007 年 10 月, 按照 Beck 等^[14]推荐的方法, 在河口区的低潮线附近采集了 6 个沉积物样, 样品直径 35 cm、高度 20 cm。每个沉积物样存放在培养桶中, 运回实验室进行培养, 在取样和运输过程中尽量减少对沉积物的扰动; 2008 年 12 月, 选择了 3 个地点用 Van Veen 抓斗采泥器采集河口表层沉积物, 只选择表层 1~2 cm 的沉积物带回实验室, 用来进行沉积物再悬浮颗粒中镭的解吸试验。沉积物采样点见图 1。

2.2 实验方法

(1) 镭的富集 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 纤维单柱富集法^[17-18], 即利用虹吸方式让水样以 200~250 mL/min 的流速通过 MnO_2 纤维富集柱来富集镭。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。

(2) 镭放射性活度的测量 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^[17, 19]。 ^{224}Ra 测量完毕, 立即将装有 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^[17-18]。

(3) 河水悬浮颗粒中镭的解吸 河流悬浮颗粒上吸附一定数量的镭, 当河水进入河口区遇到咸水时, 镭极容易从悬浮颗粒上解吸到河口中。河水水样回到实验室后, 用 2 μm 孔径的滤膜过滤悬浮物, 然后将悬浮物放入 60 L 无镭河口中(无镭河口的制备: 采集九龙江河口水, 先过滤掉杂质, 再用锰纤维去除掉其中的镭), 轻微搅动并放置 2 h 后, 按照前面的方法富集镭和测量镭活度, 取 4 个样的平均活度作为河流悬浮颗粒解吸的镭活度。

(4) 沉积物再悬浮颗粒中镭的解吸 潮流和波浪往往引起河口表层沉积物再悬浮, 从而导致再悬浮颗粒表面吸附的镭解吸到河口中。用采泥器采集的表层 1 cm 沉积物样品回到实验室后, 在通风的地方自然风干, 然后根据蔡锋等人观测获得的河口区沉积物再悬浮平均浓度值(涨潮时期 56.5 g/m^3 , 退潮时期 50.5 g/m^3 ^[15]), 用风干的沉积物与无镭河口水制备出相应再悬浮浓度的实验用水(60 L), 搅动片刻, 按照前面的方法富集镭和测量镭活度, 用 5 次实验的平均活度代表沉积物再悬浮颗粒解吸的镭活度。

(5) 沉积物中镭的扩散 河口表层沉积物中钍衰变产生的镭, 使得沉积物间隙水中镭活度大于河水中的镭活度, 在活度差作用下, 间隙水中的镭扩散到河口中。6 个沉积物培养样运回实验室后, 按照 Beck 等的培养方法, 测量每个培养时间段扩散到水中的镭活度, 然后根据多个测量点与理论方程的拟合, 确定镭的扩散通量^[14], 最终取 6 个培养样的镭的平均扩散通量。实验测得的镭的扩散通量代表沉积物中镭扩散通量的最大值, 因为实验使用的培养水是无镭河口水, 而实际情况是沉积物上覆河口水总是有一定的镭活度, 该活度会降低间隙水与河口的活度差, 从而减少镭的扩散。

(6) 营养盐浓度的测定 2008 年 7 月和 2009 年 4 月, 在河口区近岸的水井中, 两次共采集了 20 个地下水样用来做营养盐分析。营养盐测量项目包括: 溶解无机氮(NO_3^- -N、 NO_2^- -N、 NH_4^+ -N)、溶解无机磷(PO_4^{3-} -P)和溶解无机硅(SiO_3^{2-} -Si)。营养盐水样的采集和保存, 以及营养盐的测定都采用推荐方法^[20]。

2.3 镭质量平衡模型

分别用 ^{224}Ra 、 ^{226}Ra 质量平衡来评价九龙江河口区的地下水输入。河口区镭的源项主要有: ① 河水输入的镭(I_{river}); ② 河流悬浮物颗粒解吸的镭($I_{rdesorp}$); ③ 沉积物再悬浮颗粒解吸的镭($I_{sdesorp}$); ④ 表层沉积物扩散的镭(I_{s-diff}); ⑤ 涨潮时由外海输入的镭(I_{input}); ⑥ 地下水输入河口水中的镭(I_{sgd})。镭的汇项主要有: ① 放射性衰变损失的镭(I_{decay}); ② 退潮时从河口输出的镭(I_{output})。这样, 河口区镭的质量平衡方程可以表述为

$$I_{output} + I_{decay} = I_{river} + I_{rdesorp} + I_{sdesorp} + I_{s-diff} + I_{input} + I_{sgd} \quad (1)$$

式中, 各源汇项的单位均为 dpm/d。

(1) 退潮时从河口输出的镭 (I_{output}) 退潮时, 富含镭的河口水输出到外海, 使河口水中镭损失, 该损失评价如下:

$$I_{\text{output}} = (V_{\text{tide}}n_{\text{tide}} + Q_{\text{river}})A_{\text{estuary}} \quad (2)$$

式中 V_{tide} 为平均纳潮量, 3.68 亿 m^3 ; Q_{river} 为平均河流径流量, 0.405 亿 m^3/d ; A_{estuary} 为河口水的平均活度, dpm/m^3 ; n_{tide} 为每天的潮汐周期数, 1.935/d。

(2) 镭的衰变损失 (I_{decay}) 九龙江河口水在河口区的滞留时间平均为 2.03 $\text{d}^{[21]}$, 对于短寿命的核素 ^{224}Ra (半衰期 $t_{1/2} = 3.6 \text{ d}$), 放射性衰变是镭的一个重要损失过程; 而对于长寿命的核素 ^{226}Ra ($t_{1/2} = 1600 \text{ a}$), 放射性衰变可以忽略不计。河口区的镭衰变损失计算如下:

$$I_{\text{decay}} = V_{\text{estuary}}A_{\text{estuary}}\lambda_{\text{Ra}} \quad (3)$$

式中 V_{estuary} 为平均的河口水体积, 4.53 亿 m^3 ; λ_{Ra} 为 ^{224}Ra 的衰变常数, 0.193/d。

(3) 河水输入的镭 (I_{river}) 上游河水中溶解的镭随同河水一起输入到河口区, 输入镭的通量计算如下:

$$I_{\text{river}} = Q_{\text{river}}A_{\text{river}} \quad (4)$$

式中 A_{river} 为河水中镭的平均活度, dpm/m^3 。

(4) 河流悬浮颗粒解吸的镭 ($I_{\text{r-desorp}}$) 河流悬浮颗粒遇到河口咸水解吸的镭计算如下:

$$I_{\text{r-desorp}} = C_{\text{resus}}Q_{\text{river}}A_{\text{resus}} \quad (5)$$

式中 C_{resus} 为河流悬浮颗粒的平均浓度, 210.0 g/m^3 ; A_{resus} 为河流悬浮颗粒的平均解吸活度, dpm/g 该数据由实验获得。

(5) 沉积物再悬浮颗粒解吸的镭 ($I_{\text{s-desorp}}$) 通常情况下, 涨潮期间的沉积物再悬浮颗粒浓度略大于退潮期间的浓度, 即涨潮期平均浓度为 56.5 g/m^3 , 而退潮期平均浓度为 50.5 g/m^3 ^[15]。沉积物再悬浮颗粒解吸的镭计算如下:

$$I_{\text{s-desorp}} = I_{\text{s-desorp}(1)} + I_{\text{s-desorp}(2)} \quad (6)$$

$$\text{涨潮期间} \quad I_{\text{s-desorp}(1)} = C_{\text{resus}}V_{\text{tide}}n_{\text{tide}}A_{\text{resus}} \quad (7)$$

$$\text{退潮期间} \quad I_{\text{s-desorp}(2)} = C_{\text{resus}}(V_{\text{tide}}n_{\text{tide}} + Q_{\text{river}})A_{\text{resus}} \quad (8)$$

式中 C_{resus} 为沉积物再悬浮颗粒的平均浓度, g/m^3 ; A_{resus} 为沉积物再悬浮颗粒解吸镭的平均活度, dpm/g 该数据由实验获得。

(6) 表层沉积物中镭的扩散输入 ($I_{\text{s-diff}}$) 来自河口区表层沉积物的镭的扩散输入计算如下:

$$I_{\text{s-diff}} = F_{\text{diff}}S_{\text{sediment}}K \quad (9)$$

式中 F_{diff} 为表层沉积物中镭的平均扩散通量, $\text{dpm}/\text{m}^2\text{h}$ 该数据由实验获得; S_{sediment} 为河口区水面覆盖的沉积物分布面积, 0.968 亿 m^2 , 由低潮时水面覆盖的沉积物面积加上一半期间带面积获得; K 代表 24 h/d 。

(7) 涨潮时由外海输入的镭 (I_{input}) 涨潮期间, 外海海水输入河口区的镭计算如下:

$$I_{\text{input}} = V_{\text{tide}}n_{\text{tide}}A_{\text{ocean}} \quad (10)$$

式中 A_{ocean} 为外海海水中镭的平均活度, dpm/m^3 。

上述公式中镭的放射性活度及扩散通量的取值详见表 1。根据对丰、枯期河口水镭活度的分析, 丰、枯期河口水的 ^{224}Ra 平均活度分别为 23.14 $\text{dpm}/(100 \text{ L})$ 和 26.86 $\text{dpm}/(100 \text{ L})$, 二者相差 3.72 $\text{dpm}/(100 \text{ L})$; 丰、枯期河口水的 ^{226}Ra 平均活度分别为 18.24 $\text{dpm}/(100 \text{ L})$ 和 19.73 $\text{dpm}/(100 \text{ L})$, 二者相差 1.49 $\text{dpm}/(100 \text{ L})$ 。可见河口水体所含镭量随时间的变化不明显, 因此本文模型计算采用河口区镭含量的年平均值, 其它参数也采用平均值。所以评价结果反映的是河口区地下水输入的年平均水平。

表 1 镭质量平衡模型中部分参数的取值

Table 1 Values of some parameters in the mass balance model of radium isotopes

参数	取值		单位
	^{224}Ra	^{226}Ra	
A_{estuary}	$29.14 \pm 3.87 (n=27, P=93\%)$	$19.75 \pm 4.17 (n=27, P=93\%)$	dpm/(100L)
A_{river}	$9.03 \pm 1.39 (n=7, P=93\%)$	$9.75 \pm 2.11 (n=7, P=95\%)$	dpm/(100L)
A_{ocean}	$11.78 \pm 6.32 (n=10, P=93\%)$	$9.90 \pm 2.60 (n=10, P=93\%)$	dpm/(100L)
A_{ground}	$75.92 \pm 7.49 (n=14, P=93\%)$	$37.71 \pm 8.77 (n=14, P=93\%)$	dpm/(100L)
A_{resus}	$0.28 \pm 0.06 (n=4, P=93\%)$	$0.16 \pm 0.09 (n=4, P=95\%)$	dpm/g
A_{resus}	$0.17 \pm 0.07 (n=5, P=93\%)$	$0.13 \pm 0.05 (n=5, P=95\%)$	dpm/g
F_{diff}	$0.95 \pm 0.74 (n=6, P=93\%)$	$0.11 \pm 0.09 (n=6, P=95\%)$	dpm/m ² h

注: 目前国际上放射性活度的单位都采用 dpm/(100L), 为了便于与同类成果对比, 故本文没有采用 Bq/m³, Bq/m³ = 6dpm/(100L)。

3 结果与讨论

3.1 镭的活度分布

4种水体中, 河水的镭活度最低, 平均为 9.03 dpm/(100L) (^{224}Ra $n=7$)和 9.75 dpm/(100L) (^{226}Ra $n=7$); 外海海水的镭活度比河水的略高, 平均为 11.78 dpm/(100L) (^{224}Ra $n=10$), 9.90 dpm/(100L) (^{226}Ra $n=10$); 河口区水样的镭活度居中, 有较大的变化范围, ^{224}Ra 的活度范围是 17.19~54.10 dpm/(100L), 平均为 29.14 dpm/(100L) ($n=27$), ^{226}Ra 的活度范围是 11.73~26.11 dpm/(100L), 平均为 19.75 dpm/(100L) ($n=27$); 地下水的镭活度最高, 这与地下水中镭同位素活度普遍较高的传统看法是一致的, 相对而言潮间带地下水的镭活度更高, 这与潮间带地下水的盐度较高有关。地下水中 ^{224}Ra 的活度范围是 17.10~215.56 dpm/(100L), 平均为 75.92 dpm/(100L) ($n=14$), ^{226}Ra 的活度范围是 18.69~68.09 dpm/(100L), 平均为 37.71 dpm/(100L) ($n=14$) (表 1)。

河流悬浮颗粒中镭的平均解吸活度为 0.28 dpm/g (^{224}Ra $n=4$)、0.16 dpm/g (^{226}Ra $n=4$); 沉积物再悬浮颗粒中镭的平均解吸活度低于河流悬浮颗粒, 平均为 0.17 dpm/g (^{224}Ra $n=5$)、0.13 dpm/g (^{226}Ra $n=5$) (表 1), 这是因为再悬浮颗粒可能多次被悬浮, 其吸附的镭频繁地被解吸到河口中, 所以其每次悬浮的镭解吸活度有所降低。此外, 再悬浮颗粒本身处在咸水环境中, 即使其不悬浮起来, 也会将部分吸附的镭解吸到间隙水或河口中。

沉积物中 ^{224}Ra 的平均扩散通量为 0.95 dpm/m²·h ($n=6$), 略低于 Beck 等的实验结果 1.17 dpm/(m²·h)^[14], 但要比 Ferrarin 等的实验结果 3.20 dpm/(m²·h)^[21]小得多, 这可能与 Ferrarin 等的培养样是泻湖的细颗粒沉积物有关, 根据实验, 一般颗粒越细, 镭扩散通量越大; ^{226}Ra 的平均扩散通量为 0.11 dpm/(m²·h) (^{224}Ra $n=6$)。

3.2 地下水输入量

除了地下水输入项外, 在获得河口中镭的其它各个源汇项后, 源项与汇项之间出现了较大的不平衡 (表 2)。对于 ^{224}Ra 质量平衡模型, 不平衡项占到总的镭输入通量的 56.9%; 对于 ^{226}Ra 质量平衡模型, 不平衡项占到总的镭输入通量的 41.9%。这个不平衡项理应归属于地下水输入, 即地下水输入河口区的镭通量为 1391亿 dpm/d (^{224}Ra)、622亿 dpm/d (^{226}Ra)。在 6 个源项中, 河流、河流悬浮颗粒和沉积物扩散, 它们输入河口的镭通量均很小, 只占总的镭通量的 0.9%~1.5% (^{224}Ra)、0.2%~2.6% (^{226}Ra), 甚至可以忽略不计。各源项对河口水总镭的贡献大小依次是地下水 > 外海海水 > 沉积物再悬浮颗粒 > 河水 > 河流悬浮颗粒 > 沉积物扩散。

利用河口区近岸地下水和潮间带地下水中镭活度的加权平均值 (陆源地下淡水权重取 0.1, 再循环海水权重取 0.9), 即 75.92 dpm/(100L) (^{224}Ra $n=14$), 37.71 dpm/(100L) (^{226}Ra $n=14$), 以及地下水输入的镭通量, 计算地下水输入量如下:

$$F_{\text{SCD}} = I_{\text{SCD}} / A_{\text{ground}} \quad (11)$$

式中 F_{GD} 为地下水输入量, m^3/d I_{GD} 为地下水输入的镭通量, dpm/d , 即河口水中镭通量的不平衡项; A_{ground} 为近岸地下水和潮间带地下水中的平均镭活度, dpm/m^3 。

表 2 ^{224}Ra 和 ^{226}Ra 质量平衡模型中各个源汇项的镭通量Table 2 Radium flux of each source and sink term in ^{224}Ra and ^{226}Ra mass balance model

同位素		源项						汇项		汇项总和	不平衡项
		①	②	③	④	⑤	⑥	⑦	⑧	⑨	⑩
^{224}Ra	镭通量 / ($10^{10} \text{dpm} \cdot \text{d}^{-1}$)	0.36	0.24	1.33	0.22	8.39	13.91	2.54	21.91	24.45	13.91
	百分比 / %	1.5	1.0	5.4	0.9	34.3	56.9	10.4	89.6	100	56.9
^{226}Ra	镭通量 / ($10^{10} \text{dpm} \cdot \text{d}^{-1}$)	0.39	0.14	1.02	0.03	7.05	6.22	0	14.85	14.85	6.22
	百分比 / %	2.6	0.9	6.9	0.2	47.5	41.9	0	100	100	41.9

注: ① 河流输入的镭; ② 河流悬浮颗粒解吸的镭; ③ 沉积物再悬浮颗粒解吸的镭; ④ 沉积物扩散的镭; ⑤ 外海输入的镭; ⑥ 地下水输入的镭; ⑦ 镭的衰变; ⑧ 输出到外海的镭; ⑨ 汇项总和; ⑩ 质量不平衡项。

根据式 (11), 计算得到九龙江河口区的地下水输入量为 $1.83 \text{亿} \text{m}^3/\text{d}$ (^{224}Ra 质量平衡模型)、 $1.65 \text{亿} \text{m}^3/\text{d}$ (^{226}Ra 质量平衡模型)。换算到河口区单位底面积上, 那么地下水输入量为 $1.89 \text{m}^3/(\text{m}^2 \cdot \text{d})$ (^{224}Ra 质量平衡模型)、 $1.70 \text{m}^3/(\text{m}^2 \cdot \text{d})$ (^{226}Ra 质量平衡模型)。该地下水输入量中包括再循环海水和陆源地下淡水, 其中绝大部分是再循环海水。再循环海水的动力主要是潮汐泵和波浪, 而九龙江河口的潮汐泵和波浪都非常强, 最大潮差 6.4m , 平均潮差 4.0m , 最大波高 1.9m , 平均波高 0.5m , 这是九龙江河口产生很可观的再循环海水的原因所在。

注意到两种模型得到的结果比较接近, 说明计算结果较为可信。根据一些科学家在河口、海湾所做的研究, 再循环海水一般占总的地下水输入的 $75\% \sim 90\%$ [1, 14, 23]。考虑到九龙江河口两岸的地下水类型主要是基岩裂隙水, 水量较贫乏, 取总地下水输入的 10% 作为陆源地下淡水, 则陆源地下水的输入量约为 $0.17 \text{亿} \text{m}^3/\text{d}$ 是河流径流量 ($0.40 \text{亿} \text{m}^3/\text{d}$) 的 42.5% 。

3.3 地下淡水输入的营养盐

地下淡水中营养盐浓度有较大的时空变化, 溶解无机氮 (DN) 的浓度是 $71.6 \sim 339.6 \mu\text{M}$, 平均为 $(271.0 \pm 46.66) \mu\text{M}$ ($n=20$ $P=95\%$), 溶解无机磷 (DIP) 的浓度是 $1.6 \sim 21.0 \mu\text{M}$, 平均为 $(12.7 \pm 3.79) \mu\text{M}$ ($n=20$ $P=95\%$), 溶解无机硅 (DSi) 的浓度是 $303.2 \sim 444.7 \mu\text{M}$, 平均为 $(408.6 \pm 20.35) \mu\text{M}$ ($n=20$ $P=95\%$)。平均 N/P 比率达到 21, 大于 18 说明地下淡水有轻度污染 [24]。

用地下淡水输入量 ($0.17 \text{亿} \text{m}^3/\text{d}$) 乘以地下水中营养盐的平均浓度, 得到地下淡水每天输入河口区的营养盐通量分别为 $461 \text{万} \text{mol}/\text{d}$ (DN)、 $22 \text{万} \text{mol}/\text{d}$ (DIP)、 $694 \text{万} \text{mol}/\text{d}$ (DSi)。在计算中, 简单地认为地下水中各营养盐在海岸带含水层的输送过程中其生物地球化学行为是保守的, 没有考虑营养盐的地球化学演化, 因此, 所获得的营养盐通量是个近似评价结果。与河流输入的无机溶解营养盐通量 (DN 为 $2012 \text{万} \text{mol}/\text{d}$ [21], DIP 为 $77 \text{万} \text{mol}/\text{d}$ [21], DSi 为 $893 \text{万} \text{mol}/\text{d}$ [25]) 相比较, 地下淡水输入的营养盐通量分别是河流输入的 23% 、 28% 、 77% 。可见, 地下水输入是河口区营养盐的一个不可忽视的来源。

4 结 论

采用 ^{224}Ra 质量平衡模型和 ^{226}Ra 质量平衡模型评价九龙江河口区的地下水输入, 通过分析计算各个源汇项的镭通量, 将镭通量的不平衡项归结为地下水的输入, 获得九龙江河口区地下水输入量, 两个模型的计算结果非常接近, 分别是 $1.83 \text{亿} \text{m}^3/\text{d}$ 和 $1.65 \text{亿} \text{m}^3/\text{d}$, 是河流径流排泄量的 4 倍多。按照陆源地下淡水输入量占总的地下水输入量的 10% 考虑, 计算获得陆源地下淡水输入的营养盐通量分别为 $461 \text{万} \text{mol}/\text{d}$ (DN)、 $22 \text{万} \text{mol}/\text{d}$ (DIP)、 $694 \text{万} \text{mol}/\text{d}$ (DSi), 它们分别占河流输入的营养盐通量的 23% 、 28% 、 77% 。结果表明, 九龙江河口的地下水输入量及其所输送的营养盐相当可观, 所输入的营养盐将是海域富营养化的潜在影响因素。在未来的河口环境管理中应引起重视。

参考文献:

- [1] BURNETT W C, BOKUNIEWICZ H, HUETTEL M, et al Groundwater and pore water inputs to the coastal zone[J]. *Biogeochemistry*, 2003, 66: 3-33.
- [2] BURNETT W C, AGGARWAL P K, AURELIA, et al Quantifying submarine groundwater discharge in the coastal zone via multiple methods[J]. *Science of the Total Environment*, 2006, 367: 498-543.
- [3] MOORE W S. Large groundwater inputs to coastal waters revealed by ^{226}Ra enrichments[J]. *Nature*, 1996, 380: 612-614.
- [4] LEE Y W, HWANG D W, KIM G, et al Nutrient inputs from submarine groundwater discharge (SGD) in Masan Bay, an embayment surrounded by heavily industrialized cities, Korea[J]. *Science of the Total Environment*, 2009, 407: 3181-3188.
- [5] HWANG D W, KIM G, LEE Y W, et al Estimating submarine inputs of groundwater and nutrients to a coastal bay using radium isotopes[J]. *Marine Chemistry*, 2005, 96: 61-71.
- [6] LEE Y W, KIM G. Linking groundwater-borne nutrients and dinoflagellate red-tide outbreaks in the southern sea of Korea using a Ra tracer[J]. *Coastal and Shelf Science*, 2007, 71: 309-317.
- [7] SANTOS IR, DMOVA N, PETERSON R N, et al Extended time series measurements of submarine groundwater discharge tracers (^{222}Rn and CH_4) at a coastal site in Florida[J]. *Marine Chemistry*, 2009, 113: 137-147.
- [8] MCCOY C A, CORBETT D R. Review of submarine groundwater discharge (SGD) in coastal zones of the Southeast and Gulf Coast regions of the United States with management implications[J]. *Journal of Environmental Management*, 2009, 90: 644-651.
- [9] RAMA, MOORE W S. Using the radium quartet for evaluating groundwater input and water exchange in salt marshes[J]. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 1996, 60: 4645-4652.
- [10] CABLE J E, BURNETT W C, CHANTON J P, et al Estimating groundwater discharge into the northeastern Gulf of Mexico using Radon-222[J]. *Earth and Planetary Science Letters*, 1996, 144: 591-604.
- [11] BURNETT W C, DULAIJOVA H. Estimating the dynamics of groundwater input into the coastal zone via continuous radon-222 measurements[J]. *Journal of Environmental Radioactivity*, 2003, 69: 21-35.
- [12] MOORE W S. Sources and fluxes of submarine groundwater discharge delineated by radium isotopes[J]. *Biogeochemistry*, 2003, 66: 75-93.
- [13] MOORE W S. Radium isotopes as tracers of submarine groundwater discharge in Sicily[J]. *Continental Shelf Research*, 2006, 26: 852-861.
- [14] BECK A J, RAPAGLIA J P, COCHRAN J K, et al Radium mass-balance in Jamaica Bay, NY: Evidence for a substantial flux of submarine groundwater[J]. *Marine Chemistry*, 2007, 106: 419-441.
- [15] 蔡锋, 黄敏芬, 苏贤泽, 等. 九龙江河口湾泥沙运移特点与沉积动力机制[J]. 台湾海峡, 1999, 18: 418-424. (CAI Feng, HUANG Min-fen, SU Xian-ze, et al Characteristics of siltation and sedimentary dynamic mechanism in Jiulong River Estuary[J]. *Journal of Oceanography in Taiwan Strait*, 1999, 18: 418-424. (in Chinese))
- [16] 蒋文芳. 九龙江口南港水位变化分析[J]. 亚热带资源与环境学报, 2008(3): 57-61. (JIANG Wen-fang. On water level change of the south channel in the estuary of Jiulong River[J]. *Journal of Subtropical Resources and Environment*, 2008(3): 57-61. (in Chinese))
- [17] 郭占荣, 黄磊, 刘花台, 等. 镭同位素示踪隆教湾的海底地下水排泄[J]. 地球学报, 2008, 29: 647-652. (GUO Zhan-rong, HUANG Lei, LIU Hua-tai, et al Estimating submarine inputs of groundwater to a coastal bay using radium isotopes[J]. *Acta Geoscientica Sinica*, 2008, 29: 647-652. (in Chinese))
- [18] 谢永臻, 黄奕普, 施文远, 等. 天然水体中 ^{226}Ra 、 ^{228}Ra 的联合富集与测定[J]. 厦门大学学报: 自然科学版, 1994, 33: 86-90. (XIE Yong-zhen, HUANG Yi-pu, SHI Wen-yuan, et al Simultaneous concentration and determination of ^{226}Ra 、 ^{228}Ra in natural waters[J]. *Journal of Xiamen University: Natural Science*, 1994, 33: 86-90. (in Chinese))
- [19] 黄奕普, 谢永臻, 陈性保, 等. 海水中 ^{224}Ra 快速富集和测定的新方法[J]. 厦门大学学报: 自然科学版, 2001, 40: 699-705. (HUANG Yi-pu, XIE Yong-zhen, CHEN Xing-bao, et al A new method for rapid concentration and determination of ^{224}Ra in seawater[J]. *Journal of Xiamen University: Natural Science*, 2001, 40: 699-705. (in Chinese))
- [20] 国家环境保护总局. 水和废水监测分析方法[M]. 北京: 中国环境科学出版社, 2002. (Ministry of Environmental Protection of the People's Republic of China. *Methods of monitoring and analyzing of water and waste water*[M]. Beijing: China Environmental Academic Journal Electronic Publishing House. All rights reserved. <http://www.cnki.net>

Science Press, 2002. (in Chinese)

- [21] 洪华生, 曹文志, 岳世平, 等. 九龙江河口生物地球化学元素通量的初步模拟 [J]. 海洋环境科学, 2001, 20: 1-4. (HONG Hua-sheng, CAO Wen-zhi, YUE Shi-ping et al. Preliminary biogeochemical budget in Jiulong River Estuary [J]. Marine Environmental Science, 2001, 20: 1-4. (in Chinese))
- [22] FERRARIN C, RAPAGLIA J, ZAGGIA L et al. Coincident application of a mass balance of radium and a hydrodynamic model for the seasonal quantification of groundwater flux into the Venice Lagoon, Italy [J]. Marine Chemistry, 2008, 112: 179-188.
- [23] BOEHM A B, PAYTAN A, SHELLENBARGER G G, et al. Composition and flux of groundwater from a California beach aquifer: Implications for nutrient supply to the surf zone [J]. Continental Shelf Research, 2006, 26: 269-282.
- [24] SLOMPC P, CAPPELLEN P V. Nutrient inputs to the coastal ocean through submarine groundwater discharge: Controls and potential impact [J]. Journal of Hydrology, 2004, 295: 64-86.
- [25] 福建省地方志编纂委员会. 福建省志: 海洋志 [M]. 北京: 方志出版社, 2002. (Compiling Committee of Chorography in Fujian. Fujian province chorography: Oceanography chorography [M]. Beijing: Fangzhi Press, 2002. (in Chinese))

Estimating submarine groundwater discharge to the Jiulong River estuary using Ra isotopes*

GUO Zhan-rong HUANG Lei YUAN Xiao-jie LI Hua-tai LI Kai-pei

(College of Oceanography and Environmental Science, Xiamen University, Xiamen 361005, China)

Abstract A mass balance model of naturally-occurring short-lived and long-lived radium isotopes (^{224}Ra and ^{226}Ra) for the Jiulong River Estuary is developed to estimate the submarine groundwater discharge (SGD) to the estuary. All likely source and sink terms are considered in the model establishment. The source terms for Ra include river discharge, desorption from riverine suspended particles, desorption from resuspended particles, diffusion from subtidal sediments, and input from open sea and SGD. Ra can also be removed through radioactive decay and with ebb tide. The modeling result shows that up to 41.9% to 56.9% of the total Ra input can be attributed to the contribution of submarine groundwater in the estuary, and this has to be sustained by a discharge of 1.65×10^8 to $1.83 \times 10^8 \text{ m}^3/\text{d}$ in groundwater input. Such groundwater amounts can be four times that of river discharge in the estuary. Assuming that fresh groundwater can account for 10% of the total amount of groundwater, then the model calculated inorganic nutrient fluxes are $4.61 \times 10^6 \text{ mol/d}$ for dissolved inorganic nitrogen (DN), $0.22 \times 10^6 \text{ mol/d}$ for dissolved inorganic phosphate (DIP), and $6.94 \times 10^6 \text{ mol/d}$ for dissolved inorganic silicon (DSi), respectively. And such inorganic nutrient fluxes are 23%, 28% and 77% of that delivered by river discharge in the estuary, respectively. The result suggests that a considerable amount of nutrients in the Jiulong River Estuary is coming from the contribution of SGD. The latter itself is also significant in relation to the total river discharge in the estuary. Nutrients contributed by SGD could potentially cause environmental concerns of estuary and coastal marine eutrophication. Such an environmental issue must be considered in the future management plan.

Key words groundwater; seawater; submarine groundwater discharge; radioisotopes; radium; nutrients; estuary; Jiulong River