

基于 ^{222}Rn 质量平衡模型的胶州湾海底地下水排泄

袁晓婕, 郭占荣*, 马志勇, 章斌, 刘洁

厦门大学海洋与地球学院, 福建厦门 361102

摘要: 海底地下水排泄(SGD)作为全球水循环的一个组成部分, 近年来成为陆海相互作用的研究热点。地球化学示踪法是研究海底地下水排泄的主要手段。本文以环境同位素 ^{222}Rn 作为示踪剂, 通过构建 ^{222}Rn 质量平衡模型来评价胶州湾的海底地下水排泄, 并进一步估算地下水输入的营养盐。 ^{222}Rn 质量平衡模型的源项考虑了河流的输入、沉积物的扩散、母体 ^{226}Ra 的支持, 汇项考虑了 ^{222}Rn 的自身衰变、 ^{222}Rn 散逸到大气造成的损失以及与湾外海水的混合损失, 源汇项的差值则作为地下水输入的 ^{222}Rn 通量。结果表明, 2011年9—10月胶州湾海底地下水排泄通量为 $24.2 \text{ L} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{d}^{-1}$, 2012年4—5月胶州湾海底地下水排泄通量为 $7.8 \text{ L} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{d}^{-1}$ 。丰水季节地下水输入胶州湾的营养盐低于河流输入的, 但是枯水季节地下水输入的营养盐接近河流输入的, 特别是输入的活性磷酸盐和硅酸盐很接近。

关键词: 海底地下水排泄; ^{222}Rn 质量平衡; 营养盐; 胶州湾

中图分类号: P641.2; P641.3 文献标志码: A doi: 10.3975/cagsb.2015.02.13

The Evaluation of Submarine Groundwater Discharge in Jiaozhou Bay Based on ^{222}Rn Mass Balance

YUAN Xiao-jie, GUO Zhan-rong*, MA Zhi-yong, ZHANG Bin, LIU Jie

College of Ocean and Earth Sciences, Xiamen University, Xiamen, Fujian 361102

Abstract: Submarine groundwater discharge (SGD), an important part of global water cycle, has recently been a research focus in the field of land-ocean interaction along the coastal zone. Geochemical tracing is a major tool to study submarine groundwater discharge. Taking natural occurring isotope ^{222}Rn as a tracer, the authors built ^{222}Rn mass balance model to estimate groundwater discharge to Jiaozhou Bay, and also evaluated the nutrient fluxes transported via groundwater. River input, dispersion of sediments, and support from parent ^{226}Ra are considered to be the sources of ^{222}Rn mass balance model, whereas radioactive decay, escape from sea-water interface to air and loss in mixing with the low activity water from open ocean are considered to be the sink of the model. Thus, the imbalance of budget from the model is attributed to submarine groundwater discharge. Calculations show that submarine groundwater discharge flux to Jiaozhou Bay was $24.2 \text{ L} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{d}^{-1}$ from September to October in 2011, and $7.8 \text{ L} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{d}^{-1}$ from April to May in 2014, respectively. The results of the study also indicate that the nutrient fluxes derived from groundwater during the wet season are lower than those transported by the local rivers, whereas the nutrient fluxes derived from groundwater during the dry season are close to those transported by the local rivers and, what is more, soluble reactive phosphate and silicate fluxes from both groundwater and river are very close to each other.

Key words: submarine groundwater discharge; ^{222}Rn mass balance model; nutrient; Jiaozhou Bay

海底地下水排泄(SGD)是全球水循环的一个组成部分。按照 Burnett 等(2003a)和 Moore(2010)给海底地下水排泄的定义, 其不仅是指传统意义上的内

陆地下水向海盆的排泄, 而且还包括海水在海岸带含水层中的循环, 该循环是由潮汐、波浪和咸淡水密度差引起的。初步估算, 每年全球的地下淡水入

本文由国家自然科学基金项目(编号: 41072174)资助。

收稿日期: 2014-05-31; 改回日期: 2014-08-13。责任编辑: 魏乐军。

第一作者简介: 袁晓婕, 女, 1985年生。博士研究生。研究方向为海底地下水排泄。E-mail: jieer17@163.com。

*通讯作者: 郭占荣, 男, 1965年生。教授。从事海岸带水文地质学和海洋地质的教学和研究工作。E-mail: gzh@xmu.edu.cn。

海量为 2400 km³, 其中约 1500 km³ 来自大陆、约 900 km³ 来自岛屿, 是河流径流输入量的 6%(Burnett et al., 2003a)。虽然目前对全球海岸带的循环海水数量还没有做过全面的评价, 但有一点是可以肯定的, 那就是绝大多数海岸带的循环海水数量都远远超过地下淡水入海量。Beck 等(2007)在研究纽约 Jamaica Bay 的海底地下水排泄时发现, 循环海水数量约是地下淡水入海量的 6~70 倍。Garrison 等(2003)对夏威夷 Kahana Bay 海底地下水排泄进行了研究, 认为循环海水占总排泄量的 84%, 陆源淡水排泄占 16%。

海底地下水排泄还是输送陆源物质入海的一个载体。海底地下水排泄为海洋提供了重要的营养盐、碳、微量元素等物质(Knee et al., 2011), 以往在评价陆海之间的物质通量时被严重忽略。海底地下水排泄中营养盐、碳、微量元素等物质浓度通常较河流中的高, 所以地下水在这些物质的海洋收支平衡中比河流显得更重要。虽然陆源地下淡水入海量仅占河流径流输入量的 6%, 但是其输入海洋的溶解物质却占河流输入量的 25%~50%(Dzhamalov et al., 2002)。循环海水对海洋的净水量输入虽然是零, 但是循环海水在海岸带含水层咸淡水混合带的水岩作用十分强烈, 为循环海水输送溶解物质入海创造了条件, 可见, 循环海水对海洋的意义更多地体现在它的溶解物质输送方面。大多数金属元素在氧化条件下是可溶的, 而在还原条件下是不可溶的。咸淡水混合带通常是缺氧的, 在这种还原条件下许多金属元素沉淀在含水层中, 而当含氧的循环海水进入含水层时, 则把这些沉淀的金属又溶解搬运到海水中(Moore, 2010)。Windom 等(2006)报道地下水输入大量的 Fe 到巴西东南沿海, 在 240 km 长海岸线的大陆架上的 Fe 通量相当于整个南大西洋大气输入 Fe 通量的 10%。Garrison 等(2003)指出地下水向夏威夷 Kahana Bay 输入的 N、P 通量分别是地表水输入量的 5 倍和 2 倍。Shaw 等(1998)评价北美东南沿海由地下水输入的 Ba 通量为 $70 \times 10^3 \text{ mol} \cdot \text{d}^{-1}$, 约是河流输入的 4 倍。Basu 等(2001)认为恒河流域通过地下水输入到孟加拉湾的 Sr 的通量与河流输入的相当, 恒河流域对海水中 ⁸⁷Sr/⁸⁶Sr 比率升高的贡献超出预想。Moore 等(2006)认为地下水输入南卡罗来纳 Okatee 盐沼的 DIC 和 DOC 通量分别为 $2 \text{ mol} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{d}^{-1}$ 和 $50 \text{ mmol} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{d}^{-1}$, 二者都远远超过河流输入到该盐沼的 DIC 和 DOC 通量。

海底地下水排泄又是海岸带生态环境的一个重要影响因素, 某些近岸海水富营养化、赤潮暴发、重金属和有机物污染可能与海底地下水排泄有关。Laroche 等(1997)根据多年的监测数据, 认为地下水

输入的溶解态无机氮(DIN)对长岛地区的赤潮有重要影响。Lee 等(2007, 2010)推测韩国南部海湾的有害赤潮暴发是由于地下水输入的过量营养盐而引发的。Tse 等(2008)认为香港 Tolo 湾的海水富营养化与地下水排泄的营养盐有非常大的关系。Bone 等(2007)认为由地下水输入马萨诸塞州 Waquoit 湾的 Hg 的通量是大气输入 Hg 通量的 10 倍, 而以往却认为大气输入是 Waquoit 湾 Hg 的主要贡献者。

在各种评价海底地下水排泄量的方法中, 地球化学示踪法是应用最为广泛的一种。地球化学示踪法常用的天然示踪剂有 ²²²Rn、镭同位素(²²⁸Ra、²²⁶Ra、²²⁴Ra、²²³Ra)、CH₄、Ba 和 Sr 等(Burnett et al., 2006)。²²²Rn 作为一个研究海底地下水排泄的理想示踪剂, 其优势包括: ①地下水中的 ²²²Rn 活度通常较高, 一般高出地表水 2~3 个数量级。因为岩石中广泛存在铀系元素, 其子体 ²²²Rn 容易在地下水中积聚; ②水体中 ²²²Rn 的损失主要是放射性衰变和逸散到大气, 比较容易确定; ③²²²Rn 是一种化学性质不活泼的气体, 很难与其他物质发生反应; ④²²²Rn 半衰期为 3.83 d, 能够匹配沿海的短时间尺度的海洋学过程; ⑤²²²Rn 在低活度时也易于测量, 不用富集, 特别是测氡仪 RAD7 与其附件 RAD-H₂O、RAD-AQUA 的应用, 使得测量水体中的 ²²²Rn 活度变得非常容易。

²²²Rn 示踪海底地下水排泄是基于 ²²²Rn 质量平衡原理, 通常假设研究系统处于稳定态, 利用 ²²²Rn 箱式模型来评价海底地下水排泄通量, 箱式模型的关键是查清 ²²²Rn 的主要源和汇。Cable 等(1996)在墨西哥湾东北部沿海, 由于研究期间有密度跃层存在, 建立了密度跃层下的 ²²²Rn 箱式模型, 获得 620 km² 海域海底地下水排泄量为 $710 \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$ 。Su 等(2014)在阿拉巴马州 Little 湖建立了 ²²²Rn 箱式模型, 得到海底地下水排泄量为 $4.93 \sim 23.6 \text{ L} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{d}^{-1}$ 。

本文首先简要分析地下水、河水、海水中 ²²²Rn 活度的分布情况, 然后构建 ²²²Rn 的质量平衡箱式模型计算海底地下水排泄量, 在此基础上进一步估算地下水输入的营养盐通量, 并与河流输入的营养盐作对比分析。

1 研究方法

1.1 研究区概况

胶州湾位于南黄海之西, 山东半岛南部, 是一个典型的半封闭海湾, 湾口最窄处仅 3.1 km。胶州湾南北长约 33 km, 东西宽约 28 km, 平均潮位时的水域面积约 367 km², 湾内平均水深 7.0 m, 最大水深在湾口附近局部可达 64 m。胶州湾湾底沉积物在中央水道以粉砂质砂或粉砂为主, 水道之间以粉砂

为主, 潮间带则以粉砂质粘土和淤泥为主, 靠近大沽河口和洋河口的潮间带比较宽。胶州湾潮汐类型属于正规半日潮, 潮汐周期约为 12 时 25 分, 最大潮差 4.75 m, 平均潮差 2.8 m。注入湾内的河流主要有大沽河、洋河、墨水河—白沙河、李村河。胶州湾地处典型的东亚季风气候区, 多年平均降水量 680.5 mm, 全年降水集中在 7、8 月, 两月降水量占全年降水量的 45%, 12 月份降水量最少, 平均仅为 9.8 mm。胶州湾全年频率最高的风向是 SE、N 和 NNW 向, 并有明显的季节变化, 年平均风速为 5.5 m/s。

湾口西侧黄岛区分布丘陵和低山, 青岛市区东部是崂山山脉, 出露大面积的基岩, 其岩性主要是火成岩, 这些地区地下水类型以基岩风化裂隙水为主, 地下水比较贫乏。其它地方以平原为主, 分布大面积的第四纪松散沉积物, 局部出露白垩系青山群砂岩。第四纪松散沉积物组成的含水层多为双层结构, 岩性以细砂和粉砂质砂为主, 夹有少量的粘土透镜体, 含水层厚度 5~20 m。第四系松散沉积物中的地下水类型为孔隙潜水或微承压水, 富水性比较好, 特别以墨水河—白沙河、洋河、大沽河下游平原的地下水最为丰富。地下水主要接受大气降水补给, 以蒸发方式和向海径流的方式排泄。在胶州湾中部, 沉积物有高的沉积速率, 西、北、东部具有较低的沉积速率, 胶州湾东部沉积物和东岸陆地沉积物具有较高的放射性核素含量(刘广山等, 2008)。

1.2 样品采集

2011 年 9 月底至 10 月中旬, 采集地下水样 28 个, 采集河水样 23 个, 采集海水样 35 个(图 1);

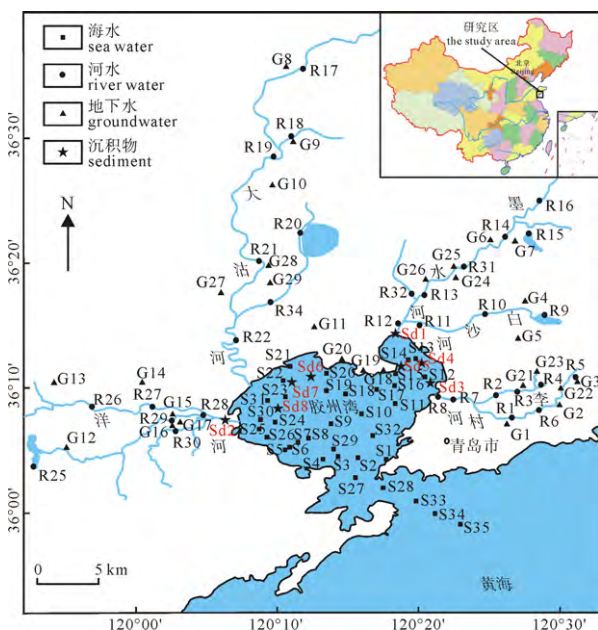


图 1 2011 年 9—10 月采样站位图
Fig. 1 Sampling sites in Jiaozhou Bay in September and October, 2011

2012 年 4 月底至 5 月初, 采集地下水样 39 个, 采集河水样 40 个, 采集海水样 30 个(图 2)。海水样利用船载潜水泵取自水面之下 1~1.5 m, 地下水取自经常在使用的居民水井。绝大部分地下水和河水样两次取样的地点相同, 但 2012 年的样品数多于 2011 年。 ^{222}Rn 水样采集均用测氡仪(RAD7)的 250 ml 专用取样瓶。为了了解母体 ^{226}Ra 对 ^{222}Rn 的影响, 同时还采集海水样测量其 ^{226}Ra 活度, ^{226}Ra 水样采集体积为 30 L。另外, 为了计算沉积物中 ^{222}Rn 的扩散通量, 2011 年 10 月初, 用抓斗式采泥器在胶州湾采集了 8 个海底表层沉积物样品(图 1)。采用现场用便携式盐度计测量水样的温度和盐度。

1.3 测量方法

1.3.1 水体中 ^{222}Rn 和 ^{226}Ra 的测量

^{222}Rn 的活度采用美国 Durrige Company Inc. 生产的便携式测氡仪 RAD7 测量, ^{226}Ra 的活度采用中核(北京)核仪器厂生产的 FD-125 型氡钍仪测量(谢永臻等, 1994; 袁晓婕等, 2014)。

1.3.2 沉积物孔隙水中 ^{222}Rn 的测量

根据 Corbett 等(1998)提出的培养方法, 取沉积物样品约 150 g 装入 1000 mL 锥形瓶内, 加入 400 mL 海水, 放置在振荡器上密封培养 1 个月, 使沉积物孔隙水中的 ^{222}Rn 与其上覆水体中的 ^{222}Rn 活度达到放射性衰变平衡, 测量沉积物上覆水体中 ^{222}Rn 的活度, 将该活度作为沉积物孔隙水中的 ^{222}Rn 活度。

1.4 ^{222}Rn 质量平衡模型

在研究系统处于稳定状态情况下, 通过建立输入和输出研究系统的 ^{222}Rn 质量平衡模型, 可以计

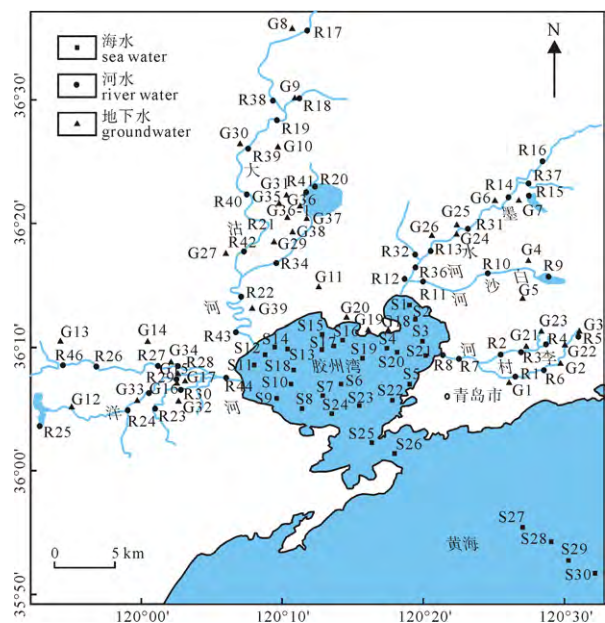


图 2 2012 年 4—5 月采样站位图
Fig. 2 Sampling sites in Jiaozhou Bay in April and May, 2012

算海底地下水排泄(Cable et al., 1996)。对于胶州湾水体系统来讲,输入该系统的 ^{222}Rn 源项主要是母体 ^{226}Ra 、河流、沉积物扩散和海底地下水排泄,而输出该系统的 ^{222}Rn 汇项主要是放射性衰变、大气逃逸和与湾外海水的混合损失。假设整个胶州湾水体系统是一个相对稳定的水循环系统,那么在稳态下 ^{222}Rn 的输入与输出应该相等。首先,我们将实测的海水中 ^{222}Rn 活度进行母体支持的校正,即减去实测的海水中母体 ^{226}Ra 的平均活度(2011年: $2.8 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$, 2012年: $3.1 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$),得到海水中过剩的 ^{222}Rn 活度,然后用平均海水深度(7 m)乘以过剩的 ^{222}Rn 活度,获得海水中 ^{222}Rn 的储量。在此基础上,建立如下的 ^{222}Rn 质量平衡:

$$F_{\text{SGD}} + F_{\text{diff}} + F_{\text{river}} - F_{\text{atm}} - I \cdot \lambda - I/T = 0 \quad (1)$$

式中, F_{SGD} 是地下水输入的 ^{222}Rn 通量, F_{diff} 是沉积物中 ^{222}Rn 的扩散通量, F_{river} 是河流输入的 ^{222}Rn 通量, F_{atm} 是 ^{222}Rn 的大气逃逸通量。 I 是胶州湾海水中 ^{222}Rn 储量($\text{Bq} \cdot \text{m}^{-2}$), λ 是 ^{222}Rn 的衰变常数(0.182 d^{-1}),二者相乘表示湾内海水的 ^{222}Rn 衰变损失通量。 T 是胶州湾水体平均滞留时间(d), I/T 表示湾内海水与湾外低活度海水的混合损失通量。通量的单位均为 $\text{Bq} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{d}^{-1}$ 。

2 结果与讨论

2.1 水体中 ^{222}Rn 的分布特点

2011年9—10月(丰水季节)胶州湾周边地下水的 ^{222}Rn 活度范围为 $2069 \sim 32517 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$, 平均值 $16706 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$; 而2012年4—5月(枯水季节)地下水 ^{222}Rn 活度为 $3169 \sim 81972 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$, 平均值 $17855 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$ (图3)。丰水季节的 ^{222}Rn 活度略低于枯水季节的,其原因可能来自两个方面,一方面大气降水中的 ^{222}Rn 活度接近零,丰水季节降水对地下水的补给在一定程度上稀释了地下水中的 ^{222}Rn 活度;另一方面是丰水季节抬升了地下水位,陆海间的水力梯度加大,地下水运移速度加快,缩短了水-岩作用时间,导致 ^{222}Rn 活度偏低。

2011年9—10月河水中 ^{222}Rn 活度范围为 $165 \sim 10139 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$, 平均值 $1970 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$; 2012年4—5月河水中 ^{222}Rn 活度为 $41 \sim 1927 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$, 平均值 $393 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$, 明显较2011年的低(图3)。分析其原因,一是枯水季节河流流量小、流速慢, ^{222}Rn 有足够的时间逸散到大气中,二是枯水季节地下水向河流的泄流补给减少。

2011年9—10月胶州湾内海水中 ^{222}Rn 活度为 $133 \sim 567 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$ (S1至S32号样), 平均值 $221 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$; 2012年4—5月湾内海水中 ^{222}Rn 活度为 $25 \sim 313 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$ (S1至S26号样), 平均值

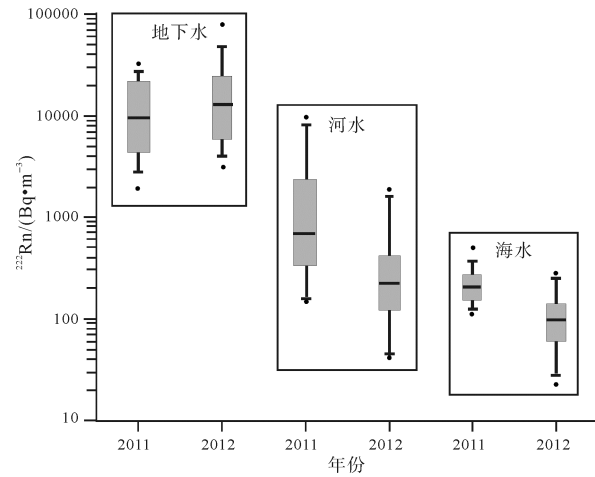


图3 不同水体中 ^{222}Rn 活度的分布
Fig. 3 The range of ^{222}Rn activities in different types of water

$111 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$, 约是2011年的1/2(图3)。枯水季节湾内海水 ^{222}Rn 活度低于丰水季节,其原因可能是:首先,枯水期地下水、河水输入量偏少,输入胶州湾的 ^{222}Rn 随之减少;其次,2012年取样期间的气温略高于2011年, ^{222}Rn 的大气逃逸损失偏大。

2.2 输入项与输出项的量化

(1) F_{river} 的计算

有径流输入胶州湾的河流主要是大沽河、洋河、墨水河,李村河几乎断流,忽略其径流输入。2011年9—10月,大沽河、洋河、墨水河的人海径流量分别为 $21.29 \times 10^6 \text{ m}^3 \cdot \text{d}^{-1}$ 、 $3.50 \times 10^6 \text{ m}^3 \cdot \text{d}^{-1}$ 和 $2.55 \times 10^6 \text{ m}^3 \cdot \text{d}^{-1}$, 2012年4—5月,大沽河、洋河、墨水河的人海径流量分别为 $9.75 \times 10^6 \text{ m}^3 \cdot \text{d}^{-1}$ 、 $1.60 \times 10^6 \text{ m}^3 \cdot \text{d}^{-1}$ 和 $1.17 \times 10^6 \text{ m}^3 \cdot \text{d}^{-1}$, 径流量较2011年明显减小(表1)。为了计算河流输入的 ^{222}Rn 通量,我们选择3条河流最下游的采样点的 ^{222}Rn 活度与河流径流量的乘积。大沽河选择R22号点的 ^{222}Rn 活度(R43号已经是河水与海水的混合水,不能代表河水),洋河选择R28号点的 ^{222}Rn 活度(R44号也已经是河水与海水的混合水),墨水河选择R12号点的 ^{222}Rn 活度。为了与其它源汇项的量纲保持一致,将 ^{222}Rn 活度与河流径流量的乘积再除以胶州湾的面积,面积取平均潮位时的水面积 $3.27 \times 10^8 \text{ m}^2$,则获得单位面积上河流输入的 ^{222}Rn 通量。2011年9—10月,河流输入的 ^{222}Rn 通量为 $34.86 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{d}^{-1}$, 2012年4—5月,河流输入的 ^{222}Rn 通量为 $4.89 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{d}^{-1}$ 。

(2) F_{atm} 的计算

^{222}Rn 是一种易溶于水的气体,通常水-气两相中的 ^{222}Rn 活度处于不平衡状态,溶解于海水中的 ^{222}Rn 比较容易逸散到大气中。MacIntyre等(1995)给出水-气界面上的气体扩散通量计算公式,大气逃逸通量取决于 ^{222}Rn 在海水-大气界面的分配系

表 1 河流输入的 ^{222}Rn 通量计算参数
Table 1 Parameters for calculating ^{222}Rn fluxes transported by rivers

时间	大沽河		洋河		墨水河		面积/ (10^8 m^2)	^{222}Rn 通量/ ($\text{Bq} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{d}^{-1}$)
	径流量/ ($10^6 \text{ m}^3 \cdot \text{d}^{-1}$)	^{222}Rn 活度/ ($\text{Bq} \cdot \text{m}^{-3}$)	径流量/ ($10^6 \text{ m}^3 \cdot \text{d}^{-1}$)	^{222}Rn 活度/ ($\text{Bq} \cdot \text{m}^{-3}$)	径流量/ ($10^6 \text{ m}^3 \cdot \text{d}^{-1}$)	^{222}Rn 活度/ ($\text{Bq} \cdot \text{m}^{-3}$)		
2011 年 9—10 月	21.29	165	3.50	262	2.55	273	3.27	34.86
2012 年 4—5 月	9.75	119	1.60	170	1.17	176	3.27	4.89

表 2 沉积物孔隙度及孔隙水中 ^{222}Rn 活度
Table 2 Porosity of sediments and ^{222}Rn activities in the pore water of sediment

沉积物样品	Sd1	Sd2	Sd3	Sd4	Sd5	Sd6	Sd7	Sd8
孔隙水 ^{222}Rn ($\text{Bq} \cdot \text{m}^{-3}$)	2417	3448	2061	2756	2718	1654	2550	2283
沉积物孔隙度	0.43	0.44	0.37	0.43	0.46	0.48	0.41	0.49

数、表层水温和海面上的风速, 分配系数又是水温的函数。为了确定大气逃逸通量, 野外调查期间我们连续 48 小时监测了海水和大气中的 ^{222}Rn 活度以及水温和海面风速, 另有文章发表(郭占荣等, 2013)。经过计算, 2011 年调查期间海水中 ^{222}Rn 的大气逃逸通量为 $11.52 \sim 47.76 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{d}^{-1}$, 平均值 $22.56 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{d}^{-1}$, 2012 年调查期间海水中 ^{222}Rn 的大气逃逸通量为 $9.60 \sim 37.20 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{d}^{-1}$, 平均值 $22.09 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{d}^{-1}$, 结果发现两个调查时段的大气逃逸通量相差不大。

(3) F_{diff} 的计算

通常情况下, 沉积物孔隙水中的 ^{222}Rn 活度高于上覆海水中的 ^{222}Rn 活度, 所以孔隙水中 ^{222}Rn 在活度差的驱动下扩散到海水中。Martens 等(1980)提出沉积物-海水界面 ^{222}Rn 扩散通量的计算方法, 该扩散通量是由活度差、垂直扩散系数和衰变常数确定的, 其中扩散系数是孔隙度、水温的函数(郭占荣等, 2012)。沉积物孔隙度依据沉积物的体积、质量、密度和含水量计算获得(邹大鹏等, 2007)。根据 8 个沉积物样的培养实验, 沉积物孔隙水中 ^{222}Rn 活度介于 $1653 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$ 至 $3447.46 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$ 之间, 孔隙度分布于 $0.37 \sim 0.49$ 之间(表 2), 计算获得沉积物向上覆海水输送的 ^{222}Rn 平均扩散通量为 $6.48 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{d}^{-1}$ 。沉积物 ^{222}Rn 的扩散通量可以看作是稳定的, 所以, 2011 年和 2012 年两个计算时段都采用同一个值, 即 $6.48 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{d}^{-1}$ 。

(4) 衰变损失 ($I \cdot \lambda$) 的计算

由于胶州湾大部分区域水深都比较浅, 只有几个涨潮、退潮水道所在位置和湾口附近水深比较大, 所以整体上胶州湾全年的水体垂直混合比较均匀, 同一观测站从表层到底层盐度的垂直变幅小都于 0.2 (杨玉玲等, 1999)。在垂直混合比较均匀的情况下, 胶州湾内海水中 ^{222}Rn 的储量(I)则可由湾内海水中过剩的 ^{222}Rn 活度(2011 年 9—10 月为 $218.2 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$, 2012 年 4—5 月为 $107.9 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$)乘以海水的平均深

度(7 m)获得。然后, 再乘以 ^{222}Rn 的衰变常数 $\lambda(0.182 \text{ d}^{-1})$ 就得到衰变通量。2011 年 9—10 月 ^{222}Rn 的衰变通量为 $277.98 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{d}^{-1}$, 2012 年 4—5 月 ^{222}Rn 的衰变通量为 $137.46 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{d}^{-1}$ 。

(5) 混合损失 (I/T) 的计算

湾口外海水的 ^{222}Rn 活度明显低于湾内, 例如, 2012 年湾口外的 S27、S28、S29 和 S30 的 ^{222}Rn 平均活度比湾内低 $86.25 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$ 。所以, 湾内海水与湾外低活度的海水混合导致 ^{222}Rn 的混合损失。Liu 等(2004)在三维水动力模型基础上建立水质模型, 获得胶州湾水体的平均滞留时间为 52 d, 用该滞留时间(T)除湾内海水中 ^{222}Rn 的储量(I), 则可得湾内海水与湾外海水的 ^{222}Rn 混合损失通量。2011 年 9—10 月 ^{222}Rn 的混合损失通量为 $29.37 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{d}^{-1}$, 2012 年 4—5 月 ^{222}Rn 的混合损失通量为 $14.53 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{d}^{-1}$ 。

(6) F_{SGD} 的计算

根据公式(1), 计算获得 2011 年 9—10 月地下水输入的 ^{222}Rn 通量为 $292.52 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{d}^{-1}$, 2012 年 4—5 月地下水输入的 ^{222}Rn 通量为 $167.07 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{d}^{-1}$ 。

2.3 海底地下水排泄量

在已知地下水输入的 ^{222}Rn 通量后, 用该通量除以地下水端元的 ^{222}Rn 活度, 能够得到海底地下水排泄通量。从前文的水文地质条件分析可知, 胶州湾的海底地下水排泄很不均一, 海底地下水排泄主要发生在墨水河—白沙河、大沽河、洋河流域的沿海及海底部分, 其它地段的地下水输入量很有限。基于这样的认识, 我们主要选取了这 3 个流域下游平原具有代表性的地下水采样点, 其中墨水河—白沙河流域选取了 G26 号采样点, 大沽河流域选取了 G11、G27 和 G29 号采样点, 洋河流域选取了 G15、G16 和 G17 号采样点, 将这 7 个样的平均值作为地下水端元的 ^{222}Rn 活度(2011 年 9—10 月为 $12075.7 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$, 2012 年 4—5 月为 $21319.5 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$)。于是, 便获得 2011 年 9—10 月胶州湾海底地下水排

泄量为 $24.2 \text{ L} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{d}^{-1}$, 2012年4—5月胶州湾海底地下水排泄量为 $7.8 \text{ L} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{d}^{-1}$ 。乘以胶州湾的水域面积, 则获得全湾每天的排泄量, 2011年9—10月为 $7.92 \times 10^6 \text{ m}^3 \cdot \text{d}^{-1}$, 2012年4—5月为 $2.56 \times 10^6 \text{ m}^3 \cdot \text{d}^{-1}$ 。若将排泄通量转化成排泄速率, 则2011年9—10月胶州湾海底地下水排泄速率为 $2.42 \text{ cm} \cdot \text{d}^{-1}$, 2012年4—5月胶州湾海底地下水排泄速率为 $0.78 \text{ cm} \cdot \text{d}^{-1}$ 。与其它海域的排泄速率比较, 胶州湾的地下水输入速率略偏小(表3)。本文用 ^{222}Rn 质量平衡模型计算的海底地下水排泄量包括了陆源地下淡水和循环海水, 而且反映的是整个胶州湾地下水输入量的平均水平, 实际上, 有些地段输入量较大, 而有些地段输入量则较小。例如, 墨水河—白沙河流域的沿海部分输入量就比较大, 郭占荣等(2013)在靠近墨水河—白沙河入海口附近采用连续测量 ^{222}Rn 的方法评价了该局部海域的地下水输入速率, 其结果为 $6.38\sim 8.29 \text{ cm/d}$, 明显高于整个湾的地下水平均输入速率。

2011年9—10月海底地下水排泄量约是2012年4—5月的3倍, 其原因与胶州湾地区的降水分配和地下水开采有关。胶州湾地区雨季基本上从6月开始, 到9月结束, 雨季地下水得到降水的充分补给, 地下水位上升, 从陆向海的水力梯度变大, 海底地下水排泄量增加; 而从1月到5月, 是胶州湾地区降水量最小的时期, 地下水不但不能得到降水补给, 反而向河道泄流, 并且在枯水期胶州湾周边地区还会增加地下水开采量, 导致地下水位下降, 海底地下水排泄量减少。由此可见, 海底地下水排泄量在很大程度上受到降水量和开采量的影响。

2.4 地下水输入的营养盐

2011年9—10月和2012年4—5月, 我们对地下水样和河水样还进行了营养盐的分析, 测量了溶解无机氮(DIN)、活性磷酸盐(PO_4^{3-})和溶解性硅酸盐(SiO_3^{2-})的含量, 均采用传统的分光光度法。

假设营养盐流经咸淡水过渡带时化学行为是保守的, 其营养盐浓度未发生变化, 我们用全湾地下水排泄量乘以营养盐浓度来估算营养盐输入量。营养盐浓度选取计算海底地下水排泄量时的7个地

下水端元(G11、G15、G16、G17、G26、G27和G29)的平均浓度(2011年: N-597.7 $\mu\text{mol/L}$, P-0.1 $\mu\text{mol/L}$, Si-129.0 $\mu\text{mol/L}$; 2012年: N-382.7 $\mu\text{mol/L}$, P-9.1 $\mu\text{mol/L}$, Si-185.3 $\mu\text{mol/L}$)。计算结果表明: 2011年9—10月, 地下水输入胶州湾的营养盐分别为 $4.73 \times 10^6 \text{ mol} \cdot \text{d}^{-1}$ (DIN)、 $0.12 \times 10^4 \text{ mol} \cdot \text{d}^{-1}$ (PO_4^{3-})、 $1.02 \times 10^6 \text{ mol} \cdot \text{d}^{-1}$ (SiO_3^{2-}); 2012年4—5月, 地下水输入胶州湾的营养盐分别为 $0.98 \times 10^6 \text{ mol} \cdot \text{d}^{-1}$ (DIN)、 $2.34 \times 10^4 \text{ mol} \cdot \text{d}^{-1}$ (PO_4^{3-})、 $0.48 \times 10^6 \text{ mol} \cdot \text{d}^{-1}$ (SiO_3^{2-})。同期, 河流输入的营养盐数量是, 2011年9—10月为 $12.41 \times 10^6 \text{ mol} \cdot \text{d}^{-1}$ (DIN)、 $4.14 \times 10^4 \text{ mol} \cdot \text{d}^{-1}$ (PO_4^{3-})、 $2.31 \times 10^6 \text{ mol} \cdot \text{d}^{-1}$ (SiO_3^{2-}), 2012年4—5月为 $4.80 \times 10^6 \text{ mol} \cdot \text{d}^{-1}$ (DIN)、 $2.13 \times 10^4 \text{ mol} \cdot \text{d}^{-1}$ (PO_4^{3-})、 $0.31 \times 10^6 \text{ mol} \cdot \text{d}^{-1}$ (SiO_3^{2-})。两个时期河流输入的溶解无机氮均是地下水输入的3~4倍, 丰水季节河流输入的活性磷酸盐和硅酸盐都高于地下水输入的, 但枯水季节河流输入的活性磷酸盐和硅酸盐基本与地下水输入的相当。

上述营养盐输入量是用总海底地下水排泄量(包括陆源地下淡水和循环海水)乘以地下水端元的营养盐浓度获得的。实际上, 由于循环海水的循环尺度不可能很大, 也就是说循环海水延伸到陆地含水层的深度是有限的, 所以不是所有的循环海水都参与了营养盐的输送, 特别是像波浪引起的循环海水其输送的营养盐很有限。所以, 基于总海底地下水排泄量计算的营养盐输入量存在一定程度的高估。营养盐输入量的不确定性还可能来自于地下水端元的选取, 结合水文地质条件选择真正具有代表性的端元很重要, 地下水端元选择不当, 可能导致对营养盐输入量的高估或低估。此外, 没有考虑营养盐在咸淡水混合带的生物地球化学反应, 其带来的误差尚不清楚, 有待于开展深入研究。

3 结论

胶州湾海水中的 ^{222}Rn 不是河水与湾外海水的保守混合, ^{222}Rn 的来源还有地下水输入、沉积物扩散、母体 ^{226}Ra 支持。 ^{222}Rn 的损失主要是潮汐作用使得湾内水体与外海水体的混合损失、 ^{222}Rn 自身衰

表3 不同海域海底地下水排泄量
Table 3 Submarine groundwater discharge in different coastal zones

平均输入速率/(cm/d)	地点	评价方法	来源
13	墨西哥湾海岸	^{222}Rn 连续测量	Burnett et al., 2003b
48~72	日本冲绳岛	^{222}Rn 连续测量	Blanco et al., 2011
7.8~16.3	香港吐露港	^{222}Rn 连续测量	Tse et al., 2008
8.4~13.8	黄河三角洲	^{222}Rn 连续测量	Peterson et al., 2008
2.3~8.4	夏威夷卡哈纳湾	渗流仪	Garrison et al., 2003
8~12	韩国嘎马克湾	^{226}Ra 质量平衡模型	Hwang et al., 2010
0.78~2.42	胶州湾	^{222}Rn 质量平衡模型	本文

变损失以及 ^{222}Rn 从海水中散逸到大气中的损失。除了地下水输入的 ^{222}Rn 通量外, 其它源汇项的 ^{222}Rn 都比较容易量化, 依据质量平衡原理, 源汇项的差值便是地下水输入的 ^{222}Rn 通量。

地下水端元的选择, 对于计算海底地下水排泄通量很重要。根据水文地质条件, 一般认为, 靠近沿岸咸淡水混合带的地下水最有代表性。地下水输入的 ^{222}Rn 通量除以地下水端元中 ^{222}Rn 的平均活度, 便可知海底地下水排泄通量。根据计算结果, 2011年 9—10 月胶州湾海底地下水排泄通量为 $24.2 \text{ L} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{d}^{-1}$, 2012 年 4—5 月胶州湾海底地下水排泄通量为 $7.8 \text{ L} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{d}^{-1}$, 丰水季节地下水输入量明显大于枯水季节, 说明降水量和开采量对海底地下水排泄量具有重要影响。

和河流输入胶州湾的营养盐相似, 地下水输入的营养盐也随季节变化很大, 总体来看, 河流输入的溶解无机氮高于地下水, 丰水季节河流输入的活性磷酸盐和硅酸盐也高于地下水, 但是, 枯水季节地下水输入的活性磷酸盐和硅酸盐与河流输入的基本相当。所以, 不能忽视地下水在胶州湾营养盐输入中的作用。

参考文献:

- 郭占荣, 李开培, 袁晓婕, 章斌, 马志勇. 2012. 用氡-222评价五缘湾的地下水输入[J]. 水科学进展, 23(2): 263-270.
- 郭占荣, 马志勇, 章斌, 袁晓婕, 刘花台, 刘洁. 2013. 采用 ^{222}Rn 示踪胶州湾的海底地下水排泄及营养盐输入[J]. 地球科学—中国地质大学学报, 38(5): 1073-1080.
- 刘广山, 李冬梅, 易勇, 刘素美, 白洁, 张经. 2008. 胶州湾沉积物的放射性核素含量分布与沉积速率[J]. 地球学报, 29(6): 769-777.
- 谢永臻, 黄奕普, 施文远, 邱雨生. 1994. 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, 33: 86-90.
- 杨玉玲, 吴永成. 1999. 90年代胶州湾海域的温、盐结构[J]. 黄渤海海洋学报, 17(3): 31-36.
- 袁晓婕, 郭占荣, 刘洁, 马志勇, 王博. 2014. 咸水环境下沉积物中镭的解吸特点[J]. 地球学报, 35(5): 582-588.
- 邹大鹏, 吴百, 卢博. 2007. 海底沉积物孔隙度计算方法与声速反演的误差分析研究[J]. 热带海洋学报, 26(4): 32-36.

References:

- BASU A R, JACOBSEN S B, POREDA R J, DOWLING C B, AGGARWAL P K. 2001. Large groundwater strontium flux to the oceans from the Bengal basin and the marine strontium isotope record[J]. Science, 293: 1470-73.
- BECK A J, RAPAGLIA J P, COCHRAN J K. 2007. Radium mass-balance in Jamaica Bay, NY: Evidence for a substantial flux of submarine groundwater[J]. Marine Chemistry, 106:

419-441.

- BLANCO A C, WATANABE A, NADAOKA K, MOTOOOKA S, HERRERA E C, YAMAMOTO T. 2011. Estimation of near shore groundwater discharge and its potential effects on a fringing coral reef[J]. Marine Pollution Bulletin, 62: 770-785.
- BONE S E, CHARETTE M A, LAMBORG C H, GONNEEA M E. 2007. Has submarine groundwater discharge been overlooked as a source of mercury to coastal waters?[J]. Environmental Science & Technology, 41: 3090-3095.
- BURNETT W C, AGGARWAL P K, AURELI A, BOKUNIEWICZ H, CABLE J E, CHARETTE M A, KONTAR E, KRUPA S, KULKAMI K M, LOVELESS A, MOORE W S, OBERDORFER J A, OLIVEIRA J, OZYURT N, POVINEC P, RAJAR R, RAMESSUR R T, SCHOLTEN J, STIEGLITZ T, TANIGUCHI M, TURNER J V. 2006. Quantifying submarine groundwater discharge in the coastal zone via multiple methods[J]. Science of the Total Environment, 367: 498-543.
- BURNETT W C, BOKUNIEWICZ H, HUETTE M, MOORE W S, TANIGUCHI M. 2003a. Groundwater and pore water inputs to the coastal zone[J]. Biogeochemistry, 66: 3-33.
- BURNETT W C, DULAIIOVA H. 2003b. Estimating the dynamics of groundwater input into the coastal zone via continuous radon-222 measurements[J]. Journal of Environmental Radioactivity, 69: 21-35.
- CABLE J E, BURNETT W C, CHANTON J P, WEATHERLY G L. 1996. Estimating groundwater discharge into the northeastern Gulf of Mexico using radon-222[J]. Earth and Planetary Science Letters, 144: 591-604.
- CORBETT D R, BURNETT W C, CABLE P H, CLARK S B. 1998. A multiple approach to the determination of radon fluxes from sediments[J]. Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, 236(1-2): 247-252.
- DZHAMALOV R G, SAFRONOVA T I. 2002. On estimating chemical discharge into the world ocean with groundwater[J]. Water Resources, 29(6): 626-631.
- GARRISON G H, GLENN C R, MCMURTY G M. 2003. Measurement of submarine groundwater discharge in Kahana Bay, O'ahu, Hawaii[J]. Limnol. Oceanogr., 48(2): 920-928.
- GUO Zhan-rong, LI Kai-pei, YUAN Xiao-jie, ZHANG Bin, MA Zhi-yong, 2012. Assessment of submarine groundwater discharge into the Wuyuan bay via continuous Radon-222 measurements[J]. Advances in Water Science, 23(2): 263-270(in Chinese with English abstract).
- GUO Zhan-rong, MA Zhi-yong, ZHANG Bin, YUAN Xiao-jie, LIU Hua-tai, LIU Jie. 2013. Tracing submarine groundwater discharge and associated nutrient fluxes into Jiaozhou Bay by continuous ^{222}Rn measurements[J]. Earth Science - Journal of China University of Geosciences, 38(5): 1073-1080(in Chinese with English abstract).
- HWANG D W, KIM G, LEE W C, OH H T. 2010. The role of submarine groundwater discharge (SGD) in nutrient budgets of Gamak Bay, a shellfish farming bay, in Korea[J]. Journal of

- Sea Research, 64: 224-230.
- KNEE K L, PAYTAN A. 2011. Submarine Groundwater Discharge: A Source of Nutrients, Metals, and Pollutants to the Coastal Ocean[J]. *Estuarine and Coastal Science*, 4: 205-233.
- LAROCHE J, NUZZI R, WATERS R, WYMAN K, FALKOWSKI P, WALLACE D. 1997. Brown tide blooms in Long Island's coastal waters linked to interannual variability in groundwater flow[J]. *Global Change Biology*, 3: 397-41.
- LEE Y W, KIM G. 2007. Linking groundwater borne nutrients and dinoflagellate red tide outbreaks in the southern sea of Korea using a Ra tracer[J]. *Estuarine, Coastal and Shelf Science*, 71: 309-317.
- LEE Y W, KIM G, LIM W A, HWANG D W. 2010. A relationship between submarine groundwater-borne nutrients traced by Ra isotopes and the intensity of dinoflagellate red-tides occurring in the southern sea of Korea[J]. *Limnology and Oceanography*, 55: 1-10.
- LIU Guang-shan, LI Dong-mei, YI Yong, LIU Su-mei, BAI Lei, ZHANG Jing. 2008. Radionuclide distribution in sediments and sedimentary rates in the Jiaozhou bay[J]. *Acta Geoscientica Sinica*, 29(6): 769-777(in Chinese with English abstract).
- LIU Zhe, WEI Hao, LIU Guang-shan, ZHANG Jing. 2004. Simulation of water exchange in Jiaozhou Bay by average residence time approach[J]. *Estuarine, Coastal and Shelf Science*, 61(1): 25-35.
- MARTENS C S, KIPPHUT G W, KLUMP J V. 1980. Sediment-water chemical exchange in the coastal zone traced by in situ radon-222 flux measurements[J]. *Science*, 208(4441): 285-288.
- MACINTYRE S, WANNINKHOF R, CHANTON J P. 1995. Trace gas exchange across the air-sea interface in freshwater and coastal marine environments[M]//MATSON P A, HARRIS R C. *Biogenic Trace Gases: Measuring Emissions from Soil and Water*. Blackwell Science Ltd.: 52-97.
- MOORE W S. 2010. The Effect of Submarine Groundwater Discharge on the Ocean[J]. *The Annual Review of Marine Science*, 2: 59-88.
- 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[J]. *Journal of Geophysical Research, Oceans*, 111(C9).
- SU N, BURNETT W C, MACINTYRE H L, LIEFER J D, PETERSON R N, VISO R. 2014. Natural radon and radium isotopes for assessing groundwater discharge into Little Lagoon, AL: Implications for harmful algal blooms[J]. *Estuaries and Coasts*, 37: 893-910.
- PETERSON R N, BURNETT W C, TANIGUCHI M, CHEN J, SANTOS I R, ISHITOBI T. 2008. Radon and radium isotope assessment of submarine groundwater discharge in the Yellow River delta, China[J]. *Journal of Geophysical Research: Oceans*, 113: C09021.
- SHAW T J, MOORE W S, KLOEPFER J, SOCHASKI M A. 1998. The Flux of Barium to the Coastal Waters of the Southeastern USA: The Importance of Submarine Groundwater Discharge[J]. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 62: 3047-3054.
- TSE K C, JIAO J J. 2008. Estimation of submarine groundwater discharge in Plover Cove, Tolo Harbour, Hong Kong by ^{222}Rn [J]. *Marine Chemistry*, 111(3-4): 160-170.
- WINDOM H L, MOORE W S, NIENCHESKI L F H, JAHNKE R A. 2006. Submarine groundwater discharge: A large, previously unrecognized source of dissolved iron to the South Atlantic Ocean[J]. *Marine Chemistry*, 102: 252-266.
- XIE Yong-zhen, HUANG Yi-pu, SHI Wen-yuan, QIU Yu-sheng. 1994. Simultaneous concentration and determination of ^{226}Ra , ^{228}Ra in natural waters[J]. *Journal of Xiamen University: Natural Science*, 33: 86-90(in Chinese with English abstract).
- YANG Yu-ling, WU Yong-cheng. 1999. Temperature and salinity structures of Jiaozhou bay waters during 1991-1995[J]. *Journal of Oceanography of Huanghai and Bohai Seas*, 17(3): 31-36(in Chinese with English abstract).
- YUAN Xiao-jie, GUO Zhan-rong, LIU Jie, MA Zhi-yong, WANG Bo. 2014. Characteristics of Radium Desorption from Sediments in the Salt Water Environment[J]. *Acta Geoscientica Sinica*, 35(5): 582-588(in Chinese with English abstract).
- ZOU Da-peng, WU Bai-hai, LU Bo. 2007. A research on error analysis of seabed sediment porosity by calculation method and sonic speed retrieval method[J]. *Journal of Tropical Oceanography*, 26(4):32-36(in Chinese with English abstract).