

【调查与研究】

黄河下游地下水中镭氡同位素的分布及影响因素研究

张晓洁^{1,2,3}, 徐晓涵⁴, 相湛昌⁵, 杨迪松^{1,2,3}, 张晓影⁶, 许博超^{1,2,3}

(1. 中国海洋大学海洋化学理论与工程教育部重点实验室, 山东 青岛 266100; 2. 海洋国家实验室海洋生态与环境科学功能实验室, 山东 青岛 266071; 3. 中国海洋大学 化学化工学院, 山东 青岛 266100; 4. 青岛市第二中学, 山东 青岛 266061; 5. 日照出入境检验检疫局, 山东 日照 276826; 6. 暨南大学地下水与地球科学研究院, 广东 广州 510632)

摘要:为研究黄河下游地下水中镭氡同位素的含量、分布及其影响因素,于 2015 年 5 月至 2016 年 2 月,按季度对黄河下游利津水文站至黄河口区间 100 km 河道内的地下水进行了 5 次调查,得到结论如下:①黄河下游地下水中 3 种镭同位素(²²³Ra、²²⁴Ra 和 ²²⁶Ra)活度变化范围为 0.4~5.9 dpm/100L, 23.5~358.1 dpm/100L 和 11.2~49.4 dpm/100L; ²²²Rn 活度变化范围为 8.2~700.5 dpm/L,除个别站位(如 DP-#)地下水中 ²²²Rn 浓度较高以外(608.8±105.0 dpm/L),其他站点 ²²²Rn 浓度水平基本上保持在 8~200 dpm/L 之间。②远离河口的采样站位(LJ-#、YL-#和 YW-#)地下水中镭同位素浓度的季节性特征不明显,而靠近河口的采样点(DP-#和 KY-#)的镭同位素浓度季节性差别显著。随着向河口方向的延伸,地下水中镭同位素浓度呈现出逐渐增加的趋势,盐度是影响镭同位素活度的关键因素。③各采样点水体中 ²²²Rn 浓度变化均呈现出夏季略低于冬季的分布特征,水体停留时间和黄河径流量变化是影响 ²²²Rn 活度变化的主要原因。

关键词:黄河;地下水;镭同位素;氡同位素

中图分类号:X13 **文献标识码:**A **文章编号:**1007-6336(2018)01-0001-07

Distribution characteristics and influence factors of radium and radon isotopes in the lower reaches of the Yellow River

ZHANG Xiao-jie^{1,2,3}, XU Xiao-han⁴, XIANG Zhan-chang⁵, YANG Di-song^{1,2,3},
ZHANG Xiao-ying⁶, XU Bo-chao^{1,2,3}

(1. Key Laboratory of Marine Chemistry Theory and Technology Ocean University of China, Ministry of Education, Qingdao 266100, China; 2. Laboratory for Marine Ecology and Environmental Science, Qingdao National Laboratory for Marine Science and Technology, Qingdao 266071, China; 3. College of Chemistry and Chemical Engineering, Ocean University of China, Qingdao 266100, China; 4. Qingdao No. 2 Middle school of Shandong province, Qingdao 266061, China; 5. Rizhao Entry-Exit Inspection And Quarantine Bureau, Rizhao 276826, China; 6. Institute of Groundwater and Earth Science, Jinan University, Guangzhou 510632, China)

Abstract: In order to study the concentrations, distributions and influence factors of radium and radon isotopes in underground water in the lower reaches of the Yellow River, we carried out five surveys along the lower reaches of the river channel from Lijin station to the Yellow River estuary in different seasons from May, 2015 to February, 2016. The results indicate that: ① Concentrations of the three radium isotopes (²²³Ra, ²²⁴Ra and ²²⁶Ra) were 0.4~5.9 dpm/100L, 23.5~358.1 dpm/100L and 11.2~49.4 dpm/100L in underground water in lower reaches of Yellow River;

收稿日期:2017-05-22, 修订日期:2017-06-18

基金项目: 国家自然科学基金(41576075, 41620104001); 鳌山科技创新计划项目(2016ASKJ02-4); 中国博士后科学基金(2015M582479)

作者简介: 张晓洁(1989-), 女, 河南新乡人, 硕士研究生, 主要从事同位素海洋学研究, E-mail: ouczxj@163.com

通讯作者: 许博超, 男, 山东潍坊人, 副教授, 主要从事同位素海洋学研究, E-mail: xubc@ouc.edu.cn

The ^{222}Rn contributions was 8.2 ~ 700.5 dpm/L, in addition to individual site (such as DP-# site), the ^{222}Rn concentration was higher (608.8 ± 105.0 dpm/L), the ^{222}Rn concentrations ranged from 8 to 200 dpm/L in other sites. ② Far away from the Yellow River Estuary, radium isotopes did not have significant variation among seasons (LJ-#, YL-# and YW-#). In area close to the Yellow River Estuary (DP-# and KY-#), radium isotopes changed a lot among seasons. Along the direction to the Yellow River mouth, radium isotopes concentrations increased, and salinity was found to be the main controlling factor. ③ ^{222}Rn concentration was higher in winter than summer, the groundwater residence time and river discharge amount were the main influence factors.

Key words: Yellow River; underground water; radium isotope; radon isotope

自然界中存在 4 种天然镭同位素, 分别是 ^{223}Ra 、 ^{224}Ra 、 ^{226}Ra 和 ^{228}Ra , 其半衰期分别为 11.4 d、3.66 d、1600 a 和 5.75 a。近年来, 镭同位素作为示踪工具在评价近海海底地下水排放过程、水体的输运混合过程等方面的研究中日益受到海洋学家的青睐^[1-5]。氡由其母体镭衰变产生, 是一种重要的惰性气体。自然界中存在着 3 种氡的同位素: $^{219}\text{Rn}(t_{1/2}=3.96\text{ s})$ 、 $^{220}\text{Rn}(t_{1/2}=55.6\text{ s})$ 和 $^{222}\text{Rn}(t_{1/2}=3.83\text{ d})$, 分别是由 ^{223}Ra 、 ^{224}Ra 和 ^{226}Ra 衰变产生。其中 ^{222}Rn 应用最为广泛, 通常用以示踪 1 ~ 20 d 时间尺度上的近岸地下水排放、水岩交换、海气交换等海洋学过程^[6-7]。氡在水体中的迁移主要受到沉积环境中镭含量、沉积物的射气性能、温度和水动力条件等因素的影响^[8-9]。地下水中的 ^{222}Rn 浓度通常较高, 一般高出地表水 2 个数量级以上^[10-12]。

黄河作为我国第二长河, 世界第五长河, 在世界大河研究中占据重要地位。然而, 目前针对黄河流域镭、氡同位素的研究主要集中在滨海海域, 用来量化河口水体停留时间及海底地下水排放^[4-5, 13-14], 系统地针对黄河流域地下水中镭、氡同位素的研究目前尚鲜有报道。为深入认识黄河三角洲地下水端元中镭氡同位素的活度水平、分布特征及影响因素, 进而更好地应用其作为示踪工具研究各种海洋学过程, 本研究于 2015 年 5 月至 2016 年 2 月期间, 对黄河下游利津水文站至黄河口区间内的地下水进行了季度调查, 系统分析黄河下游地下水中镭氡同位素的活度水平、时空分布特征以及影响因素。

1 材料与方法

本研究于黄河下游开展地下水镭、氡同位素野外调查。2015 年 5 月至 2016 年 2 月期间共进行了 5 次地下水的采样, 分别对应一年中的春

(2015-05)、夏(2015-06)、秋(2015-11)、冬(2016-02)4 个季节, 并在调水调沙期间(2015-07)增加一次对比调查。采样站点均位于从利津水文站至黄河口区间内(100 km), 主要为分布在河道两岸 10 km 内的民用井, 包括 LJ-#、YL-#、YW-#、DP-#、KY-#等 5 个采样点(如图 1 所示)。其中 2015 年 5 月首次调查的采样站点较少, 仅有 YL-#和 DP-#。地下水样品主要用于镭、氡、盐度、温度、pH 等参数的测定。

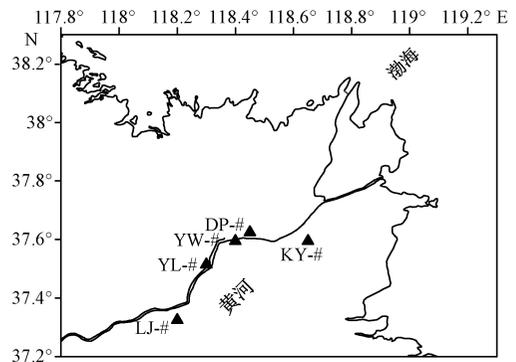


图 1 2015 ~ 2016 年黄河下游地下水样品采样站点
Fig. 1 Underground water sampling map in the lower reaches of Yellow River from 2015 to 2016

(1) 镭同位素: 采集水样体积为 20 L, 以不大于 2 L/min 的流速通过适量锰纤维(约 20 g), 定量富集水体中的镭同位素。富集结束之后, 用无镭水清洗锰纤维上附着的颗粒物及盐分, 并将含水率调至 50%, 用镭同步延时计数器(RaDeCC)测定 ^{223}Ra 、 ^{224}Ra 和 ^{226}Ra 的活度, 测定误差小于 $\pm 10\%$ 。具体测定方法及注意事项详见文献^[15-16]。

(2) 氡同位素: 利用 RAD7 测氡仪中的“RAD-H₂O”配件测定地下水中的氡含量, 测定模式设置为“Wat-250”。采集水样 250 mL, 采样过程中要避免气泡产生, 以防止水体中 ^{222}Rn 的逸散损失。RAD7 测氡仪测定的是水气平衡之后气相中的

^{222}Rn 活度,需经温盐校正之后方能转化成水体中溶解的 ^{222}Rn 活度^[17]。采样及测定等注意事项详见文献[17-18]。氡同位素浓度的不确定度由仪器统计计数产生的偏差($\pm 1\sigma$)确定。

(3)其他水文参数(温度、盐度、pH):采用哈希(HACH)公司生产的多参数分析仪现场测定水体的温度和盐度。由上海梅特勒-托利多仪器(METTLER TOLEDO)仪器公司生产的ORP复合电极测定水体的pH。

2 结果与讨论

2.1 测试结果

2.1.1 黄河下游地下水特征

表1列举出了黄河下游地下水中各常规参数的含量,由表可知,2015至2016年不同季节间地下水采样点中3种常规参数(T 、 S 、 pH)的变化范围分别为 $14.40 \sim 26.50^\circ\text{C}$ 、 $0.48 \sim 3.66$ 和 $7.02 \sim 8.50$,平均值为 $17.16 \pm 3.27^\circ\text{C}$ 、 1.33 ± 0.91 、 7.80 ± 0.38 ($n=25$)。2015至2016年黄河下游地下水水体盐度分布如图2所示,由图可知,随着向河口方向的延伸,黄河下游地下水的盐度逐渐升高,且越接近河口区,地下水盐度的季节性差异越明显。就LJ-#、YL-#和YW-#3个采样点而言,水体盐度都较低,全年均基本保持在 $0 \sim 1$ 之间(黄河径流水体盐度为 $0.4 \sim 0.5$),且季节性变化不明显。DP-#和KY-#两个采样点盐度较高,尤其是KY-#,不同季节间的盐度差别较大。水体温度呈现出春、夏季节略高于秋冬季节的特点,但是季节性差异没有地表水明显。地下水的pH在不同季节变化很小,基本保持恒定状态。

表1 2015~2016年黄河下游地下水中各常规参数的含量

Tab.1 Underground water normal parameters concentrations in the lower reaches of Yellow River from 2015 to 2016

站位	S	pH	$T/^\circ\text{C}$
LJ-#	0.48~0.59	7.44~7.87	14.50~17.60
YL-#	0.63~0.72	7.53~7.83	14.70~26.52
YW-#	0.97~1.16	8.06~8.50	14.90~15.80
DP-#	1.21~1.83	7.02~7.58	14.40~20.54
KY-#	2.22~3.66	6.95~7.52	13.70~17.40

2.1.2 地下水中镭同位素的含量及分布特征

图3表示2015至2016年黄河下游地下水中3种镭同位素(^{223}Ra 、 ^{224}Ra 和 ^{226}Ra)含量变化,由

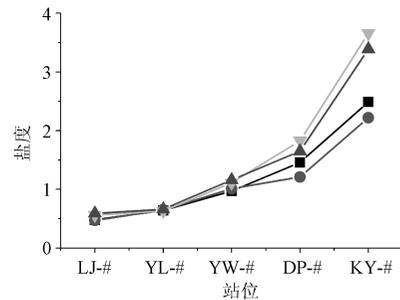


图2 2015~2016年黄河下游地下水盐度分布

Fig.2 Distributions of salinity in underground water in lower reaches of the Yellow River from 2015 to 2016

图可知,3种镭同位素含量变化范围为 $0.4 \sim 5.9$ dpm/100L、 $23.5 \sim 358.1$ dpm/100L和 $11.2 \sim 49.4$ dpm/100L,平均值分别为 1.9 ± 1.6 dpm/100L、 100.3 ± 88.8 dpm/100L和 22.4 ± 10.5 ($n=25$)。黄河下游河水中3种镭同位素含量的变化范围为 $0.5 \sim 2.5$ dpm/100L、 $51.8 \sim 80.8$ dpm/100L和 $17.1 \sim 36.9$ dpm/100L,平均值分别为 1.5 ± 0.6 dpm/100L、 63.4 ± 8.9 dpm/100L和 27.6 ± 5.7 dpm/100L($n=20$)(未发表数据)。与黄河下游河水中镭同位素浓度相比,地下水中的镭同位素浓度比河水高约1~4倍,并且不同站位之间镭同位素浓度差异显著。如图3可知,从空间尺度上看,随着向河口方向的延伸,地下水中3种镭同位素活度均呈现出逐渐增加的趋势。从不同季节尺度上来看,远离河口的站位地下水中3种镭同位素活度的季节性波动并不明显,而靠近河口区的地下水(KY-#采样点)中的镭同位素活度具有明显的季节性差异,表现出冬季地下水中镭同位素浓度高于夏季的现象。

Kim等在研究Yeongil Bay沿岸地下水中镭同位素活度时发现,当盐度较小时($S=5.9$), ^{224}Ra 和 ^{226}Ra 活度分别为 103.0 dpm/100 L和 32.0 dpm/100 L^[19]。本研究中,当地下水盐度为 3.7 时, ^{224}Ra 、 ^{226}Ra 活度分别为 358.1 dpm/100 L和 49.3 dpm/100 L,较Yeongil Bay沿岸地下水中 ^{224}Ra 活度高约4倍。刘花台等在研究闽江沿岸地下水中镭同位素活度时发现,当水体盐度为 18.5 时, ^{224}Ra 活度仅为 45.8 dpm/100 L,约是本研究中盐度为 3.7 时 ^{224}Ra 活度的10%^[20]。王树玲等研究发现,珠江沿岸地下水中镭同位素活度极高,约是黄河下游地下水中镭同位素活度的100

倍^[21]。通过对比不难发现,各地区地下水中的镭同位素活度差异较大,即使在盐度相似时,地下水中的镭同位素活度仍可能存在显著性差异。前人研究发现,地下水的水体盐度、pH、水体停留时间以及沉积物岩性的不同,是导致各地区地下水中

镭同位素活度差异显著的几种主要的影响因素^[22]。当盐度相似时,相比其他研究区域,黄河下游地下水中的²²⁴Ra、²²⁶Ra活度处于较高的活度水平。

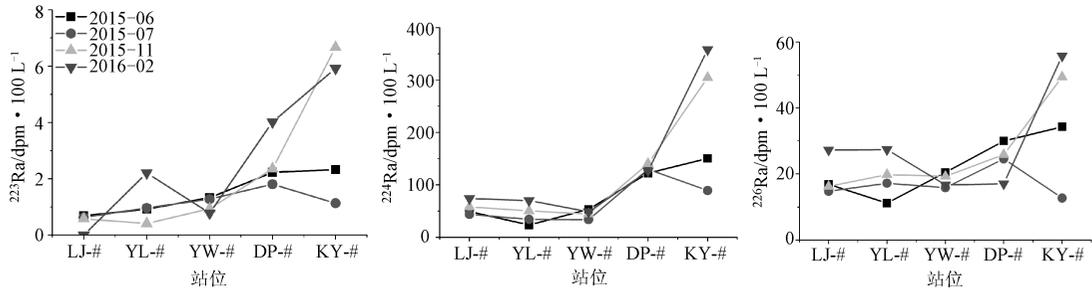


图3 2015~2016年黄河下游地下水中镭同位素活度分布

Fig. 3 Distributions of radium isotopes in underground water in the lower reaches of Yellow River from 2015 to 2016

2.1.3 地下水中²²²Rn的含量及分布特征

2015~2016年黄河下游地下水中²²²Rn的浓度分布如图4所示,由图可知,黄河下游地下水中²²²Rn活度的变化范围为8.2~700.5 dpm/L,平均值为 250.5 ± 210.1 dpm/L。黄河下游河水中²²²Rn活度变化范围为1.2~10.2 dpm/L,平均值为 3.9 ± 2.7 dpm/L ($n=20$) (未发表数据)。与黄河径流水体中的²²²Rn活度相比,黄河下游地下水比河水高了近2个数量级,并且各个采样点之间²²²Rn活度差异显著。出现这种差异的主要因素是由于地下水处于较为封闭的环境,²²²Rn作为一种气体在封闭的含水层中容易富集,而在不断流动的地表水中逸散损失较为严重。除此以外,地下水流动缓慢且空间分布广泛,水-岩交换作用更加充分,²²²Rn浓度也会更高^[12]。从不同站位来看,黄河下游地下水中²²²Rn活度基本保持在8~200 dpm/L之间;从不同季节尺度上看,各采样点水体中²²²Rn浓度变化趋势较为一致,均呈现出夏季略低于冬季的分布特征。

2.2 讨论

2.2.1 地下水中镭同位素分布的影响因素研究

2015~2016年间,黄河径流量均值在春、夏、秋、冬4个季节中分别为 $579 \text{ m}^3/\text{s}$ 、 $749 \text{ m}^3/\text{s}$ 、 $132 \text{ m}^3/\text{s}$ 和 $257 \text{ m}^3/\text{s}$,黄河径流量在夏季要明显高于冬季(如图5),即黄河流域地下水中的镭同位素活度在黄河高流量时活度降低、黄河低流量时活度升高。出现这种现象的原因可能是黄河径流中的镭同位素活度比周边地下水中的镭同位素

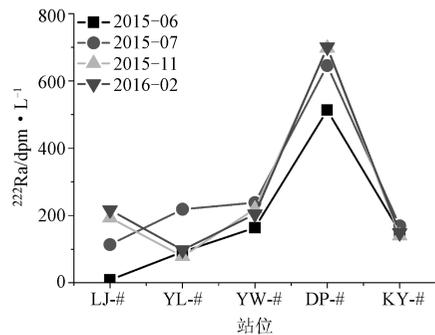


图4 2015~2016年黄河下游各地下水采样站点水体中²²²Rn的浓度分布

Fig. 4 ²²²Rn distribution in underground water in lower reaches of Yellow River from 2015 to 2016

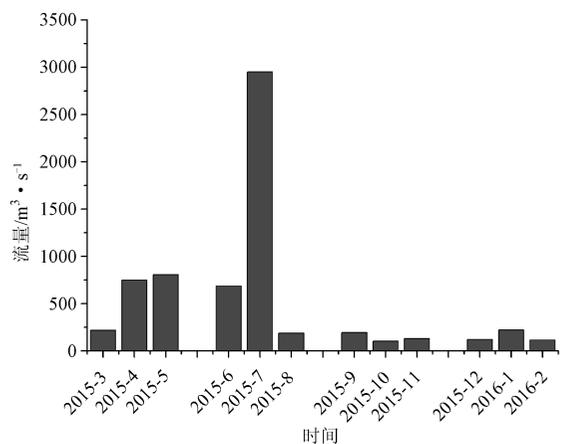


图5 2015年3月至2016年2月黄河下游利津水文站流量
Fig. 5 The water discharge of Lijin station from March, 2015 to February, 2016

活度低,当径流量增加时,黄河径流对周边地区地下水的补给程度增大,进而稀释了地下水中的镭同位素活度。并且,黄河径流补给程度的增加会降低地下水水体盐度,从而降低从沉积物上解吸下来的镭同位素活度,导致地下水中溶解态镭同位素活度减小,故而出现春、夏季节镭同位素活度低于秋、冬季节的现象。

分析不同采样点盐度与镭同位素活度发现(如图 6),除黄河调水调沙期间以外(2015-07),采样点地下水的盐度越高,该点的镭同位素活度也越高,呈现出明显的线性关系(图 6A、6C 和 6D)。2013 年,夏冬等在研究黄河三角洲地下水中镭同位素活度时发现,地下水盐度变化为 36.1

~41.4,3 种镭同位素 (^{223}Ra 、 ^{224}Ra 和 ^{226}Ra) 变化范围为 12 ~ 159 dpm/100 L、240 ~ 2380 dpm/100 L 和 21 ~ 180 dpm/100 L^[23],与本研究相比,黄河三角洲高盐度地下水中的镭同位素活度远大于黄河下游低盐度地下水中的镭同位素活度,即盐度越高,镭同位素活度越大。结合前人研究结果推测水体盐度的差异是导致河口区地下水中镭同位素活度值较高且季节性差异比较明显的关键因素。调水调沙期间(2015-07)各地下水采样点水体中镭同位素浓度与盐度的线性关系均消失(如 6B),推测可能是调水调沙期间水量是非调水调沙时期的十余倍,河水对地下水强烈的脉冲式补给打破了黄河下游地下水系统原有的平衡。

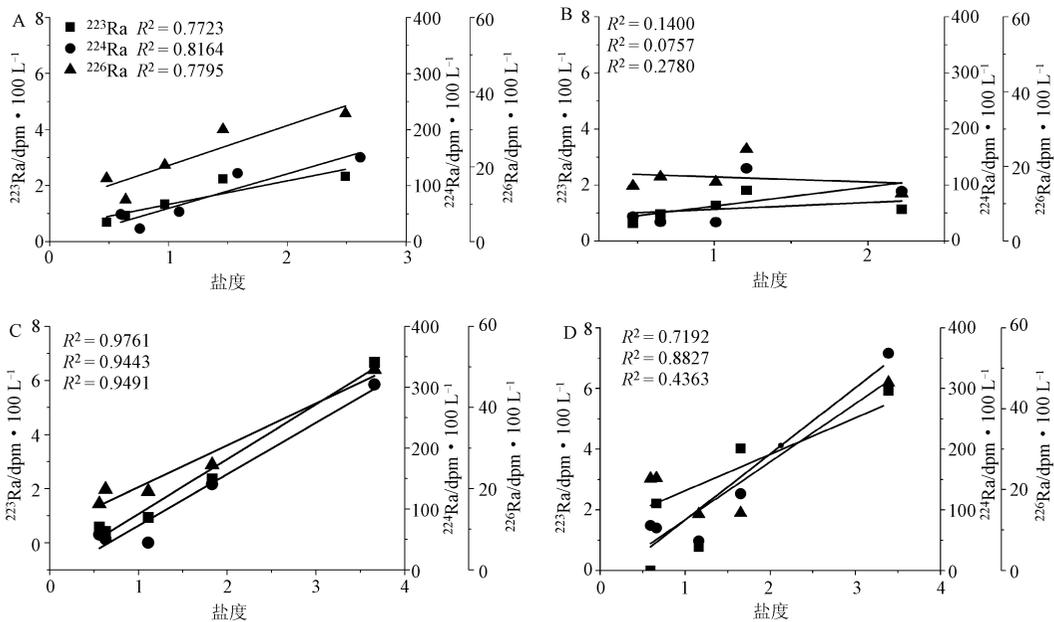


图 6 2015 ~ 2016 年不同采样点水体盐度与镭同位素浓度的关系

(A、B、C、D 图分别表示 2015 年 6 月、7 月、11 月和 2016 年 2 月)

Fig. 6 The relationship between salinity and radium isotopes concentrations in different sites from 2015 to 2016

(A, B, C and D stands for June, July, November in 2015 and February in 2016 respectively)

2.2.2 地下水中 ^{222}Rn 分布的影响因素研究

2015 ~ 2016 年黄河下游地下水中 ^{222}Rn 的浓度分布如图 4 所示。从不同季节尺度上看,非调水调沙期间,各采样点水体中 ^{222}Rn 浓度变化趋势较为一致,均呈现出夏季略低于冬季的分布特征。与镭同位素相似,出现这种现象的原因可能黄河径流中 ^{222}Rn 的活度比周边地下水中 ^{222}Rn 活度小两个数量级,当夏季黄河径流量增加时,黄河径流对周边地区地下水的补给程度增大,进而稀释地下水,造成地下水中 ^{222}Rn 活度降低的现象。袁晓

捷等在研究胶州湾周边地下水中的 ^{222}Rn 含量分布时,同样发现丰水期地下水中的 ^{222}Rn 活度低于枯水期的现象^[24]。

对比两种核素发现,氡同位素与镭同位素在不同季节变化并不一致,主要原因是镭同位素活度受盐度影响较大,因此不同季节盐度的变化会导致镭的活度有显著的差别。但是氡同位素的含量和分布受盐度的影响较小,夏冬等在研究黄河三角洲地下水中 ^{222}Rn 活度时发现,当盐度为 36.1 ~ 41.4 时, ^{222}Rn 活度变化范围为 5.3 ~ 326

dpm/L^[23],与本研究中黄河下游低盐度条件下²²²Rn活度变化范围基本一致。因此说明黄河下游地下水²²²Rn活度并不受水体盐度的控制。陈迪云等研究发现,地下水中氡的活度除了受到沉积环境中铀系和钍系核素的浓度影响以外,还受到水动力学因素的控制,水动力学条件不仅决定了水-岩相互作用进行的程度,同时还控制着地下水的运移速率,决定了地下水中²²²Rn运移时间的长短,这些因素都会对地下水中²²²Rn的浓度有重要影响^[8],因此,控制机制的不同是导致镭、氡季节性变化不一致的主要因素。在黄河下游流域,夏季地下水的使用频率远高于冬季,因此导致地下水水体更新加快,停留时间减小,故黄河下游地下水停留时间的差异也是导致夏季地下水中²²²Rn活度低于冬季的重要因素^[8]。

与非调水调沙时期(2015-06)相比,调水调沙期间(2015-07)各站位²²²Rn浓度均有增加。调水调沙期间,黄河径流量急剧增加,该过程中大流量、低氡活度的河水会更加充分地补给地下水。然而河水的稀释作用却并未降低地下水中²²²Rn的活度,反而出现²²²Rn活度在该阶段增加的现象。推测可能由于调水调沙的进行,打破了黄河-地下水原有补给系统的平衡,改变了地下水的补给路径。由于镭同位素活度受盐度的影响较大,故在调水调沙大流量淡水的稀释作用下,总体上降低了地下水中的镭同位素活度。与镭同位素不同,²²²Rn活度受盐度影响不大,改变地下水补给路径,会致使更多“新的”沉积物间隙水中的²²²Rn释放进入地下水。因此,调水调沙期间镭同位素活度有所降低,而²²²Rn活度有所增加。

前人研究发现,地质环境背景对地下水中²²²Rn活度具有明显的控制作用^[12,25]。如图4,从空间上尺度上看,除DP-#站位地下水水体中²²²Rn浓度较高以外,其他站点中²²²Rn浓度水平差别不大,基本上保持在8~200 dpm/L之间。结合前人研究结果,推测黄河利津水文站至黄河口区间内河道沉积环境较为相似。通过对现场采样过程的分析及对附近居民的咨询,了解到DP-#站位的地下水基本上处于停用状态,水体循环更新较少、停留时间较长,进而推测这可能是导致DP-#站位地下水水体中²²²Rn浓度较高的原因。

3 结论

(1)黄河下游地下水中3种镭同位素(²²³Ra、

²²⁴Ra和²²⁶Ra)活度变化范围为0.4~5.9 dpm/100L、23.5~358.1 dpm/100L和11.2~49.4 dpm/100L,平均值分别为 1.9 ± 1.6 dpm/100L、 100.3 ± 88.8 dpm/100L和 22.4 ± 10.5 ($n=25$)。²²²Rn含量变化范围为8.2~700.5 dpm/L,平均值为 250.5 ± 210.1 dpm/L ($n=25$),除个别站位(DP-#)以外,²²²Rn浓度基本上保持在8~200 dpm/L。

(2)从不同季节尺度上来看,远离河口的站位(LJ-#、YL-#和YW-#)地下水中镭同位素在不同季节间活度变化不明显,靠近河口的站位(DP-#和KY-#)镭同位素浓度却表现出明显的季节性差异;从空间尺度上看,随着向河口方向的延伸,地下水中镭同位素活度呈现出逐渐增加的趋势,盐度是导致该现象的主要原因。各采样点水体中²²²Rn浓度变化趋势较为一致,均呈现出夏季略低于冬季的分布特征,调水调沙期间的²²²Rn浓度有明显升高,水体停留时间是影响该现象的主要因素。

致谢:感谢国家自然科学基金(41576075,41620104001),鳌山科技创新计划项目(2016ASKJ02-4),中国博士后科学基金(2015M582479)对本研究给予的支持,谨致谢忱。

参考文献:

- [1] BOLLINGER M S, MOORE W S. Evaluation of salt marsh hydrology using radium as a tracer [J]. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 1993, 57(10): 2203-2212.
- [2] TORGERSEN T, TUREKIAN KK, TUREKIAN V C, et al. ²²⁴Ra distribution in surface and deep water of Long Island Sound: sources and horizontal transport rates [J]. *Continental Shelf Research*, 1996, 16(12): 1545-1559.
- [3] CHARETTE M A, GONNEEA M E, MORRIS P J, et al. Radium isotopes as tracers of iron sources fueling a Southern Ocean phytoplankton bloom [J]. *Deep Sea Research Part II: Topical Studies in Oceanography*, 2007, 54(18/19/20): 1989-1998.
- [4] XU B C, BURNETT W, DIMOVA N, et al. Hydrodynamics in the Yellow River Estuary via radium isotopes: ecological perspectives [J]. *Continental Shelf Research*, 2013, 66: 19-28.
- [5] XIA D, YU Z G, XU B C, et al. Variations of hydrodynamics and submarine groundwater discharge in the yellow river estuary under the influence of the water-sediment regulation scheme [J]. *Estuaries and Coasts*, 2016, 39(2): 333-343.
- [6] TORGERSEN T, DEANGELO E, O' DONNELL J. Calculations of horizontal mixing rates using ²²²Rn and the controls on hypoxia in western Long Island Sound, 1991 [J]. *Estuaries*, 1997, 20(2): 328-345.

- [7] 李开培,郭占荣,袁晓婕,等. 氡和镭同位素在沿岸海底地下水研究中的应用[J]. 勘察科学技术, 2011(5):30-36.
- [8] 陈迪云,王湘云,关晓丽,等. 珠海市地下水中放射性元素及对室内氡浓度的影响[J]. 环境化学, 2000,19(4):377-381.
- [9] 李学礼,孙占学,刘金辉. 水文地球化学[M]. 3版. 北京:原子能出版社, 2010.
- [10] BURNETT W C, AGGARWAL P K, AURELI A, et al. Quantifying submarine groundwater discharge in the coastal zone via multiple methods[J]. *Science of the Total Environment*, 2006, 367(2/3):498-543.
- [11] 郭占荣,李开培,袁晓婕,等. 用氡-222 评价五缘湾的地下水输入[J]. 水科学进展, 2012,23(2):263-270.
- [12] 潘峰,郭占荣,马志勇,等. 胶州湾周边地下水和河水中²²²Rn的分布特征及影响因素[J]. 核化学与放射化学, 2015,37(6):490-496.
- [13] PETERSON R N, BURNETT W C, MAKOTO T, et al. Radon and radium isotope assessment of submarine groundwater discharge in the Yellow River Delta, China[J]. *Journal of Geophysical Research:Oceans*, 2008,113(C9):C09021.
- [14] XU B C, XIA D, BURNETT W C, et al. Natural ²²²Rn and ²²⁰Rn indicate the impact of the Water-Sediment Regulation Scheme (WSRS) on submarine groundwater discharge in the Yellow River estuary, China [J]. *Applied Geochemistry*, 2014, 51:79-85.
- [15] MOORE W S, ARNOLD R. Measurement of ²²³Ra and ²²⁴Ra in coastal waters using a delayed coincidence counter[J]. *Journal of Geophysical Research:Oceans*, 1996,101(C1):1321-1329.
- [16] WASKA H, KIM S, KIM G, et al. An efficient and simple method for measuring ²²⁶Ra using the scintillation cell in a delayed coincidence counting system (RaDeCC) [J]. *Journal of Environmental Radioactivity*, 2008,99(12):1859-1862.
- [17] SCHUBERT M, PASCHKE A, LIEBERMAN E, et al. Air-water partitioning of ²²²Rn and its dependence on water temperature and salinity[J]. *Environmental Science & Technology*, 2012,46(7):3905-3911.
- [18] LAMBERT M J, BURNETT W C. Submarine groundwater discharge estimates at a Florida coastal site based on continuous radon measurements [J]. *Biogeochemistry*, 2003, 66(1/2):55-73.
- [19] KIM G, RYU J W, HWANG D W. Radium tracing of submarine groundwater discharge (SGD) and associated nutrient fluxes in a highly-permeable bed coastal zone, Korea[J]. *Marine Chemistry*, 2008,109(3/4):307-317.
- [20] 刘花台,郭占荣,袁晓婕,等. 用镭同位素评价海水滞留时间及海底地下水排泄[J]. 地球科学-中国地质大学学报, 2013,38(3):599-606.
- [21] 王树玲. 珠江口海底地下水及其携带的营养盐和碳的通量研究[D]. 厦门:厦门大学, 2014.
- [22] BECK A J, COCHRAN M A. Controls on solid-solution partitioning of radium in saturated marine sands[J]. *Marine Chemistry*, 2013,156:38-48.
- [23] 夏冬. 天然镭氡同位素示踪调水调沙对黄河口水体运移及海底地下水排放的影响[D]. 青岛:中国海洋大学, 2015.
- [24] 袁晓婕,郭占荣,马志勇,等. 基于²²²Rn 质量平衡模型的胶州湾海底地下水排泄[J]. 地球学报, 2015,36(2):237-244.
- [25] ZHUO W H, IIDA T, YANG X T. Occurrence of ²²²Rn, ²²⁶Ra, ²²⁸Ra and U in groundwater in Fujian Province, China [J]. *Journal of Environmental Radioactivity*, 2001, 53(1):111-120.