

多核素示踪粤西广海湾水体和颗粒物输运过程

谷河泉, 吴梅桂*, 赵峰, 王中媛, 倪志鑫, 李冬梅, 赵力, 郑远来, 周鹏

(国家海洋局南海环境监测中心, 海南南沙珊瑚礁生态系统野外科学观测研究站,
自然资源部海洋环境探测技术与应用重点实验室, 广东广州 510300)

摘要: 利用放射性同位素在海洋环境中的迁移行为, 探索与其相对一致的海洋学过程, 已成为海洋学研究的一种重要技术手段。本文利用海洋放射性同位素示踪技术, 以溶解态镭同位素 ^{224}Ra 、 ^{223}Ra 、 ^{228}Ra 和颗粒态核素 ^7Be 、 ^{210}Pb 、 ^{234}Th 为示踪核素, 于2019年10月至2020年1月期间开展了粤西广海湾水体和颗粒物输运过程的调查研究, 并用修正 $^{224}\text{Ra}/^{228}\text{Ra}$ 模型计算了广海湾水体滞留时间。结果表明, 广海湾水体及其携带溶解态物质向外海迁移的时间尺度约为1 d。在定量评估广海湾颗粒态 ^7Be 和 ^{210}Pb 的各项来源与归宿的基础上, 构建了两核素箱式模型。结果表明: 大气沉降是广海湾 ^7Be 和 ^{210}Pb 的重要来源, 广海湾向湾外输送是 ^7Be 的最大归宿; 珠江来沙随粤西沿岸流以涨落潮形式进入广海湾, 构成广海湾 ^{210}Pb 的潜在重要来源。利用典型海湾 ^7Be 、 ^{210}Pb 和 ^{234}Th 颗粒物滞留时间模型, 分别估算了广海湾悬浮颗粒物滞留时间, 通过对比三核素估算结果, 本文认为以 ^{210}Pb 示踪的广海湾颗粒物滞留时间($\tau_{\text{p,Pb}}=12\sim45\text{ d}$)能更好地指示广海湾颗粒物及其携带颗粒活性污染物(如重金属、部分有机污染物)输运过程的时间尺度。

关键词: 镭同位素; ^7Be ; ^{210}Pb ; ^{234}Th ; 滞留时间; 粤西; 广海湾

中图分类号: TL942; P734

文献标志码: A

文章编号: 1000-6931(2024)10-2032-13

doi: 10.7538/yzk.2024.youxian.0184

Using Multiple Radionuclides to Trace Water and Particle Dynamics in Guanghai Bay, Western Guangdong

GU Hequan, WU Meigui*, ZHAO Feng, WANG Zhongyuan, NI Zhixin,

LI Dongmei, ZHAO Li, ZHENG Yuanlai, ZHOU Peng

(South China Sea Environment Monitoring Center, State Oceanic Administration, Nansha Islands Coral Reef Ecosystem National Observation and Research Station, Key Laboratory of Marine Environmental Survey Technology and Application, Ministry of Natural Resources, Guangzhou 510300, China)

Abstract: The migration and fate of pollutants discharged by human into marine environment are mainly controlled by the transport processes of seawater and particulate matters. By utilizing natural or artificial radioactive isotopes, which are widely present in the ocean, the timescales of seawater and particle dynamics can be quantitatively evaluated. During the period of October 2019 to January 2020,

收稿日期: 2024-03-18; 修回日期: 2024-06-28

基金项目: 广东省自然科学基金面上项目(2021A1515011386); 广州市基础与应用基础研究一般项目(202201011620); 自然资源部南海局科技发展基金(230201); 广东省应用海洋生物学重点实验室开放基金(LAMB20221007); 自然资源部海洋环境探测技术与应用重点实验室自主设立课题(MESTA-2021-D006); 广东省平台基地及科技基础条件建设项目(2021B1212050025); 中国海洋发展基金会项目(CODF-002-ZX-2021)

* 通信作者: 吴梅桂

the activities of dissolved radium isotopes (^{224}Ra , ^{223}Ra , and ^{228}Ra) in the water body and coastal groundwater in Guanghai Bay, western Guangdong Province, China were investigated in this study. Meanwhile, the activities of particulate nuclides (^7Be , ^{210}Pb , and ^{234}Th) of surface sediments and suspended sediments were also investigated in the same sampling period. Based on the collected data of radioactive isotopes, a comprehensive study on the timescales of transport processes of seawater and particulates in Guanghai Bay was carried out. The residence time of water in the bay was calculated by using the improved $^{224}\text{Ra}/^{228}\text{Ra}$ model, and the results show that the timescale for the migration and spread of water and its dissolved pollutants carrying to the outer of the bay is around 1 day. Additionally, two box models for the particulate ^7Be and ^{210}Pb were constructed, respectively, based on a quantitative assessment of all sources and sinks of both isotopes in the water body. The results reveal that the atmospheric deposition compared to the local river input is one of the most significant sources of ^7Be or ^{210}Pb in the study area and the net tidal export from the bay to the open sea constitutes the primary sink for the particulate ^7Be in the water body. For the particulate ^{210}Pb , the sediment burial is the major sink when the sedimentation rate is as low as that of islands located outside the bay (i.e., 0.78 cm/a). Whereas the input of suspended sediments from the Pearl River, which is carried by coastal currents of western Guangdong, becomes the most important source when the sedimentation rate increases to 3.0 cm/a of Pearl River estuary. The residence time of particulate matters in the bay was estimated by using the particulate ^7Be , ^{210}Pb and ^{234}Th residence time models for typical bays, respectively. The results show that the residence time of particles calculated by ^7Be and ^{234}Th was quite similar, approximately 2 days. In contrast, the particulate residence time estimated by ^{210}Pb was much longer, ranging from 12 to 45 days, with shorter particulate residence time corresponding to higher sedimentation rate. Comparing the estimates of residence times for particulate matters and considering the contribution of sediments from Pearl River, the study concludes that the particulate residence time calculated by ^{210}Pb provides a better indication of the timescale for the transport processes of particles and their associated pollutants in Guanghai Bay. The findings of this study are intended to provide a theoretical basis for scientifically evaluating the pollutant carrying capacity of Guanghai Bay. This comprehensive understanding of pollutant transport and fate will support more informed decision-making in environmental management and pollution control efforts, ensuring the protection and sustainability of the marine environment in Guanghai Bay.

Key words: radium isotopes; ^7Be ; ^{210}Pb ; ^{234}Th ; residence time; western Guangdong; Guanghai Bay

海洋放射性同位素示踪技术是核科学、化学和海洋科学等多学科交叉渗透的新兴调查与研究方法^[1]。其原理在于,利用海洋环境中广泛存在的放射性同位素,研究与其自身特征和迁移行为相对一致的海洋学过程,如水体交换、颗粒物输运、沉积埋藏、有机碳输送、海洋生产力等海洋学问题^[2-7]。

以天然放射性镭同位素为例, ^{224}Ra ($T_{1/2}=3.7\text{ d}$)、 ^{223}Ra ($T_{1/2}=11.4\text{ d}$)、 ^{228}Ra ($T_{1/2}=5.7\text{ a}$)和 ^{226}Ra ($T_{1/2}=1\ 600\text{ a}$)4种核素的物理、化学性质相同,半衰期不同,在海洋环境中呈溶解态特征,可以作为研究海洋不同时间尺度水团混合过程的良

好示踪核素,已在国内外海洋学研究中得到广泛应用^[3, 8-10]。放射性核素 ^7Be ($T_{1/2}=53.3\text{ d}$)、 ^{210}Pb ($T_{1/2}=22.3\text{ a}$)和 ^{234}Th ($T_{1/2}=24.1\text{ d}$)在海洋环境中均表现出易吸附于颗粒物的地球化学行为,可以用于示踪不同时间尺度的颗粒物海洋学过程,如颗粒物来源判断、再悬浮、沉积埋藏以及颗粒活性金属元素和化学污染物的生物地球化学循环过程等^[2, 6, 11-12]。

粤西广海湾地处广东省台山市,南临南海,属亚热带海洋性季风气候,水深仅2~5 m;潮汐属不规则半日潮,潮波主要由东南部湾口进入海湾,整个海湾潮时差别不大。自全新世以来,受粤西沿

岸流影响,广海湾海域接受大量来自珠江的泥沙,沿岸淤积旺盛,滩涂发育较快^[13]。广海湾地处人口稠密的珠江三角洲,日益加剧的人类活动对海域生态环境构成较大威胁,如近岸工农业排废、日常生活排污、香港惰性物料填埋等。陆源排放的溶解态污染物与广海湾潮水混合、扩散,其迁移扩散速率受控于广海湾水体交换能力。同时,由于悬浮颗粒物自身铁锰氧化物具有较大比表面积,能够大量吸附陆源颗粒活性污染物,如重金属、有机污染物 PAHs(多环芳烃)、PCBs(多氯联苯)等,悬浮颗粒物在广海湾的输运过程将极大影响其所吸附颗粒活性污染物的迁移行为。

为此,本研究拟通过调查放射性核素在广海湾水体、悬浮颗粒物和底层沉积物的分布特征,定量分析其来源与归宿,以多核素示踪广海湾水体

和颗粒物输运过程,以镭同位素示踪技术评价广海湾水体交换过程,以颗粒态核素 ^7Be 、 ^{210}Pb 和 ^{234}Th 示踪广海湾悬浮颗粒物的来源、沉降与输运过程。

1 调查区域与分析方法

1.1 调查区域

2019年10月29—31日期间,搭载当地渔船开展广海湾海域放射性核素调查,海水、悬浮颗粒物、底层及潮滩沉积物采样站位如图1所示,现场采集6个海水及悬浮颗粒物样品和23个底层和潮滩沉积物样品,同步获取温度、盐度、水深等水文参数。2020年1月10—12日期间,围绕广海湾东部沿岸,共采集5个沿岸地下水和潮滩孔隙水样品,其中4个为井水样品,1个为大同河口中潮滩孔隙水样品,如图1中红钉标识。

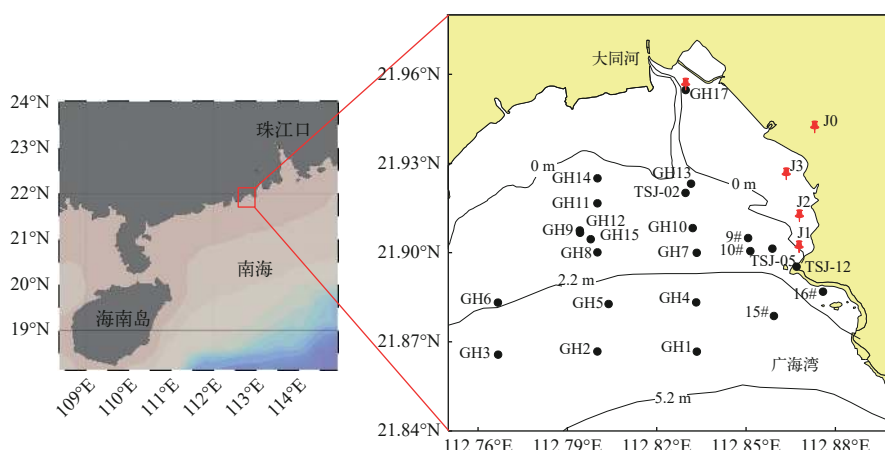


图1 广海湾放射性核素采样站位

Fig. 1 Radionuclide sampling stations in Guanghai Bay

现场以抽水泵抽取海水样品,采水体积为240 L。每个样品分5路同时经足量聚丙烯纤维棉(孔径为 $0.5\ \mu\text{m}$)截留悬浮颗粒物,每路均流洗15 g 锰纤维以富集镭同位素,随机选取任意一路水样用双柱法测量锰纤维吸附效率。海水流洗完毕后,取出聚丙烯纤维棉作为悬浮颗粒物样品,装入自封袋冷冻保存。现场以挖泥斗采集底层沉积物样品,以木铲取1~2 kg装入自封袋冷冻保存。地下水和孔隙水样品采水体积均为10 L,亦利用锰纤维富集镭同位素。

1.2 分析方法

返回岸上后,利用真空泵抽取锰纤维残余水分,用去离子水洗涤1~2次以去除盐分,控制锰

纤维湿度约为0.75(水/锰纤维质量比),以锰纤维为载体利用延迟符合计数器(radium delayed coincidence counter, RaDeCC)测量镭同位素 ^{224}Ra 、 ^{223}Ra 、 ^{228}Ra 和溶解态 ^{228}Th 活度,测量方法参照Garcia-Solsona等^[14]和Moore^[15]的研究。本实验室RaDeCC探测效率以标样 ^{232}Th - ^{228}Ra - ^{224}Ra 确定。以实测 ^{224}Ra 和溶解态 ^{228}Th 活度差值计算过剩 ^{224}Ra (即 ex^{224}Ra)活度,后文 ^{224}Ra 均指 ex^{224}Ra 。

解冻悬浮颗粒物样品,置马弗炉中完全灼烧后装入样品盒;解冻底层及潮滩沉积物样品,置烘箱中于 $55\ ^\circ\text{C}$ 烘干,研磨后装入样品盒。悬浮颗粒物和沉积物样品以高纯锗 γ 能谱仪(型号BE5030)测量颗粒态核素活度,测量时间为24 h。颗粒态核

素活度计算具体如下: ^7Be 活度以能量峰 477.59 keV (分支比为 10.42%) 确定; ^{234}Th 活度以能量峰 63.29 keV (4.5%) 和 92.8 keV (2.6%) 确定; 样品放置 1.5 a 后二次测量 ^{234}Th 以确定 ^{238}U 活度; ^{210}Pb 活度以能量峰 46.5 keV (4.05%) 确定; ^{226}Ra 活度以密封 20 d 后的 ^{214}Pb 能量峰 351.92 keV (37.6%) 和 ^{214}Bi 能量峰 609.31 keV (46.1%) 计算。

2 结果与讨论

2.1 镭同位素活度浓度

1) 水体

2019 年 10 月采样期间, 广海湾表层水体温度、盐度及镭同位素活度浓度列于表 1。由表 1 可见, 广海湾水体温度和盐度变化不大, 温度在 23.4~25.4 °C 之间, 平均值为 24.8 °C; 盐度在 21.1~24.8 之间, 平均值为 23.3。 ^{224}Ra 活度浓度为 13.1~23.7 mBq/L, 平均值为 (18.1±3.9) mBq/L; ^{223}Ra 活度浓度为 0.7~1.1 mBq/L, 平均值为 (1.0±0.2) mBq/L; ^{228}Ra 活度浓度为 13.9~23.8 mBq/L, 平均值为 (17.8±3.9) mBq/L。广海湾及其周边海域镭同位素水平列于表 2, 对比粤西、粤东、珠江口、大亚湾等附近海域的历史数据, 广海湾水体

镭同位素活度浓度处在较高水平。

广海湾海水体 ^{224}Ra 、 ^{223}Ra 和 ^{228}Ra 的分布趋势如图 2 所示。可见, 短半衰期 ^{224}Ra 和 ^{223}Ra 的分布趋势基本一致, 两核素均呈远岸低、近岸高的特征, 其中高值点出现在靠近西部养殖区的 GH15 站位, 低值点出现在潮流入湾口的 GH1 站位; 长半衰期 ^{228}Ra 的分布趋势略有不同, 高值点出现在大同河口处, 即 TSJ-02 站位, 低值点亦出现在潮流入湾口的 GH1 和 TSJ-05 站位。广海湾水体镭同位素主要来源为沿岸地下水, 其分布趋势受当地沿岸地下水排放、地表径流、潮流以及自身特性等多种因素影响。

2) 沿岸地下水

表 3 为广海湾沿岸地下水镭同位素活度浓度, 结合 Dai 等^[9] 在广海湾东西两侧的地下水数据, 可以总结出广海湾及其附近海域沿岸地下水 ^{224}Ra 活度浓度为 35.9~335 mBq/L, 平均值为 (121±94) mBq/L; ^{223}Ra 活度浓度为 0.6~12.8 mBq/L, 平均值为 (3.5±3.9) mBq/L; ^{228}Ra 活度浓度为 27.8~262 mBq/L, 平均值为 (98.8±76.7) mBq/L。对比可知, 广海湾沿岸地下水镭同位素活度浓度远高于水体。

表 1 广海湾水体镭同位素活度浓度
Table 1 Activity concentrations of radium isotopes in water of Guanghai Bay

样品名	温度/°C	盐度	镭同位素活度浓度/(mBq/L)		
			^{224}Ra	^{223}Ra	^{228}Ra
16#	25.3	24.8	18.5±0.9	1.0±0.1	16.5±8.9
GH1	25.3	23.4	13.1±0.8	0.7±0.1	14.4±3.5
GH3	25.4	21.1	16.5±0.9	0.8±0.1	17.0±3.4
GH15	23.4	23.5	23.7±1.1	1.1±0.1	21.0±4.3
TSJ-02	24.8	22.3	21.5±1.1	1.1±0.1	23.8±4.9
TSJ-05	24.7	24.7	15.3±0.8	1.0±0.1	13.9±6.9
平均值	24.8	23.3	18.1±3.9	1.0±0.2	17.8±3.9
范围	23.4~25.4	21.1~24.8	13.1~23.7	0.7~1.1	13.9~23.8

表 2 广海湾及其周边海域镭同位素活度浓度
Table 2 Activity concentrations of radium isotopes in waters of Guanghai Bay and nearby coastal zones

周边海域	镭同位素活度浓度/(mBq/L)		
	^{224}Ra	^{223}Ra	^{228}Ra
珠江口及粤东海域 ^[16]	0.02~7.33	0~0.32	1.14~10.2
大亚湾 ^[8]	2.5~49.0	0.2~1.5	2.3~16.7
粤西和部分粤东海域 ^[9]	0~5.83	0.01~0.36	1.58~13.0
广海湾	13.1~23.7	0.7~1.1	13.9~23.8

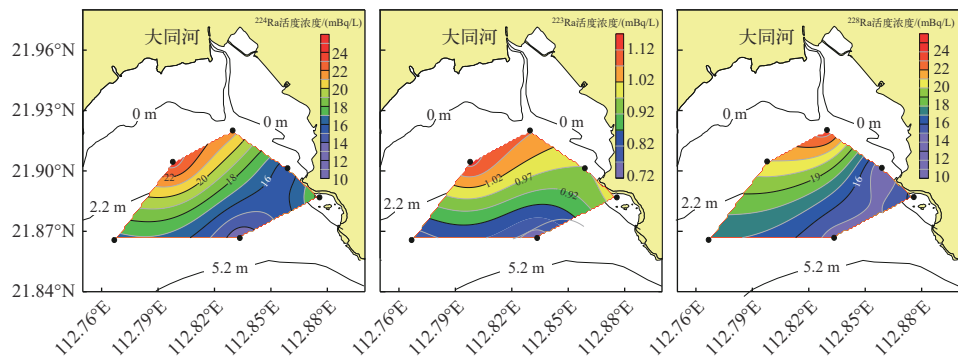


图2 广海湾表层水体²²⁴Ra、²²³Ra和²²⁸Ra活度浓度分布

Fig. 2 Activity concentration distributions of ²²⁴Ra, ²²³Ra, and ²²⁸Ra in surface water of Guanghai Bay

表3 广海湾沿岸地下水镭同位素活度浓度

Table 3 Activity concentration of radium isotopes in groundwater of Guanghai Bay

样品名	盐度	镭同位素活度浓度/(mBq/L)			来源
		²²⁴ Ra	²²³ Ra	²²⁸ Ra	
J0	0	142.3±7.6	2.0±0.5	151±27	本研究
J1	0	141.5±7.0	2.0±0.5	106±18	
J2	0	35.9±4.0	1.5±0.4	59.0±12.2	
J3	0	62.3±3.2	0.6±0.3	27.8±4.1	
GH17	8.0	70.4±2.8	1.7±0.4	40.6±4.1	Dai 等(2021) ^[9]
GW2-1	23.6	90.7±0.7	4.2±0.5	82.0±2.5	
GW2-2	25.1	92.8±0.3	3.3±0.3	61.5±1.8	
GW3	24.1	335±1	12.8±1.2	262±7	
平均值	10.1	121±94	3.5±3.9	98.8±76.7	
范围	0~25.1	35.9~335	0.6~12.8	27.8~262	

2.2 颗粒态核素比活度

1) 悬浮颗粒物

本文以²³⁴Th和²³⁸U、²¹⁰Pb和²²⁶Ra的差值计算过剩²³⁴Th(即ex²³⁴Th)和过剩²¹⁰Pb(即ex²¹⁰Pb)比活度。广海湾水体中颗粒态核素比活度列于表4。

由表4可见,广海湾采集的6个悬浮颗粒物中有3个样品检出⁷Be,均检出ex²³⁴Th和ex²¹⁰Pb。经统计,⁷Be、ex²³⁴Th、ex²¹⁰Pb比活度平均值分别为(3.22±2.31)、(7.8±5.5)、(34.7±15.5) Bq/kg,变化范围分别为未检出~6.39、0.8~17.8、21.6~63.5 Bq/kg。

表4 广海湾水体中颗粒态核素比活度

Table 4 Specific activities of particulate nuclides in water of Guanghai Bay

样品名	悬浮颗粒物浓度/(kg/m ³)	核素比活度/(Bq/kg)					
		⁷ Be	²³⁴ Th	²³⁸ U	ex ²³⁴ Th	²¹⁰ Pb	ex ²¹⁰ Pb
16#	0.12	Δ	32.8±6.7	25.7±3.3	7.1±7.5	36.9±8.8	27.3±3.0
GH1	0.12	Δ	35.9±4.7	18.1±2.5	17.8±5.3	33.7±7.8	23.9±3.3
GH3	0.13	Δ	30.6±1.9	29.8±3.2	0.8±3.8	30.0±4.7	21.6±2.1
GH15	0.29	6.39±1.62	53.8±7.6	46.5±3.8	7.3±8.5	82.0±9.5	63.5±4.4
TSJ-02	0.25	3.43±0.95	40.2±5.1	40.2±5.1	6.3±5.9	48.7±6.7	39.7±2.2
TSJ-05	0.13	5.53±1.82	35.2±5.4	35.2±5.4	7.4±6.3	43.4±8.3	32.2±3.6
平均值	0.18	3.22±2.31	38.1±8.3	30.3±9.5	7.8±5.5	45.8±19.0	34.7±15.5
范围	0.12~0.29	Δ~6.39	30.6~53.8	18.1~46.5	0.8~17.8	30.0~82.0	21.6~63.5

注:Δ表示未检出

2) 表层沉积物
广海湾表层沉积物颗粒态核素比活度水平如表 5 所列。由表 5 可见, 23 个表层沉积物样品中有 9 个检出⁷Be, 14 个检出 ex²³⁴Th, 全部检出 ex²¹⁰Pb。经统计, ⁷Be、ex²³⁴Th、ex²¹⁰Pb 比活度平均值分别

为(2.95±3.15)、(23.4±28.7)、(57.3±28.8) Bq/kg, 变化范围分别为未检出~9.88、0~90.4、5.80~113 Bq/kg。整体而言, 表层沉积物的颗粒态核素比活度大于对应站位的悬浮颗粒物。为简略起见, 后文²³⁴Th 和²¹⁰Pb 均指 ex²³⁴Th和ex²¹⁰Pb。

表 5 广海湾表层沉积物颗粒态核素比活度
Table 5 Specific activities of particulate nuclides in surface sediment of Guanghai Bay

站位	核素比活度/(Bq/kg)						
	⁷ Be	²³⁴ Th	²³⁸ U	ex ²³⁴ Th	²¹⁰ Pb	²²⁶ Ra	ex ²¹⁰ Pb
9#	Δ	73.9±8.0	74.6±6.3	—	102±14	36.4±0.8	65.6±14.0
10#	Δ	121±12	75.1±6.6	45.9±13.7	52.9±7.2	36.3±1.3	16.6±7.3
15#	6.54±1.49	78.0±9.0	56.0±7.3	22.0±11.6	115±17	29.9±1.0	85.1±17.0
16#	Δ	123±12	60.6±8.0	62.4±14.4	53.3±7.0	35.1±1.2	18.2±7.1
GH1	Δ	67.9±3.7	74.5±5.0	—	67.9±8.9	33.2±0.8	34.7±8.9
GH2	Δ	62.2±3.1	68.9±4.2	—	64.0±8.4	30.0±0.8	34.0±8.4
GH3	Δ	85.6±4.5	57.3±7.6	28.3±8.8	68.8±9.8	31.3±1.1	37.5±9.9
GH4	Δ	118±12	54.0±6.9	64.0±13.8	48.4±7.1	29.4±1.0	19.0±7.2
GH5	1.63±0.33	69.9±6.2	61.0±7.8	8.9±9.9	111±11	30.3±1.0	81.0±11
GH6	Δ	111±12	59.5±7.5	51.5±14.2	53.6±7.8	29.0±1.0	24.6±7.9
GH7	1.79±0.53	50.3±2.9	62.7±5.1	—	101±16	29.9±1.0	70.9±16.5
GH8	Δ	60.3±6.7	49.1±6.4	11.2±9.2	92.1±12.9	28.0±1.0	64.1±12.9
GH9	Δ	53.1±6.6	61.5±3.7	—	86.4±13.0	29.6±1.0	56.8±13.0
GH10	Δ	65.0±7.4	67.4±7.9	—	122±20	33.2±1.1	88.8±20.0
GH11	7.63±1.91	75.1±8.1	67.0±8.7	8.1±11.9	150±20	36.9±1.3	113±20
GH12	Δ	66.2±7.7	50.6±6.9	15.6±10.4	102±15	30.8±1.1	71.2±15.0
GH13	7.76±1.77	170±18	79.6±10.0	90.4±20.6	97.4±13.6	39.6±1.3	57.8±13.7
GH14	7.29±1.68	82.3±10.0	87.4±6.6	—	104±14	38.0±1.3	66.0±14.1
GH15	Δ	74.9±1.4	85.4±6.1	—	109±12	36.4±0.8	72.2±11.8
GH17	9.88±1.72	105±2	77.1±9.1	27.9±9.3	137±18	45.2±1.5	91.8±18.1
TSJ-02	8.60±0.70	144±14	61.5±3.7	82.5±14.5	90.3±11.8	37.2±1.1	53.1±11.9
TSJ-05	3.65±0.88	75.7±7.9	56.0±7.4	19.7±10.8	124±17	34.6±1.2	89.4±17.0
TSJ-12	Δ	38.5±2.2	45.9±6.0	—	18.6±3.8	12.8±0.3	5.8±3.8
平均值	2.95±3.15	85.7±32.2	64.9±11.4	23.4±28.7	90.0±32.0	32.8±6.1	57.3±28.8
范围	Δ~9.88	38.5~170	45.9~87.4	0~90.4	18.6~150	12.8~45.2	5.80~113

注: Δ 表示未检出; —表示该站位²³⁴Th 无过剩

广海湾底层沉积物中⁷Be、²³⁴Th 和²¹⁰Pb 的分布趋势示于图 3。大同河潮滩沉积物(站位 GH17)的⁷Be 比活度最高, ²¹⁰Pb 比活度处于较高水平。大同河口处(站位 GH13 和 TSJ-02)及湾顶部(站位 GH14 和 GH11)的底层沉积物是⁷Be、²³⁴Th 和²¹⁰Pb 的高值区, 这可能是由于陆源颗粒物吸附大气沉降的⁷Be 后, 随大同河水迁移至河口处及湾顶部沉积下来所致。由此推断, 大同河携带的悬浮颗粒物是广海湾泥沙的重要来源; 湾顶部附近潮

滩沉积物受雨水冲刷直接进入水体, 亦有可能是广海湾颗粒物来源之一。

⁷Be/²¹⁰Pb 常用于判断颗粒物是否来源于河流[6, 11, 17], 大同河口处及湾顶部的⁷Be/²¹⁰Pb 在 0.07~0.16 之间, 与广海湾其他区域相比处于较高水平, 表明该区域存在明显的河口沉积过程。在广海湾东南部即潮流入湾口处(站位 15#), 底层沉积物的⁷Be 和²¹⁰Pb 比活度相对较高, 对应的⁷Be/²¹⁰Pb 为 0.08, 表明广海湾陆源颗粒物亦可能受潮流顶托影

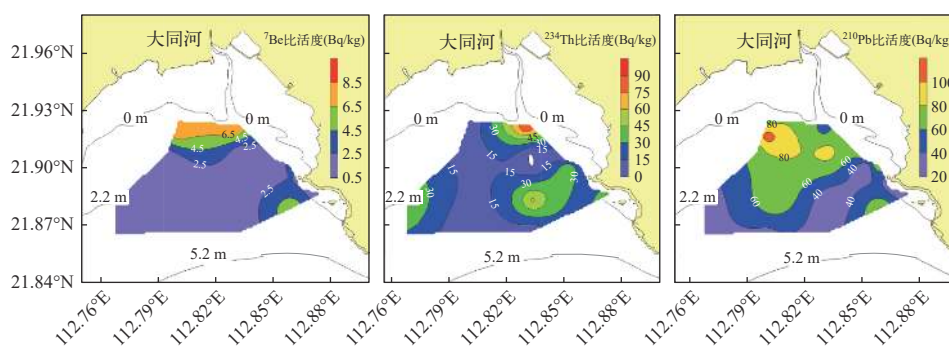


图3 广海湾底层沉积物颗粒态核素 ^7Be 、 ^{234}Th 和 ^{210}Pb 比活度分布

Fig. 3 Specific activity distributions of ^7Be , ^{234}Th , and ^{210}Pb in surface sediment of Guanghai Bay

响而沉积在湾口处,两核素均明显存在与湾外海水交换行为。此外, $^{234}\text{Th}/^{210}\text{Pb}$ 常用于指示颗粒物再悬浮过程^[11,17],在广海湾东南部即潮流入湾口处, $^{234}\text{Th}/^{210}\text{Pb}$ 呈现明显的高值分布,表明该区域可能存在较为强烈的再悬浮过程。

2.3 镭同位素示踪广海湾水体滞留时间

近海环境中镭同位素的分布特征,可用于定量评估河口及近岸海域水体的混合、交换过程的时间尺度。根据广海湾自身水文特征,本研究采用 $^{224}\text{Ra}/^{228}\text{Ra}$ 模型估算广海湾水体滞留时间。Moore等^[3]依据镭质量平衡原则即镭的来源(沿岸地下水的贡献)应等于镭的归宿(包括镭的自身衰减和交换量),构建 $^{224}\text{Ra}/^{228}\text{Ra}$ 模型以计算水体滞留时间。Zhang等^[8]对该模型进行修正,除沿岸地下水外,将河流对镭的贡献和底层沉积物的镭释放也增加到镭的来源中,提出水体滞留时间 $\tau(\text{d})$ 的修正计算式,如式(1)所示。

$$\tau = \frac{k(I_{228} - V^{228}\text{Ra}_{\text{op}}) - (I_{224} - V^{224}\text{Ra}_{\text{op}})}{I_{224}\lambda_{224} + (k^{228}F_r - {}^{224}F_r) + (k^{228}F_{\text{sed}} - {}^{224}F_{\text{sed}})} \quad (1)$$

其中: k 为研究区域内沿岸地下水的修正 $^{224}\text{Ra}/^{228}\text{Ra}$ 活度浓度比,如式(2)所示; I_{224} 和 I_{228} 分别为研究区域水体 ^{224}Ra 和 ^{228}Ra 总量, Bq; V 为研究区域水体体积, m^3 ; $^{224}\text{Ra}_{\text{op}}$ 和 $^{228}\text{Ra}_{\text{op}}$ 分别为外海水 ^{224}Ra 和 ^{228}Ra 活度浓度, Bq/m^3 ; ${}^{224}F_r$ 和 ${}^{228}F_r$ 分别为河流 ^{224}Ra 和 ^{228}Ra 通量, Bq/d ; ${}^{224}F_{\text{sed}}$ 和 ${}^{228}F_{\text{sed}}$ 分别为底层沉积物 ^{224}Ra 和 ^{228}Ra 释放通量, Bq/d 。

$$k = \frac{{}^{224}\text{Ra}_{\text{gw}} - (1 - R_F) \times {}^{224}\text{Ra}_{\text{ns}}}{{}^{228}\text{Ra}_{\text{gw}} - (1 - R_F) \times {}^{228}\text{Ra}_{\text{ns}}} \quad (2)$$

其中: ${}^{224}\text{Ra}_{\text{gw}}$ 和 ${}^{228}\text{Ra}_{\text{gw}}$ 分别为沿岸地下水端元 ^{224}Ra 和 ^{228}Ra 活度浓度, Bq/m^3 ; R_F 为沿岸地下水中地下淡水的占比; ${}^{224}\text{Ra}_{\text{ns}}$ 和 ${}^{228}\text{Ra}_{\text{ns}}$ 分别为沿岸水体

^{224}Ra 和 ^{228}Ra 活度浓度, Bq/m^3 。

广海湾采样站位经纬度以CGCS2000坐标系统为基准投影转为平面坐标,采样范围以 $100\text{ m} \times 100\text{ m}$ 的间距分成若干网格,以Kriging空间插值法将各站位平均水深、 ^{224}Ra 和 ^{228}Ra 活度浓度插值到网格内,每网格 ^{224}Ra 和 ^{228}Ra 活度浓度乘以网格体积累加得到 I_{224} 和 I_{228} ,分别为 $I_{224}=3.49 \times 10^9\text{ Bq}$ 和 $I_{228}=3.42 \times 10^9\text{ Bq}$,同时计算得广海湾水体体积 $V=1.96 \times 10^8\text{ m}^3$ 。根据Dai等^[9]报道的南海北部海域 ^{224}Ra 和 ^{228}Ra 活度浓度水平,以该值作为外海水 ^{224}Ra 和 ^{228}Ra 活度浓度端元值,分别为 ${}^{224}\text{Ra}_{\text{op}}=0\text{ mBq/L}$ 和 ${}^{228}\text{Ra}_{\text{op}}=1.2\text{ mBq/L}$ 。

为计算式(2)中的 k ,以采集的沿岸地下水样品的 ^{224}Ra 和 ^{228}Ra 活度浓度数据,结合Dai等^[9]在附近海岸带的地下水调查结果,作为沿岸地下水端元值。考虑到研究区域较小且镭同位素活度浓度空间变化不大,以镭总量除以采样体积来计算 ^{224}Ra 和 ^{228}Ra 几何平均值,分别为 ${}^{224}\text{Ra}_{\text{ns}}=17.8\text{ mBq/L}$ 和 ${}^{228}\text{Ra}_{\text{ns}}=17.5\text{ mBq/L}$ 。 R_F 对水体滞留时间的敏感度不高,一般在 $0.1 \sim 0.2$ 之间^[8,10],本文取 0.1 。由此,以式(2)计算每个地下水采样点的 ^{224}Ra 和 ^{228}Ra 修正端元值,即 ${}^{224}\text{Ra}_{\text{gw}} - (1 - R_F) \times {}^{224}\text{Ra}_{\text{ns}}$ 和 ${}^{228}\text{Ra}_{\text{gw}} - (1 - R_F) \times {}^{228}\text{Ra}_{\text{ns}}$,将两组数据绘制散点图(图4),作拟合线计算 k 值,可得到 $k=1.23$ 。图4中,站位GW2和GW3数据取自Dai等^[9]的研究。

Zhang等^[8]总结底层沉积物镭释放通量的众多研究案例,发现单位面积的底层沉积物 ^{224}Ra 释放通量在 $0.53 \sim 5.22\text{ Bq}/(\text{m}^2 \cdot \text{d})$ 范围内。为尽可能最大化估算广海湾水体滞留时间,本文取沉积物 ^{224}Ra 释放通量的最大值,即 ${}^{224}F_{\text{sed}}=5.22\text{ Bq}/(\text{m}^2 \cdot \text{d})$ 。考虑到采样区域偏小,其水体输运的时间尺度不

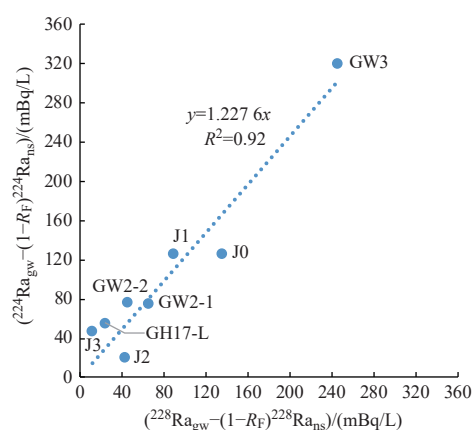


图4 广海湾沿岸地下水 ^{224}Ra 和 ^{228}Ra 活度浓度散点图
Fig. 4 Scatter plot of ^{224}Ra and ^{228}Ra activity concentrations in groundwater samples in Guanghai Bay

足以让沉积物再生 ^{228}Ra 并释放进入水体,该过程可忽略不计,即 $^{228}F_{\text{sed}}=0\text{ Bq}/(\text{m}^2\cdot\text{d})$ 。

注入广海湾的主要地表径流是隶属烽火角水系的大同河,其次为处于广海湾东侧的大、小马河。大、小马河径流量较小,本文忽略两条河流影响。烽火角水系集雨面积 709 km^2 ,属亚热带海洋性季风气候,受当地降雨、台风等影响较大;由于烽火角水系未设置流量站,且河流入海口有水闸控制,难以确定采样期间内实际径流量;目前仅有文献根据当地常年降雨资料,评估烽火角水系入海口二十年一遇的洪峰流量为 $2\,410\text{ m}^3/\text{s}$ [18]。

现有广海湾附近海域调查资料显示,珠江、大亚湾、漠阳江、鉴江等粤东、粤西河流溶解态 ^{224}Ra 和 ^{228}Ra 中位数分别为 $5.3\text{ Bq}/\text{m}^3$ 和 $3.0\text{ Bq}/\text{m}^3$ [8-9, 16],本文以中位数作为河流溶解态 ^{224}Ra 和 ^{228}Ra 的参考值。Moore等[4]总结河流携带悬浮颗粒物对 ^{224}Ra 和 ^{228}Ra 解吸量的最大值均为 $0.033\text{ Bq}/\text{g}$,以该值乘以大同河悬浮颗粒物浓度($29\text{ mg}/\text{L}$),由此计算大同河悬浮颗粒物对 ^{224}Ra 和 ^{228}Ra 的解吸贡献均为 $1.0\text{ Bq}/\text{m}^3$ 。溶解态镭和解吸镭相加,估算广海湾河流输送 ^{224}Ra 和 ^{228}Ra 的端元值分别为 $6.3\text{ Bq}/\text{m}^3$ 和 $4.0\text{ Bq}/\text{m}^3$ 。

假设地表径流为0和二十年一遇洪峰流量($2\,410\text{ m}^3/\text{s}$)两种极端情况,以河流径流量 Q_r 与河流镭端元值的乘积计算广海湾河流 ^{224}Ra 和 ^{228}Ra 通量 F_r ,以式(1)计算采样期间广海湾水体滞留时间 τ 。结果表明:当不考虑地表径流($Q_r=0$)时,水体滞留时间 $\tau=0.97\text{ d}$;当径流量取二十年一遇洪峰流量($Q_r=2.08\times 10^8\text{ m}^3/\text{d}$)时, $\tau=2.71\text{ d}$ 。粤西沿海诸

河多属山地暴流性小河,河流短促,独流入海,集雨面积大于 $1\,000\text{ km}^2$ 的河流主要有漠阳江、鉴江、九洲江、南渡河、遂溪河等,其年均径流量分别为85.9亿、89.8亿、31亿、9亿、14亿 m^3 [19]。广海湾烽火角水系集雨面积小于 $1\,000\text{ km}^2$,且采样期间处于枯水期(4~9月为粤西河流丰水期),大同河径流量应低于粤西主要入海河流的最低年均径流量。为尽可能高估广海湾水体滞留时间,本文取粤西南渡河年径流量作为广海湾入湾河流径流量的参照($Q_r=2.5\times 10^6\text{ m}^3/\text{d}$),以式(1)计算水体滞留时间,得到 $\tau=0.98\text{ d}$,可见采样期间广海湾水体滞留时间为1d左右。

2.4 广海湾 ^7Be 和 ^{210}Pb 的源与汇

^7Be ($T_{1/2}=53.3\text{ d}$)由宇宙射线轰击大气中的氮或氧产生, ^{210}Pb ($T_{1/2}=22.3\text{ a}$)由地壳天然铀系核素 ^{222}Rn 释放进入大气后衰变产生。两核素通过大气干、湿沉降到达海洋表界面,由于二者在海洋环境中均属颗粒态核素(分配系数 $K_d\approx 10^5\text{ L}/\text{kg}$) [11],进入海洋后吸附于海洋颗粒物上,具有与海洋颗粒物相对一致的迁移、输运行为。由于广海湾悬沙含量较高,本文不考虑 ^7Be 和 ^{210}Pb 溶解态组分的影响。根据广海湾自身特性和两核素空间分布趋势,判断广海湾颗粒态 ^7Be 和 ^{210}Pb 主要来源分别为大气沉降和河流供给,主要归宿分别为自身衰减、沉积埋藏和与外海水交换。

大气是广海湾海域 ^7Be 和 ^{210}Pb 的重要来源之一。本研究未采集大气气溶胶及大气沉降样品,考虑到 ^7Be 的大气沉降具有明显的纬度效应[20],采用与广海湾纬度最为接近的深圳市(22.5°N)同季节 ^7Be 和 ^{210}Pb 的单位面积的大气干、湿沉降通量作为广海湾大气沉降端元值,分别为 $1.68\text{ Bq}/(\text{m}^2\cdot\text{d})$ 和 $0.6\text{ Bq}/(\text{m}^2\cdot\text{d})$ [21-22]。若不考虑年际差异,则大气沉降端元值乘以研究区域表面积($4.06\times 10^7\text{ m}^2$),计算得到广海湾 ^7Be 和 ^{210}Pb 的大气输入量 F_a 分别为 $6.8\times 10^7\text{ Bq}/\text{d}$ 和 $2.4\times 10^7\text{ Bq}/\text{d}$ 。

以大同河径流量与河流 ^7Be 或 ^{210}Pb 端元值的乘积,计算河流对广海湾海域水体 ^7Be 或 ^{210}Pb 的贡献通量 F_r 。根据前文讨论,广海湾河流径流量 Q_r 取值为 $2.5\times 10^6\text{ m}^3/\text{d}$;采样期间大同河实际径流量应小于该值,这一做法可能高估河流对广海湾 ^7Be 和 ^{210}Pb 的贡献量。本研究未采集河水样品,为确定 ^7Be 和 ^{210}Pb 的河流端元值,本文搜集了目

前已发表的我国沿海河流 ^7Be 和 ^{210}Pb 的入海端元值,如表6所列。尽管各河流所处纬度不同、流域面积不同, ^7Be 和 ^{210}Pb 的入海端元值以及 $^7\text{Be}/^{210}\text{Pb}$ 大致处于同一水平,故以已发表的我国入海河流 ^7Be 、 ^{210}Pb 活度浓度的中位数作为广海湾的河流端元值,由此计算广海湾的 ^7Be 和 ^{210}Pb 河流贡献量 F_r 分别为 $5.0\times 10^6\text{ Bq/d}$ 和 $6.5\times 10^6\text{ Bq/d}$ 。对比可知,两核素的河流贡献比大气输入量低约1个数量级。

表6 全国部分沿海河流的 ^7Be 和 ^{210}Pb 入海端元值
Table 6 Reported river end-members of ^7Be and ^{210}Pb activity concentrations of coastal rivers in China

河流	盐度	活度浓度/(Bq/m ³)		$^7\text{Be}/^{210}\text{Pb}$
		^7Be	^{210}Pb	
长江 ^[11]	0	2.04	3.50	0.58
海南万泉河 ^[23]	0.03	1.24	1.76	0.71
海南文昌河 ^[23]	0.03	2.10	4.10	0.51
福建漳江 ^[12]	0	—	1.55	—
中位数	0.02	2.04	2.63	0.58

广海湾水体中 ^7Be 、 ^{210}Pb 衰减量可通过两核素衰减常数分别乘以两核素总量加以计算。结合广海湾每站位悬浮颗粒物的 ^7Be 和 ^{210}Pb 活度浓度、每站位水深和悬浮颗粒物浓度,以Kriging空间插值法计算水体 ^7Be 和 ^{210}Pb 总量,分别为 $I_{\text{Be}}=1.65\times 10^8\text{ Bq}$ 和 $I_{\text{Pb}}=1.67\times 10^9\text{ Bq}$,由此计算的两核素自身衰减量 F_d 分别为 $2.1\times 10^6\text{ Bq/d}$ 和 $1.4\times 10^5\text{ Bq/d}$ 。

广海湾 ^7Be 、 ^{210}Pb 沉积埋藏通量 F_b 采用式(3)计算。

$$F_b = A_b \rho R S \quad (3)$$

其中: A_b 为底层沉积物 ^7Be 和 ^{210}Pb 的比活度, Bq/kg; ρ 为单位体积沉积物干重, kg/m³; R 为沉积速率, m/d; S 为研究区域面积, m²。

同样地,以Kriging空间插值法计算了广海湾底层沉积物中 ^7Be 和 ^{210}Pb 的平均值,即 $A_b^{\text{Be}}=2.1\text{ Bq/kg}$ 和 $A_b^{\text{Pb}}=57.7\text{ Bq/kg}$ 。黄维和汪品先^[24]给出了南海沉积物干重计算公式,即 $\rho=2.69\times 10^3(1-0.7263\cdot e^{-z/1.064})\text{ kg/m}^3$;当 $z=0$ 时,表层沉积物干重 $\rho=736\text{ kg/m}^3$ 。对于广海湾沉积物速率,目前尚无相关研究报道。现有广海湾周边海域沉积速率的研究案例显示:1)广海湾外下川岛附近沉积速率为

0.78 cm/a^[25];2)广海湾东侧黄茅海海域沉积速率为1.8 cm/a^[26];3)珠江口及其邻近海域沉积速率变化范围为0.27~3.0 cm/a^[27-32]。考虑到广海湾所处地理位置,其沉积速率应大于湾外下川岛,然而其泥沙量供应亦不足以提供高于珠江口内的沉积速率,本文认为广海湾沉积速率范围应为0.78~3.0 cm/a。由此,以式(3)计算广海湾 ^7Be 和 ^{210}Pb 的沉积埋藏通量,分别为1.3~5.1 MBq/d和37~140 MBq/d。

在系统稳态前提下,建立广海湾 ^7Be 和 ^{210}Pb 的箱式模型,即两核素河流和大气的总输入量应等于自身衰减、沉积埋藏和外海交换的总输出量,由此计算广海湾 ^7Be 和 ^{210}Pb 对外海的交换通量 F_{op} ,如式(4)所示。

$$F_{\text{op}} = F_a + F_r - F_d - F_b \quad (4)$$

其中: F_a 和 F_r 分别为 ^7Be 和 ^{210}Pb 的大气和河流贡献; F_d 和 F_b 分别为 ^7Be 和 ^{210}Pb 的自身衰减量和沉积埋藏量。由此可见,广海湾 ^7Be 和 ^{210}Pb 的外海交换通量 F_{op} 分别为66~70 MBq/d和-(6.1~110) MBq/d,说明广海湾存在向湾外海域输出 ^7Be 过程,与之相反,湾外海域存在向广海湾输入 ^{210}Pb 过程。

两核素各项来源与归宿的重要性对比结果表明,大气沉降是广海湾 ^7Be 和 ^{210}Pb 的重要来源,其重要性是当地河流的几倍甚至十几倍;两核素自身衰减的重要性均较低,特别是 ^{210}Pb ,其衰减量可忽略不计;对于 ^7Be ,广海湾向外海输送是广海湾 ^7Be 的最大归宿。对于 ^{210}Pb ,当广海湾沉积速率接近湾外下川岛时(0.78 cm/a),沉积埋藏过程是广海湾 ^{210}Pb 的最大归宿,湾外输入的贡献尚不明显;当沉积速率接近珠江口时(3.0 cm/a),湾外输入成为广海湾 ^{210}Pb 最重要的贡献来源。

2.5 多核素示踪的环境指示意义

刘海龄等^[33]认为,珠江口每年有大量泥沙进入广海湾,使之沉积大量粉砂质黏土和黏土质粉砂,前者主要分布在流速相对较小的近岸浅水水域,后者主要分布于流速较大的深水水域和岛域边缘。许东等^[25]对粤西—琼东北近海沉积物的研究亦指出,广海湾及附近海域颗粒物主要源自珠江,极少部分来自沿岸其他小河流和侵蚀作用。综上,可以推断珠江携带泥沙随粤西沿岸流以涨落潮进入广海湾,构成广海湾颗粒态 ^{210}Pb 的

潜在重要来源。对广海湾沉积速率敏感性分析表明,若广海湾沉积速率低于 0.65 cm/a,大气和当地河流对 ^{210}Pb 的贡献可以勉强维持其沉积埋藏消耗,若沉积速率高于该值,则大气和河流的贡献不足以支持该沉积埋藏通量,珠江来沙将成为广海湾颗粒物及其携带 ^{210}Pb 的重要供应。由于 ^7Be 半衰期较短,珠江来沙携带的 ^7Be 在迁移输运过程中存在自身衰减和混合稀释效应,这一过程不会构成广海湾 ^7Be 的主要供应。

为进一步探讨广海湾颗粒物输运的时间尺度,本文对广海湾 ^7Be 、 ^{210}Pb 和 ^{234}Th 颗粒物滞留时间进行估算。Feng等^[2]提出了典型海湾 ^7Be 、 ^{210}Pb 和 ^{234}Th 滞留时间模型,考虑到广海湾自身特殊性,在箱式模型基础上,本文改进了颗粒物滞留时间的计算方法,如式(5)~(7)所示。

$$\tau_{\text{p,Be}} = \frac{I_{\text{Be}}}{(F_{\text{a,Be}} + F_{\text{r,Be}}) - \lambda_{\text{Be}} I_{\text{Be}}} \quad (5)$$

$$\tau_{\text{p,Pb}} = \frac{I_{\text{Pb}}}{(F_{\text{a,Pb}} + F_{\text{r,Pb}} + F_{\text{op,Pb}}) - \lambda_{\text{Be}} I_{\text{Pb}}} \quad (6)$$

$$\tau_{\text{p,Th}} = \frac{I_{\text{Th}}}{\lambda_{\text{Th}}(I_{\text{U}} - I_{\text{Th}})} \quad (7)$$

其中, I_{U} 和 I_{Th} 分别为广海湾水体中母体 ^{238}U 和子体 ^{234}Th 总量,Bq。

一般情况下,海水中 ^{238}U 活度浓度与水体盐度有较好的线性关系,可表示为 $A_{\text{U}}=0.983S+4.3\text{ Bq/m}^3$ ^[6,11],结合广海湾的各站位盐度数据,以该线性关系估算各站位 ^{238}U 活度浓度。广海湾悬浮颗粒物 ^{234}Th 比活度水平为0.8~17.8 Bq/kg,结合每站位水深和悬浮颗粒物浓度数据,以Kriging空间插值法计算水体 ^{238}U 、 ^{234}Th 总量,分别为 $I_{\text{U}}=5.30\times 10^9\text{ Bq}$ 和 $I_{\text{Th}}=3.04\times 10^8\text{ Bq}$ 。

结合2.4节中 ^7Be 箱式模型各参数值,以式(5)计算广海湾 ^7Be 滞留时间,即 $\tau_{\text{p,Be}}=2.3\text{ d}$;类似的,以式(6)计算的 ^{210}Pb 滞留时间 $\tau_{\text{p,Pb}}=12\sim 45\text{ d}$,且沉积速率越大, ^{210}Pb 滞留时间越短;以式(7)计算的 ^{234}Th 滞留时间 $\tau_{\text{p,Th}}=2.1\text{ d}$ 。加上以镭同位素示踪广海湾水体滞留时间 τ ,可知四者的大小关系为: $\tau < \tau_{\text{p,Th}} \approx \tau_{\text{p,Be}} < \tau_{\text{p,Pb}}$ 。上述滞留时间的物理意义可解释为:1)广海湾水体滞留时间 τ 是指广海湾水体及其携带溶解态物质如营养盐、DIC、DOC、溶解态污染物等迁移的时间尺度,受潮汐冲刷、河流注入、地下水及人类污废水排放等物理机制影

响;2) ^7Be 属颗粒态核素,来源于大气沉降的 ^7Be 吸附于广海湾悬浮颗粒物,随水体迁移混合至外海的同时,亦存在重力沉降以至从水体中清除转移至湾底的过程,进而 $\tau_{\text{p,Be}}$ 会略高于 τ ;3) ^{234}Th 与 ^7Be 半衰期接近,虽然应用模型不同,但计算得到的滞留时间几乎一致;4) ^{210}Pb 亦属颗粒态核素,它一方面类似于 ^7Be 的迁移行为,另一方面珠江来沙在广海湾内沉积,成为广海湾 ^{210}Pb 重要来源。从物理意义上分析,考虑到珠江来沙对广海湾颗粒物的贡献,本文认为以镭同位素示踪的广海湾水体滞留时间 τ 指示广海湾水体及其携带溶解态物质输运的时间尺度,而以 ^{210}Pb 示踪的颗粒物滞留时间 $\tau_{\text{p,Pb}}$ 能够更好地指示广海湾悬浮颗粒物及其携带颗粒活性污染物迁移的时间尺度。

综上,颗粒态核素(如 ^7Be 、 ^{210}Pb 及 ^{234}Th 等)已被证实为研究广海湾颗粒物输运过程的良好示踪核素,但在更进一步示踪颗粒活性污染物(如PAHs、PCBs和重金属等)迁移过程时,还需考虑颗粒态核素与颗粒活性污染物在海洋中的分配行为具有一定差异性。Zhang等^[34]发现黄海和东海表层海水PAHs、A-PAHs、N-PAHs的分配系数(K_d ,即颗粒态与溶解态含量比值)分别 $10^2\sim 5.5$ 、 $10^2\sim 5.5$ 、 $10^{3.5}\sim 6.5\text{ L/kg}$ 。Chen等^[35]研究的渤海PAHs的 K_d 值在七、八月份平均值分别为 $10^{3.12}\text{ L/kg}$ 和 $10^{4.27}\text{ L/kg}$ 。对于颗粒态核素,Huang等^[11]在对长江口及邻近海域 ^7Be 和 ^{210}Pb 研究中发现两者 K_d 值在 10^5 L/kg 左右。Huang等^[23]发现海南文教/文昌河、万泉河口 ^7Be 和 ^{210}Pb 的 K_d 值分别为 $10^{3\sim 5}\text{ L/kg}$ 和 $10^{3\sim 6}\text{ L/kg}$,而重金属Cu、Zn、Cd在海南文教/文昌河的 K_d 值分别为 $10^{2\sim 4}$ 、 $10^{2\sim 3}$ 、 $10^{3\sim 4}\text{ L/kg}$,在万泉河口的 K_d 值分别为 $10^{2\sim 3}$ 、 $10^{2\sim 3}$ 、 $10^{3\sim 4}\text{ L/kg}$ 。若做简单对比,颗粒态核素与颗粒活性污染物在海洋环境中的分配系数可能近似,也可能高约1~2个数量级,这可能受水体盐度、悬浮颗粒物浓度、组分等多种因素影响^[23]。

尽管颗粒态核素和颗粒活性污染物在海洋环境中可能存在某种程度的行为差异,但不影响其用于示踪颗粒活性污染物的迁移行为。应用颗粒态核素首先是示踪海洋颗粒物输运过程,进而根据颗粒物输运参数(如颗粒物滞留时间、颗粒物垂向迁出通量等),结合颗粒活性污染物自身在海洋中的分配特征,最终评估颗粒活性污染物在海洋

中的迁移过程。如 Huang 等^[23] 根据放射性核素计算出海南文教/文昌河、万泉河口的颗粒物滞留时间, 结合重金属 Cu、Zn 和 Cd 分配比, 评估重金属 Cu、Zn 和 Cd 迁出至底层沉积物的百分比。Liu 等^[36] 根据北冰洋水体颗粒态²¹⁰Po 迁移至海底的垂向通量和颗粒态 PAHs 与²¹⁰Po 比值, 计算出 PAHs 的垂向迁出通量。Gustafsson 等^[37] 根据西北大西洋²³⁴Th 相对母体²³⁸U 的缺失量, 计算颗粒物垂向去除系数, 结合颗粒态 PCBs 浓度, 估算 PCBs 的垂向迁出通量。

3 结论

1) 2019 年 10 月期间, 广海湾水体²²⁴Ra、²²³Ra、²²⁸Ra 活度浓度范围分别为 13.1~23.7、0.7~1.1、13.9~23.8 mBq/L, 平均值分别为 (18.1±3.9)、(1.0±0.2)、(17.8±3.9) mBq/L。采用²²⁴Ra/²²⁸Ra 模型计算水体滞留时间, 广海湾水体及其携带溶解态物质迁移扩散的时间尺度为 1 d 左右。

2) 同期间, 广海湾悬浮颗粒物⁷Be、²³⁴Th、²¹⁰Pb 比活度范围分别为未检出~6.39、0.8~17.8、21.6~63.5 Bq/kg, 平均值分别为 (3.22±2.31)、(7.8±5.5)、(34.7±15.5) Bq/kg; 表层沉积物⁷Be、²³⁴Th、²¹⁰Pb 比活度范围分别为未检出~9.88、0~90.4、5.80~113 Bq/kg, 平均值分别为 (2.95±3.15)、(23.4±28.7)、(57.3±28.8) Bq/kg。

3) 在定量分析⁷Be 和²¹⁰Pb 各项来源和归宿通量基础上建立了两核素箱式模型。结果表明: 大气沉降均是广海湾⁷Be 和²¹⁰Pb 的重要来源, 其重要性是当地河流的几倍甚至十几倍; 广海湾向外海输送是广海湾⁷Be 的最大归宿。沉积速率敏感性分析表明, 沉积速率越高, 珠江来沙对广海湾颗粒物及其携带²¹⁰Pb 的贡献越大; 当广海湾沉积速率接近湾外岛屿下川岛 (即 0.78 cm/a) 时, 珠江来沙贡献尚不明显; 当沉积速率接近珠江口 (即 3.0 cm/a) 时, 珠江来沙将成为广海湾²¹⁰Pb 最重要的贡献来源。

4) 以典型海湾⁷Be、²¹⁰Pb 和²³⁴Th 颗粒物滞留时间模型分别评估广海湾颗粒物滞留时间, 并对三核素的计算结果, 揭示出以²¹⁰Pb 示踪的广海湾颗粒物滞留时间 ($\tau_{p,pb}$ =12~45 d) 对广海湾颗粒物及其携带颗粒活性污染物迁移运输的时间尺度具有更好的指示作用。

希望今后能够获取溶解态污染物及颗粒活性污染物在研究区域内的调查数据, 以更好地利用放射性核素示踪技术, 定量评估污染物在广海湾的输运过程, 为科学合理地评价广海湾海域纳污能力提供理论依据。

参考文献:

- [1] 黄奕普, 陈敏. 海洋同位素示踪技术研究进展[J]. 厦门大学学报(自然科学版), 2001, 40(2): 512-523.
HUANG Yipu, CHEN Min. Progress in the isotope tracer technique for marine science[J]. Journal of Xiamen University (Natural Science), 2001, 40(2): 512-523(in Chinese).
- [2] FENG H, COCHRAN J K, HIRSCHBERG D J. ²³⁴Th and ⁷Be as tracers for the transport and dynamics of suspended particles in a partially mixed estuary[J]. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 1999, 63(17): 2487-2505.
- [3] MOORE W S, BLANTON J O, JOYE S B. Estimates of flushing times, submarine groundwater discharge, and nutrient fluxes to Okatee Estuary, South Carolina[J]. *Journal of Geophysical Research: Oceans*, 2006, 111: C09006.
- [4] MOORE W S, BECK M, RIEDEL T, et al. Radium-based pore water fluxes of silica, alkalinity, manganese, DOC, and uranium: A decade of studies in the German Wadden Sea[J]. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 2011, 75(21): 6535-6555.
- [5] SANCHEZ-CABEZA J A, RUIZ-FERNÁNDEZ A C. ²¹⁰Pb sediment radiochronology: An integrated formulation and classification of dating models[J]. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 2012, 82: 183-200.
- [6] WANG J, DU J, BASKARAN M, et al. Mobile mud dynamics in the East China Sea elucidated using ²¹⁰Pb, ¹³⁷Cs, ⁷Be, and ²³⁴Th as tracers[J]. *Journal of Geophysical Research: Oceans*, 2016, 121: 224-239.
- [7] CHEN M, CHEN M, ZHENG M, et al. ²¹⁰Po-²¹⁰Pb disequilibria influenced by production and remineralization of particulate organic matter around Prydz Bay, Antarctica [J]. *Deep Sea Research Part II: Topical Studies in Oceanography*, 2021, 191-192: 104961.
- [8] ZHANG Y, LI H, GUO H, et al. Improvement of evaluation of water age and submarine groundwater discharge: A case study in Daya Bay, China[J]. *Journal of Hydrology*, 2020, 586: 124775.
- [9] DAI G, WANG G, LI Q, et al. Submarine groundwater

- discharge on the western shelf of the northern South China Sea influenced by the Pearl River plume and upwelling[J]. *Journal of Geophysical Research: Oceans*, 2021, 126(4): e2020JC016859.
- [10] GU H, ZHAO F, NI Z, et al. Using radium isotopes to evaluate the uncertainty of submarine groundwater discharge in the northeast and entirety of Daya Bay[J]. *Acta Oceanologica Sinica*, 2023, 42(8): 24-31.
- [11] HUANG D, DU J, MOORE W, et al. Particle dynamics of the Changjiang Estuary and adjacent coastal region determined by natural particle-reactive radionuclides (^7Be , ^{210}Pb , and ^{234}Th)[J]. *Journal of Geophysical Research: Oceans*, 2013, 118(4): 1736-1748.
- [12] ZHONG Q, GUO W, WANG H, et al. ^{210}Po and ^{210}Pb as tracers for particle cycling in a shallow semi-enclosed bay of Taiwan Strait[J]. *Deep Sea Research Part II: Topical Studies in Oceanography*, 2023, 207: 105228.
- [13] 王文介. 中国南海海岸地貌沉积研究[M]. 广州: 广东经济出版社, 2007: 1-82.
- [14] GARCIA-SOLSONA E, GARCIA-ORELLANA J, MASQUE P, et al. Uncertainties associated with ^{223}Ra and ^{224}Ra measurements in water via a delayed coincidence counter (RaDeCC)[J]. *Marine Chemistry*, 2008, 109(3-4): 198-219.
- [15] MOORE W S. Fifteen years experience in measuring ^{224}Ra and ^{223}Ra by delayed-coincidence counting[J]. *Marine Chemistry*, 2008, 109(3-4): 188-197.
- [16] LIU Q, DAI M, CHEN W, et al. How significant is submarine groundwater discharge and its associated dissolved inorganic carbon in a river-dominated shelf system?[J]. *Biogeosciences*, 2012, 9(5): 1777-1795.
- [17] WANG J, HUANG D, XIE W, et al. Particle dynamics in a managed navigation channel under different tidal conditions as determined using multiple radionuclide tracers[J]. *Journal of Geophysical Research: Oceans*, 2021, 126(3): e2020JC016683.
- [18] 潘玉敏. 烽火角水系设计洪潮水面线计算分析[J]. *广东水利水电*, 2004, 4(4): 58-60.
- PAN Yumin. Calculation of design flood-tide hydraulic grade line of Fenghuojiao Water System[J]. *Guangdong Water Resources and Hydropower*, 2004, 4(4): 58-60(in Chinese).
- [19] 广东省水利厅. 粤西沿海诸河[EB/OL]. (2021-06-28) [2024-03-01]. <http://slt.gd.gov.cn>.
- [20] GAI N, PAN J, YIN X C, et al. Latitudinal distributions of activities in atmospheric aerosols, deposition fluxes, and soil inventories of ^7Be in the East Asian monsoon zone[J]. *Journal of Environmental Radioactivity*, 2015, 148: 59-66.
- [21] 丁敏霞, 苏玲玲, 刘国卿, 等. 深圳市大气 ^7Be 沉降通量与气溶胶沉积速率[J]. *地球化学*, 2017, 46(1): 81-86.
- DING Minxia, SU Lingling, LIU Guoqing, et al. Atmospheric depositional fluxes of ^7Be and depositional velocities of aerosols in Shenzhen[J]. *Geochimica*, 2017, 46(1): 81-86(in Chinese).
- [22] 吴家堡, 李涌, 刘国卿, 等. 深圳市大气 ^{210}Pb 的活度浓度、沉降通量和沉积速率研究[J]. *地球化学*, 2021, 50(2): 219-225.
- WU Jiabao, LI Yong, LIU Guoqing, et al. Activity concentrations, depositional fluxes and deposition velocities of ^{210}Pb in atmospheric aerosols of Shenzhen[J]. *Geochimica*, 2021, 50(2): 219-225(in Chinese).
- [23] HUANG D, DU J, ZHANG J. Particle dynamics of ^7Be , ^{210}Pb and the implications of sedimentation of heavy metals in the Wenjiao/Wenchang and Wanquan River estuaries, Hainan, China[J]. *Estuarine, Coastal and Shelf Science*, 2011, 93: 431-437.
- [24] 黄维, 汪品先. 南海沉积物总量的统计: 方法与结果[J]. *地球科学进展*, 2006, 21(5): 465-473.
- HUANG Wei, WANG Pinxian. The statistics of sediment mass in the South China Sea: Method and result[J]. *Advances in Earth Science*, 2006, 21(5): 465-473(in Chinese).
- [25] 许东, 初凤友, 李家彪, 等. 粤西-琼东北近海沉积物的运移和沉积[J]. *吉林大学学报: 地球科学版*, 2014, 44(3): 905-917.
- XU Dong, CHU Fengyou, LI Jiabiao, et al. Transport and deposition of sediment on the shelf of western Guangdong to northeastern Hainan[J]. *Journal of Jilin University: Earth Science Edition*, 2014, 44(3): 905-917(in Chinese).
- [26] ZHAO G, LU Q, YE S, et al. Assessment of heavy metal contamination in surface sediments of the west Guangdong coastal region, China[J]. *Marine Pollution Bulletin*, 2016, 108(1-2): 268-274.
- [27] 吴良基, 范时清. 珠江口外海区沉积物 ^{210}Pb 波动与沉积环境因子关系研究[J]. *热带海洋*, 1987, 6(3): 1-9.
- WU Liangji, FAN Shiqing. A study on the relation between ^{210}Pb fluctuations and environmental factors of marine sediment off the Pearl River Mouth[J]. *Tropic Oceanology*, 1987, 6(3): 1-9(in Chinese).
- [28] 陈耀泰, 罗章仁. 珠江口现代沉积速率及其反映的沉积特征[J]. *热带海洋*, 1991, 10(2): 57-64.
- CHEN Yaotai, LUO Zhangren. Modern sedimentary ve-

- locity and their reflected sedimentary characteristics in the Pearl River Mouth[J]. *Tropic Oceanology*, 1991, 10(2): 57-64(in Chinese).
- [29] 林瑞芬, 闵育顺, 卫克勤, 等. 珠江口沉积柱状样 ^{210}Pb 法年龄测定结果及其环境地球化学意义[J]. *地球化学*, 1998, 27(5): 401-410.
- LIN Ruifen, MIN Yushun, WEI Keqin, et al. ^{210}Pb -dating of sediment cores from the Pearl River mouth and its environmental geochemistry implication[J]. *Geochimica*, 1998, 27(5): 401-410(in Chinese).
- [30] IP C C M, LI X, ZHANG G, et al. Over one hundred years of trace metal fluxes in the sediments of the Pearl River Estuary, South China[J]. *Environmental Pollution*, 2004, 132(1): 157-172.
- [31] 贾建军, 高抒, 高建华, 等. 珠江口河流输沙、河口沉积与粒度信息之间的联系[J]. *海洋科学进展*, 2005, 23(3): 297-304.
- JIA Jianjun, GAO Shu, GAO Jianhua, et al. Linkage of grain size information with river sediment discharge and estuarine deposition at the Pearl River Estuary[J]. *Advances in Marine Science*, 2005, 23(3): 297-304(in Chinese).
- [32] SHI Q, THOMAS L, PETER R, et al. Geochemical sources, deposition and enrichment of heavy metals in short sediment cores from the Pearl River Estuary, Southern China[J]. *Journal of Marine Systems*, 2010, 82: S28-S42.
- [33] 刘海龄, 吴时国, 魏常兴, 等. 广东台山淤泥质海岸高分辨率地震资料解释[J]. *热带海洋*, 1999, 18(2): 79-83.
- LIU Hailing, WU Shiguo, WEI Changxing, et al. Interpretation on high-resolution seismic survey data along mud coast of Taishan, Guangdong[J]. *Tropic Oceanology*, 1999, 18(2): 79-83(in Chinese).
- [34] ZHANG L, MA Y, CAI M, et al. Chemodynamics of polycyclic aromatic hydrocarbons and their alkylated and nitrated derivatives in the Yellow Sea and East China Sea[J]. *Environmental Science & Technology*, 2023, 57(48): 20292-20303.
- [35] CHEN C, LIN T, SUN X, et al. Spatiotemporal distribution and particle-water partitioning of polycyclic aromatic hydrocarbon in Bohai Sea, China[J]. *Water Research*, 2023, 244: 120440.
- [36] LIU M, CHEN M, DUAN M, et al. Particulate export of PAHs firstly traced by $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$ disequilibrium: Implication on the "Shelf Sink Effect" in the Arctic Ocean[J]. *Journal of Geophysical Research: Oceans*, 2021, 126(8): e2021JC017384.
- [37] GUSTAFSSON O, GSCHWEND P M, BUESSELER K O, et al. Settling removal rates of PCBs into the north-western Atlantic derived from ^{238}U - ^{234}Th disequilibria[J]. *Environmental Science and Technology*, 1997, 31(12): 3544-3550.