

张晓洁, 许博超, 夏冬, 等. 镭、氡同位素示踪调水调沙对黄河口水体运移及营养盐分布特征的影响[J]. 海洋学报, 2016, 38(8): 36-43. doi:10.3969/j.issn.0253-4193.2016.08.004

Zhang Xiaojie, Xu Bochao, Xia Dong, et al. Using natural radium and radon isotopes trace the water transport process and nutrients distribution in the Yellow River Estuary under the influence of the Water-Sediment Regulation Scheme[J]. Haiyang Xuebao, 2016, 38(8): 36-43. doi:10.3969/j.issn.0253-4193.2016.08.004

# 镭、氡同位素示踪调水调沙对黄河口水体运移及营养盐分布特征的影响

张晓洁<sup>1,2,3</sup>, 许博超<sup>1,2,3\*</sup>, 夏冬<sup>4,5</sup>, 江雪艳<sup>1,2,3</sup>, 简慧敏<sup>1</sup>

(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. 中国海洋大学 环境科学与工程学院, 山东 青岛 266100; 5. 中国科学院生态环境研究中心, 北京 100085)

**摘要:** 为研究调水调沙影响下的镭、氡同位素和营养盐在黄河口的分布特征, 于 2013 年 7 月调水调沙期间在黄河口及其邻近海域进行了多点的连续观测。研究发现: (1) 黄河口海域镭、氡同位素分布呈现明显的“分区”现象, 南北两区分别为“调水调沙影响非显著区域”和“调水调沙影响显著区域”, 北部海域镭、氡同位素浓度高值主要来源于陆源输入(包括河流输入和海底地下水排放); (2) 调查期间, 北部海域水体年龄为(2.9±1.6)d, 南部海域水体年龄为(5.0±2.1)d; 水龄随潮汐变化表现出涨潮时水龄增大、落潮时水龄减小的波动趋势; (3) 北部海域溶解无机氮(DIN)和溶解硅(DSi)含量明显高于南部海域, 而溶解无机磷(DIP)在两个区域的含量相差不大。

**关键词:** 黄河口; 调水调沙; 镭同位素; 氡同位素; 营养盐

中图分类号: P734.2

文献标志码: A

文章编号: 0253-4193(2016)08-0036-08

## 1 引言

近二三十年来, 由于受气候变化和人类活动的双重影响, 黄河水少沙多、水沙不协调的矛盾日趋严重, 黄河径流量和输沙量锐减、河道和水库淤积、河口湿地面积萎缩等问题十分突出。为解决黄河的水沙矛盾, 扩大河道及水库的行洪能力, 黄河水利委员会于 2002 年 7 月开始实施“黄河调水调沙计划”<sup>[1]</sup>。这是世界水利史上最大规模的、以人工方式调节河流水沙关系的成功案例。调水调沙期间, 通过联合调度刘家

峡、三门峡、小浪底等多个水库形成人造洪峰, 冲刷黄河下游河道, 从而在短时间内将大量的水沙及其携带的陆源物质集中排放入海, 必将给黄河口海域的生态环境带来重大影响。

调水调沙对河口水体的交换能力有显著地促进作用, 对营养盐在河口的输送过程有重大影响<sup>[2]</sup>。姚庆祯等<sup>[3]</sup>研究发现黄河首次调水调沙在短短不到 1 个月的时间内, 其输送的营养盐通量占全年营养盐通量的一半左右。由此可见, 调水调沙导致的强脉冲式的排泄对黄河的物质输送模式产生了重大影响<sup>[4]</sup>。

收稿日期: 2015-12-19; 修订日期: 2016-02-19。

基金项目: 国家自然科学基金(41576075, 41206064, 41376085); 山东省自然科学基金(ZR2012DQ002); 青岛市科技计划基础研究项目(13-1-4-224-jch)。

作者简介: 张晓洁(1989—), 女, 河南省新乡市人, 主要从事同位素海洋学研究。E-mail: ouczxj@163.com

\* 通信作者: 许博超, 男, 副教授, 主要从事同位素海洋学研究。E-mail: xubc@ouc.edu.cn

那么,调水调沙对黄河口水体运移和陆源物质的分布又会有着怎样的影响?这是一个值得研究的重要问题。基于上述认识,本研究分析了调水调沙期间黄河口海域镭、氡同位素及营养盐的分布特征,进而运用“镭同位素表观年龄”模型,量化了调水调沙期间黄河口海域水体运移过程,并分析了水体表观年龄随潮汐的波动趋势,为评价大型水利工程对河口的影响、制定合理的生态环境保护措施提供科学依据。

## 2 材料与方法

于2013年7月6—14日,在黄河口邻近海域的4个站点(A、B、C、D)分别进行周日连续观测,采样站位如图1所示。各连续站每2h采集一次表层水体样品,用于水体中悬浮颗粒物浓度(SPM)、溶解态镭同位素和营养盐的分析,氡同位素数据通过现场走航连续测定而得。

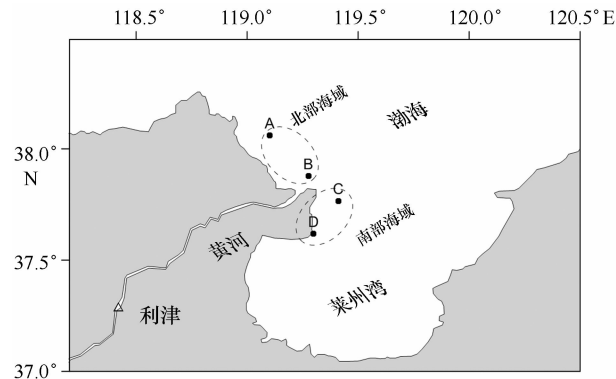


图1 2013年7月调水调沙期间黄河口邻近海域采样站位  
Fig. 1 Seawater sampling map during Water-Sediment Regulation Scheme (WSRS) in the Yellow River Estuary in July 2013

(1) 镭同位素:采集80L表层水样,以不大于2L/min的流速通过适量锰纤维(约20g),定量富集水体中的镭同位素<sup>[5]</sup>。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100%,用镭同步延时计数器(RaDeCC)测定<sup>223</sup>Ra、<sup>224</sup>Ra和<sup>226</sup>Ra,测定误差小于±10%。测定方法及注意事项详见文献<sup>[6—7]</sup>。

(2) 氡同位素:利用RAD7-AQUA技术测定水面以下0.5m处水体中的氡同位素浓度,测定误差由仪器计数产生的统计误差(±1σ)确定。仪器的参数设定、数据的温盐校正等注意事项详见文献<sup>[8—10]</sup>。

(3) 营养盐:采集表层水样约0.5L后,立即以0.45 μm的醋酸纤维滤膜过滤。滤液分装于2个100mL的聚乙烯瓶中,一份于-20℃条件下冷冻保存,用

于硝酸盐、亚硝酸盐、铵盐、磷酸盐等分析;另一份加入两滴氯仿后常温保存,用于硅酸盐的测定。利用营养盐自动分析仪(BRAN+LUEBBE)对样品进行分析,测定方法详见文献<sup>[11]</sup>,测定误差小于±3%。

(4) 悬浮颗粒物:采集100mL水样,用已称重的0.45 μm醋酸纤维滤膜过滤,收集水体中的悬浮颗粒物(SPM),放入膜盒中冷冻保存。回到实验室后,于60℃的烘箱中烘至恒重,用质量法测定SPM浓度。

除上述样品的采集和分析以外,本研究还利用卫星图像对研究区域的水体输运状况进行分析。根据美国地质调研局(USGS)网站提供的LANDSAT系列卫星资料,利用ENVI4.7版软件进行数据处理及相应波段(4-3-2或5-4-3)假彩色合成。在LANDSAT系列卫星中,应用最广的是LANDSAT 5卫星(1984年发射)、LANDSAT 7卫星(1999年发射)和LANDSAT 8(2013年发射)提供的“TM/ETM+”数据,卫星资料发布周期为16d。

## 3 结果与讨论

### 3.1 镭、氡同位素分布特征及其影响因素

2013年调水调沙期间,黄河口及其邻近海域水体盐度与天然镭、氡同位素浓度的分布如图2所示。由图可见,对比A、B站位所在的河口北部海域与C、D站位所在的南部海域,水体的盐度以及镭、氡同位素浓度均具有显著差异。北部海域的盐度较低,连续观测数据的平均值为 $(19.7 \pm 2.01)$  ( $n=23$ );镭、氡同位素的浓度较高,<sup>224</sup>Ra、<sup>226</sup>Ra和<sup>222</sup>Rn的浓度分别为 $(300.2 \pm 84.1)$  dpm/100L ( $n=23$ ),  $(83.0 \pm 18.1)$  dpm/100L ( $n=23$ )和 $(275.2 \pm 136.2)$  dpm/100L ( $n=23$ )。南部海域的盐度平均值为 $(24.8 \pm 1.8)$  ( $n=27$ ),较北部海域高约25%;而镭、氡同位素的浓度却仅为北部海域的25%到50%,<sup>224</sup>Ra、<sup>226</sup>Ra和<sup>222</sup>Rn浓度分别为 $(78.9 \pm 43.6)$  dpm/100L ( $n=27$ ),  $(32.4 \pm 6.2)$  dpm/100L ( $n=27$ )和 $(113.04 \pm 28.8)$  dpm/100L ( $n=27$ )。前期研究发现,2013年调水调沙期之前(5月份)黄河口海域表层水体中<sup>224</sup>Ra、<sup>226</sup>Ra的平均浓度分别为 $(53.0 \pm 30.0)$  dpm/100L ( $n=18$ )、 $(20.0 \pm 4.0)$  dpm/100L ( $n=16$ )<sup>[12]</sup>。与之相比,调水调沙期间河口海域的各种镭同位素浓度均有明显增加。

相比于南部海域,具有低盐、高镭氡核素特点的北部海域受调水调沙事件的影响更为显著。调水调沙期间,黄河的径流量基本保持在3000 m<sup>3</sup>/s以上,最高可达3560 m<sup>3</sup>/s,而调水调沙之前的黄河径流量

却不足  $300 \text{ m}^3/\text{s}$ 。大量的淡水输入必然使其承泄区的盐度显著低于周围海域。2013 年调水调沙期间黄河下游利津水文站的 $^{224}\text{Ra}$ 、 $^{226}\text{Ra}$  浓度分别为  $(61.0 \pm 3.0) \text{ dpm}/100 \text{ L}$  ( $n=6$ )、 $(10.0 \pm 1.0) \text{ dpm}/100 \text{ L}$  ( $n=6$ )<sup>[12]</sup>, 仅为本研究北部海域水体中镭同位素浓度的  $10\% \sim 30\%$ 。显然, 在河水由利津到黄河口海域的运移过程中, 必定有其他镭源向水体中添加了溶解镭, 例如悬浮颗粒物解吸和海底地下水排放 (SGD) 等。研究表明, 由于河口水体的盐度高、离子强度大, 水体中的钙、镁等碱土金属离子对悬浮颗粒物上镭的竞争吸附将导致镭同位素大量解吸, 并在河口的中盐度海区形成了镭的浓度峰值<sup>[13-14]</sup>。本研究发现, 黄河泥沙量在调水调沙期间大大增加, 河水的 SPM 浓度从之前的  $2 \text{ g/L}$  增加到  $15 \text{ g/L}$ <sup>[12]</sup>, 这些悬浮颗粒物在黄河口附近海域遇到高盐度水体时发生镭的解吸, 这必然是导致调水调沙期间河口水体中镭同位素浓度

高值的原因之一。值得注意的是, 虽然镭同位素的浓度在研究区域的北部海域较高, 但其与 SPM 浓度并未表现出预期的正相关关系 (图 3)。产生该现象的原因可能有如下几点: (1) 由于调水调沙期间黄河的水动力条件较强, 河口及其北部海域的悬浮颗粒物可能含有大量的原位再悬浮的“老”沉积物, 这些颗粒物表面的镭的解吸过程已经进行的比较充分, 它们的加入相当于对河流带来的“新鲜”颗粒物的“稀释”。(2) 可能有其他更重要的镭源控制着海水中的镭浓度, 例如海底地下水排放 (SGD)。近年来, 越来越多的研究表明 SGD 是河口镭同位素的重要来源<sup>[15-17]</sup>, 而黄河口的 SGD 现象也是不容忽视的, 其通量在非调水调沙期间即可达到同期黄河径流量的 3 倍以上<sup>[18-20]</sup>, 调水调沙期间的 SGD 通量更是明显增强了数倍<sup>[9,12]</sup>, 由其携带入海的大量镭同位素将是黄河口海域水体中镭浓度高值的另一原因。

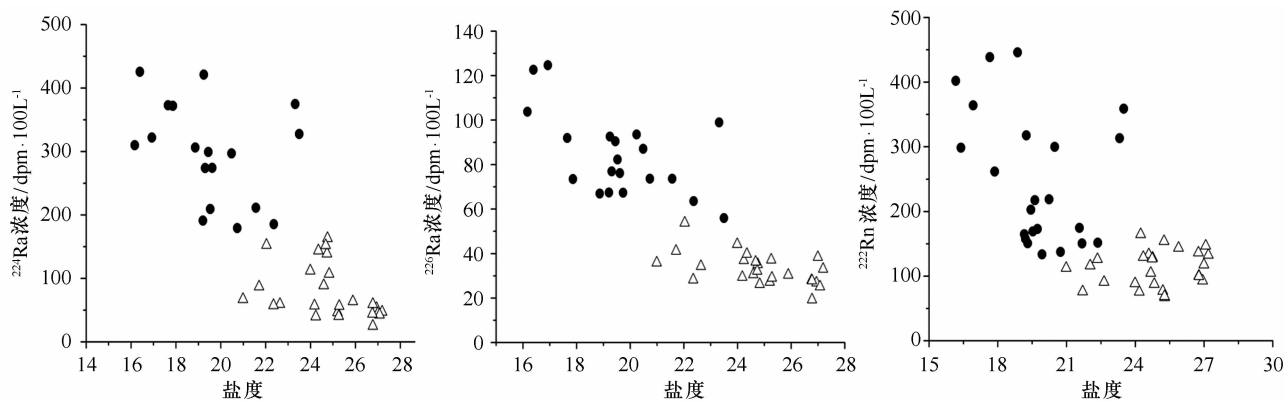


图 2 2013 年调水调沙期间黄河口邻近海域镭、氡同位素浓度随盐度的分布

Fig. 2 The distribution of radium and radon isotopes vs salinity under the influence of WSRS in the Yellow River Estuary in 2013

实心黑点表示北部海域, 空心三角形表示南部海域

Black solid dots represent data of the north area, and open triangles are data from the south area

### 3.2 镭同位素示踪黄河口水龄分布特征

为量化调水调沙期间黄河口海域水体运移过程, 本研究采用“镭同位素表观年龄模型”来计算河口水体的表观水龄。表观水体年龄指的是镭同位素离开镭源进入水体后, 在随水体运移过程中所经历的时间<sup>[21]</sup>, 计算公式如下:

$$t = \ln \left[ \frac{(Ra_{\text{short}}/Ra_{\text{long}})_{\text{obs}}}{(Ra_{\text{short}}/Ra_{\text{long}})_i} \right] / (\lambda_{\text{long}} - \lambda_{\text{short}}), \quad (1)$$

式中,  $t$  为水体表观年龄。  $(Ra_{\text{short}}/Ra_{\text{long}})_{\text{obs}}$  代表观测点处的短半衰期镭同位素与长半衰期镭同位素的浓度比值。  $(Ra_{\text{short}}/Ra_{\text{long}})_i$  代表镭源处的短半衰期镭

同位素与长半衰期镭同位素的浓度比值。  $\lambda_{\text{long}}$  和  $\lambda_{\text{short}}$  分别表示长、短半衰期镭同位素衰变系数。河口的水动力过程通常发生在从几天到几周的时间尺度上, 故本研究采用短时间尺度上的  $^{224}\text{Ra}/^{223}\text{Ra}$  组合。将  $^{224}\text{Ra}/^{223}\text{Ra}$  看作一个整体, 其表观半衰期为  $5.39 \text{ d}$ <sup>[22]</sup>。该模型成立的假设为: (1) 研究体系的镭源具有稳定的  $^{224}\text{Ra}/^{223}\text{Ra}$  比值; (2) 外海端源具有可以忽略的  $^{223}\text{Ra}$ 、 $^{224}\text{Ra}$  浓度值; (3) 水体运移过程中,  $^{224}\text{Ra}$ 、 $^{223}\text{Ra}$  的浓度仅受衰变和混合的影响, 没有其他因素导致添加或损失。

该模型通常将航次调查中观测到的  $^{224}\text{Ra}/^{223}\text{Ra}$

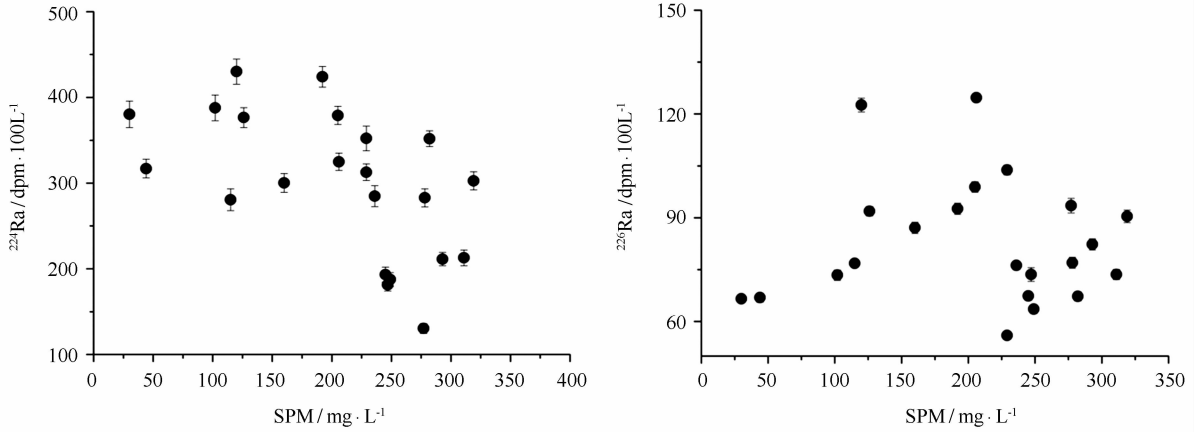


图3 2013年调水调沙期间黄河口北部海域镭同位素浓度与SPM浓度关系

Fig. 3 Relationships of radium isotopes with SPM during WSRS in the north area of Yellow River Estuary in 2013

最大值所处海域等效为镭源<sup>[18]</sup>,本研究的<sup>224</sup>Ra/<sup>223</sup>Ra最大值出现在口门附近的B站位。在周日连续观测中,B站位<sup>224</sup>Ra/<sup>223</sup>Ra变化范围在32.2~60.6之间(图4a),平均值为 $43.5 \pm 8.7$ ( $n=12$ ),由此造成的表观年龄不确定值为1.2 d。通常认为研究体系镭源的年龄波动在2~3 d之内,即可认为满足“研究体系的

镭源具有稳定的<sup>224</sup>Ra/<sup>223</sup>Ra比值的假设<sup>[21]</sup>。随着河口水体向外输运,水体中的悬浮颗粒物迅速减少<sup>[23-24]</sup>,水体层化也越加明显<sup>[9]</sup>,因缺少了母体钍核素的衰变支持和底层沉积物的扩散影响,外海水中的短半衰期镭同位素通常是可以忽略的<sup>[18]</sup>。

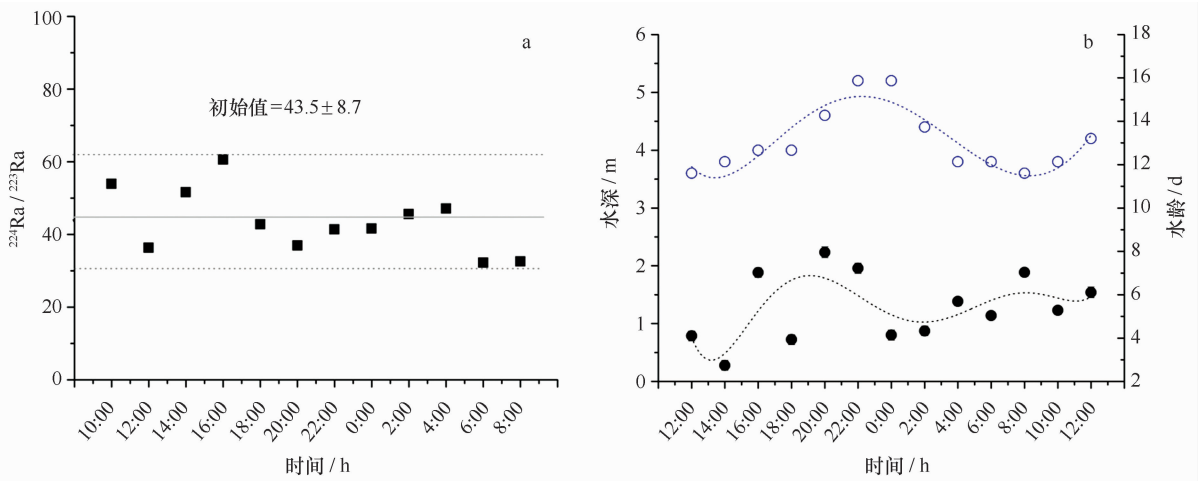


图4 a. 2013年调水调沙期间黄河口海域B站位<sup>224</sup>Ra/<sup>223</sup>Ra比值随时间的变化。实线表示<sup>224</sup>Ra/<sup>223</sup>Ra比值的平均值,虚线表示<sup>224</sup>Ra/<sup>223</sup>Ra比值的标准偏差( $\pm 1\sigma$ ); b. 2013年调水调沙期间D站位水深和水龄随时间的变化

Fig. 4 a. Variations of <sup>224</sup>Ra/<sup>223</sup>Ra with time at Station B during WSRS in 2013. Solid line represents the average <sup>224</sup>Ra/<sup>223</sup>Ra ratio, and dotted lines represent standard deviation ( $\pm 1\sigma$ ). b. Variations of water depth and water ages with time during WSRS at Station D in 2013

黑色实心点表示水体年龄,蓝色空心点表示水深

Black solid dots represent water ages, and blue open dots represent water depth

经计算,2013年调水调沙期间,黄河口海域A站位水龄为 $(2.9 \pm 1.6)$  d, C、D站位水龄为 $(5.0 \pm 2.1)$  d。由水龄的分布可以看出,调水调沙期间黄河径流

出口门后经历大约2~3 d到达A站位所在北部海域,而到达C和D站位所在南部海域大约需要1周左右的时间。由此说明,调水调沙期间黄河冲淡水的主

流方向是北方,其对莱州湾及其邻近海域影响较小。同时,由于潮汐、海浪的影响,调水调沙期间河口海域的水体发生向岸、离岸的往复运动,导致水体的表观年龄随之变化,呈现出高潮时水龄增大、落潮时水龄减小的周日变动趋势。以 D 站位为例(如图 4b 所示),涨潮时由于潮汐、流场的阻碍,水体的表观水龄可达 8 d 左右;退潮时,由于潮水退去,近岸水体能够更容易、更迅速地到达外海,故水龄减小,最小仅有 3 d 左右。

卫星成像技术显示的黄河口海域的水色分布特征也说明了这一点。如图 5 所示,2013 年 6 月 15 日,



图 5 2013 年 6 月 15 日调水调沙之前黄河口海域的水色分布卫星图

Fig. 5 Satellite map of water colour distribution before WSRS in the Yellow River Estuary on June 15, 2013

### 3.3 营养盐的来源及分布

3 种可溶性无机营养盐在北部和南部海域的含量相差较大(表 1),呈现出明显的“分区”现象。其中又以 DIN 和 DSi 更为明显,即北部海区的 DIN 和 DSi 含量明显高于南部海域。相比于南部海域,北部海域 DIN 和 DSi 浓度与<sup>222</sup>Rn 浓度呈现出一定的正相关关系,并且与盐度呈现出负相关关系(图 6),因此推测该海域 DIN 和 DSi 与<sup>222</sup>Rn 可能具有相同的来源,如河流、SGD 等。DIP 在两个海域中的含量相差不大,且

即在黄河调水调沙开始前约一周,黄河口海域中河流冲淡水主要向东偏北的方向流动,而后又向东延伸,仅有少量水体在口门处向南流动,这与水龄示踪的研究结果相吻合。前期研究发现,2013 年调水调沙期之前(5 月份)黄河口水体表观年龄为 $(6.8 \pm 1.8)$  d<sup>[12]</sup>。对比调水调沙前和调水调沙期间的水体年龄可以看出,调水调沙的实施会明显加剧黄河口海域水体运移过程,扩大黄河冲淡水在北部海域的影响范围,导致口门南北两侧海域物质输送和分配存在显著差异,这也是造成河口邻近海域水体呈现出“分区”特点的重要原因。

与<sup>222</sup>Rn 以及盐度都没有表现出相关性。推测这可能是由于磷酸盐的含量较低,且受控于河口区更为复杂的地球化学过程所致。由于磷酸盐与悬浮颗粒物之间存在固-液界面的吸附-解吸作用,磷酸盐在河口具有缓冲现象<sup>[25-26]</sup>,即河口悬浮颗粒物能从富含磷酸盐的水体吸附磷酸盐,而后又能在低浓度水体中释放磷酸盐出来,这样就会使观测海域水体中的磷酸盐浓度维持在一个相对稳定的范围之内<sup>[27]</sup>。

表 1 2013 年调水调沙期间黄河口海域 3 种营养盐浓度

Tab. 1 Concentrations of three kinds of nutrients during WSRS in the Yellow River Estuary in 2013

营养盐	DIN 浓度/ $\mu\text{mol} \cdot \text{L}^{-1}$	DSi 浓度/ $\mu\text{mol} \cdot \text{L}^{-1}$	DIP 浓度/ $\mu\text{mol} \cdot \text{L}^{-1}$
北部海域( $n=26$ )	$42.4 \pm 21.1$	$28.8 \pm 12.2$	$0.04 \pm 0.03$
南部海域( $n=27$ )	$19.6 \pm 7.9$	$6.4 \pm 3.9$	$0.02 \pm 0.01$

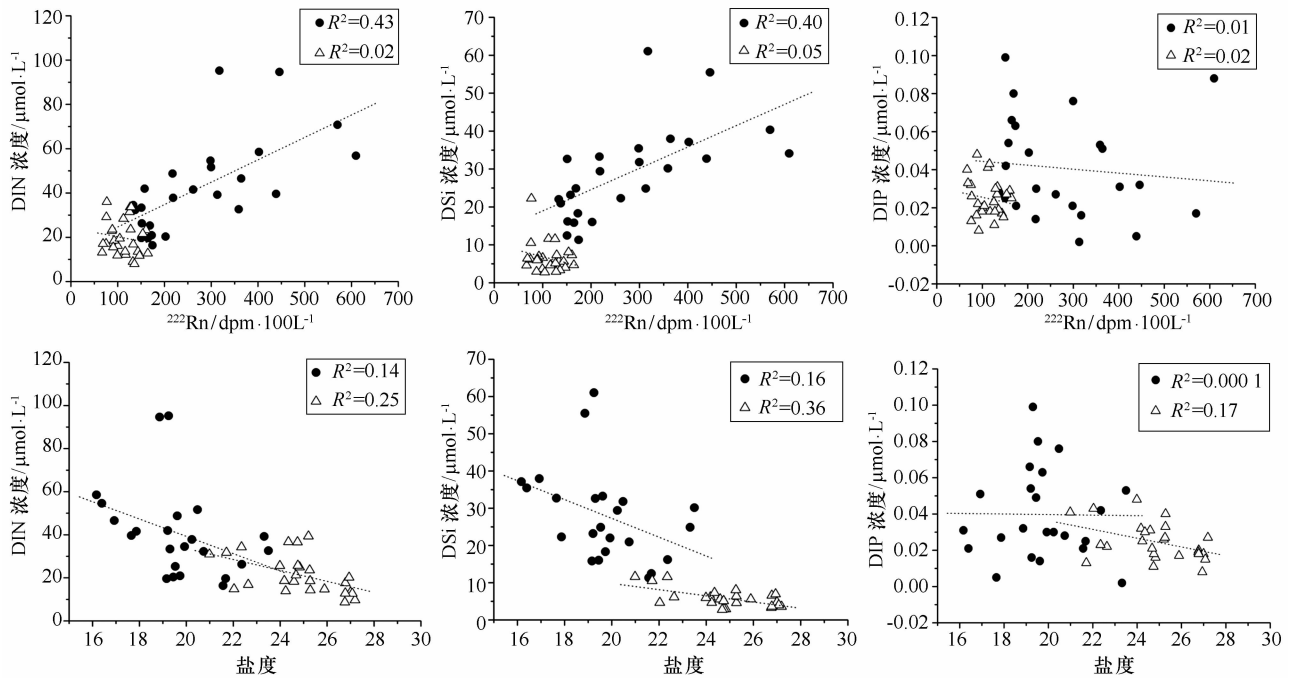


图6 2013年调水调沙期间黄河口海域3种营养盐浓度与 $^{222}\text{Rn}$ 浓度及盐度的相关关系  
Fig. 6 Nutrients versus  $^{222}\text{Rn}$  and salinity during WSRs in the Yellow River Estuary in 2013

实心黑点代表北部海域,空心三角形代表南部海域

Black solid dots and open triangles are data from the north area and south area, respectively

## 4 结论

(1)2013年黄河调水调沙期间,黄河口及其邻近海域镭、氡同位素的分布呈现出明显的“分区”现象,即黄河口南北海域分别为“调水调沙影响非显著区域”和“调水调沙影响显著区域”。在“调水调沙影响显著区域”内,镭、氡同位素的浓度高值主要来源于河流和地下水等陆源排放。

(2)调查期间,黄河口北部海域水体的表观年龄为 $(2.9 \pm 1.6)\text{d}$ ,南部海域水体的表观年龄为 $(5.0 \pm$

$2.1)\text{d}$ ,即黄河冲淡水在调水调沙期间主要向北方流动。受潮汐影响,河口水体的表观年龄呈现出涨潮时水龄增大、落潮时水龄减小的周日变动趋势。

(3)调水调沙期间黄河口海域中DIN和DSi的“分区”现象比较明显,北部海域DIN和DSi含量远大于南部区域;但是DIP的“分区”现象不明显。

**致谢:**中国海洋大学王厚杰教授提供航次支持,刘吉鑫、刘军、徐厚芹协助进行现场采样,谨致谢忱。

## 参考文献:

- [1] 毕乃双, 杨作升, 王厚杰, 等. 黄河调水调沙期间黄河入海水沙的扩散与通量[J]. 海洋地质与第四纪地质, 2010(2): 27-34.  
Bi Naishuang, Yang Zuosheng, Wang Houjie, et al. Characteristics of dispersal of the Yellow River water and sediment to the sea during Water-Sediment Regulation period of the Yellow River and its dynamic mechanism[J]. Marine Geology & Quaternary Geology, 2010(2): 27-34.
- [2] 王玉成. 黄河调水影响下河口区盐度分布的观测与模拟研究[D]. 青岛: 中国海洋大学, 2010.  
Wang Yucheng. Study on response of salinity distribution around the Yellow River mouth to abrupt change in river discharge with *in situ* observation and numerical simulation[D]. Qingdao: Ocean University of China, 2010.
- [3] 姚庆祯, 于志刚, 王婷, 等. 调水调沙对黄河下游营养盐变化规律的影响[J]. 环境科学, 2009, 30(12): 3534-3540.  
Yao Qingzhen, Yu Zhigang, Wang Ting, et al. Effect of the first Water-Sediment Regulation on the variations of dissolved inorganic nutrients' concentrations and fluxes in the lower main channel of the Yellow River[J]. Environmental Science, 2009, 30(12): 3534-3540.
- [4] Wang H J, Yang Z S, Bi N S, et al. Rapid shifts of the river plume pathway off the Huanghe (Yellow) River mouth in response to Water-Sediment Regulation Scheme in 2005[J]. Chinese Science Bulletin, 2005, 50(24): 2878-2884.
- [5] Veeh H H, Moore W S, Smith S V. The behaviour of uranium and radium in an inverse estuary[J]. Continental Shelf Research, 1995, 15(13):

1569—1583.

- [6] Moore W S, Arnold R. Measurement of  $^{223}\text{Ra}$  and  $^{224}\text{Ra}$  in coastal waters using a delayed coincidence counter[J]. *Journal of Geophysical Research*, 1996, 101(C1): 1321—1329.
- [7] Waska H, Kim S, Kim G, et al. An efficient and simple method for measuring  $^{226}\text{Ra}$  using the scintillation cell in a delayed coincidence counting system (RaDeCC)[J]. *Journal of Environmental Radioactivity*, 2008, 99(12): 1859—1862.
- [8] 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.
- [9] Xu B C, Xia D, Burnett W C, et al. Natural  $^{222}\text{Rn}$  and  $^{220}\text{Rn}$  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.
- [10] Schubert M, Paschke A, Lieberman E, et al. Air-water partitioning of  $^{222}\text{Rn}$  and its dependence on water temperature and salinity[J]. *Environmental Science & Technology*, 2012, 46(7): 3905—3911.
- [11] Grasshoff K, Kremling K, Ehrhardt M. *Methods of Seawater Analysis*[M]. 3rd ed. New York: John Wiley & Sons, 1999.
- [12] 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.
- [13] Li Y H, Chan L H. Desorption of Ba and  $^{226}\text{Ra}$  from river-borne sediments in the Hudson estuary[J]. *Earth and Planetary Science Letters*, 1979, 43(3): 343—350.
- [14] Dulaiova H, Burnett W C. Evaluation of the flushing rates of Apalachicola Bay, Florida via natural geochemical tracers[J]. *Marine Chemistry*, 2008, 109(3/4): 395—408.
- [15] Moore W S. Large groundwater inputs to coastal waters revealed by  $^{226}\text{Ra}$  enrichments[J]. *Nature*, 1996, 380(6575): 612—614.
- [16] Swarzenski P W, Reich C, Kroeger K D, et al. Ra and Rn isotopes as natural tracers of submarine groundwater discharge in Tampa Bay, Florida [J]. *Marine Chemistry*, 2007, 104(1/2): 69—84.
- [17] Charette M A, Moore W S, Burnett W C. Uranium-and thorium-series nuclides as tracers of submarine groundwater discharge[J]. *Radioactivity in the Environment*, 2008, 13: 155—191.
- [18] Peterson R N, Burnett W C, Taniguchi M, et al. Radon and radium isotope assessment of submarine groundwater discharge in the Yellow River delta, China[J]. *Journal of Geophysical Research*, 2008, 113(C9): C09021.
- [19] Taniguchi M, Ishitobi T, Chen J Y, et al. Submarine groundwater discharge from the Yellow River delta to the Bohai Sea, China[J]. *Journal of Geophysical Research*, 2008, 113(C6): C06025.
- [20] 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.
- [21] Moore W S. Ages of continental shelf waters determined from  $^{223}\text{Ra}$  and  $^{224}\text{Ra}$ [J]. *Journal of Geophysical Research*, 2000, 105(C9): 22117—22122.
- [22] Moore W S, Krest J. Distribution of  $^{223}\text{Ra}$  and  $^{224}\text{Ra}$  in the plumes of the Mississippi and Atchafalaya Rivers and the Gulf of Mexico[J]. *Marine Chemistry*, 2004, 86(3/4): 105—119.
- [23] 孙效功, 杨作升, 陈彰榕. 现行黄河口海域泥沙冲淤的定量计算及其规律探讨[J]. *海洋学报*, 1993, 15(1): 129—136.  
Sun Xiaogong, Yang Zuosheng, Chen Zhangrong. Quantitative calculation and law discussing for sediment erosion and siltation in river mouth of Yellow River[J]. *Haiyang Xuebao*, 1993, 15(1): 129—136.
- [24] 张向上. 黄河口碳运输过程及其对莱州湾的影响[D]. 青岛: 中国海洋大学, 2007.  
Zhang Xiangshang. The transport of inorganic and organic carbon in the Yellow River estuary and its effect on Laizhou Bay[D]. Qingdao: Ocean University of China, 2007.
- [25] 于立霞, 简慧敏, 王兆锬, 等. 夏季辽河口各形态营养盐的河口混合行为[J]. *海洋科学*, 2011, 35(12): 68—74.  
Yu Lixia, Jian Huimin, Wang Zhaokun, et al. The mixing behavior of nutrients in summer at Liaohu Estuary[J]. *Marine Sciences*, 2011, 35(12): 68—74.
- [26] 石晓勇, 史致丽. 黄河口磷酸盐缓冲机制的探讨Ⅲ. 磷酸盐交叉缓冲图及“稳定 pH 范围”[J]. *海洋与湖沼*, 2000, 31(4): 441—447.  
Shi Xiaoyong, Shi Zhili. Discussion of phosphate buffer mechanism in Huanghe river estuary Ⅲ. Cross over buffer plot of phosphate and “stable pH range”[J]. *Oceanologia et Limnologia Sinica*, 2000, 31(4): 441—447.
- [27] 张正斌, 陈镇东, 刘莲生, 等. *海洋化学原理和应用——中国近海的海洋化学*[M]. 北京: 海洋出版社, 1999.  
Zhang Zhengbin, Chen Zhendong, Liu Liansheng, et al. *Principles and Applications of Marine Chemistry—China's Offshore Marine Chemistry* [M]. Beijing: China Ocean Press, 1999.

# Using natural radium and radon isotopes trace the water transport process and nutrients distribution in the Yellow River Estuary under the influence of the Water-Sediment Regulation Scheme

Zhang Xiaojie<sup>1,2,3</sup>, Xu Bochao<sup>1,2,3</sup>, Xia Dong<sup>4,5</sup>, Jiang Xueyan<sup>1,2,3</sup>, Jian Huimin<sup>1</sup>

(1. *Key Laboratory of Marine Chemistry Theory and Technology, Ministry of Education, Ocean University of China, 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. *College of Environmental Science and Engineering, Ocean University of China, Qingdao 266100, China*; 5. *Research Center for Eco-Environmental Sciences, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100085, China.*)

**Abstract:** In order to study the distribution of radium isotopes, radon isotopes and nutrients under the influence of the Water-Sediment Regulation Scheme (WSRS) in the Yellow River Estuary. We carried out 24 h time-series observations at several stations in the estuary and coastal areas in July 2013. The results indicate that: (1) the distributions of radium isotopes and radon isotopes at south side were both different from which in the north side of the estuary, leading the estuary to be divided into two zones. The north zone was under a remarkable influence of WSRS and the south zone was under little influence of WSRS, respectively. High concentrations of radium and radon isotopes in the north zone were mainly due to terrestrial input, such as river discharge and submarine groundwater discharge. (2) Water ages in the north zone was  $(2.9 \pm 1.6)$ d, which in the south zone was  $(5.0 \pm 2.1)$ d. Water ages increased with rising tide and decreased with falling tide. (3) Dissolved inorganic nitrogen (DIN) and dissolved silicate (DSi) distribution also showed zonation characteristics, which concentrations were significantly higher in north area. The concentrations of dissolved inorganic phosphorus (DIP), however, were not distinct in the whole study area.

**Key words:** Yellow River Estuary; Water-Sediment Regulation Scheme; radium isotope; radon isotope; nutrients