

水位波动下的呼伦湖上覆水体与沉积物间隙水之间溶质的运移特征*

高宏斌, 李畅游**, 孙 标, 史小红, 赵胜男, 樊才睿

(内蒙古农业大学水利与土木建筑工程学院, 呼和浩特 010018)

摘 要: 为了探求内蒙古呼伦湖上覆水体和沉积物间隙水之间溶质运移机制, 对呼伦湖的 1 个沉积物柱芯的间隙水、3 个湖泊水体以及湖周边 7 个地下水体中的氯离子 (Cl^-), 氢、氧稳定同位素 (δD 和 $\delta^{18}\text{O}$) 分别进行分析测试, 并利用其示踪性对沉积物中溶质运移特征进行研究. 结果显示, δD 、 $\delta^{18}\text{O}$ 和 Cl^- 浓度在不同水体中的分布具有相似分布规律, 整体上从底部沉积物到上部湖水浓度分布呈现逐渐递减的抛物线趋势, 在间隙水中最大值位于所取沉积物柱芯的最深处, Cl^- 浓度为 306 mg/L, δD 和 $\delta^{18}\text{O}$ 分别为 -58‰ 和 -5.9‰ ; 最小值位于沉积物柱芯上层, 并与上覆水体中的值相似, Cl^- 浓度为 159 mg/L, δD 和 $\delta^{18}\text{O}$ 分别为 -66‰ 和 -7.3‰ . 为了明确沉积物柱芯中间隙水的高浓度 Cl^- 和偏正 δD 、 $\delta^{18}\text{O}$ 的来源, 比较不同水体的 $\delta^{18}\text{O}$ - δD 关系点分布, 表明含有偏正值的 δD 、 $\delta^{18}\text{O}$ 和高浓度 Cl^- 的间隙水与上覆湖水关系密切, 可能是由于低水位时期湖水与间隙水相互发生扩散作用而产生的结果. 一维对流扩散迁移模型证实扩散作用是控制着沉积物间隙水中溶质浓度在垂向上分布的主要机制, 同时湖水水位的变化会影响沉积物间隙水与上覆水体的扩散过程, 特别是在水位上升期, 富集在沉积物中的溶质可能成为湖水的重要物质来源, 影响上覆水体的水质. 因此, 对于封闭湖泊水位的控制和管理不仅在维持湖泊水量方面有着直接的作用, 同时在稳定湖泊水质条件上也有着重要的意义.

关键词: 溶质运移; 氯离子; 氢氧同位素; 沉积物间隙水; 上覆水体; 水位波动; 呼伦湖

Solutes transport between lake water and sediment pore water during the lake water level fluctuation in Lake Hulun

GAO Hongbin, LI Changyou, SUN Biao, SHI Xiaohong & FAN Cairui

(College of Water Conservancy and Civil Engineering, Inner Mongolia Agricultural University, Hohhot 010018, P.R.China)

Abstract: To get a better understanding of the solutes transport between overlying lake water and sediment pore water, several water samples from sediment core, lake, wells around the lake were sampled, stable isotopes (oxygen-18, deuterium) and chloride were analyzed and used as tracers to identify the mechanism of solutes transportation through the sediment in Lake Hulun, China. The results showed that the distribution of chloride has the same characters with isotopic compositions in sediment pore water. The highest values (306 mg/L for Cl^- , -58‰ for δD , -5.9‰ for $\delta^{18}\text{O}$, respectively) in pore water located in the bottom of the core, however, the lowest values (159 mg/L for Cl^- , -66‰ for δD , -7.3‰ for $\delta^{18}\text{O}$, respectively) exist at top of the core and similar with that in overlying lake water. The well waters have the lower values (18 mg/L to 79 mg/L for Cl^- , -13.3‰ to -11.4‰ and -101‰ to -87‰ for $\delta^{18}\text{O}$ and δD). Such difference between well water and pore water may illustrate that pore water in this shallow core was not affected by underlying groundwater, the high concentration of chloride and more positive isotopic compositions in pore water only result from surface water evaporation. Furthermore, combined with field data of historic chloride concentration of lake water, pore water with high concentration of chloride and more positive isotopic compositions is likely from the lake water during period of the lowest water level. The diffusive model results suggest the variations of chloride concentration with time in pore water reflect the transport mechanism in this study. In the period of 1941 to 1999, lake was in high and stable water level, and the

* 国家自然科学基金项目(51669022, 51509133)、高等学校博士学科点专项科研基金项目(20131515120005)和国家留学基金委项目(201408150013)联合资助. 2016-11-16 收稿; 2017-02-20 收修改稿. 高宏斌(1988~), 男, 博士研究生; E-mail: gaohongbin0922@126.com.

** 通信作者; E-mail: nndlichangyou@163.com.

chloride was equilibrium between sediment pore water and overlying water. In the period of 2000 to 2012, more concentrated chloride migrated from high chloride concentration in overlying lake water to the pore water due to evaporation and decreased river discharge. After 2012, high concentration in pore water was eliminated by lake water with diluted chloride concentration during the increasing water level. The changes of water level could be the driver for solutes transportation between lake sediment and overlying water, and these solutes transportation mechanism could exist in many closed lake in arid and semiarid region, thus, the control and management of water level is not only the effective measure to keep the lake volume, but also keep the water quality stable.

Keywords: Solutes transport; chloride; isotopes of hydrogen and oxygen; sediment pore water; overlying lake water; lake level fluctuation; Lake Hulun

沉积物作为湖泊生态系统中一个不可或缺的部分,是湖泊物质和能量交换的重要场所。湖泊中的各种物质来源进入湖泊后,经过一系列的物理、化学、生物等作用后,其中一部分物质进入湖底部富集在沉积物中^[1]。同时,当湖泊外部环境条件发生变化时,沉积物中溶解在间隙水中的物质可以再次释放至上覆水体中,这种沉积物间隙水和上覆水体间的溶质交换过程对湖泊的水质条件有着重要的影响^[2]。近年来,国内外学者关于水—沉积物界面溶质迁移转化机理方面开展了大量的工作^[3-5],包括对河流、水库等地表水体。研究表明湖泊沉积物与水体的物质交换主要通过扩散作用实现,交换的动力主要取决于沉积物间隙水与上覆水体的浓度梯度^[6],同时,这一浓度梯度也决定了盐分转移扩散的方向^[7]。此外,湖泊沉积物与水体间隙水的溶质交换过程受湖泊水动力条件、生态动力学作用以及湖泊环境变化等因素的影响,例如风浪作用^[8]、沉积物结构特征^[9]、生物扰动作用^[10]和湖泊外部气候环境条件^[11]等。

对于干旱半干旱区域的封闭湖泊,其水文条件和水化学环境对气候的变化非常敏感,很容易受到气候变化的影响而发生改变^[12-13]。而水环境的改变首先是上覆水体环境发生变化,这样一来,作为湖泊重要组成部分的底层沉积物中间隙水的溶质浓度将不能与上覆水体达到平衡状态,引起上覆水体和沉积物之间的运移作用^[14]。因此,为了维持干旱半干旱区封闭性湖泊生态系统的健康,研究因湖泊外部环境发生改变而引起的水—沉积物间物质的迁移有着重要的意义。

呼伦湖是我国北方第一大湖,也是北方地区重要的生态屏障。但近期由于气候变化和人类活动的影响,呼伦湖的生态环境出现了一定的恶化,因此学者们在该方面开展了大量的研究。严登华等^[15-16]从流域生态水文过程方面着手,探讨了呼伦湖流域生态水文过程对湖泊水环境的影响,认为流域的生态水文过程是控制湖泊水环境系统的主要因子,气候的暖干化和人类活动的加剧是造成水资源短缺、湖泊水位下降和周边生态环境恶化的重要原因。王丽艳等^[17-19]对呼伦湖湖水水质进行了评价,结果显示水体已呈富营养化水平。另外,根据毛志刚等^[20]对呼伦湖鱼类的调查表明,湖泊水质的恶化已经成为鱼类衰减的主要原因。

近十几年来,呼伦湖的水位经历了较大的波动。在2001年之前,河水补给充足时,湖泊处于相对高的水位时期,水位最高可达到545 m。然而从2001年开始由于克鲁伦河和乌尔逊河补给量的急剧减少,湖泊水位在2012年降至历史最低水位(541 m)。从2013年开始,随着河水流量的增加,湖水水位又开始回升,据2014年监测数据显示湖泊水位已经恢复到2003年时的水位^[21]。剧烈的湖泊外部环境变化可能对湖泊中的水化学环境产生巨大影响,特别是引起上覆水体和沉积物间隙水浓度梯度的改变,从而改变水—沉积物之间溶质的运移过程^[22]。已有研究表明,沉积物中的污染物(如氮、磷和COD等)在一定条件下经扩散作用以溶解态的形式进入上覆湖水,成为湖水污染物的重要来源^[23-24]。另外,保守型示踪剂由于其在环境中的稳定性和实际分析中的简易性已被用来示踪湖水中营养盐的分布^[25]。因此本文以呼伦湖为研究对象,利用保守示踪剂(δD 、 $\delta^{18}O$ 和Cl⁻浓度)研究湖泊在近期水位变化下上覆水体和沉积物间隙水间溶质的运移特征,并对其运移机制进行探讨,这可能对研究干旱半干旱区湖泊水—沉积物间溶质迁移转化规律提供参考。

1 材料与方法

1.1 研究区概况

呼伦湖(48°33'~49°20'N, 116°58'~117°48'E)是我国第五大淡水湖,内蒙古第一大湖,位于内蒙古自治区满洲里市及新巴尔虎左旗、新巴尔虎右旗之间(图1),湖盆东边是兴安岭山脉,西边及南边是蒙古高原。湖泊历史水位达到最高时,最大水深可达8 m,蓄水量达 $1.2 \times 10^{10} \text{ m}^3$ 。该湖位于干旱半干旱地区,并受东亚季风的影响。

响,年平均降雨量在 247~319 mm 之间,降水主要集中在夏季 6—9 月,年平均蒸发量在 1400~1900 mm 之间,主要集中在 4—10 月,年平均气温为 0.3℃. 呼伦湖水系是额尔古纳水系的组成部分,其中发源于蒙古的克鲁伦河和发源于贝尔湖的乌尔逊河是呼伦湖的主要补给水源. 新开河位于呼伦湖的东北部,是呼伦湖湖水的出口,近年来,由于呼伦湖水位下降剧烈,湖水不能通过新开河外泄,因此呼伦湖成为了真正的封闭性湖泊.

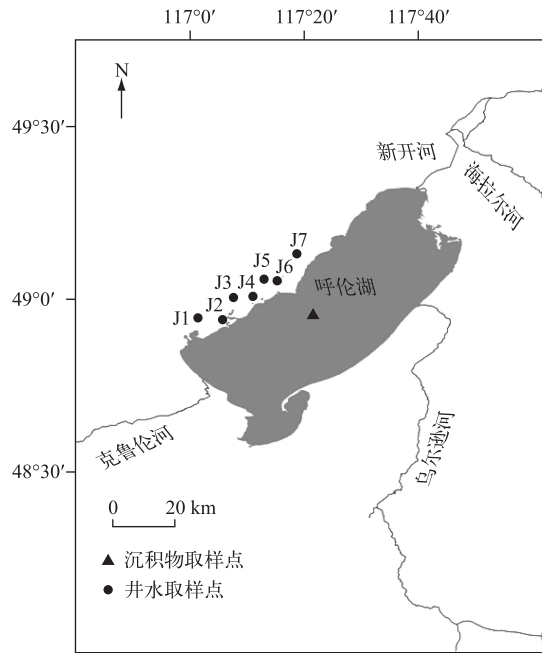


图 1 呼伦湖取样点位置

Fig.1 The location of water and sediment sampling sites in Lake Hulun

1.2 样品的采集

根据呼伦湖的地形特点,并考虑人为和水流扰动影响最小的情况下,于 2015 年 6 月在湖中心水深最大处利用 Glew^[26]重力取样器取得 24 cm 的沉积物柱芯样(图 1),取样后立即在现场取样船上进行样品切割. 首先将约 5 cm 上覆水先通过仪器上推排出,剩余的水再用吸管吸出,尽量避免对悬浮层的扰动. 为了保证采集到的间隙水量,之后按照仪器设计的操作方法对柱样以每 2 cm 为间隔进行切割,共 12 个样品,切割完的样品存放于密封袋,避免因蒸发而引起的分馏作用发生. 最后一起放入保温箱,带回实验室进行后续实验.

为了与间隙水作对照参考,利用手持式电动深水采样器在沉积物取样处采集上覆水体水样,由上至下分别取得水体表面、中间、底部 3 个水样. 在不同深度取样时,为了防止采集管在降落过程中造成水体混合,取样时将最初抽出的水样排出不作为实验样品. 同时对呼伦湖周边 7 个水井进行取样(图 1),取样水井都为浅水井,深度在 1~15 m 之间. 采集的所有水样立即用封口膜密封在 100 ml 的聚乙烯瓶中,放于保温箱,带回实验室.

1.3 样品的分析方法

12 个沉积物样品中的间隙水经过 Legend™ T/RT 离心机进行提取,转速为 4600 转/min,离心 5~10 min,提取上清液.

所有的水样(间隙水、湖水、井水,共 22 个)在测定分析前都经 0.45 μm 的滤膜过滤. 随后,采用离子色谱仪(型号:DIONEX-120,精度 0.1)分别测定阴离子和阳离子,从而获得 Cl⁻和 Na⁺数据;δD、δ¹⁸O 采用高精度的美国 LGR 公司的液态水同位素分析仪测定(型号:LMIA-V2(DLT-100),精度 δD:1‰,δ¹⁸O:0.1‰). 计算结果以维也纳平均海水 V_{SMOW} 为标准,公式如下:

$$\delta [‰] = (R_{\text{sample}}/R_{\text{standard}} - 1) \times 1000 \tag{1}$$

式中, R 为重稳定同位素与轻稳定同位素的比值, R_{sample} 和 R_{standard} 分别为样品和标准液的稳定同位素的比值。

1.4 一维对流扩散迁移模型及其参数的计算

基于质量守恒定律的稳定示踪剂 (Cl^- 、 δD 、 $\delta^{18}\text{O}$) 的一维对流扩散迁移模型由 Lerman 和 Berner 提出, 用来模拟并重建沉积物中溶质在垂向上的分布特征, 简化公式如下^[27-28]:

$$\phi \frac{\partial C_i}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial z} (\phi \cdot D_{s,i} \cdot \frac{\partial C_i}{\partial z}) - U \cdot \phi \cdot \frac{\partial C_i}{\partial z} \quad (2)$$

式中, C_i 是间隙水中某种溶质的浓度; z 是沉积物水界面至沉积物底部的深度 (在界面处 $z=0$, 向下方向为正方向); t 是迁移时间; $D_{s,i}$ 是间隙水中某种溶质的有效扩散系数; U 是对流项, 包括地下水和由于受沉积作用挤压而产生向上的间隙水迁移; ϕ 是沉积物的孔隙率, 其计算公式为:

$$\phi [\%] = (1 - r_s/d_s) \times 100 \quad (3)$$

式中, d_s 为土壤比重, 取 2.65; r_s 为土壤容重, 可以通过下式求得:

$$r_s = G \cdot 100/V(100 + W) \quad (4)$$

式中, G 为每层沉积物样品的湿样重; V 为每层沉积物样品的容积, 根据采样器大小计算得知 ($V=50 \text{ cm}^3$); W 为每层沉积物样品的含水量 (%), 通过烘干法测得。

经计算得知沉积物柱芯孔隙率 ϕ 为 0.9; $D_{s,i} = D_0 / (1.02\phi - 0.81)$ ^[29], 其中, D_0 是自由扩散系数, 考虑呼伦湖常年平均温度接近于 0°C , 因此 Cl^- 的 $D_0 = 0.016 \text{ m}^2/\text{a}$ ^[30], 经计算 $D_{s,i} = 0.014 \text{ m}^2/\text{a}$ 。

该一维对流扩散迁移模型假设最初时刻间隙水与上覆湖水浓度达到平衡状态, 边界条件为假定沉积物—湖水界面的浓度大致与湖水中的浓度相同。

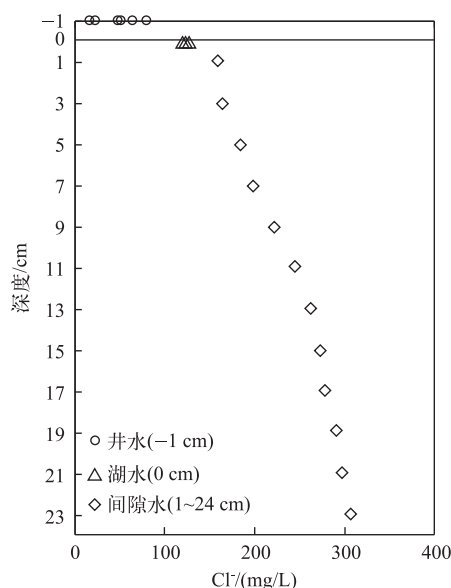


图 2 Cl^- 在不同水体中的分布

Fig.2 The distribution of Cl^- in different water samples

2 结果

2.1 Cl^- 在不同水体中的分布

自然环境中的 Cl 元素由于具有不易与其他物质发生反应的稳定性, 被广泛地作为示踪剂应用于不同的研究中^[31-32]. 为了能够清晰地比较地下水、湖水与间隙水中的 Cl^- 浓度的分布, 将 3 种水体中的 Cl^- 浓度按照垂向深度作图 2 表示, 其中地下水井的值位于纵轴刻度为“-1”处, 上覆水体中的值为“0 cm”处, 间隙水中的值按照沉积物柱芯的深度“1~24 cm”表示. 间隙水中 Cl^- 浓度在垂向上分布较为规律, 最大浓度位于沉积物最深处, 为 306 mg/L, 最小值为 159 mg/L, 位于沉积物最上层, 且最上层的 Cl^- 浓度与上覆湖水的 Cl^- 浓度较为接近, 整体上从沉积物柱芯底部到上部湖水的浓度分布呈现逐渐递减的抛物线趋势. 不同深度的湖水水样中 Cl^- 浓度基本相同, 在图中落在同一个位置处, 说明呼伦湖作为浅水湖泊, 水中 Cl^- 能够较好混合, 无分层现象. 湖周边地下水的 Cl^- 浓度分布在 18~79 mg/L 之间, 与湖水和沉积物间隙水比较, 地下水的浓度明显小于这 2 种水体中。

2.2 δD 、 $\delta^{18}\text{O}$ 在不同水体中的分布

环境中 δD 、 $\delta^{18}\text{O}$ 由于在水汽的蒸发和冷凝以及不同水体的混合而导致其含量分布不同, 成为了示踪水体运移、交换与混合的理想示踪剂^[33]. 通过对沉积物中间隙水的 δD 、 $\delta^{18}\text{O}$ 的测定 (图 3), 结果表明二者分布呈现与 Cl^- 浓度相似的分布规律, 最大值位于沉积物最深处, δD 为 -58‰ , $\delta^{18}\text{O}$ 为 -5.9‰ , 最小值位于沉积物上层, 最小值出现在沉积物 3 cm 深度处, 但与顶层的值基本相同, δD 和 $\delta^{18}\text{O}$ 分别为 -66‰ 和 -7.3‰ . 沉积物上层间隙水中的同位素值与上覆湖水较为接近, 整体上从底部沉积物到上部湖水 δD 和 $\delta^{18}\text{O}$ 分布呈现逐渐递减的抛物线趋势. 不同深度的湖水水样中 δD 和 $\delta^{18}\text{O}$ 值, 与 Cl^- 浓度分布特征相同, 3 个水样的 δD 和 $\delta^{18}\text{O}$ 值基本相

同,说明湖水中氢氧同位素也能够较好混合,无分层现象. 与湖水和沉积物间隙水中的同位素值比较,湖周边地下水的 δD 和 $\delta^{18}O$ 值远小于在这 2 种水体中的值,含量分别在 $-101\text{‰} \sim -87\text{‰}$ 和 $-13.3\text{‰} \sim -11.4\text{‰}$ 之间.

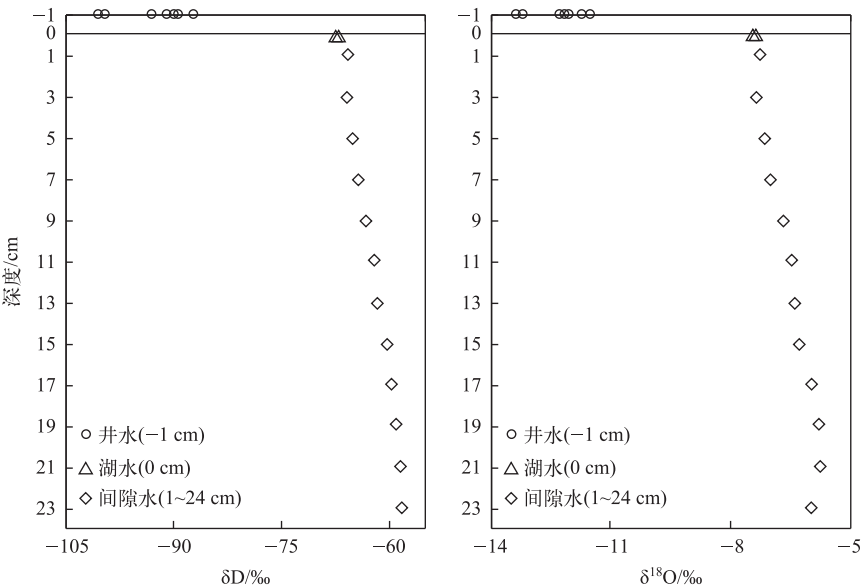


图 3 δD 和 $\delta^{18}O$ 在不同水体中的分布

Fig.3 The distribution of δD and $\delta^{18}O$ in different water samples

3 讨论

3.1 不同水样中的 δD 、 $\delta^{18}O$ 特征分析

利用不同水样中的 $\delta^{18}O$ - δD 关系特征可以对水样进行分类. 由于呼伦湖流域目前还没有常年的同位素监测站,只有零星的文献可以参考. Tsujimura 等^[34]在 2007 年对呼伦湖的子流域克鲁伦河流域的不同水域同位素进行了研究,并确定该区域的大气降水线,文献中的研究区与呼伦湖具有相似的地理位置和气候环境,因此本文采用该结果作为呼伦湖流域的当地大气降水线,关系式如下:

$$\delta D = 7.5 \delta^{18}O + 2.1$$

(5)

呼伦湖湖水、沉积物间隙水和周边水井的 $\delta^{18}O$ - δD 关系特征分布如图 4 所示,湖周边水井水样的 $\delta^{18}O$ - δD 关系点靠近当地大气降水线,说明该地区地下水可能主要来源于大气降水补给,且地下水井中的 $\delta^{18}O$ 和

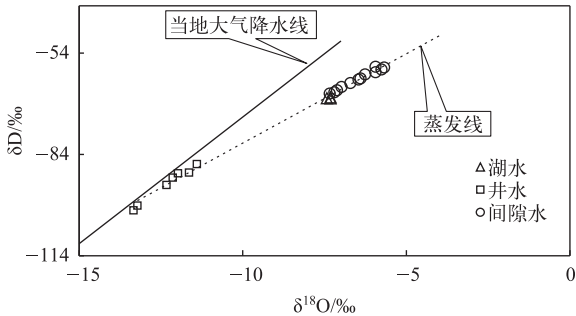


图 4 呼伦湖湖水、沉积物间隙水和周边水井的 $\delta^{18}O$ - δD 关系

Fig.4 The crossplot of $\delta^{18}O$ and δD from lake water, pore water and well water of Lake Hulun

δD 值较湖水和间隙水偏负. 而湖泊水、沉积物间隙水的 $\delta^{18}O$ - δD 关系点全都落在当地降水线的右下方, 分布点形成一条趋势线, 可能是该区域的蒸发线, 且间隙水要比湖水靠上, 说明间隙水和湖水都经历了强烈的蒸发作用, 但间隙水受到的蒸发程度要大于湖水.

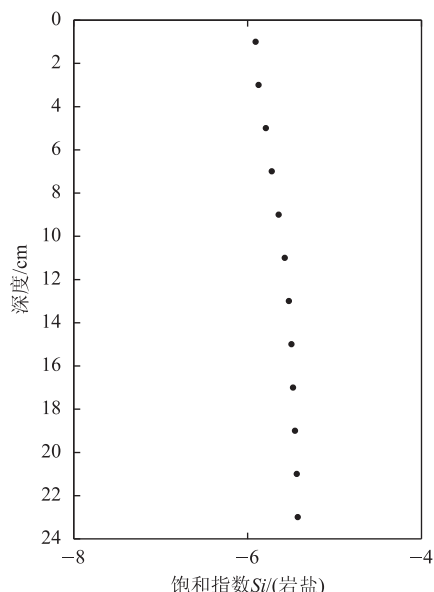


图 5 间隙水中岩盐的饱和度
Fig.5 The saturation of halite in sediment pore water

特殊条件下, 由于间隙水与周边矿物发生交换反应, 也会造成间隙水中偏正的 δD 和 $\delta^{18}O$ 值. 但通常水中的 δD 和 $\delta^{18}O$ 与矿物在低温 ($<60^{\circ}C$) 发生交换的反应速度十分缓慢, 几乎可以忽略. 而且由于岩石中含氢矿物很少, 该反应对水中的氢同位素几乎不产生影响, 再进一步, 即使存在水-岩石同位素交换反应, 其结果也会使得 $\delta^{18}O$ 沿水平方向向右平移, 氢和氧会产生不一致的变化^[35]. 而对比图 4 中 $\delta^{18}O$ - δD 关系图, 间隙水中的 $\delta^{18}O$ - δD 点与湖水靠近, 并且 δD 与 $\delta^{18}O$ 值相关性非常好, 说明二者变化一致, 因此排除了间隙水与矿物交换反应的可能性, 间隙水中较偏正的 δD 和 $\delta^{18}O$ 值可能只与蒸发程度有关.

湖泊沉积物中的间隙水主要受上覆水体、可能从底层流入的地下水以及沉积物中可能存在的含盐层的影响. 利用饱和指数法对间隙水中的蒸发岩饱和度进行计算得知^[36] (图 5), 与 Cl^{-} 相关的岩盐饱和指数 (Si) 远远小于 1, 并且随着沉积物深度的变化没有明显的改变, 说明该沉积物中不存在岩盐层进而影响 Cl^{-} 浓度分布, 这一结论与之前的呼伦湖沉积物研究结论一致^[37]. 沉积物间隙水与湖水 $\delta^{18}O$ - δD 关系特征的相似性而与流域内地下水 $\delta^{18}O$ - δD 关系特征的明显差异性, 表明湖中心沉积物中间隙水可能跟上覆湖泊水体的关系更为密切, 而并不与地下水发生作用.

3.2 间隙水中高浓度氯和同位素的来源

δD 、 $\delta^{18}O$ 和 Cl^{-} 浓度常常被一起作为稳定且保守的示踪剂用来揭示不同水体的最初来源和混合作用^[37-41]. 湖水、间隙水中的 δD 、 $\delta^{18}O$ 与 Cl^{-} 浓度的线性关系较好, 相关系数分别为 0.98 和 0.93 (图 6), 表明 Cl^{-} 在湖水中的变化与氢、氧同位素变化有着相同的特点, 都是受蒸发作用的影响, 蒸发程度越大, 浓度就越大. 鉴于研究区氢、氧同位素数据不足的情况, 因此本研究以资料相对丰富的 Cl^{-} 为代表作为研究.

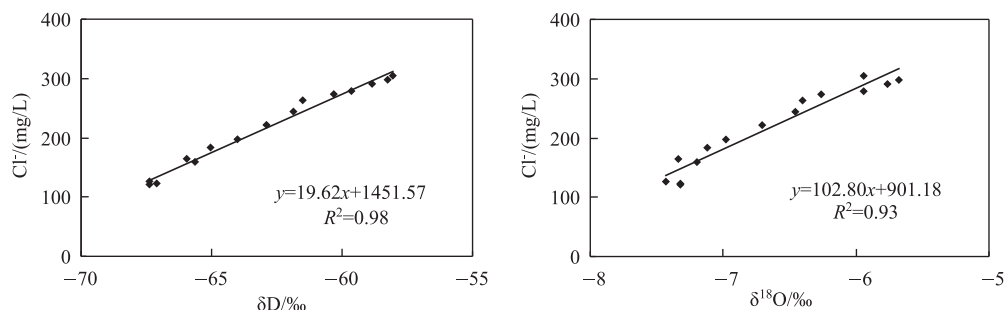


图 6 间隙水中 Cl^{-} 浓度与 δD 、 $\delta^{18}O$ 的相关性

Fig.6 The correlations between chloride concentration and δD , $\delta^{18}O$ in sediment pore water

图 7 为近 60 多年的水位和 Cl^{-} 浓度序列数据 (2000 年以前的 Cl^{-} 数据来源于文献^[42], 其他数据为内蒙古农业大学水环境项目组测试所得的年平均). 多年来, 呼伦湖水中的 Cl^{-} 浓度分布在 118~407 mg/L 之间, 并与水位的波动大致呈相反的变化趋势, 湖水水位高时, Cl^{-} 浓度就低, 水位低时, Cl^{-} 浓度就高, 这与文献

中关于呼伦湖水位与盐度变化关系的结论一致^[43]。如上述已知,间隙水中的高浓度可能是来源于间隙水与上覆水体的相互作用,将间隙水中 Cl^- 浓度与多年来上覆水体的浓度比较,只有在呼伦湖水位最低时期的 Cl^- 浓度与间隙水中浓度最大值相接近,其他时期湖水的浓度都远小于间隙水。由此可见,可能低水位时期含有高浓度 Cl^- 的湖水与间隙水相互发生作用而改变了间隙水中 Cl^- 浓度。

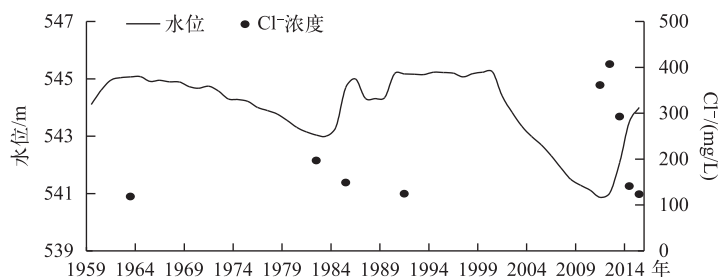


图7 呼伦湖历史水位和湖水中 Cl^- 浓度变化

Fig.7 The changes of lake level and chloride concentration of Lake Hulun

3.3 沉积物间隙水中 Cl^- 的运移机制

垂向的保守性示踪剂的分布特征可以用来解释溶质在沉积物间隙水中的运移机制^[44]。如果示踪剂在垂向分布上没有变化,近似为一条直线,那么对流作用可能是溶质在沉积物中的主要运移方式^[45-46];反之,如果示踪剂在垂向上的浓度—深度剖面线呈曲线分布,那么扩散作用为溶质在沉积物中的主要运移方式^[47-49]。呼伦湖沉积物间隙水中的 δD 、 $\delta^{18}\text{O}$ 和 Cl^- 浓度的垂向分布相似,全部为曲线分布,说明扩散可能是积物中间隙水和上覆水体之间的主要运移方式。

为了摸清沉积物间隙水与上覆水体相互作用机制并验证上述结论,采用一维对流扩散迁移模型(公式(2))对呼伦湖沉积物中不同深度间隙水 Cl^- 浓度分布进行模拟。

佩克莱数(Peclet number)可用来描述溶质运移时对流作用和扩散作用的大小,如果对流项与扩散项的比值 $Pe \ll 1$,那么对流项可以忽略不计。

$$Pe = (UL)/D_{s,i} \quad (6)$$

式中, L 为沉积物深度,其他同上。

根据上述已知,地下水对沉积物间隙水没有影响,故对流项中的 U 值只受到沉积物沉积过程中挤压而使得间隙水产生向上的对流作用,近似于沉积速率 0.72 cm/a (计算值来自同一沉积柱样)。经计算, $Pe = 0.18$ 远小于 1,故对流项可以忽略不计。模型公式(2)可简化为:

$$\phi \frac{\partial C_i}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial z} \left(\phi \cdot D_{s,i} \cdot \frac{\partial C_i}{\partial z} \right) \quad (7)$$

呼伦湖水位在 1984—1999 年相对稳定,湖水中的 Cl^- 浓度在此期间变化不大,故假设此时沉积物间隙水的 Cl^- 浓度与上覆水体达到了平衡状态(图 7)。选择 1999 年作为开始时刻,采用水位稳定时期内实测的 1991 年数据(124 mg/L)作为 Cl^- 的初始浓度 C_0 。根据水位变化的时间段,再结合有限的 Cl^- 实测数据,模拟分为 3 个阶段(1999—2012、2012—2013 和 2013—2015 年),不同时期采用不同的实测 Cl^- 浓度数据作为该时间段的边界条件,分别为: $t_1 = 2012$ 年, Cl^- 浓度为 407 mg/L ; $t_2 = 2013$ 年, Cl^- 浓度为 293 mg/L ; $t_3 = 2015$ 年, Cl^- 浓度为 126 mg/L 。

模拟结果如图 8 所示,分别模拟出 3 个不同时间段沉积物间隙水中 Cl^- 垂向分布以及随时间的运移过程,其中 2015 年的模拟值与 2015 年实测的沉积物间隙水中的 Cl^- 浓度对比,除了沉积物最上层模拟值的误差为 13%,其他模拟值的误差都小于 6%,模拟值与实测值较为吻合,说明假设成立,即扩散作用是控制着间隙水中 Cl^- 浓度在垂向分布的主要机制,同时湖水中 Cl^- 浓度变化会影响沉积物间隙水与上覆水体的扩散过程。

根据模拟结果可将上覆水体和沉积物间隙水中的 Cl^- 的运移机制概述为:1984—1999 年,由于河水径流

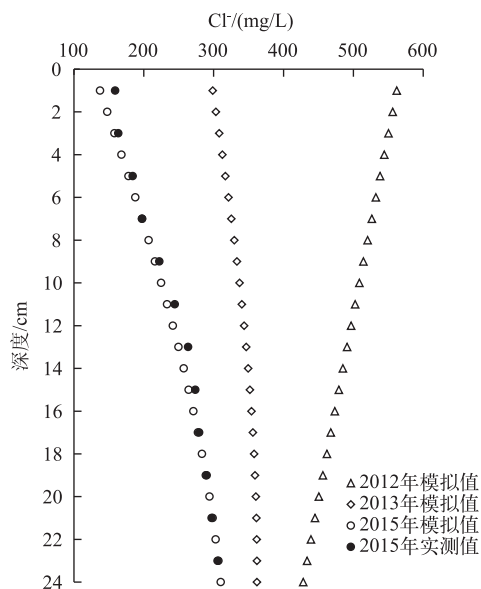


图 8 Cl^- 浓度在不同时期的模拟值及 2015 年实测值

Fig.8 The modeled concentration of chloride in different periods and measured chloride concentration in 2015

量相对充足,湖泊水位比较高且平稳,故两种水体中的 Cl^- 浓度较小,同时湖水和沉积物间隙水中的 Cl^- 由于长时间的水位稳定而达到平衡状态. 而 2000—2012 年,由于河水补给量减少,强烈的蒸发作用使得水位急剧下降,同时湖水中的 Cl^- 由于湖泊的封闭性会在水中逐渐富集浓缩,浓度越来越高. 这样一来,高浓度 Cl^- 的上覆水体和低浓度 Cl^- 的沉积物间会打破原有的平衡状态,浓度高的上覆水体中的 Cl^- 通过扩散作用向间隙水中迁移,最终沉积物间隙水中 Cl^- 浓度升高,逐渐与上覆水体达成再次的平衡. 2012 年以后,由于河水补给量再次增加致使湖水水位迅速上升,湖水中 Cl^- 浓度受到河水的稀释作用而逐渐降低,但此时沉积物间隙水中的 Cl^- 受之前湖水浓度的影响,浓度保持较高,再一次与上覆水体处于不平衡状态,高浓度的 Cl^- 经扩散作用向低浓度的上覆水体释放,而间隙水中的 Cl^- 浓度逐渐被稀释. 因此,受蒸发作用明显的呼伦湖的水位剧烈变化,是引起沉积物间隙水与上覆水体发生物质迁移的重要动力. 同时在物质迁移过程中,沉积物在水位下降期是物质的汇,水位上升期是物质的源,影响着上覆水体的物质组成和分布.

4 结论

通过对沉积物间隙水以及作为参照对比的上覆湖泊水体和湖周边地下水体中的保守型示踪剂 (δD 、 $\delta^{18}\text{O}$ 和 Cl^- 浓度) 的分析研究,得出沉积物间隙水中 δD 、 $\delta^{18}\text{O}$ 和 Cl^- 浓度的分布特点及其可能来源,结合一维对流扩散迁移模型的模拟,摸清了呼伦湖沉积物柱芯间隙水中的溶质与上覆水体在湖泊近期水位剧烈变化下的迁移机制,具体结论如下:

1) 保守示踪剂 (δD 、 $\delta^{18}\text{O}$ 和 Cl^- 浓度) 有效地揭示了呼伦湖沉积物间隙水的可能来源,结果表明沉积物柱芯间隙水中高浓度的 Cl^- 和偏正值的 δD 、 $\delta^{18}\text{O}$ 受强烈的蒸发作用的影响,且与上覆湖水关系密切,来源于低水位时期与沉积物间隙水发生作用的上覆水体.

2) 干旱半干旱区封闭湖泊由于气候环境的改变致使湖泊水位剧烈变化,为沉积物间隙水与上覆水体中的溶质发生运移作用提供了重要的驱动力,也是引起湖泊水体环境中溶质组成和分布的重要因素. 湖泊水位高且平稳时,湖水和沉积物间隙水中的溶质处于平衡状态. 而在水位剧烈下降同时受蒸发作用的影响时,水体中的溶质被富集浓缩,上覆水体高浓度的物质通过扩散作用迁移至间隙水中,最终使得沉积物间隙水中溶质浓度升高. 在湖水水位上升时,湖水中溶质浓度受到河水的稀释作用而逐渐降低,沉积物间隙水中的物质再一次与上覆水体处于不平衡状态,经扩散作用向低浓度的上覆水体释放. 这种溶质迁移机制可能是干旱半干旱区域封闭湖泊共同存在的,同时,在湖泊水位升高时,沉积物间隙水中释放的溶质可能是湖水中重要的一部分物质来源. 因此,为了维持湖泊生态系统的健康,有效的控制和管理水位、水量对封闭湖泊有着重要的意义.

致谢:感谢内蒙古农业大学河湖湿地水环境项目组同学在野外实验工作上的支持和帮助.

5 参考文献

- [1] Li Shijie, Dou Hongshen, Shu Jinhua *et al.* Water environmental problems of lakes and water ecosystem recovery in China. *China Water Resources*, 2006, **13**: 14-17. [李世杰, 窦鸿身, 舒金华等. 我国湖泊水环境问题与水生生态系统修复的探讨. 中国水利, 2006, **13**: 14-17.]

- [2] Li Hui, Pan Xuejun, Shi Liqiong *et al.* Research progress on the analytical methods and character istic of endogeneous ni-trogen and phosphorus pollution in lakes. *Environmental Chemistry*, 2011, **30**(1): 281-292. [李辉, 潘学军, 史丽琼等. 湖泊内源氮磷污染分析方法及特征研究进展. 环境化学, 2011, **30**(1): 281-292.]
- [3] Torres IC, Turner BL, Reddy KR. The Chemical nature of phosphorus in subtropical lake sediments. *Aquatic Geochemistry*, 2014, **20**(4): 437-457.
- [4] Gong Chunsheng, Yao Qi, Fan Chenxin *et al.* Release fluxes estimate of phosphorus in a urban shallow lake: Lake Xuan-wu, Nanjing. *J Lake Sci*, 2006, **18**(2): 179-183. DOI:10.18307/2006.0212. [龚春生, 姚琪, 范成新等. 城市浅水型湖泊底泥释磷的通量估算——以南京玄武湖为例. 湖泊科学, 2006, **18**(2): 179-183.]
- [5] Christophoridis C, Fytianos K. Conditions affecting the release of phosphorus from surface lake sediments. *Journal of Envi-ronmental Quality*, 2006, **35**(4): 1181-1192.
- [6] Li Wenchao, Yin Chengqing, Chen Kaining *et al.* Discussion on phosphorous release from lake sediment. *J Lake Sci*, 1999, **11**(4): 296-303. DOI:10.18307/1999.0402. [李文朝, 尹澄清, 陈开宁等. 关于湖泊沉积物磷释放及其测试方法的议. 湖泊科学, 1999, **11**(4): 296-303.]
- [7] Wei Nan, Yu Deguang, Xie Jun *et al.* Vertical distribution of the nutrients in overlying and interstitial water and their in-terface diffusion rates in tilapia greenhouse aquaculture ponds. *Journal of Fishery Sciences of China*, 2015, **22**(4): 716-728. DOI:10.3724/SP.J.1118.2015.140434. [魏南, 余德光, 谢骏等. 吉富罗非鱼温棚池塘上覆水—沉积物间隙水营养盐垂直分布特征及其界面交换通量. 中国水产科学, 2015, **22**(4): 716-728.]
- [8] Cheng PD, Zhu HW, Zhong BC *et al.* Sediment rarefaction resuspension and contaminant release under tidal currents. *Journal of Hydrodynamics*, 2014, **26**(5): 827-834. DOI:10.1016/S1001-6058(14)60091-3.
- [9] Guo JH, Cao Y, Zheng SJ. Numerical research on the mechanism of contaminant release through the porous sediment-over-lying water interface. *Journal Hydrodynamics*, 2014, **26**(6): 971-979. DOI:10.1016/S1001-6058(14) 60107-4.
- [10] Shull DH, Benoit JM, Wojcik C *et al.* Infaunal burrow ventilation and pore-water transport in muddy sediments. *Estuarine, Coastal and Shelf Science*, 2009, **83**: 277-286. DOI:10.1016/j.ecss.2009.04.005.
- [11] Lerman A, Jones BE. Transient and steady-state salt transport between sediments and brine in closed lakes. *Limnology and Oceanography*, 1973, **18**: 72-85. DOI:10.4319/lo.1973.18.1.0072.
- [12] Hardie LA, Eugster HE. The evolution of closed-basin brines. *Mineralogical Society of America*, 1970, **3**: 273-290.
- [13] Eugster HE, Hardie LA. Saline lakes: Chemistry, geology, and physics. New York: Springer-Verlag, 1978: 237-293.
- [14] Barton CE, Solomon DK, Bowman JR *et al.* Chloride budgets in transient lakes: Lakes Baringo, Naivasha and Turkana. *Limnology and Oceanography*, 1987, **32**: 745-751. DOI:10.4319/lo.1987.32.3.0745.
- [15] Yan Denghua, He Yan, Deng Wei *et al.* Influences of eco-hydrological process to water environmental system in Hulun Lake basin. *Bulletin of Soil and Water Conservation*, 2001, **21**(5): 1-5. [严登华, 何岩, 邓伟等. 呼伦湖流域生态水文过程对水环境系统的影响. 水土保持通报, 2001, **21**(5): 1-5.]
- [16] Zhao Huiying, Wu liji, Hao Wenjun. Influences of climate change to ecological and environmental evolution in Hulun lake and its surrounding area. *Acta Ecologica Sinica*, 2008, **28**(3): 1064-1071. [赵慧颖, 乌力吉, 郝文俊. 气候变化对呼伦湖湿地及其周边地区生态环境演变的影响. 生态学报, 2008, **28**(3): 1064-1071.]
- [17] Wang Liyan, Li Changyou, Sun Biao. Determination total phosphorus concentration and evaluation eutrophication of Hulun Lake with MODIS data. *Chinese Journal of Environmental Engineering*, 2014, **12**(8): 5527-5534. [王丽艳, 李畅游, 孙标. 基于 MODIS 数据遥感反演呼伦湖水体总磷浓度及富营养化状态评价. 环境工程学报, 2014, **12**(8): 5527-5534.]
- [18] Wang Liyan, Shi Xiaohong, Sun Biao *et al.* Determination of COD concentration of water in Hulun Lake based on MODIS data. *Environmental Monitoring & Assessment Environmental Engineering*, 2014, **12**: 103-108. DOI: 10.13205/j. hjgc. 201412024. [王丽艳, 史小红, 孙标等. 基于 MODIS 数据遥感反演呼伦湖水体 COD 浓度的研究. 环境工程, 2014, **12**: 103-108.]
- [19] Jiang Zhongfeng, Li Changyou, Zhang Sheng *et al.* Phytoplankton and nutrition evaluation in Lake Hulun. *Journal of Agro-Environment Science*, 2011, **30**(4): 726-732. [姜忠峰, 李畅游, 张生等. 呼伦湖浮游植物调查与营养状况评价. 农业环境科学, 2011, **30**(4): 726-732.]
- [20] Mao Zhigang, Gu Xiaohong, Zeng Qingfei. The structure of fish community and changes of fishery resources in Lake Hu-lun. *J Lake Sci*, 2016, **28**(2): 387-394. DOI:10. 18307/2016.0219. [毛志刚, 谷孝鸿, 曾庆飞. 呼伦湖鱼类群落结

- 构及其渔业资源变化. 湖泊科学, 2016, 28(2): 387-394.]
- [21] Liang Li'e, Li Changyou, Shi Xiaohong *et al.* Analysis on the eutrophication trends and affecting factors in Lake Hulun, 2006-2015. *J Lake Sci.*, 2016, 28(6): 1265-1273. DOI:10.18307/2016.0612. [梁丽娥, 李畅游, 史小红等. 2006—2015 年内蒙古呼伦湖富营养化趋势及分析. 湖泊科学, 2016, 28(6): 1265-1273.]
- [22] Robert ML, Berrylyons W. Porewater geochemistry and solute flux from bottom sediments, Devils Lake, North Dakota. *International Journal of Salt Lake Research*, 1995, 3: 113-135.
- [23] Chen Yongchuan, Tang Li. Study prospect on removing and transforming characteristics of nitrogen and phosphorus in sediment water interface. *Journal of Yunnan Agricultural University*, 2005, 20(4): 527-533. [陈永川, 汤利. 沉积物-水体界面氮磷的迁移转化规律研究进展. 云南农业大学学报, 2005, 20(4): 527-533.]
- [24] Li Jianchao. Study on organic contaminant transport and transform in bottom sediment of water system[Dissertation]. Nanjing: Hohai University, 2002. [李剑超. 河湖底泥有机污染物迁移转化规律研究[学位论文]. 南京: 河海大学, 2002.]
- [25] Liu Xiaoxu, Li Changyou, Li Wenbao *et al.* The distribution and relationship of isotope and nutrient during freeze-up period in Lake Dalinuoer: A quantitative approach. *J Lake Sci.*, 2015, 27(6): 1159-1167. DOI:10.18307/2015.0622. [刘晓旭, 李畅游, 李文宝等. 冰封期达里诺尔同位素与营养盐分布特征关系的定量分析. 湖泊科学, 2015, 27(6): 1159-1167.]
- [26] Glew JR, Smol JP, Last WM eds. Sediment core collection and extrusion. Dordrecht: Kluwer Academic Publishers, 2001.
- [27] Lerman A ed. Geochemical processes: Water and sediment environments. New York: Wiley, 1979.
- [28] Berner RA ed. Early Diagenesis: A theoretical approach. Princeton: Princeton University Press, 1980.
- [29] Maerki M, Wehrli B, Dinkel C *et al.* The influence of tortuosity on molecular diffusion in freshwater sediments of high porosity. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 2004, 68(7): 1519-1528. DOI:10.1016/j.gca.2003.09.019.
- [30] Li YH, Gregory S. Discussion of ions in sea water and in deep-sea sediments. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 1974, 38: 703-714. DOI:10.1016/0016-7037(74)90145-8.
- [31] Chen Zhihua, Xu Hengli. Chloride tracer method for estimation natural groundwater recharge in arid and semiarid regions. *Geological Science and Technology Information*, 1996, 5(3): 87-92. [陈植华, 徐恒力. 确定干旱半干旱地区降水入渗补给量的新方法氯离子示踪法. 地质科技情报, 1996, 5(3): 87-92.]
- [32] Wang Bingguo, Jin Menggui, Wang Wenfeng *et al.* Application of chloride ion tracer method in estimation of vertical infiltration recharge of groundwater in Hebei Plain. *Water Saving Irrigation*, 2006, (3): 17-20. [汪丙国, 靳孟贵, 王文峰等. 氯离子示踪法在河北平原地下水垂向入渗补给量评价中的应用. 节水灌溉, 2006, (3): 17-20.]
- [33] Ma Nina, Yang Xiaoping. Environmental isotopes and water chemistry in the Dadain Jaran desert and its southeastern adjacent areas Inner Mongolia and their hydrological implications. *Quaternary Science*, 2008, 28(4): 702-711. [马妮娜, 杨小平. 巴丹吉林沙漠及其东南边缘地区水化学和环境同位素特征及其水文学意义. 第四纪研究, 2008, 28(4): 702-711.]
- [34] Tsujimura M, Abe Y, Tanaka T *et al.* Stable isotopic and geochemical characteristics of groundwater in Kherlen River basin, a semi-arid region in eastern Mongolia. *Journal of Hydrology*, 2007, 333: 47-57. DOI: 10.1016/j.jhydrol.2006.07.026.
- [35] Wang Hengchun ed. The summary of stable isotope in hydrogeology. Beijing: Geological Publishing House, 1991. [王恒纯. 氢氧同位素水文地质概论. 北京: 地质出版社, 1991.]
- [36] Korfali SI, Davies BE. Speciation of metals in sediment and water in a river underlain by limestone: Role of carbonate species for purification capacity of rivers. *Advance Environmental Research*, 2004, 8(3/4): 599-612. DOI:10.1016/S1093-0191(03)00033-9.
- [37] Ji Lei, Xia Weilan, Xiang Liang *et al.* Mineral composition and sedimentation rate of surficial sediments in Hulun lake, Inner Mongolia. *J Lake Sci.*, 1994, 6(3): 227-231. DOI:10.18307/1994.0305. [吉磊, 夏威岚, 项亮等. 内蒙古呼伦湖表层沉积物的矿物组成和沉积速率. 湖泊科学, 1994, 6(3): 227-231.]
- [38] Burnett WC, Aggarwal PK. Quantifying submarine groundwater discharge in the coastal zone via multiple method. *Science of the Total Environment*, 2006, 367: 498-543. DOI:10.1016/j.scitotenv.2006.05.009.
- [39] Zhang Bin, Guo Zhanrong, Gao Aiguo *et al.* An analysis of the interaction between river water, groundwater and seawater in Minjiang River estuary region, Fujian Province, based on stable isotopes D and ^{18}O investigation of the origin and evolu-

- tion of groundwater in Yang-Dai River Plain by chlorine, oxygen 18 and deuterium. *Acta Geoscientica Sinica*, 2013, **34** (2): 213-222. DOI:10.3975/cagsb.2013.02.08. [章斌, 郭占荣, 高爱国等. 用氢氧稳定同位素揭示闽江河口区河水、地下水和海水的相互作用. 地球学报, 2013, **34**(2): 213-222.]
- [40] Yu Jingjie, Song Xianfang, Liu Xianchao *et al.* A study of groundwater cycle in Yongding River Basin by using δD , $\delta^{18}O$ and hydrochemical data. *Journal Natural Resources*, 2007, **22**(3): 415-423. [于静洁, 宋献方, 刘相超等. 基于 δD 和 $\delta^{18}O$ 及水化学的永定河流域地下水循环特征解析. 自然资源学报, 2007, **22**(3): 415-423.]
- [41] Julie CG, Christine VC, Adriano M *et al.* Isotopic and geochemical characterization of salinization in the shallow aquifers of a reclaimed subsiding zone: The southern Venice Lagoon coastland. *Journal of Hydrology*, 2009, **378**: 46-61. DOI:10.1016/j.jhydrol.2009.09.005.
- [42] Xu Zhanjiang ed. Annals of Hulun Lake. Changchun: Jilin Literature and History Publishing House, 1989. [徐占江. 呼伦湖志. 长春: 吉林文史出版社, 1989.]
- [43] Li Chong, Ma Wei, Shi Xiaoxin *et al.* Reconstruction of the hydrology series and simulation of salinity in ungauged Lake Hulun. *J Lake Sci*, 2006, **18**(1): 13-20. DOI:10.18307/2006.0102. [李翀, 马巍, 史晓新等. 呼伦湖水位、盐度变化(1961—2002年). 湖泊科学, 2006, **18**(1): 13-20.]
- [44] Mazurek MP, Alt-Epping A, Bath T *et al.* Natural tracer profiles across argillaceous formations—The CLAYTRAC project, Organ. for Econ. Coop. and Dev. Nucl. Paris: Energy Agency, 2009.
- [45] Hendry MJ, Kelln CJ, Wassenaar LI *et al.* Characterizing the hydrogeology of a complex clay-rich aquitard system using detailed vertical profiles of stable isotopes of water. *Journal of Hydrology*, 2004, **293**: 47-56. DOI:10.1016/j.jhydrol.2004.01.010.
- [46] Hendry MJ, Barbour SL, Schmeling E. Defining near-surface groundwater flow regimes in the semi-arid glaciated plains of North America. *Isotopes in Environmental and Health Study*, 2015, **52**(3): 203-213. DOI: 10.1080/10256016.2016.1092966.
- [47] Remenda VH, Kamp G, Cherry JA. Use of vertical profiles of $\delta^{18}O$ to constrain estimates of hydraulic conductivity in a thick, unfractured aquitard. *Water Resource Research*, 1996, **32**(10): 2979-2987. DOI:10.1029/96WR01778.
- [48] Hendry MJ, Wassenaar LI. Implications of the distribution of δD in pore waters for groundwater flow and the timing of geologic events in a thick aquitard system. *Water Resource Research*, 1999, **35**(6): 1751-1760. DOI:10.1029/1999WR900046.
- [49] Hendry MJ, Wassenaar LI. Controls on the distribution of major ions in pore waters of a thick surficial aquitard. *Water Resource Research*, 2000, **36**(2): 503-513. DOI:10.1029/1999WR900310.