

文章编号: 1001-6791(2001)02-0177-08

铀系不平衡在大同南寒武-奥陶系 地下水资源研究中的应用

顾慰祖¹, 陆家驹¹, 费光灿², 林曾平², 郑平生³

(1. 水利部南京水文水资源研究所, 江苏 南京 210024; 2. 中国煤田地质总局水文地质局,
河北 邯郸 056004; 3. 大同矿务局, 山西 大同 037003)

摘要: 在大同口泉沟南寒武-奥陶系碳酸盐岩地下水资源勘探研究中, 应用了铀放射系不平衡方法。由地下水中²³⁴U与²³⁸U放射性活度比的不平衡对相邻泉域作出区别, 划分出岩溶地下水的3种类型, 相应于强、中、弱径流条件和不同的含水层环境。利用²³⁴U盈亏指标识别了本区各岩溶地下水子系统、相互关系、补给源和混合比及其与侧向补给和侧向排泄的关系。地下水中铀含量和活度比有较大变幅, 神头泉有罕见的小于久期平衡的铀放射性活度比。

关键词: 环境同位素; 铀; 碳酸盐岩含水层; 地下水; 同位素水文学; 水资源

中图分类号: P 641.13, P631 **文献标识码:** A

在华北和西北部分地区广泛分布、构成煤系地层沉积基底的厚层奥陶系碳酸盐岩, 一般为区域强含水多层体^[1], 其地下水资源潜力和供水意义, 对缺水日趋严重的北方煤田地区尤显重要。对此类岩溶水资源的勘探和评价中, 在使用常规水文地质方法的同时, 需要应用同位素方法协同查明和解决一些疑难问题如补给源识别、水文地质系统划分、对已开发泉域的影响等。然而由于不同环境同位素所含信息度的能力和程度不同, 对一些重要问题的求解, 往往需要同时使用多种环境同位素方法, 这实际上是同位素水文学应用的一项基本原则。作为此项多元方法的试验研究, 在山西大同口泉沟南寒武-奥陶系碳酸盐岩含水系统的岩溶水资源勘探和评价中, 应用了²H、³H、³⁴S、水中和 SO_4^{2-} 中¹⁸O、¹³C和¹⁴C^[2,3], 同时还应用了铀放射系不平衡方法。

口泉沟南勘察区面积715 km², 其基底为太古界变质岩, 出露在东部边山地带为固定性隔水边界。古生界下部为海相、浅海相沉积的碳酸盐岩, 中部为海、陆相沉积的含煤岩系, 上部为陆相沉积的碎屑岩类。中生界为陆相、内陆湖泊相和河漫滩相沉积的碎屑岩类及含煤岩层。新生界为山麓相、河相沉积的松散岩类。寒武-奥陶系碳酸盐岩中的裂隙岩溶含水岩组主要包括奥陶系中统下马家沟、下统亮甲山、冶里及寒武系上统凤山、崮山、中统张夏等组; 寒武系上统长山组和下统馒头组为相对隔水层或隔水层。各组富水性明显不均一, 水位埋深17~383 m。本区水文地质简图见本刊11卷15页。

收稿日期: 2000-04-30; 修订日期: 2000-09-18

作者简介: 顾慰祖(1934-), 男, 江苏常州人, 水利部南京水文水资源研究所教授级高级工程师, 主要从事实验水文学和同位素水文学研究。

1 方法和取样

对近地表环境中天然铀系核素的地球化学行为导致放射性不平衡的基本规律, 首先由 Чердынчев 归纳和总结^[4], 此后对铀放射性不平衡的研究和应用范围不断扩大, 并表明, 在研究水圈时, 它具有很高的信息度^[5]。

铀作为亲石元素是地壳中普遍存在的重要元素, 它有 3 个天然同位素: 两个放射系的母核素²³⁸U、²³⁵U 以及²³⁸U 的衰变产物²³⁴U。虽然已确知铀有 4 种价态, 但只有 4⁺ 和 6⁺ 铀化合物在自然界存在。处于 4⁺ 价态的铀在一般条件下相对难溶, 但在近地表含水环境中易被氧化到 5⁺ 和稳定的 6⁺ 氧化态, 它往往形成易溶的 $\text{UO}_2(\text{CO}_3)_2^-$ 等各种铀酰络合物, 这使得铀成为水圈中几乎无处不在的组分。²³⁸U 与²³⁵U 在天然物质中除极个别例外外, 其比值基本上都是常数。但²³⁴U 与其母体²³⁸U 之间, 在岩石及其沥滤液中显著偏离平衡值, 分馏很大^[4], 而在水中则几乎总是不平衡的, 且主要发生在地下水和含水环境中。天然水中以放射性活度比表示的这种铀系不平衡²³⁴U/²³⁸U, 约为 0.5 到 20 或更大^[6]。在水圈特别是地下水中引起此类不平衡, 发生铀同位素分馏作用的主要因素是放射性衰变过程(还有 α 反冲作用和“热原子”效应^[4])、围岩固相条件和铀化合物价态等。其基本过程则是氧化、溶解、淋滤、沉淀、运移和同位素交换。这一切正是含水层历史、环境、状态以及地下水补给、形成、赋存和动力条件的综合反映。实际上, 在近地表环境中铀与其子体核素之间的这种放射性不平衡, 严格而言, 除²²²R_n 的气态迁移是例外外, 仅能在含水环境中发生^[7], 这也是此类不平衡之所以含有较高信息度的原因。

本工作在区内所有小口径勘查抽水孔及大口径探采结合孔共 23 处采集寒武-奥陶系岩溶地下水样, 终孔深度 450.9 m 至 813.8 m, 由特殊设计的采样器和辅助设备取样。属寒武-奥陶系层位的矿坑水和泉水也采集了水样, 第四系潜水采集了代表性水样。降水则在不同高程的 5 个点同步取样。采样点位置见本刊 11 卷 15 页图 1。

水样中铀含量和²³⁴U/²³⁸U 放射性活度比均在我国核工业地质研究院分析,¹³C 和¹⁴C 在南非 Witwatersrand 大学分析, 部分在德国 BGR 分析。

2 结果和讨论

2.1 由铀系不平衡状况区分含水层环境和径流条件

本区寒武-奥陶系碳酸盐岩地下水(岩溶地下水, 以下简称岩溶水)的铀含量和²³⁴U/²³⁸U 活度比值都有较大变幅(图 1), 所反映的不同的含水层环境和水动力条件, 有三种类型。

I 组岩溶水, 以高铀浓度(达 11.72 ppb)及低活度比为特点。高铀浓度反映含水环境具氧化性条件, 高氧化还原电位(Eh)、含氧和 CO₂ 将促使形成正铀(六价)及各种络合物而有高溶解度且更具活动性。相对于液、固相之间的同位素交换, 淋滤为其主要过程。但反复多次淋滤可使围岩²³⁴U 发生贫化, 此外还发生较多的²³⁸U 进入地下水而²³⁴U 淋出率变化不大, 都使活度比降低。这些表明, 本组岩溶水的含水层具高导水率, 在高渗透区、水分强烈交替带, 有高降水补给, 为强径流条件。

III 组岩溶水, 以低铀浓度(< 1 ppb 达 0.14 ppb)为特点。反映含水环境具还原性条件, 导致形成亚铀(四价), 在正常 Eh 和 pH 条件下相对难溶, 或可使所溶的铀酰离子还原沉淀。此

时, 地下水和围岩的液、固相间的同位素交换成为主要过程而淋滤作用很弱或实际上不发生。本组活度比有较大变化, 其中中、高活度比可由 α 反冲解释^[8]。以上表明, 本组岩溶水的含水层具低导水率, 在低渗透区、水分弱交替带, 有低或极低降水补给。属地下水滞流。特殊的是, 具有本区最低铀含量的 K14 岩溶水其活度比却接近于久期平衡, 而不是一般认为的应有较高活度比。这有两种可能即时间因素和混合作用。在深层的地下水滞流区中, 因 ^{234}U 衰变虽有导致活度比接近平衡的可能, 但实际上即在 1.5 百万年或更老的地下水中也未见到平衡^[9]。K14 岩溶水自然水位埋深 306 m、终孔深度 751.9 m, ^{14}C 年龄约为 2 万年, 最可能是由于混合作用, 即其太古界基底裂隙水因相应于断层束的深度区域断裂而掺入岩溶水。

II 组岩溶水介于 I、III 组之间, 淋滤和相间同位素交换过程并存, 且互有消长, 含水层环境和径流条件也介于两者之间。本组绝大部分分布于东部裸露区和邻近浅埋区, I 组也在裸露区而 III 组则在西部深埋区。

本区相邻的神头泉域中, 有铀含量 16.5 ppb 的 Z1 岩溶水, 其活度比小于久期平衡为 0.48 ~ 0.59, 实为罕见, 但其成因未明。

2.2 由铀系不平衡指标区别不同泉域和识别补给源

当同一水点岩溶水其铀含量和铀同位素指标相对稳定, 且径流时间远低于 ^{234}U 半衰期时, 则该岩溶水所表现出的铀系不平衡当是不同水源补给的混合结果^[11]。于是, 如果在泉域内分布有足够数量的测点, 而且又涵盖了所有可能的补给源, 那么, 通过铀系不平衡指标之间的关系, 就有可能识别出各补给源从而界定泉域。

对本区含水层环境和径流条件已见前述, 经多次取样测验求得 $U \sim E$ 关系如图 2, E 为 ^{234}U 盈亏 (或称 ^{234}U 过剩)^[10], $E = U \text{ 含量} \times (^{234}\text{U}/^{238}\text{U} - 1)$, 当 ^{234}U 过剩时 E 为正, ^{234}U 亏缺时为负。图中由三个端点组成的范围代表一个泉域岩溶水铀放射系不平衡的混合系统^[11]。

由图可见: ①口泉沟南水文地质区岩溶水都属 ^{234}U 过剩, 即 E 均为正。神头泉域岩溶水则大都为 ^{234}U 亏缺。②可识别出口泉沟南区有 E 均为正的三个补给源 A、B、C, 仅 S2 与神头泉三个补给源中的 B' 相似, 而其它源 A'、C' 的 E 均为负而与 A、C 明显不同。C' 的 E 值接近国外报导岩溶水的最低值。由此得出初步结论, 口泉沟南水文地质区与神头泉为相互独立的两个岩溶地下水系统。另由环境同位素 ^{34}S 进行了分析以作验证^[3]并由 ^2H 、 ^{18}O 研究表明, 这两个系统的地下水有相同起源, 因地质环境和水文地质条件而发生分异构成不同泉域^[2]。

然而, 口泉沟南与三层洞泉域的关系, 由图 2 不可能作出任何判断, 这或是对三层洞泉域

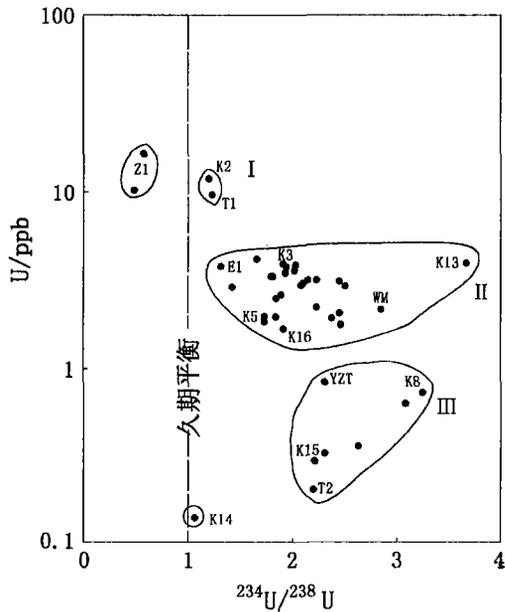


图 1 寒武-奥陶系碳酸盐岩地下水中的铀含量和铀放射性活度比

Fig.1. Variation of uranium concentration and $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ activity ratio in groundwater of Cambrian-Ordovician carbonate aquifer system

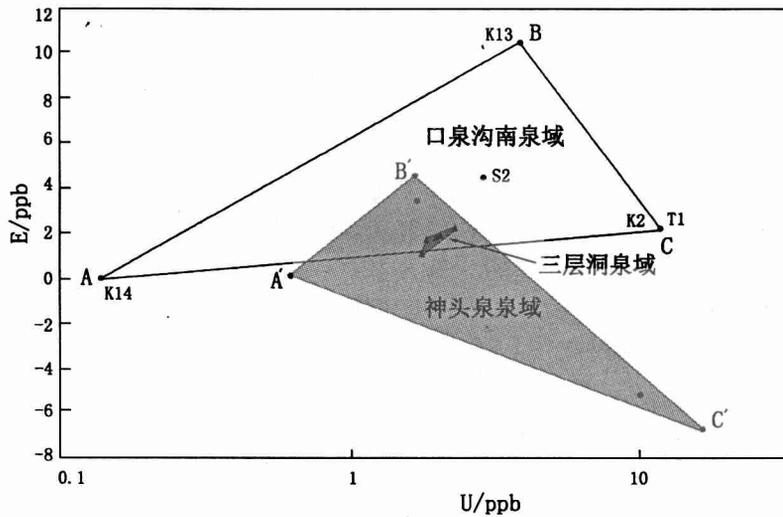


图2 三泉域寒武-奥陶系碳酸盐岩地下水不同水源的混合

Fig.2. Uranium concentration versus excess ^{234}U in groundwaters of three Cambrian-Ordovician carbonate aquifer systems showing the mixing of different source waters

的取样点不足,或是其铀放射系不平衡存在相似,需要由其它同位素方法作出识别(本工作使用 $^{34}\text{S}^{[3]}$)。

对泉域的具体边界,尚需通过对其子系统的分析进行论证。

2.3 由铀系不平衡混合分析地下水径流方向和岩溶水子系统

具有铀系不平衡不同状况的岩溶水,当它相互间有密切关系时,在上述 $U \sim E$ 关系中大体落在一直线上 $^{[6,11]}$ 。在理想情况下,可由此识别由反映氧化性补给区环境的不平衡参数指向非氧化性环境的地下径流方向,也可识别同一环境中的径流方向。径流方向的确认有两个条件:一是各测点铀系不平衡指标相对稳定;二是由图解关系只表明了相互关系,还必须由水力条件或其它同位素关系加以约束验证。这是由于在地下径流途径上含水层、围岩条件以及相间铀同位素交换的复杂性,难以用不平衡指标的统一模式来表达其流向。但当两个补给源的水点落在直线两端时,或更常见的是一个岩溶地下水的子系统在 $U \sim E$ 关系中识别出三个补给源时,可由混合分析求出各水点地下水不同水源贡献的相对组成,而且有助于分析岩溶地下水子系统之间的相互关系,从而阐明地下水资源勘探和开发中的一些具体问题,以本工作为例如下。

(1) 水源地开发对已有开采量的影响 需要评价计划水源地开采对区内已有的王坪煤矿平硐中岩溶水已利用量的可能影响 $^{[3]}$ 。首先由 $U \sim E$ 关系(图 3a 线)识别出王坪平硐所利用的地下水(w)与 S2、S3 及 G3 为一子系统,其中 S2、S3 为主要补给源, G3 贡献甚微。可由两参数混合模型求定补给源所占份额:

$$n_A = \frac{EU_B - E_B U}{E(U_B - U_A) - U(E_B - E_A)} \quad (1)$$

$$n_B = 1 - n_A$$

式中 n_A, n_B 为水源 A(S2)、B(S3) 的混合份额； U, U_A, U_B 相应为混合水和两水源中的 U 含量； E, E_A, E_B 则相应为其 ^{234}U 盈亏。

再根据水源地各种方案的开采位置，求出拟开采水点岩溶地下水与 S2、S3 的关系及所占份额，进一步估算出各方案对王坪泄水所可能造成的影响，其结果再由其它同位素方法加以验证后作为采用成果（本工作使用 ^2H 和 $^3\text{H}^{[2]}$ ）。

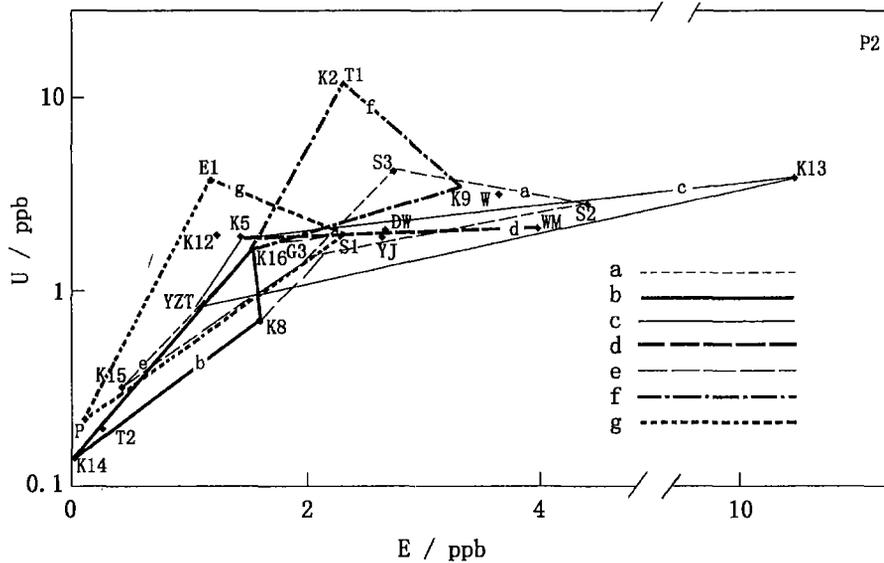


图 3 口泉沟南域岩溶地下水子系统

Fig.3. Identified groundwater sub-systems of the South Mouthspring carbonate aquifer system

(2) 侧向补给及其一子系统的关系 由铀不平衡参数的空间分布识别出勘探区西部太堡寨断层束作用，由 K14 经 T2 向 YZT 并经 K8 向 K16 径流，为本区侧向补给，相应 $U \sim E$ 则为沿径流途径 U 及活度比有增大(图 3b 线)，此径流方向由岩溶地下水位等值线得到验证。这一侧向补给与区内许多岩溶水子系统相联结，例见 YZT-K5-K13 子系统(图 3c 线)，表明它们是开采方案之一 G3 岩溶地下水的补给源。水源 YZT、K5、K13(相应为 A、B、C)对 G3 的各占比例可由三参数混合模型计算。

$$n_A = \frac{(U - U_C) \frac{(E_B - E_C)}{(U_B - U_C)} - (E - E_C)}{(U_A - U_C) \frac{(E_B - E_C)}{(U_B - U_C)} - (E_A - E_C)}$$

$$n_B = \frac{(U - U_C) \frac{(E_A - E_C)}{(U_A - U_C)} - (E - E_C)}{(U_B - U_C) \frac{(E_A - E_C)}{(U_A - U_C)} - (E_B - E_C)} \quad (2)$$

$$n_C = 1 - n_A - n_B$$

与 K5、G3 有关的还有 WM 经 DW、YJ 向 K5 的径流，反映在 U 基本不变的情况下活度比的减小(图 3d 线)，表明了与上述 K14-K16 所不同的含水层环境，这一径流方向一方面对本区这一

段有争议的南部边界作了界定,另一方面也表明 G3 有较大的补给范围,其开发潜力值得注意。此外,与侧向补给相联系的子系统例见 K8-K16-S1、K16-K15-S1(图 3e 线),及 K9-K16-T1(图 3f 线)等。又如 S3 也可由(2)式估算其三个补给源 K2、K9、YZT 的各占份额。

(3) 侧向排泄 铀同位素情况表明本区岩溶地下水存在侧排,其中主要侧排区在本区北部鹅毛口河,变质岩隐伏于河床第四系之下,岩溶地下水顶托补给河床第四系冲积层后,向东排入大同断陷盆地。由盆地代表孔 K12 的 U 及 E 表明,大气降水 P、E1、S1 为其补给源(图 3g 线),可由(2)式作出估算。

2.4 铀系不平衡与 ^{14}C 的关系

对各水点岩溶水的 ^{14}C 分析,可进一步阐明含水层和地下水条件,并可对上述有关问题作出验证,例如:

(1) 岩溶水分组 由 $E \sim ^{14}\text{C}$ (pMC)关系(图 4), pMC 由低到高可区分出相应于上述由铀区分出的各组岩溶水。以低铀浓度为特点的 III 组岩溶水,相应于低 pMC 和高 ^{14}C 年龄,与地下水滞流条件相符。

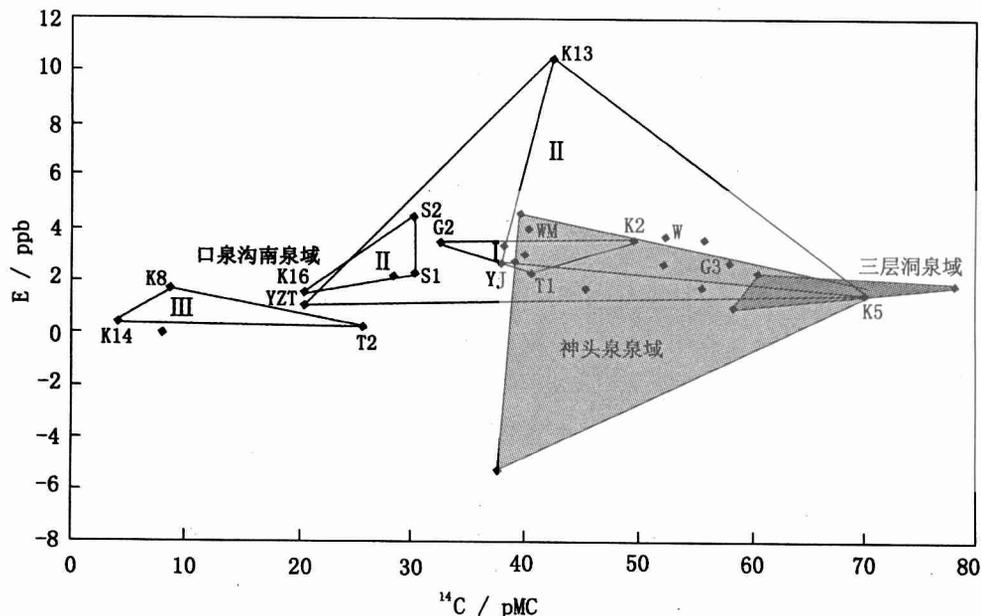


图 4 三泉域寒武-奥陶系碳酸盐岩地下水铀系不平衡与 ^{14}C 的关系

Fig. 4. Comparison of the relations between excess ^{234}U and ^{14}C in groundwater of three Cambrian-Ordovician carbonate aquifer systems

(2) 泉域划分 由图 4 可进一步表明口泉沟南水文地质区与神头泉域为相互独立的两个岩溶地下水系统。但同样尚不足与三层洞泉域作为区分。

(3) 关于子系统 $E \sim \text{pMC}$ 关系中划分出的子系统进一步表明它们之间的相互关联和一定程度的补给关系,包括上述的侧向补给。特别是它表明降水补给最丰的并不是上述的 I 组岩溶水而是属于 II 组岩溶水的 K5-K13-YJ 子系统,这也进一步证实上述关于 G3 所具开发潜力的讨论。

3 结 论

寒武-奥陶系碳酸盐岩深层地下水, 作为北方干旱、半干旱地区的水资源将日趋重要。对这些地区而言, 21世纪也许是大规模开发利用此类地下水的时代。其埋藏深度和埋深一般较大, 围岩和含水层条件复杂, 水文地质边界有时较难确定, 环境同位素方法有助于此类地下水资源的研究。

铀放射性不平衡普遍存在于此类地下水中, 且在空间分布上有较大变幅。在一定条件下, 可用以区分不同泉域, 论证水文地质边界, 解释含水层中的各种过程, 划分地下水系统, 评价和估算侧向径流、侧向排泄, 识别组成子系统各补给水源、流场特征并估算混合比。但应用铀系不平衡方法正如应用其它环境同位素那样, 在参与水文地质详查、勘探, 进行地下水资源研究时, 需要有尽可能多的方法以取长补短, 作出相互比较和印证, 以求得出正确结论。

本工作还试图用铀系不平衡方法估算地下水年龄, 未获成功, 其主要困难是此类地下水系统所存在的诸多不确定性, 看来, 这也许是应用铀系地球化学于地下水研究中一个尚未能解决好的问题。

感谢: 本工作得到中国煤田地质总局、水文地质局第三水文地质队许多同志的帮助, 杨占永完成了为分析5种环境同位素1809个水样的整理和预处理。

参考文献:

- [1] 高洪烈, 林曾平. 简论煤矿床水文地质区域特征[J]. 煤田地质与勘探. 1986, (4): 1~8.
- [2] Gu Wei-Zu, Lin Zeng-Ping, Fei Guang-Chan, *et al.* Isotopic and hydrochemical tracing for a Cambrian-Ordovician carbonate aquifer system of the semi-arid Datong area, China[M]. in: Tracer Hydrology 97, Edi, A. Kranjc, Balkema. 1997.
- [3] 顾慰祖, 林曾平, 费光灿, 郑平生. 环境同位素硫在大同南寒武-奥陶系地下水资源研究中的应用[J]. 水科学进展, 2000, 11(1), 14~20.
- [4] Чердынцев В. В. уран-234. Атомиздат[M]. Москва. 1969.
- [5] 赵树森. 喀斯特地貌与洞穴[M]. 北京: 科学出版社, 1985.
- [6] Osmond J K, Cowart J B. Theory and uses of natural uranium isotopic variations in hydrology[J]. Atomic Energy Review. 1976, 14.
- [7] Levinson A A. Introduction to Exploration Geochemistry[M]. Applied Publishing, Illinois. 1980.
- [8] Kronfeld J, *et al.* Excess ^{234}U : an aging effect in confined water[J]. Earth Planet Sci. Lett. 1975, 27.
- [9] Спиридонов А И, Тымиский В. Г. Об изменении изотопного соотношения $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ в подземных водах после Ташкентского землетрясения 1966 - 1967 гг. Изв. АН СССР. Сер. физика земли. 1971, 3.
- [10] Kigoshi K. Uranium-238/234 disequilibrium and age of underground water[A]. IAEA Panel on Application of Uranium Isotope Disequilibrium in Hydrology[C]. Vienna. 1973.
- [11] Briel L I. An Investigation of the $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ Disequilibrium in the natural waters of the Santa Fe River Basin of North-Central Florida[C]. Florida State University, 1976.

Uranium Disequilibrium in the Cambrian-Ordovician Aquifer System of Southwest Datong and Its Application for Groundwater Research

GU Wei-zu¹, LU Jia-ju¹, FEI Guang-chan², LIN Zeng-ping², ZHENG Ping-sheng³

(1. Nanjing Institute of Hydrology and Water Resources, Nanjing 210024, China; 2. National Administration of Coal Geology, Handan 056004, China; 3. Datong Coal Mining Administration, Datong 037003, China)

Abstract: A study of uranium disequilibrium in groundwater from the Cambrian-Ordovician (ϵ -O) carbonate aquifer system, the Mouthspring, southwest of Datong has been undertaken to answer questions pertaining to the development of this aquifer system. An adjacent ϵ -O aquifer system, the Deityhead Spring, is differentiated from the Mouthspring using activity ratio of $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$, third kinds of ϵ -O groundwater related to strong to weak circulation patterns and aquifer environments are interpreted, too. ^{234}U excess is used for identification of many ϵ -O subsystems, their mutual relations and the lateral recharge and discharge as well. The source waters of these subsystems are deduced, contributions of these waters are evaluated quantitatively by mixing ratios. The concentration and activity ratio of uranium in ϵ -O groundwater are varied greatly, it is seldom seen that activity ratios less than that of the secular equilibrium are found from ϵ -O groundwater of the Deityhead-spring.

Key words: environmental isotope; uranium; carbonate aquifer; groundwater; isotope hydrology; water resources

重 要 启 事 (一)

为适应我国信息化建设的需要,扩大作者论文的学术交流,本刊已先后加入了《中国学术期刊(光盘版)》、“中国期刊网”和“万方数据——数字化期刊群”,所以,被本刊录用的有关文章,均将按统一格式制作入盘、上网,本刊所付稿酬已包含刊物内容入盘、上网服务费用,不再另计。如有不同意者,请另投它刊。

中国期刊中心网站(CNKI),已于今年4月20日完成增容拓宽工程,CNKI特为本刊制作的主页和E-mail为

<http://SKXJ.chinajournal.net.cn>

E-mail:SKXJ@chinajournal.net.cn

欢迎广大作者、审者和读者,通过本刊主页和E-mail进行网页浏览,增进互动式交流,提高工作效率。

《水科学进展》编辑部