

SF₆ 在地下水应用中的研究现状

李小倩 周爱国 张俊刚 甘义群 李晶晶 刘存富 蔡鹤生

中国地质大学环境学院, 湖北武汉 430074

摘要 SF₆ 是无味、无毒的惰性气体, 难被生物降解, 不易被有机质吸附, 即使是在强还原环境下也没有明显地降解。目前大气中 SF₆ 的浓度约以 7% 的速度增长, 而且已实现了大气和地下水中 SF₆ 的测试技术, 其具有较为简单的分析和取样流程。SF₆ 作为一种新的示踪剂在地下水的研究中具有潜在的应用价值, 它能够较好地描述地下水运动规律、径流机理, 测试地下水的滞留时间和运移速率, 解释地下水的循环过程和混合作用等, 在地下水的研究中发挥着重要的作用。然而我国对 SF₆ 的研究还处在起步阶段, 实现 SF₆ 在地下水研究中的应用, 建立 SF₆ 的长期大气观测站迫在眉睫, 联合运用多种多示踪剂解决地下水中科学问题是发展的趋势之一。

关键词 SF₆; 地下水; 示踪剂

中图分类号 P641

文献标识码 A

文章编号 1006-3021(2008)05-665-06

Advances in the Study of Applying Sulphur Hexafluoride(SF₆) in Groundwater

LI Xiaoqian ZHOU Aiguo ZHANG Jungang GAN Yiqun LI Jingjing
LIU Cunfu CAI Hesheng

School of Environmental Studies, China University of Geosciences, Wuhan, Hubei 430074

Abstract Sulphur hexafluoride (SF₆) is an odorless, non-toxic and inert gas, with no toxic effects on human bodies and environments. It appears to be resistant to biodegradation and is not significantly adsorbed on organic matter or obviously degraded under highly reducing conditions. Currently SF₆ concentration in the atmosphere is growing by about 7%, and the test technology of SF₆ in the atmosphere and groundwater has been achieved with the relatively simple analytical and sampling process. SF₆ is considered to be a new potential tracer in groundwater, which can well describe groundwater movement and runoff mechanism, date groundwater retention time and flow rate and explain groundwater cycle and mixing process. It will surely play an increasingly important role in groundwater studies. However, the research on SF₆ is still in the initial stage in China. In order to actualize SF₆ application in groundwater, it is necessary to establish long-term atmospheric SF₆ observation stations. The utilization of various tracers to resolve scientific problems in groundwater is one of the trends in further researches.

Key words SF₆; groundwater; tracer

SF₆ 是一种无色、无味、无毒、惰性、不易燃烧的气体。分子量为 146.05; 在 20℃、1 atm 下的气体密度为 6.17 kg/m³, 与空气的相对密度为 5.11; 25℃ 时 SF₆ 在水中的溶解度为 1‰。SF₆ 非常稳定, 在大气中的寿命很长, 约为 1935 ~ 3200 a (Ravishankara et

al., 1993; Patra et al., 1997)。SF₆ 首先是作为一种惰性气体被人们了解并加以利用, 由于它具有良好的绝缘性和灭弧性, 因而在工业上用途广泛, 主要用作高压电路电闸和变压器的绝缘材料, 以及金属镁生产中用于熔融操作的掩蔽气体等。从 Lovelock

本文由国家自然科学基金项目“年轻地下水 SF₆ 测年技术及其应用”(编号: 40372112)资助。

收稿日期: 2007-10-29; 改回日期: 2008-05-20。责任编辑: 刘志强。

第一作者简介: 李小倩, 女, 1982 年生, 博士研究生, 同位素水文地质专业; 通讯地址: 430074, 湖北省武汉市鲁磨路 388 号; 电话: 027-61364756; E-mail: lxq511030@163.com。

(1971)首次认识到 SF_6 可作为大气和海洋研究中有潜力的示踪剂发展至今, SF_6 因其独特的物理化学性质、生物惰性,被广泛地应用到大气、海洋、湖泊、河流和地下水的研究中。

1 大气中 SF_6 的来源

大气中的 SF_6 有两种来源,即天然来源和人工来源,其中人工来源为主要来源。

1.1 天然来源

据分析,在不同的地质历史时期, SF_6 的天然背景值不同,一般在构造运动和火山活动频繁时期背景值较大。为了确定 SF_6 的天然来源, Busenberg 等(2000)对一些不同起源的矿物和岩石测量了 SF_6 的含量。研究表明,萤石和花岗岩中 SF_6 的浓度最高,分别为 $9.0 \times 10^{-15} \text{ mol/g}$ 和 $7.6 \times 10^{-15} \text{ mol/g}$ 。铁镁质岩石中 SF_6 含量很低,而硅质火成岩和某些成岩流体中含量较高。Harnisch 等(1998)推测萤石和有机物反应形成 SF_6 和 CF_4 ,此反应所需的能量是由 U 和 Th 及其子体元素的放射性衰变产生的 α 粒子提供。

1.2 人工来源

所有的研究都表明,大气中的 SF_6 主要是人为活动排放的。大气中 80% 的 SF_6 是从电气设备中释放出来的,释放的途径可能是在电气设备的调试和维护过程中释放的,也有一部分是由于设备的老化密封性能不好泄漏到大气中的;另外 20% 主要从镁铝等工业中释放的,在镁铝工业中只有很小一部分 SF_6 和镁铝反应,在金属液表面生成一层很薄的氧化膜和氟化膜,绝大部分被释放到大气中。

1.3 全球大气中 SF_6 的变化

SF_6 的工业生产从 1953 年开始,随着 SF_6 气体使用量和排放量的增加,大气中 SF_6 的浓度也在逐年增加。每年全球大气圈中的 SF_6 浓度以约 7% 的速度增长(Geller et al., 1997; Maiss et al., 1998),预计在 2010 年全球大气圈中的 SF_6 平均浓度将达到 $(8 \sim 10) \times 10^{-12}$ (Ko et al., 1993)。

由于 SF_6 主要的排放源集中在北半球,因此尽管南北半球的大气圈中的 SF_6 都在稳定地增长,但北半球大气中 SF_6 的浓度明显高于南半球。图 1 为 Wmo 各观测站近几年 SF_6 全球大气观测的数据(Wmo, 2005)。从图 1 中也可以看出南北半球 SF_6 的浓度有明显的差异。目前北半球大气中 SF_6 的含量约为 6.0×10^{-12} 。依据 SF_6 的全球观测数据,利

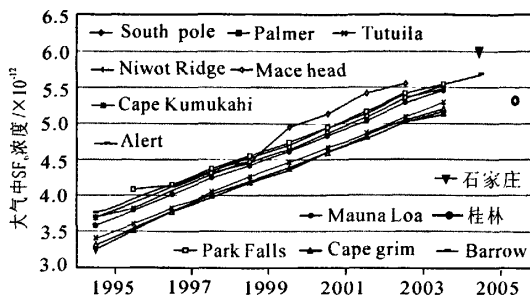


图 1 WMO 全球大气观测的 SF_6 变化曲线图

(石家庄和桂林为笔者实测数据)

Fig. 1 SF_6 variation curves based on WMO global atmosphere observation (data of Shijiazhuang and Guilin are measured data)

用大气层的二维模型可计算出南北半球之间大气交换的时间大约为 1~2 a (Maiss et al., 1996)。

根据 SF_6 生产记录和大气测量资料(Ko et al., 1993; Elkins et al., 1996; Maiss et al., 1996; Levin et al., 1996; Geller et al., 1997)以及从海水和地下水的 SF_6 浓度中重获的信息(Law et al., 1994),重建了历史上 SF_6 大气混合比例曲线(AMRs)。

2 地下水中 SF_6 的测试方法

尽管 SF_6 在地下水中的浓度很低,但是现代仪器的发展已能够对其进行精确的测量。目前根据 SF_6 的物理化学性质提出了很多测量方法,一般采用气相色谱法分析(Lovelock et al., 1971; Wanninkhof et al., 1991; Wanninkhof, 1992; Law et al., 1994; Maiss et al., 1996; Elkins et al., 1996; Geller et al., 1997; Vollmer et al., 2002)。另外还可以根据 SF_6 的物理性质(波长)在红外区域有强烈的吸收特点来用红外光谱分析仪测量(Rinsland, 2003; Krieg, 2005)。地下水中的 SF_6 首先要经过吹扫剥离技术将其从地下水中分离出来从而进行测试分析。

3 SF_6 在地下水应用中的研究进展

由于 SF_6 的成本较低,及其独特的化学、生物惰性以及对人类和环境没有毒性,而且目前为止还没有发现已知的微生物能够有效地降解土壤和生物中的 SF_6 ,即使是在还原环境下也不易降解。所以 SF_6 作为一种新的示踪剂在地下水的研究中具有潜在的应用价值。它能够较好地描述地下水运动规律、径流机理,测试地下水的滞留时间和运移速率,解释地下水的循环过程和混合作用等,在地下水的研究中

发挥着重要的作用。

3.1 SF₆ 在水中溶解度的研究

Friedman (1954) 研究了 SF₆ 在水中的溶解度以及稀有气体、SF₆ 和四氯化碳在硝基甲烷中的溶解度。Morrison 等(1955)研究了惰性气体和 SF₆ 盐析作用。Ashton 等(1968)研究了淡水中 SF₆ 的溶解度。Wanninkhof 等(1991)研究了在 22℃ 下海水中 SF₆ 的溶解度,以及 8~22℃ 下淡水中的溶解度,并描述了 SF₆ 的溶解度与温度、盐度的关系。John 等(2002)进一步研究了 -0.5~40.0℃ 下 SF₆ 在淡水和海水中的溶解度。

3.2 SF₆ 在地下水示踪中的应用

Smart 等(1989)应用 SF₆ 作为示踪剂研究了地下水的流动途径。Ellins 等(1991)应用人工的 SF₆ 和天然的 ²²²Rn 作为示踪剂研究了 Florida Santa 铁河的河水与地下水的关系。Watson 等(1991)在 Santa Monica 盆地人工投放 SF₆ 和 PFD 示踪剂,实验表明 SF₆ 与 PFD 相比是更为有效的示踪剂,它在测试分析过程中有较高的灵敏度,而且在运移过程中性质稳定无富集现象。Wilson 等(1993, 1995, 1996)应用 SF₆ 作为示踪剂研究了饱和介质中地下水运动规律。Clark 等(1996)利用 SF₆ 示踪 Santa Ana 河以及小石溪人工补给区的地下水运移情况。Gamlin 等(2001)将 SF₆ 注入 Santa Ana 河中,根据监测井的结果研究其地下水示踪羽。Bauer 等(2001)应用多种环境示踪剂(³H、⁸⁵Kr、CFC-113、SF₆ 和 Ne)在德国中部地区的浅层地下水中进行了研究,表明无吸附效应的 ⁸⁵Kr 和 SF₆ 示踪剂对评价 CFC-113 在地下水中缓慢的运移行为起到了一定的指示作用,从而可研究含水层介质的平均吸附性能。Plummer 等(2001)在美国 Shenandoah 国家公园地下水排泄区采集 34 个泉水样和 15 个井水样,为了有效地避免了地下水混合作用和其他的过程对泉水排泄区环境示踪剂浓度的影响,应用多种示踪剂(³H-³He、CF-Cs、SF₆、³⁵S、¹⁸O、²H)研究该地区地下水的滞留时间,获取了地下水系统重要的水文信息。Harden 等(2003)比较利用 SF₆、两种荧光染料和 PRD-1 研究污染地下水流的运移速率。Clark 等(2004)利用了 ¹⁸O、³H / ³He、SF₆ 和 ¹³³Xe 等地球化学示踪技术,研究加利福利亚州奥兰智县人工补给区附近水流流动模式,刻画了从周到几十年时间尺度上的地下水径流情况。Stewart (2007)应用 ¹⁸O、SiO₂、³H 和 SF₆ 天然示踪剂研究新西兰地区地下水对 Pukemanga 溪水的补给问题。

3.3 SF₆ 在地下水年龄研究中的应用

Busenberg 等(1997)开始把 SF₆ 作为测定年轻地下水年龄的潜在的环境示踪剂进行了初步研究,给出了 SF₆ 的取样测试过程及视年龄计算方法。由于 SF₆ 具有已知的大气历史增长曲线且在大气中有较高的增长速率,在土壤中具有稳定性(Maiss et al., 1998),分析和取样流程相对简单(Wanninkhof et al., 1991; Busenberg et al., 1997),因此 SF₆ 为地下水年龄研究提供了一种新的方法与技术,并逐渐在应用中显示出其优势。SF₆ 难被生物降解而且不易被有机质吸附(Watson et al., 1991; Wilson et al., 1996),即使是在强还原环境下也没有明显的降解(Plummer et al., 1999)。城市地下水中 SF₆ 污染较少,尽管 Ho 等(2000)曾报道在纽约市周围大气中含有明显过量的 SF₆,然而 SF₆ 仍不是目前普遍使用的家居产品。另外, SF₆ 并不能被橡胶及其聚合物所吸附,因此在取样过程中减少了地下水的外来污染(Reynolds et al., 1990; Wilson et al., 1995)。

Busenberg 等(2000)成功地将 SF₆ 测年技术应用在美国大西洋沿海平原地区的砂质含水层以及发源于维吉尼亚地区的蓝桥山的泉水中,并且发现在一些火成岩、火山岩、沉积岩和一些热液流体中存在天然高浓度的 SF₆。Alvarado 等(2002)以丹麦 odense 含水层为例对浅层地下水滞留时间指示剂(³H-³He、SF₆、CFC-12 和 ⁸⁵Kr)做了对比研究。Vollmer 等(2002)介绍了同时测定水和空气中 SF₆、CFCs 的技术,并以太平洋东北部为例证实 SF₆ 与 CFC 相比更适于测现代大气补给水年龄。MacDonald 等(2003)以苏格兰 Dumfries 的二叠系含水层为例,用 CFCs 和 SF₆ 进行地下水年龄的计算。Daren (2006)联合应用 CFCs 和 SF₆ 描述了英国南部 Chalk 盆地地下水的运动特征和滞留时间,指出了在该盆地河间地、谷底以及两者间的中间区域地下水运动的 3 种不同机制。

应用 SF₆ 测试地下水年龄,关键要依赖于输入函数(Input Function),如:一段时期内 SF₆ 的大气混合比例(AMRs)。由于大气中的气体较好的混合,每种气体单一的输入函数应该在理论上可以满足北半球地下水调查的应用。然而一些研究已发现当地大气 SF₆ 浓度的过量现象(LAEs),这在很大程度上是城市化和工业活动造成的,影响了某些城市及其附近地区的大气混合比例。例如在德国、美国、英国等的主要大城市地区大气中都存在着高浓度的 SF₆ (Ho et al., 2000; Fulda et al., 2000; Bauer et al.,

2001; Santella et al., 2002, 2003; Darling et al., 2007; Nicholas, 2008)。因此依据北半球大气混合比曲线进行地下水 SF_6 年龄的研究存在一定的局限性, 尤其是在人口密集、工业化的城市地区, 必须慎重地选择合适的大气输入函数才能正确地进行城市附近地区的地下水循环和平均滞留时间的研究。

4 展望

我国对 SF_6 的研究工作还没有全面开展, 目前主要集中在 SF_6 泄漏检测、 SF_6 的纯化技术以及回收和再生研究。有关 SF_6 气体对地球温室效应问题的研究只做了一些报道性的工作(张丽娜, 1999; 吴彬等, 2000)。2004 年周爱国等首次对年轻地下水的 SF_6 测年技术进行了研究, 建立了大气和地下水中 SF_6 的测试技术, 并将其成功地应用到了河北平原石家庄地区和桂林岩溶区丫吉试验场地下水的年龄研究中(张俊刚等, 2005; 李晶晶等, 2005; 周建伟等, 2007; 李小倩等, 2007)。

到目前为止, 我国还没有对 SF_6 进行系统地长期地观测, 包括在我国唯一设立地瓦里关全球本底站也只对一些常规地微量气体(CO_2 、 CH_4 、 CO 、 N_2O 、 O_3 、 SO_2 和 NO_2 等)进行了观测, 因此在我国建立能和国际对比的 SF_6 测试方法, 建立长期观测站是迫在眉睫的任务。

多示踪剂联合运用解决地下水中的科学问题是发展的趋势之一, SF_6 在地下水研究中的应用具有潜在的优势, 国外已对其展开了大量的研究工作, 而我国对其的研究刚处于起步阶段, 关于 SF_6 作为优越的环境示踪剂在地下水的运动规律、径流机理、运移速率、滞留时间、补给速率、更新周期等研究中的应用, 还有待于进一步深入探讨。

参考文献

- 李晶晶, 周爱国, 刘存富, 蔡鹤生, 张俊刚, 毛绪美. 2005. 年轻地下水最新测试技术— SF_6 法[J]. 水文地质工程地质, 1: 94~97.
- 李小倩, 周爱国, 刘存富, 蔡鹤生, 甘义群, 武金博, 梁合诚, 周建伟. 2007. 桂林地区岩溶地下水 SF_6 年龄研究[J]. 中国岩溶, 26(3): 207~211.
- 吴彬, 舒立春, 司马文霞, 顾乐观. 2000. SF_6 气体绝缘与地球温室效应问题[J]. 高压电器, 36(6): 23~26.
- 张俊刚, 李晶晶, 周爱国, 刘存富. 2005. 大气和地下水中 SF_6 测试技术[J]. 地球学报, 26(增刊): 293~295.
- 张丽娜. 1999. 美国环保局的新思路[J]. 高压电器, 35(5): 60.
- 周建伟, 周爱国, 刘存富, 蔡鹤生, 甘义群, 梁合诚. 2007. 浅层地下水 SF_6 年龄测试技术及其应用[J]. 地质科技情报, 26(4):

97~102.

References

- ALVARADO J A, PURTSCHERT R, HOFER M, AESCHBACH-HERTIG W. 2002. Comparison of residence time indicators ($^3\text{H}/^3\text{He}$, SF_6 , CFC-12 and ^{85}Kr) in shallow groundwater: a case study in the Odense aquifer, Denmark [C]. Goldschmidt Conference, Davos, Switzerland, A52.
- ASHTON J T, DAWE R A, MILLER K W, SMITH E B, STICKINGS B J. 1968. The solubility of certain gaseous fluorine compounds in water [J]. Journal of Chemical Society Acta, 1793~1796.
- BAUER S, FULDA C, SCHAFFER W. 2001. A multi-tracer study in a shallow aquifer using age dating tracers ^3H , ^{85}Kr , CFC-113 and SF_6 —indication for retarded transport of CFC-113 [J]. Journal of Hydrology, 248: 14~34.
- BUSENBERG E, PLUMMER L N. 1997. Use of sulfur hexafluoride as a dating tool and as a tracer of igneous and volcanic fluids in ground water [C]. Geological Society of America, annual meeting, Abstract with Programs, 29(6): 72~78.
- BUSENBERG E, PLUMMER L N. 2000. Dating young groundwater with sulfur hexafluoride: Natural and anthropogenic sources of sulfur hexafluoride [J]. Water Resource Research, 36(10): 3011~3030.
- CLARK J F, HUDSON G B, DAVISSON M L, WOODSIDE G, HERNONDON R. 2004. Geochemical imaging of flow near an artificial recharge facility, Orange county, California [J]. Ground Water, 42(2): 167~174.
- CLARK J F, SCHLOSSER P, STUTE M, SIMPSON H J. 1996. SF_6 - ^3He tracer release experiment: A new method of determining longitudinal dispersion coefficients in large rivers [J]. Environmental Science and Technology, 30: 1527~1532.
- DAREN C. 2006. Using chlorofluorocarbons (CFCs) and sulphur hexafluoride (SF_6) to characterize groundwater movement and residence time in a lowland Chalk catchment [J]. Journal of Hydrology, 330: 44~52.
- DARLING W G, GOODDY D C. 2007. Assessing the applicability of global CFCs and SF_6 input functions to groundwater dating in the UK [J]. Science of the Total Environment, 387: 353~362.
- DONG Hongmin, LI Yu'e, LIN Erda, YANG Qichang. 1996. Measuring methane emission from ruminant by SF_6 tracing method [J]. Chinese Journal of Agrometeorology, 17(4): 44~45 (in Chinese).
- ELKINS J W, FAHEY D W, GILLIGAN J M, DUTTON G S, BARLING T J, VOLK C M, DUNN R E, MYERS R C, MONTZKA S A, WAMSLEY P R, HAYDEN A H, BUTLER J H, THOMPSON T M, SWANSON T H, DLUCOKENCKY E J, NOVELLI P C, HURST D F, LOBERT J M, CICIORA S J, MCLAUGHLIN R J, THOMPSON T L, WINKLER R H, FRASER P J, STEELE L P, LUCARELLI M P. 1996. Airborne gas chromatograph for in situ measurements of long-lived species in the upper troposphere and lower stratosphere [J]. Geophysical Research Letters, 23: 347~350.

- ELLINS K K, HISERT R, JOHNON N A, KINCAID T R. 1991. Using natural 222Rn and artificial SF₆ to determine ground water gains and streamflow losses in the Santa Fe River, Florida [C]. AGU Tall Meeting, 9 ~ 13.
- FRIEDMAN H L. 1954. The solubility of sulfur hexafluoride in water and of rare gases, sulfur hexafluoride and osmium tetroxide in nitromethane [J]. *Journal of the American Chemical Society*, 76: 1793 ~ 1796.
- FULDA C, KINZELBACH W. 2000. Sulphur hexafluoride (SF₆) as a new age dating tool for shallow groundwater: methods and first results [C]. *Proceeding International Conference on Tracers and Modelling in Hydrogeology*, Liège, Belgium. IAHS Publication Wallingford, Oxfordshire, UK: IAHS Press, 262: 181 ~ 185.
- GAMLIN J D, CLARK J F, WOODSIDE G, HERMDON R. 2001. Large-scale tracing of ground water with sulfur hexafluoride [J]. *Journal of Environmental Engineering*, 127(2): 171 ~ 174.
- GELLER L S, ELKINS J W, LOBERT J M, CLARKE A D, HURST D F, BUTLER J H, MYERS, R C. 1997. Tropospheric SF₆: observed latitudinal distribution and trends, derived emissions and interhemispheric exchange time [J]. *Geophysical Research Letters*, 24: 675 ~ 678.
- HARDEN H S, CHANTON J P, ROSE J B, JOHN D E, HOOKS M E. 2003. Comparison of sulfur hexafluoride, fluorescein and rhodamine dyes and the bacteriophage PRD-1 in tracing subsurface flow [J]. *Journal of Hydrology*, 277: 100 ~ 115.
- HARNISCH J, EISENHAEUER A. 1998. Natural CF₄ and SF₆ on earth [J]. *Geophysical Research Letters*, 13: 2401 ~ 2404.
- HO D T, SCHLOSSER P. 2000. Atmospheric SF₆ near a large urban area [J]. *Geophysical Research Letters*, 27(11): 1679 ~ 1682.
- JOHN L B, DAVID P W, FREDERICK A M. 2002. The solubility of sulfur hexafluoride in water and seawater [J]. *Deep Sea Research*, 149: 175 ~ 187.
- KO M K W, SZE N D, WANG W C, SHIA G, GOLDMAN A, MURCRAE F J, MURCRAE D G, RINSLAND C P. 1993. Atmospheric sulfur hexafluoride: sources, sinks and greenhouse warming [J]. *Journal of Geophysical Research*, 98(D6): 10499 ~ 10507.
- KRIEG J, NRTHHOLT J, MAHIEU E, RINSLAND, C P, ZANDER, R. 2005. Sulphur hexafluoride (SF₆): comparison of FTIR measurements at three sites and determination of its trend in the northern hemisphere [J]. *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, 92: 383 ~ 392.
- LAW C S, WATSON A J, LIDDICOAT M I. 1994. Automated vacuum analysis of sulphur hexafluoride in seawater: derivation of the atmospheric trend (1970 ~ 1973) and potential as a transient tracer [J]. *Mar. Chem.*, 48: 57 ~ 69.
- LEVIN I, HESSHAIMER V. 1996. Refining of atmospheric transport model entries by the globally observed passive tracer distributions of ⁸⁵Kr and sulfur hexafluoride [J]. *Journal of Geophysical Research*, 101(D11): 16745 ~ 16755.
- LI Jingjing, ZHOU Aiguo, LIU Cunfu, CAI Hesheng, ZHANG Jungang, MAO Xunmei. 2005. The newest test technology of younger groundwater age — SF₆ method [J]. *Hydrogeology and Engineering Geology*, 1: 94 ~ 97 (in Chinese with English abstract).
- LI Xiaolian, ZHOU Aiguo, LIU Cunfu, CAI Hesheng, CAN Yiqun, WU Jinbo, LIANG Hecheng, ZHOU Jianwei. 2007. SF₆ age of Karst water in Guilin [J]. *Carsologica Sinica*, 26(3): 207 ~ 211 (in Chinese with English abstract).
- LOVELOCK J E. 1971. Atmospheric fluorine compounds as indicators of air movements [J]. *Nature*, 230 ~ 379.
- MACDONALD A M, DARLING W G, BALL D F, OSTER H. 2003. Identifying trends in groundwater quality using residence time indicators: an example from the Permian aquifer of Dumfries, Scotland [J]. *Hydrogeology Journal*, 11: 504 ~ 517.
- MAISS M, STEELE L P, FRANCY R J, FRASER P J, LANGENFELDS R L, TRIVETT N B A, LEVIN I. 1996. Sulphur hexafluoride—A powerful new atmospheric tracer [J]. *Atmospheric Environment*, 30: 1621 ~ 1629.
- MAISS M, BRENNINKMEIJER C A M. 1998. Atmospheric SF₆: trends, source, and prospects [J]. *Environmental Science and Technology*, 32: 3077 ~ 3086.
- MORRISON T J, JOHNSTONE N B. 1955. The salting out of nonelectrolytes, III, The inert gases and sulfur hexafluoride [J]. *Journal of Chemical Society*, 3655 ~ 3659.
- NICHOLAS S. 2008. Widespread elevated atmospheric SF₆ mixing ratios in the Northeastern United States: Implications for groundwater dating [J]. *Journal of Hydrology*, 349: 139 ~ 146.
- PATRA P K, LAL S, SUBBARAYA B H, RAJARATNAM P. 1997. Observed vertical profile of sulfur hexafluoride (SF₆) and its atmospheric applications [J]. *Journal of Geophysical Research*, 102(D7): 8855 ~ 8859.
- PLUMMER L N, NELMS D L, BUSENBERG E, BOHLKE J K. 1999. Residence times of groundwater and spring discharge in Shenandoah National Park, Virginia. [C]. *Geological Society of America, annual meeting, Abstract with Programs*, 31: A331.
- PLUMMER L N, BUSENBERG E, BOHLKE, NELMS D, MICHEL R L, SCHLOSSER P. 2001. Groundwater residence times in Shenandoah National Park, Blue Ridge Mountains, Virginia, USA: a multi-tracer approach [J]. *Chemical Geology*, 179: 93 ~ 111.
- RAVISHANKARA R A, SOLOMON S, TURNIPSEED A A, WARREN R F. 1993. Atmospheric lifetimes of long-lived species [J]. *Science*, 259: 194 ~ 199.
- REYNOLDS G W, HOFF J T, GILLHAM R W. 1990. Sampling bias caused by materials used to monitor halocarbons in groundwater [J]. *Environmental Science and Technology*, 24: 135 ~ 142.
- RINSLAND C P, BOLDMAN A, STEPHEN T M, CHIOU L S, MAHIEU E, ZANDER R. 2003. SF₆ ground-based infrared solar absorption measurements: long-term trend, pollution events, and a search for SF₃CF₃ absorption [J]. *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, 78: 41 ~ 53.
- SANTELLA N, SCHLOSSER P, HO D T, STUTE M. 2002. Elevated SF₆ concentration in soil air near New York city and its effect on the utility of SF₆ for dating of groundwater [C]. *Geochimica and Cosmochimica Acta, Goldschmidt Conference Abstracts*, A667.

- SANTELLA N, HO DT, SCHLOSSER P, STUTE M. 2003. Distribution of atmospheric SF_6 near a large urban area as recorded in the vadose zone [J]. *Environmental Science and Technology*, 37: 1069 ~ 1074.
- SMART P L, BIGGIN D S. 1989. Groundwater tracing using sulphur hexafluoride (abstract) [C]. In: Tracers in hydrogeology: Principles, Problems, and Practical Solutions NWWA annual Meeting and Exposition Educational Program, 1 Nov., Houston, TX: 27 ~ 28.
- STEWART M K. 2007. Hydrometric and natural tracer (O-18, silica, tritium and sulfur hexafluoride) evidence for a dominant groundwater contribution to Pukemanga Stream, New Zealand [J]. 21: 3340 ~ 3356.
- VOLLMER M K, WEISS R F. 2002. Simultaneous determination of sulfur hexafluoride and three chlorofluorocarbons in water and air [J]. *Marine Chemistry*, 78: 137 ~ 148.
- WANNINKHOF R, LEDWELL J R, WATSON A J. 1991. Analysis of sulfur hexafluoride in seawater [J]. *Journal of Geophysical Research*, 96: 8733 ~ 8740.
- WANNINKHOF R. 1992. Relationship between wind speed and gas exchange over the ocean [J]. *Journal of Geophysical Research*, 97 (C5): 7373 ~ 7382.
- WATSON A J, LEDWELL J R, SUTHERLAND S C. 1991. The Santa Monica Basin tracer experiment — Comparison of release methods and performance of perfluorodecalin and sulfur hexafluoride [J]. *Journal of Geophysical Research*, 96 (C5): 8719 ~ 8725.
- WILSON R D, MACKAY D M. 1993. The use of sulfur hexafluoride as a conservative tracer in saturated sandy media [J]. *Ground Water*, 31(5): 719 ~ 724.
- WILSON R D, MACKAY D M. 1995. Direct detection of a residual non-aqueous phase liquid in the saturated zone using SF_6 as a partitioning tracer [J]. *Environmental Science and Technology*, 29: 1255 ~ 1258.
- WILSON R D, MACKAY D M. 1996. SF_6 as a conservative tracer in saturated media with high intragranular porosity of high organic carbon content [J]. *Ground Water*, 34(2): 241 ~ 249.
- WMO. 2006. <http://gaw.kishou.go.jp/wdogg.html>, 5.
- WU Bin, SHU Lichun, SIMA Wenxia, GU Leguan. 2000. Insulation of SF_6 Gas and Global Greenhouse Warming [J]. *High Voltage Electrical Apparatus*, 36(6): 23 ~ 26 (in Chinese).
- ZHANG Lina. 1999. The New Idea of Environmental Protection Agency [J]. *High Voltage Electrical Apparatus*, 35(5): 60 (in Chinese).
- ZHANG Jungang, LI Jingjing, ZHOU Aiguo, LIU Cunfu. 2005. An Analytical technique for the measurement of SF_6 in atmosphere and groundwater [J]. *Acta Geoscientia Sinica*, 26: 293 ~ 295 (in Chinese with English abstract).
- ZHOU Jianwei, ZHOU Aiguo, LIU Cunfu, CAI Hesheng, GAN Yiqun, LIANG Hecheng. 2007. The test technology and application of SF_6 age in shallow groundwater [J]. *Geological Science and Technology Information*, 26(4): 97 ~ 102 (in Chinese with English abstract).

敬告本刊作者

《地球学报》为了进一步加强学术交流、扩大学术影响,决定把1979年创刊以来的各期文章(包括部分增刊),制成PDF电子文档并通过网络自主发布。由于种种原因,难以逐一联系所有作者并请赐惠肯。如有作者不愿将其文章在网络上发布,请向我编辑部声明。

联系方式 电话:010_68327396,010_68992351
传真:010_68327396
电邮:dqxb@hotmail.com;

dqiuxb@126.com

对因此给作者带来的不便,深表歉意。

本刊由中国地质科学院主办,1979年创刊时的刊名为《中国地质科学院院报》,1994年更名为《地球学报——中国地质科学院院报》,2001年定名为《地球学报》。

《地球学报》编辑部 敬启
二〇〇七年十二月十七日