

文章编号: 1001-8166(2010)05-0505-10

黔中气溶胶传输的²¹⁰Pb和⁷Be示踪: II. 月及年时间尺度的剖析*

万国江¹, 郑向东², Lee H N³, Bai Z G⁴, 万恩源¹, 王仕禄¹,
杨伟¹, 苏菲⁵, 汤洁², 王长生¹, 黄荣贵¹, 刘鹏⁶

(1. 中国科学院地球化学研究所环境地球化学国家重点实验室, 贵州 贵阳 550002
2 中国气象科学研究院, 北京 100081; 3 Environmental Measurements Laboratory
New York NY 10014-7447, USA; 4 ISRC World Soil Information Wageningen 6700 AJ
the Netherlands; 5 贵州省气象局, 贵州 贵阳 550002
6 中国大气本底基准观象台, 青海 西宁 810001)

摘要:自 2001 年 12 月连续逐周在贵阳观风山附近对近地面空气²¹⁰Pb/⁷Be 浓度和沉降量的观测表明: 区域性降水 and 气温制约近地面空气²¹⁰Pb 具高浓度“U”型年分布; 降水量和平流层向下输送影响近地面空气⁷Be 月均浓度的季节性变化; ²¹⁰Pb/⁷Be 月均浓度比率受控于²¹⁰Pb 变化和富⁷Be 气团下沉的影响。观风山与瓦里关山之间因纬度和海拔的关系,⁷Be 比率急剧震荡, 显示出海洋性贫⁷Be 气团入侵对观风山地区的明显影响。2002—2008 年间贵阳观风山近地面空气²¹⁰Pb 的年均浓度(2.8±0.6) mBq/m³, 约为全球若干站点中最高平均浓度值的 4 倍; 而⁷Be 的年均浓度(4.8±0.6) mBq/m³ 与全球高海拔站点长期观测的平均值相当, 大约为北半球中纬度对流层顶部附近⁷Be 浓度值(18.0 mBq/m³) 的 1/3.8 显示出低纬度、较高海拔地区的预期水平。2003 年, 瓦里关山和观风山近地面空气⁷Be 的年均浓度比为 3.8 与预期的大气输送和混合作用基本一致。⁷Be 月均浓度的增大趋势反映出受太阳黑子数减少的变化关系, 其影响底线大约为 4 mBq/m³; ⁷Be 年均浓度波动的增大趋势反映出受太阳黑子数降低的可能影响。贵阳观风山降水中⁷Be 和²¹⁰Pb 的体积加权浓度分别为 0.72 Bq/L 和 0.27 Bq/L, 年沉降通量分别为 0.080 Bq/(cm²·a) 和 0.031 Bq/(cm²·a)。数值模拟显示出全球空气²¹⁰Pb 高浓度区和 high 沉降通量环带分布, 印证了洱海和红枫湖沉积物⁷Be 和¹³⁷Cs 蓄积的模拟结果。

关键词:气溶胶传输; ²¹⁰Pb/⁷Be 月一年时间尺度; 红枫湖; 洱海
中图分类号: P402 **文献标志码:** A

在“黔中气溶胶传输的²¹⁰Pb和⁷Be示踪: I. 周
时间尺度的解释”^[1]中, 已就环境放射性核素的来源、示踪意义、研究原理和方法进行介绍, 并就 2001—

12-20 ~ 2006-10-03 及 2008-01-01 ~ 2008-12-31 期
间, 连续逐周在贵阳观风山附近采集的近地面空气
滤膜样品以及不同时段降水样品, 对²¹⁰Pb和⁷Be

* 收稿日期: 2009-09-24 修回日期: 2010-03-29

* 基金项目: 国家自然科学基金面上项目“环境中 Pb 的地球化学运移”(编号: 40873086), “黔中大气核素(²¹⁰Pb-⁷Be)与气溶胶关系”(编号: 40773071), “²¹⁰Pb和⁷Be 大气沉降通量研究”(编号: 40373038), “利用⁷Be和²¹⁰Pb示踪研究高原大气微量气体成分的输送特征”(编号: 40175032); 中美国际合作项目“Tracing recent climate and environmental changes by measuring low-level radionuclides in the Yunnan-Guizhou Plateau, China(2001-2005)”资助。

作者简介: 万国江(1940-) 男, 四川南溪人, 研究员, 主要从事区域环境演变、环境过程和核素示踪研究。E-mail: wangguojian@vip.skieg.cn

的观测结果从周时间尺度进行解释。本文将从月和年时间尺度继续讨论。文中所利用的原始数据资料是按照最小二阶乘法,在 95%的置信区间加权计算数据处理。

1 月时间尺度近地面空气 ^{210}Pb 和 ^7Be 浓度的控制因素

图 1 绘出了贵阳观风山近地面空气 ^{210}Pb 和 ^7Be 月均浓度及其比率变化。由图 1 可见, ^{210}Pb 月均浓度较高 ($1.6 \sim 4.6 \text{ mBq/m}^3$), 在年内呈现出规则的“U”型分布特征。其中, 1 月及 12 月为高月均浓度期, 7 月及 8 月为低月均浓度期, 最高与最低值之比约为 2.9。近地面空气 ^{210}Pb 浓度变化的制约性因素是母体 ^{226}Rn 的来源及气象条件。黔中地区土壤中 U-Ra 系含量较高, 碳酸盐岩溶蚀作用, 煤—磷资源开发、加工和利用等因素可能构成对 ^{210}Pb 的母体核素 ^{222}Rn 释放的影响。但是, 制约黔中地区近地面空气 ^{210}Pb 月均浓度变化和 U 型年分布特征的重要因素还在于 ^{222}Rn 的析出条件。 ^{210}Pb 月均浓度随同期降水量呈良好的幂函数关系, 并随气温呈现良好的分组线性关系。其中: 6~11 月反映出较高气温季节土壤 ^{222}Rn 的相对低释放; 12~5 月反映了较低气温季节土壤 ^{222}Rn 的相对高析出。年内气温和降水的变幅还制约着近地面空气 ^{210}Pb 月均浓度的高值与低值之比。印证了在月时间尺度下, 区域性的降水量和气温是影响土壤(岩石)中 ^{222}Rn 析出的主要因素^[2,3]。观风山近地面空气 ^7Be 月均浓度分布仍然具有季节性变化。年内 ^7Be 月均浓度明显降低的现象出现在降水频繁且水量较大的夏季(6~8 月); 而 1~5 月期间的逐渐增高及 9~12 月间的总体高值反映了该地区降水量相对较少季节的总体状况和全球尺度的 Brewer-Dobson 环流引起的平流层向下输送的影响。 ^{210}Pb 与 ^7Be 的浓度比率 ($^{210}\text{Pb}/^7\text{Be}$) 在 1 月份最高, 主要受控于 ^{210}Pb 的较高浓度水平和高空气团的较少下沉; 而 5~6 月的低值状态显示出强对流天气过程中高空富 ^7Be 气团入侵的明显影响^[4,5]。这种比率关系指示出一种逐月波动的季节性变化。

观风山与瓦里关山之间因纬度和海拔高度的不同, 近地面空气 ^{210}Pb 和 ^7Be 浓度在月均尺度上也存在明显的差异。由图 2 可见, 年内观风山近地面空气 ^{210}Pb 月均浓度变化总体上与图 1 所示的多年变化相似; 而瓦里关山近地面空气 ^{210}Pb 月均浓度变化总体上与在观风山的变化趋势也基本相似。瓦里关

山近地面空气 ^{210}Pb 月均浓度的总体低值, 可能是因为 ^{222}Rn 长距离传输衰变所致, 以及 1 月份高空贫 ^{210}Pb 气团的较明显影响。无论瓦里关山还是观风山, 年内近地面空气 ^7Be 的月均浓度呈现出整体的稳定和不大的波动。在瓦里关山, 仅 4 月份为高值期 (18.6 mBq/m^3), 8~9 月为低值期 ($10.1 \sim 10.6 \text{ mBq/m}^3$), 而其余的 9 个月稳定在 $14.4 \sim 16.3 \text{ mBq/m}^3$ 之间, 变幅仅 1.9 mBq/m^3 ^[5]。这既表明了季节尺度的大气动力输送过程对 2 个站点的 ^7Be 浓度影响比较稳定, 幅度相对较小; 也体现出两地降水量的变化对近地面空气 ^7Be 月均浓度影响并未像周时间尺度那样显著。观风山近地面空气 ^7Be 的月均浓度的低值期为 7~8 月, 较而瓦里关山地区超前 1 个月; 7~9 月间观风山与瓦里关山空气 ^7Be 比率的急剧震荡显示出海洋性贫 ^7Be 气团入侵对观风山地区的明显影响^[4,5]。

2 年时间尺度下近地面空气 ^{210}Pb 和 ^7Be 浓度的总体特征

表 1 可见, 2002—2008 年间贵阳观风山近地面空气 ^{210}Pb 的平均变幅约为 0.5 mBq/m^3 。年均浓度 (2.8 ± 0.6) mBq/m^3 约为全球若干站点中最高平均浓度值的近 4 倍, 清晰地显示出 ^{210}Pb 的高浓度特征; 而 ^7Be 的年均浓度 (4.8 ± 0.6) mBq/m^3 与全球高海拔站点长期观测的平均值相当, 大约为北半球中纬度对流层顶部附近 ^7Be 浓度值 (18.0 mBq/m^3)^[7] 的 1/3.8 显示出低纬度、较高海拔地区的预期水平。

2003 年, 瓦里关山和观风山 ^7Be 的年均浓度分别为 (14.7 ± 1.5) mBq/m^3 、(3.9 ± 0.8) mBq/m^3 , 前者为后者的 3.8 倍。其中, 7 月高达 9 倍以上; 9 月仅 2 倍。 ^7Be 在上对流层和低平流层自然地产生于宇宙线中子轰击裂变作用。根据与 ^7Be 产率有关的中子通量的模拟计算 (Paul Goldhaagen, 私人通讯, 2004), 当不考虑大气混合和环流作用, 瓦里关山顶部中子通量大约较贵阳高 8 倍, ^7Be 浓度较贵阳高 2.5 倍。有 2 种可能导致实测值略高于理论计算: ①瓦里关站点地区受到平流层向下输送的扰动比较大; ②观风山地区则受到来自低纬度海洋性上升气团的影响比较显著。在夏季, 7~8 月份, 当青藏高原主体地区被强大的青藏高压所控制时, 在高原边缘地区的瓦里关山站点则是与补偿性的下沉气流为主, 可能是导致两地之间实测 ^7Be 浓度比值略大的重要原因。上述分析说明, 瓦里关山与观风山 2 个

站点近地面空气 ^7Be 年均浓度的实测与预期的大气输送和混合作用基本一致。

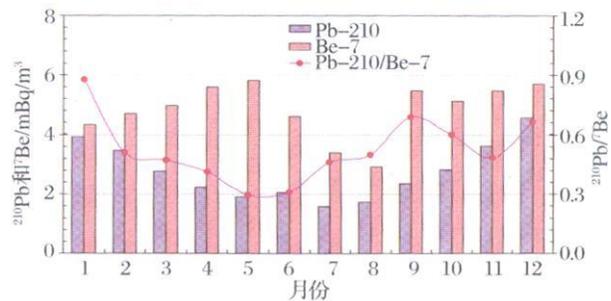


图 1 贵阳观风山近地面空气 ^{210}Pb 和 ^7Be 月均浓度比较 (2002—2008) (据文献 [2 3] 及后续资料综合整理)
 Fig 1 Comparison of monthly mean concentrations between ^{210}Pb and ^7Be in surface air at Mt. Guanfeng, Guiyang (2002-2008)

对于近地面空气 ^7Be 浓度的定点观测而言, 其年际间变化趋势及其平均浓度值的不稳定性正好说明其传输来源和清洗过程的波动性。瑞士 Freiburg 位于中纬度地区, 其近地面空气 ^7Be 浓度多年平均值为 80 Ci/m^3 (即 3.0 mBq/m^3)^[8]。贵阳观风山近地面空气 ^7Be 的年均浓度较瑞士 Freiburg 约高

60%, 可能主要受海拔高度的影响。

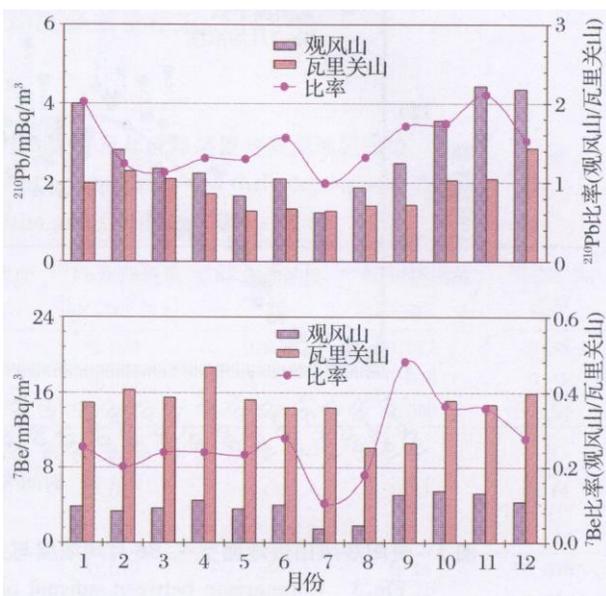


图 2 观风山与瓦里关山 2003 年近地面空气 ^{210}Pb ^7Be 月均浓度比较 (据文献 [4 5] 资料综合整理)
 Fig 2 Comparison of monthly mean concentrations of ^{210}Pb and ^7Be in surface air between Mt. Walian and Mt. Guanfeng (2003)

表 1 贵阳观风山近地面空气 ^{210}Pb 和 ^7Be 年均浓度 / mBq/m^3 (据文献 [6] 资料整理)

Table 1 Annual mean concentrations of ^{210}Pb and ^7Be in surface air at Mt. Guanfeng, Guiyang / mBq/m^3

核素	2002	2003	2004	2005	2006	2008	平均	全球若干站点 多年平均
^{210}Pb	2.5 ± 0.5	2.8 ± 0.7	3.0 ± 0.7	2.6 ± 0.6	2.6 ± 0.6	2.8 ± 0.8	2.8 ± 0.6	0.02~0.71
^7Be	4.5 ± 0.9	3.9 ± 0.8	5.4 ± 1.0	4.4 ± 0.7	5.3 ± 1.6	5.6 ± 1.4	4.8 ± 0.6	3.54~7.10

3 贵阳观风山近地面空气 ^7Be 和 ^{210}Pb 浓度的年际变化趋势

基于宇宙线变化引起 ^7Be 产率变化, 观风山的观测始于 2001 年 12 月, 即 1996 年开始的第 23 个太阳黑子活动周的后半期。太阳活动的减弱相继带来近期宇宙线强度增大, 进而引发大气中 ^7Be 等核素在全球尺度上的浓度增加。图 3 从观风山近地面空气 ^7Be 月均浓度的增大趋势上反映出受太阳黑子数减少的变化关系, 其影响底线大约为 4 mBq/m^3 。特别是在某些时段呈现出太阳黑子数对 ^7Be 月均浓度影响的良好对偶影响特征; 而另一些时段则明显地反映出近地气象条件对 ^7Be 月均浓度的明显影响。可能因 ^7Be 仅具月时间尺度半衰期的影响, 这种逐月的对偶影响还可能存在 1 月或 2 月的滞

后期。

图 4 显现出观风山近地面空气 ^7Be 年际间年均浓度的波动特征, 其增大的变化趋势反映出受太阳黑子数降低的可能影响。而近地面空气 ^{210}Pb 的年均浓度也可能存在受太阳黑子数降低的波动影响趋势, 但是不够明显。 ^{210}Pb 的这种年际变化趋势可能直接受控于 ^{222}Rn 自表土逸散的影响, 而太阳黑子变化仅仅从更前一层面的因素上发挥作用。

4 贵阳 ^{210}Pb 和 ^7Be 的年降水沉降通量观测与湖泊沉积模拟比较

核素自大气散落的沉降通量, 在同一地区与降水量存在着一定程度的相关关系; 而在不同地区, 也可能存在较大区别。已有观测表明, ^7Be 干沉降的贡献仅占 3% ~ 8%^[10]。贵阳地区降水量较大、频

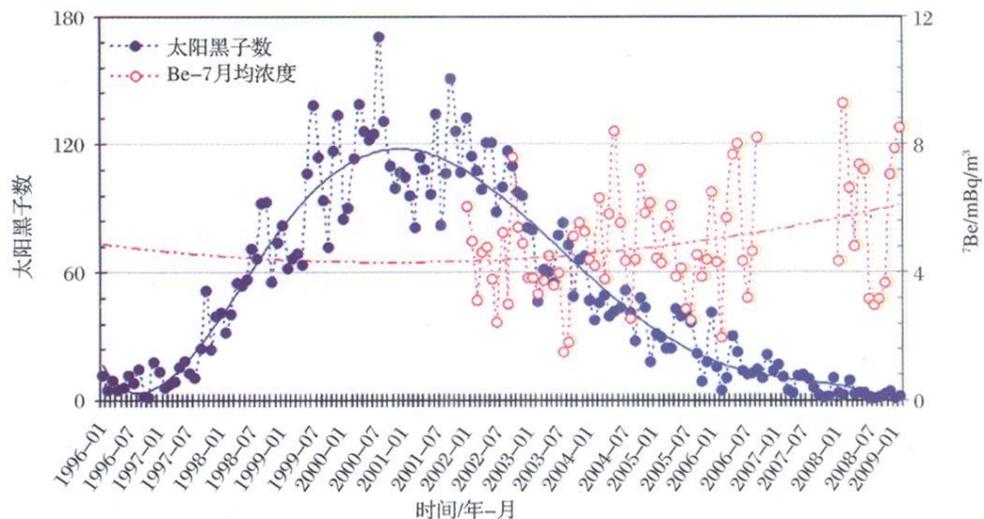


图 3 贵阳观风山近地面空气 ${}^7\text{Be}$ 月均浓度与太阳黑子变化趋势对比(太阳黑子数采集自文献[9])

Fig 3 Comparison between sunspot numbers and monthly mean ${}^7\text{Be}$ concentrations in surface air at Mt. Guanfeng, Guiyang

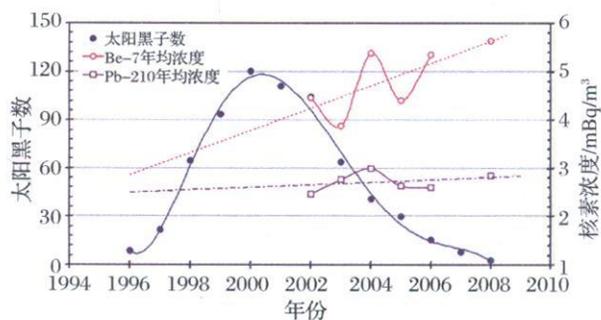


图 4 贵阳观风山近地面空气 ${}^7\text{Be}$ 和 ${}^{210}\text{Pb}$ 年均浓度与太阳黑子变化趋势对比(太阳黑子数采集自文献[9])

Fig 4 Comparison between sunspot numbers and annual mean concentrations of ${}^7\text{Be}$ and ${}^{210}\text{Pb}$ in surface air at Mt. Guanfeng, Guiyang

数较高,干沉降的贡献可能更小。因此,我们的观测侧重于 ${}^{210}\text{Pb}$ 和 ${}^7\text{Be}$ 随大气降水的沉降。表 2 列出观风山站点 2 个年度周期(2005-09-20~2006-09-19及 2008-01-02~2008-12-30)及河南焦作云台山附近 2008 年度不同时段采集大气降水中 ${}^{210}\text{Pb}$ 和 ${}^7\text{Be}$ 浓度的观测结果并与美国 Galveston 的观测结果^[11]比较。其中,降水中的年均浓度系按照体积加权(Volume Weighted)计算,而年沉降通量则为年降水总量标准化校正处理。贵阳观风山 ${}^{210}\text{Pb}$ 和 ${}^7\text{Be}$ 降水加权平均浓度分别为 0.27 Bq/L 和 0.72 Bq/L ,年沉降通量分别为 $0.031\text{ Bq}/(\text{cm}^2 \cdot \text{a})$ 和 $0.080\text{ Bq}/(\text{cm}^2 \cdot \text{a})$ 。贵阳和焦作均处内陆地区,前者年降水量为

后者的 2~3 倍。虽然两地降水中 ${}^{210}\text{Pb}$ 的加权平均浓度相近,但焦作的年沉降通量仅为贵阳的 50%左右;而焦作所处的中纬度区位使得该地区降水中 ${}^7\text{Be}$ 的加权平均浓度明显增高,年沉降通量也相对增高。美国 Galveston 位于墨西哥湾海岸,与贵阳站点的共同性是降水量大、核素浓度及沉降通量都存在明显的年际波动。贵阳降水中 ${}^{210}\text{Pb}$ 的年均加权浓度和沉降通量都明显高于 Galveston,而 ${}^7\text{Be}$ 年均浓度和沉降通量刚好相反。因此,贵阳降水的 ${}^{210}\text{Pb}/{}^7\text{Be}$ 比率明显高于 Galveston。

携带 2 种核素的气溶胶粒子的有效动力学直径(AMD)在一定程度上可能构成对湿洗效率的不同影响。Winkle 等^[12]的研究表明,携带 ${}^7\text{Be}$ 的气溶胶粒子的 AMD 始终大于携带 ${}^{210}\text{Pb}$ 的气溶胶粒子,尤其是在夏季,后者比前者要小 $0.1\ \mu\text{m}$ 左右。可见,尽管 ${}^7\text{Be}$ 或 ${}^{210}\text{Pb}$ 共同存在同一个气溶胶颗粒上,但是 AMD 的差异,导致携带 ${}^7\text{Be}$ 与携带 ${}^{210}\text{Pb}$ 的气溶胶粒子的湿清除过程存在一定的差异。对于观风山而言,我们对部分大气滤膜样品进行了逐层测定,发现其第一层滤膜中 ${}^{210}\text{Pb}$ 与 ${}^7\text{Be}$ 比活度的比值总是大于或等于 1。这说明贵阳地区气溶胶粒子的有效动力学直径在一定程度上可能构成对 ${}^{210}\text{Pb}$ 湿洗的有效影响。

根据红枫湖一百花湖沉积物柱芯 ${}^{210}\text{Pb}$ 垂直剖面分布函数^[13,14],按 $F=C_0 \times S$ 计算得 ${}^{210}\text{Pb}$ 的大气散落平均沉降通量(表 3)。计算式中, C_0 为 ${}^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$

在沉积物柱芯顶部 ($Z=0$) 时的比活度 (即表观比活度); S 为该柱芯的沉积物平均堆积速率。红枫湖—百花湖与观风山地理位置较近, 均属贵阳地区。由

表 3 可见, 实际观测与湖泊沉积模拟的 ²¹⁰Pb 大气平均沉降通量相近。

表 2 贵阳观风山 ²¹⁰Pb 和 ⁷Be 降水体积加权年均浓度及年沉降通量与其他地区比较

Table 2 Volume-weighted concentrations of ²¹⁰Pb and ⁷Be in precipitation and their depositional fluxes at Mt. Guanfeng/Guifang Mt. Yuntai/Jiaozuo and Galveston/Texas, USA

采样地	时间段	年降水量 /mm	²¹⁰ Pb 年均浓度 /Bq/L	²¹⁰ Pb 沉降通量 /Bq/(cm ² ·a)	⁷ Be 年均浓度 /Bq/L	⁷ Be 沉降通量 /Bq/(cm ² ·a)	²¹⁰ Pb/ ⁷ Be 比率
贵阳 (106°43'22" E, 26°34'19.3"N, 海拔 1080 m), 本研究	2005-09-20~2006-09-19	94	0.31	0.029	0.87	0.082	0.35
	2008-01-01~2008-12-30	137	0.23	0.032	0.57	0.078	0.41
	平均		0.27	0.031	0.72	0.080	0.38
焦作云台山附近 (113°15'21"E, 35°11'14"N, 海拔 103 m), 本研究	2008-01-10~2008-09-29	41	0.36	0.015	2.68	0.11	0.14
Galveston, Texas, USA	1989	103	0.11	0.012	1.44	0.15	0.078
(94°48'W, 29°18'N), 据文献 [11], 并换算为 Bq 单位	1990	97	0.12	0.011	2.06	0.20	0.056
	1991	150	0.19	0.029	2.58	0.39	0.074
	平均	117	0.14	0.017	2.03	0.25	0.069

表 3 实际观测与红枫湖—百花湖沉积模拟的 ²¹⁰Pb 大气沉降通量比较

Table 3 Comparison of measurement of ²¹⁰Pb depositional fluxes in the sediment cores of Lake Hongfeng-Baihua, Guiyang with simulation

观测点	时间段	²¹⁰ Pb 大气散落		资料出处
		沉积物柱芯	沉降通量 /Bq/(cm ² ·a)	
贵阳	2005-09-20~2006-09-19		0.029	
观风山	2008-01-01~2008-12-30		0.032	本研究
	平均		0.031	
红枫—百花湖		HF8801	0.037	文献 [13]
		HF980903	0.029	文献 [14]
		BF980519	0.024	
		平均	0.030	

5 全球近地面空气 ²¹⁰Pb 年均浓度和年均沉降量模拟分布与云贵高原表土—沉积物分布的耦合

利用 Météo France 开发的大尺度大气化学传输模型 (Model of Atmospheric Chemistry at Large Scale, MOCAGE) 模拟全球尺度的大气传输, 获得 2002 年近地面空气 ²¹⁰Pb 年均浓度和年均沉降量的模拟结果 [15]。图 5 显示出中国、俄罗斯和北部非洲等地区近地面空气 ²¹⁰Pb 的高浓度分布区域。图 6 显示出沿着强烈的降水活动和季候风区域, ²¹⁰Pb 在北非—

南亚—东北亚—南美等地区的高沉降量环带分布特征。将取自贵阳的测量值与 MOCAGE 模型结果比较, 二者之间具有良好的相关关系 ($r=0.717$)。模拟结果的低估值可能归因于该地潜在的更高的氡源, 也同样可能产生于喜马拉雅山近旁季风区域已知高频率对流的降水对 ²¹⁰Pb 气溶胶的清洗影响。

¹³⁷Cs 是大气层核试验产生并在全球范围内扩散和散落的核素, 其散落通量的变化受核试验强度、地区性和纬度效应影响。¹³⁷Cs 作为一个全球性的污染物扩散指标, 系伴随西风带气流输送而全球扩散。联合国原子能辐射效应科学委员会 (UNSCEAR) 曾就 ¹³⁷Cs 全球扩散散落累计值的区域分布给出模拟图示 [16]。滇西和黔中地区正好分别位于模拟累计值的不同等值线区域 (图 7)。¹³⁷Cs 散落的地区差异反映出气流输送过程中全球性扩散大气污染物散落的屏蔽效应。特别是滇西地区因青藏高原隆起的影响, 受印度洋西南季风的控制, 全球大气物质传递有别于黔中地区。这与 ²¹⁰Pb 全球分布模拟的区域性特点基本吻合。

区域间环境核素的散落特征对比为污染物的全球传输提供重要认识。基于滇西 (洱海等汇水区) 和黔中 (红枫湖汇水区) 表土和沉积物中 ⁷Be 和 ¹³⁷Cs 分布的比对, 显示出两核素在两地区存在着散落—蓄积的差异: 既可能滇西 ⁷Be 的散落—蓄积较黔中地区高, 也可能滇西 ¹³⁷Cs 的散落—蓄积较黔中地区低 [17~21]。

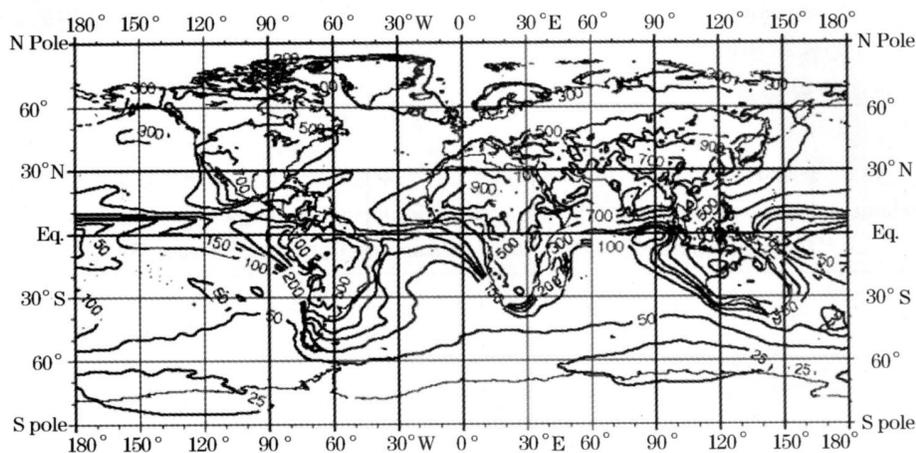


图 5 2002 年近地面空气 ^{210}Pb 年均浓度全球分布模拟计算结果(单位: $\mu\text{Bq}/\text{m}^3$)^[15]

Fig. 5 Modeled global distributions of annual mean of ^{210}Pb surface air concentration for year of 2002

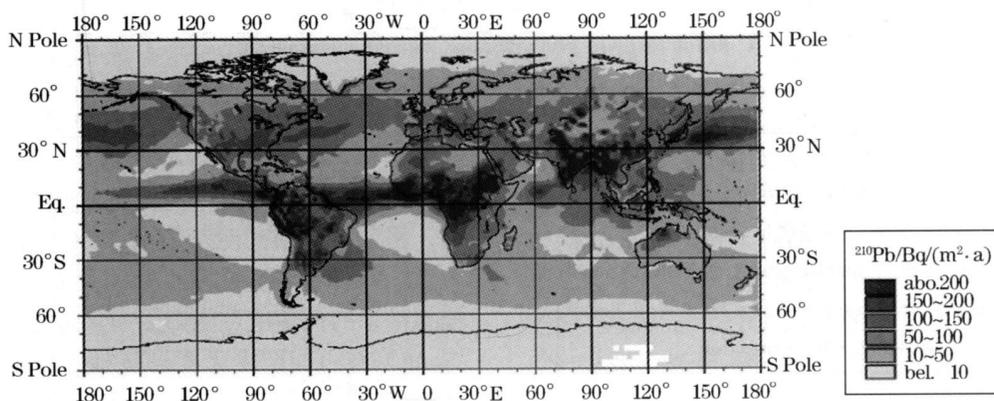


图 6 2002 年 ^{210}Pb 年均总沉降量全球分布模拟计算结果(单位: $\text{Bq}/(\text{m}^2 \cdot \text{a})$)^[15]

Fig. 6 Modeled global distributions of annual mean total deposition of ^{210}Pb for year of 2002

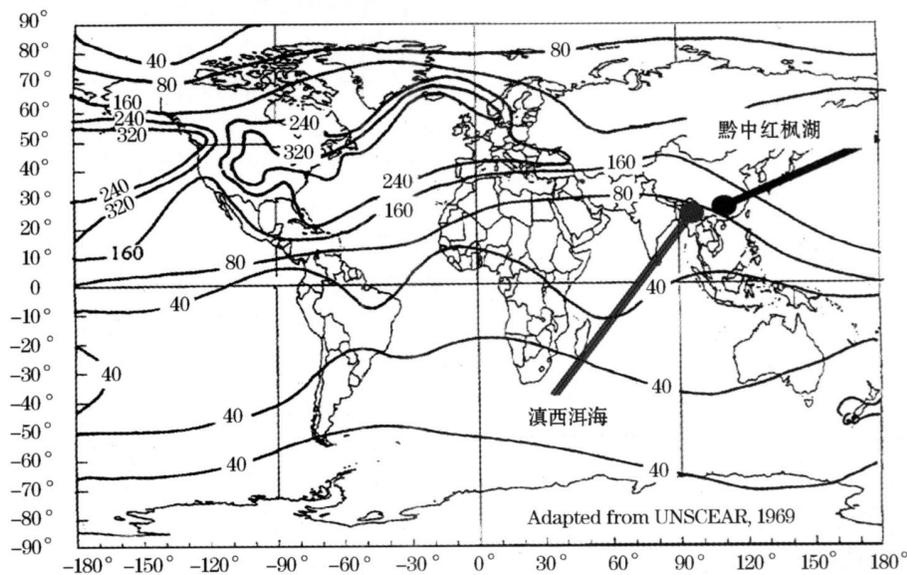


图 7 ^{137}Cs 全球扩散散落累计值的区域分布图示(单位: mBq/cm^2) 据文献[16]修改

Fig. 7 Global inventory of ^{137}Cs derived from nuclear tests (in $\text{mBq} \cdot \text{cm}^{-2}$, estimated for 1996)

¹³⁷Cs 在洱海和红枫湖沉积物柱芯中具有相似的垂直分布特征, 并与全球散落的时序相吻合; 沉积物柱芯中 ¹³⁷Cs 时标与 ²¹⁰Pb 计年结果一致。这表明近几十年间两湖的沉积作用均较稳定。但是, 按校正到沉降年代的数值表示, 1986 年以前洱海和红枫湖沉积物中 ¹³⁷Cs 的累计值分别为 (519 ± 26) Bq/m² 及 (3 528 ± 50) Bq/m², 后者约为前者的 7 倍 (表 4)。滇西地区湖泊沉积物中 ¹³⁷Cs 的蓄积明显低于黔中地区。

⁷Be 在洱海和红枫湖沉积物中主要分布在沉积物顶部 2 cm 深度以内, 与在其他湖泊和海湾沉积物表层的分布深度一致。但是, 其累计值具有 2 点重要差异: ①洱海沉积物中 ⁷Be 的累计值 (237 ± 73) Bq/m² 远较红枫湖沉积物中的累计值 (783 ± 44) Bq/m² 小 (表 4); ②红枫湖沉积物中 ⁷Be 的累计值远高于其汇水区表土中累计值的平均水平, 而洱海沉积物中 ⁷Be 的累计值较其汇水区表土的累计值小

或相当。这不仅说明黔中地区流域侵蚀严重, 表土中的 ⁷Be 可能随土粒搬运进入湖底沉积物; 而滇西地区表层土粒的选择性侵蚀不够明显。

大气散落核素在湖泊沉积物中的蓄积是大气直接散落、流域表土侵蚀和湖泊沉积共同作用的结果。为认识核素散落蓄积的地区差异, 需要从流域侵蚀与湖泊沉积作用的耦合关系上综合分析它们在沉积物中的累计特征。利用业已建立的大气散落核素在流域侵蚀和湖泊沉积间关系的示踪模型^[22-23] 计算出 ¹³⁷Cs 和 ⁷Be 在洱海和红枫湖沉积物中的蓄积—散落比值, 再根据沉积物中实测的累计值讨论其散落的地区差异。表 5 中, λ_s 为核素通过微粒沉降作用自湖水向沉积物迁移的初级迁移速率常数, τ_s 为核素通过微粒沉降作用的寄宿时间, f_i 及 f_e 分别为核素在湖泊沉积物中蓄积的散落影响因子和侵蚀影响因子, I₀ 为核素在沉积物中的蓄积—散落比值, I₁ 为核素自大气散落的累计值。通过模式分析可见。

表 4 洱海和红枫湖沉积物中 ⁷Be 和 ¹³⁷Cs 蓄积资料^[18]

Table 4 ⁷Be and ¹³⁷Cs accumulation in the sediments of Lake Hongfeng and Erhai

湖泊名称	⁷ Be		¹³⁷ Cs				
	渗透深度 / m	累计值 / Bq/m ²	主峰质量深度 / g/cm ²	沉积物堆积速率 / g/(cm ² ·a)	主峰比活度 / Bq/kg	总累计值 / Bq/m ²	1986 年前累计值 / Bq/m ²
洱海	2	237 ± 73	1.455	0.047 ± 0.002	48.3 ± 2.7	590 ± 27	519 ± 26
红枫湖	2	783 ± 44	4.112	0.17 ± 0.01	140.6 ± 4.2	3 552 ± 50	3 528 ± 50

表 5 洱海和红枫湖沉积物中 ¹³⁷Cs 和 ⁷Be 蓄积—散落模拟计算结果^[18]

Table 5 Simulation of ¹³⁷Cs and ⁷Be accumulation—deposition in the sediments of Lake Hongfeng and Erhai

核素	湖泊名称	λ _s /a ⁻¹	τ _s /d	f _i	f _e	f _i /f _e	f = f _i + f _e	I ₀ /Bq/m ²
¹³⁷ Cs	洱海	0.18	2.05 × 10 ³	0.32	0.17	1.9	0.49	0.11 ± 0.01
	红枫湖	0.73	5.01 × 10 ²	0.19	0.81	0.2	1.00	0.37 ± 0.01
⁷ Be	洱海	2.13	1.71 × 10 ²	0.28	0.05	5.6	0.33	0.07 ± 0.02
	红枫湖	10.01	3.65 × 10 ¹	0.40	0.62	0.6	1.02	0.08 ± 0.01

注: 模式计算中, 固—液分配系数 K_d ¹³⁷Cs 取 4 × 10³ cm³/g 引自文献 [24]; ⁷Be 取 5 × 10⁴ cm³/g 引自文献 [22]

(1) ⁷Be 在洱海沉积物中的蓄积以散落影响为主, 散落—侵蚀影响因子比值为 5.6 而在红枫湖沉积物中的蓄积以侵蚀影响为主, 散落—侵蚀影响因子比值仅为 0.6 洱海的蓄积—散落比值小, 仅为 0.33 而红枫湖为 1.02。进而得知洱海和红枫湖大气散落累计值分别为 (0.07 ± 0.02) Bq/cm² 及 (0.08 ± 0.01) Bq/cm²。这说明 ⁷Be 在滇西与黔中地区的大气散落通量相近^[18-21]。

(2) ¹³⁷Cs 在红枫湖沉积物的蓄积以侵蚀影响为主, 侵蚀影响因子为散落影响因子的 4.3 倍; 洱海

沉积物的蓄积受直接散落控制, 其散落影响因子为侵蚀影响因子的 1.9 倍, 蓄积—散落比值为 0.49 红枫湖沉积物的蓄积—散落比值为洱海的 2 倍, 同样反映出侵蚀来源的重要影响。根据蓄积—散落比值关系, 分别计算出洱海和红枫湖 1986 年以前 ¹³⁷Cs 自大气散落的累计值为 (0.11 ± 0.01) Bq/cm² 及 (0.37 ± 0.01) Bq/cm²。模拟计算说明, ¹³⁷Cs 在滇西地区的大气散落远小于黔中地区^[18-21]。

滇西和黔中地区纬度相近且降水量相差仅 20%, 不可能由纬度效应和降水影响来认识两地区

之间 ^{137}Cs 的散落变化。因此,滇西地区 ^{137}Cs 的大气散落远小于黔中地区的现象只能从污染物全球扩散的区域性影响寻求答案。上述分析反映出 ^{210}Pb 全球沉降分布、 ^{137}Cs 全球散落地区差异与云贵高原表土—沉积物分布的耦合。

6 研究展望

解决区域性环境问题和预测全球性环境变化两个领域中存在的许多重要科学问题,构成了环境学科发展的前沿;环境问题是 21 世纪全球经济和社会可持续发展的主要障碍。环境问题本身的研究就是环境演化的研究,而环境演化在研究未来的时候,更需要认识现在和过去的环境过程;地球环境是一个非常复杂的系统,各圈层之间的相互作用在时间和空间上都是无比精确。为适应国际科学发展的形势和高层次上满足我国环境保护事业的需要,为了 21 世纪经济和社会可持续发展,我们必须认识环境问题、维护环境质量,必须深入开展环境演化与过程的研究。对于环境演化的核素示踪领域而言,以下 4 个方面具有重要意义:

(1) 持久长期连续的系统观测: 尽管 ^{210}Pb 的年内变化并不明显,但是, ^7Be 年际间年均浓度的波动特征,其增大的变化趋势反映出受太阳黑子数降低的可能影响。因此,持久长期连续的系统观测仍然很有必要,需要一个稳定的有效的系统观测渠道。

(2) 气溶胶载体的深入认识: ^{210}Pb 和 ^7Be 的大气传输都是以气溶胶作为载体。它们的示踪信息总是与气溶胶颗粒物在大气中的滞留特征紧密联系,寄宿时间构成了重要示踪参数。在一些地区和一些气象条件下,近地面空气 ^{210}Pb 与 ^7Be 之间具有较高的相关性,而另一些地区或某些气象条件下,二者相悖。因此,需要更多的关注携带示踪核素的气溶胶粒子有效动力学特征。

(3) 多核素关系的综合比对: ^{210}Pb 与 ^7Be 在来源、半衰期和运移途径等方面具有重要差别。大气中的 ^{210}Pb 和 ^7Be 既可作为独立示踪剂,又可联合示踪环境过程。在示踪高层大气向下输送的过程中,为消除气溶胶沉降过程对两种核素示踪特性的影响, $^{210}\text{Pb}/^7\text{Be}$ 比率被广泛地应用。

(4) Pu 核素对 ^{137}Cs 的替代: 自 20 世纪 70 年代以来的研究表明, ^{137}Cs (半衰期 30.3 年) 是地表环境过程的理想示踪剂。在北半球的湖泊和海湾沉积物中, ^{137}Cs 在 1954 年和 1964 年两个时间标志被广泛用作作为沉积计年。然而, 1954 年沉积层中 ^{137}Cs 的

比活度低,仅 1964 年沉积层节的 ^{137}Cs 具有实际意义。它们经过近 1~2 个半衰期的衰变,至今已难于辩识。自 90 年代的大气采样观测表明,近地表空气中气溶胶携带的 ^{137}Cs 已经处于测量基线以下。环境中的 Pu 核素主要源于人为活动, ^{239}Pu 和 ^{240}Pu 是核爆炸的感生产物 (半衰期分别为 2.41×10^4 年、 6.56×10^3 年),与 ^{137}Cs 相似,也随大气放射尘散落于地表环境。基于 Pu 核素具有相对较长的半衰期,可望作为沉积计年的有效时间标志。因不同来源而异, $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 原子比变化范围也较大,同样具有重要示踪价值。需要进一步考察: ① Pu 在湖泊沉积物中的垂直分布特征? ② Pu 在湖泊沉积和沉积后过程中的迁移行为? ③ $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 原子比率在湖泊沉积物中的来源指示? 以确认大气散落于地表环境的 Pu 核素作为湖泊现代沉积计年时标的可能性。

过去的研究工作使我们在全方位、多元化、多角度的了解地球环境系统方面迈出了可喜的一步。然而,我们对地球环境的认识还远远不够。许多环境过程都发生于微观变化。所以,我们研究人类对地球环境的影响,更需要深入认识环境演化与过程!

参考文献 (References)

- [1] Wan Guojiang, Zheng Xiangdong, Lee H N et al. ^{210}Pb and Be as tracers for aerosol transfers at center Guizhou, China: I. The explanation by weekly interval [J]. *Advances in Earth Science* 2010 25(5): 492-504. [万国江, 郑向东, Lee H N 等. 黔中气溶胶传输的 ^{210}Pb 和 ^7Be 示踪: I. 周时间尺度的解释 [J]. *地球科学进展*, 2010 25(5): 492-504.]
- [2] Wan Guojiang, Yang W ei, Wang Shi lu et al. Characteristics of U-Plane distribution of high-concentration ^{210}Pb in surface air at central Guizhou, China [J]. *Chinese Science Bulletin* 2005 50(16): 1750-1755 [万国江, 杨伟, 王仕禄, 等. 黔中地区近地面空气 ^{210}Pb 的高浓度 U 型分布特征 [J]. *科学通报*, 2005 50(14): 1498-1502.]
- [3] Wan G J, Lee H N, Wan E Y et al. Analyses of ^{210}Pb concentrations in surface air and in rain water at the central Guizhou, China [J]. *Tellus B* 2008 60(1): 32-41.
- [4] Zheng Xiangdong, Wan Guojiang, Tang Jie et al. ^7Be and ^{210}Pb radioactivity and implications on sources of surface ozone at Mt. W aliguan [J]. *Chinese Science Bulletin* 2005 50(2): 167-171. [郑向东, 万国江, 汤洁, 等. 瓦里关山近地面气溶胶中 ^7Be 和 ^{210}Pb 的观测及其对臭氧浓度变化的示踪 [J]. *科学通报*, 2005 50(1): 72-76.]
- [5] Wan Guojiang, Zheng Xiangdong, Lee H N et al. A comparison for seasonal variation of Be concentrations in surface air between Mt. W aliguan and Mt. Guanfeng [J]. *Geochimica* 2006 35(3): 257-264 [万国江, 郑向东, Lee H N 等. 瓦里关山与观风山近地面空气 ^7Be 浓度季节性变化对比 [J]. *地球化学*, 2006 35

- (3): 257-264]
- [6] EML [DB/OJ]. http://www.eml.doe.gov/databases/sasp/sasp_data_search.htm 2008
- [7] Gausein W, Turekian K K. ^7Be and ^{210}Pb indicate an upper troposphere source for elevated ozone in the summertime subtropical free troposphere of the eastern North Atlantic [J]. *Geophysical Research Letters* 1996, 23(5): 539-542
- [8] KUEr (Kommission zur Überwachung der Radioaktivität) Bericht 25 Jahre Radioaktivität Überwachung in der Schweiz [R]. Freiburg: Physics Institute Universität of Freiburg 1982: 1-46.
- [9] SDC [DB/OJ]. <http://sdc.sma.be/DATA> 2008
- [10] Wallbrink P J, Murray A S. Distribution and variation of ^7Be in soils under different surface cover conditions and its potential for describing soil redistribution processes [J]. *Water Resources Research* 1996, 32(2): 467-476.
- [11] Baskaran M, Coleman C H, Santachi P H. Atmospheric depositional fluxes of ^7Be and ^{210}Pb at Galveston and College Station Texas [J]. *Journal of Geophysical Research* 1993, 98 (D11): 20 555-20 571
- [12] Winkler R, Rosner G. Seasonal and long term variation of ^{210}Pb concentration in air, atmospheric deposition rate and total deposition velocity in south Germany [J]. *The Science of the Total Environment* 2000, 263: 57-68.
- [13] Wan Guojiang, Huang Rongqi, Wang Changsheng et al. A variance of vertical profile for $^{210}\text{Po}_{\text{ex}}$ at the top of sediment in Hongfeng Lake [J]. *Chinese Science Bulletin* 1990, 35(22): 1 910-1 914. [万国江, 黄荣贵, 王长生, 等. 红枫湖沉积物顶部 $^{210}\text{Po}_{\text{ex}}$ 垂直剖面的变异 [J]. *科学通报*, 1990, 35(8): 612-615]
- [14] Xu Shi. The Distribution of $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ in Sediment Cores of Lake Hongfeng, Baihua and Lake Chenhai with Using as a Tracer for Environmental Changes [D]. Guangzhou: Institute of Geochemistry CAS 1999 [胥思勤. 红枫—百花湖、程海沉积物 ^{210}Pb 分布及环境示踪的对比研究 [D]. 广州: 中国科学院地球化学研究所, 1999.]
- [15] Lee H N, Guojiang W an, Xiangdong Zhong et al. Measurements of ^{210}Pb and ^7Be in China and Their Analysis Accompanied with Global Model Calculations of ^{210}Pb [J]. *Journal of Geophysical Research* 2004, 109, D22203. doi:10.1029/2004.JD005061
- [16] Abido E G. Global distribution of ^{137}Cs inputs for soil erosion and sedimentation studies [J]. Use of ^{137}Cs in the study of soil erosion and sedimentation. IAEA-TECDOC-1028. July 1998, 117-121.
- [17] Wan Guojiang, Bai Zhanqun. ^7Be and ^{137}Cs in surface soils and lake sediments in west Yunnan and central Guizhou, China [J]. *Quaternary Sciences* 1999, (4): 382 [万国江, 白占国. 滇西与黔中表土及湖泊沉积物中 ^7Be 与 ^{137}Cs 对比 [J]. *第四纪研究*, 1999, 19(4): 382]
- [18] Wan Guojiang, Bai Zhanqun, Liu Dongsheng et al. The differences of fallout ^{137}Cs between western Yunnan and central Guizhou: Implication for the barrier effect of Qinling-Xizang uplift on global atmospheric pollutants in Yunnan-Guizhou plateau [J]. *Quaternary Sciences* 2001, 21(5): 407-415 [万国江, 白占国, 刘东生, 等. ^{137}Cs 在滇西与黔中地区散落的差异——青藏隆起对滇西地区全球性扩散大气污染物散落屏蔽效应的推断 [J]. *第四纪研究*, 2001, 21(5): 407-415.]
- [19] Bai Zhanqun, Wan Guojiang, Liu Dongsheng et al. A comparative study on accumulation characteristics of ^7Be and ^{137}Cs in sediments of Lake Erhai and Lake Hongfeng, China [J]. *Geochimica* 2002, 31(2): 113-118 [白占国, 万国江, 刘东生, 等. 散落核素 ^7Be 和 ^{137}Cs 在洱海和红枫湖沉积物中蓄积对比 [J]. *地球化学*, 2002, 31(2): 113-118.]
- [20] Bai Zhanqun, Wan Guojiang. A comparative study on distribution of ^7Be and ^{137}Cs in the surface soils in the western Yunnan and the central Guizhou provinces [J]. *Scientia Geographica Sinica* 2002, 22(1): 43-48 [白占国, 万国江. 滇西和黔中表土中 ^7Be 与 ^{137}Cs 分布特征对比研究 [J]. *地理科学*, 2002, 22(1): 43-48.]
- [21] Bai Z G, Wang J, Liu D S et al. A Comparison on Accumulation Characteristics of ^7Be and ^{137}Cs in Lake Sediments and Surface Soils in Western Yunnan and Central Guizhou, China [J]. *CAIENA* 2002, 49: 253-270.
- [22] Wan G J, Santachi P H, Sturm M et al. Natural (^{210}Pb , ^7Be) and fallout (^{137}Cs , $^{239,240}\text{Pu}$, ^{90}Sr) radionuclides as geochemical tracers of sedimentation in Greifensee, Switzerland [J]. *Chemical Geology* 1987, 63: 181-196.
- [23] Wan Guojiang, Santachi P H. Prediction of Radionuclide Inventory for Sediment in Lake Greifen, Switzerland [J]. *Scientia Geographica Sinica* 1987, 7(4): 358-363 [万国江, Santachi P H 瑞士 Greifen湖沉积物中放射性核素累计值预测研究 [J]. *地理科学*, 1987, 7(4): 358-363.]
- [24] Robbins J A, Edgington D N. Determination of recent sedimentation rates in Lake Michigan using ^{210}Pb and ^{137}Cs [J]. *Geochimica et Cosmochimica Acta* 1975, 39, 2 285-2 304

^{210}Pb and ^7Be as Tracers for Aerosol Transfers at Center Guizhou, China. II. The Interpretation by Monthly and Yearly Intervals

WAN Guojiang, ZHENG Xiangdong, LEE H N, BAI Z G,
WAN Enyuan, WANG Shilu, YANG Wei, SU Fei, TANG Jie,
WANG Changsheng, HUANG Ronggu, LIU Peng

1. State Key Laboratory of Environmental Geochemistry Institute of Geochemistry Chinese Academy of Sciences Guiyang 550002, China
2. Chinese Academy of Meteorological Sciences Beijing 100081, China
3. Environmental Measurements Laboratory New York NY 10014-7447, USA
4. ISRIC-World Soil Information 6700 AJ Wageningen, the Netherlands
5. Weather Bureau of Guizhou Province Guiyang 550002, China
6. China Global Atmosphere Watch Baseline Observatory Xinjing 810001, China

Abstract: The weekly successive measurements of ^{210}Pb and ^7Be concentrations in surface air and depositional fluxes at Mt. Guanfeng/Guiyang since December of 2001 indicate that high ^{210}Pb concentration is constrained by regional rainfall and air temperature and shows U-pattern distribution. The seasonal variation of ^7Be monthly mean concentration is influenced by the amount of precipitation and downward stratospheric current. The ratio of ^{210}Pb and ^7Be monthly mean concentrations is determined by ^{210}Pb variation and down flow of rich ^7Be air mass. The ratio of ^7Be concentration at Mt. Guanfeng/Guiyang and Mt. Waliguan fluctuates rapidly because of their latitudes and elevation indicating an obvious influence of oceanic poor ^7Be air mass invasion on Mt. Guanfeng. Annual mean concentration of ^{210}Pb at Mt. Guanfeng/Guiyang during 2002-2008 is about $2.8 \sim 0.6 \text{ mBq/m}^3$, nearly 4 times of the average concentration of the highest concentrations of the global observations; $4.8 \sim 0.6 \text{ mBq/m}^3$ for ^7Be which is equivalent to the average concentration of the highest concentrations of the global observations and $1/3.8$ times of the ^7Be activity (18.0 mBq/m^3) on the top of the troposphere at middle latitude of northern hemisphere; it is anticipated in the low latitude and high elevation area. In 2003, the ratio of annual mean ^7Be concentration was 3.8 at both Mt. Waliguan and Mt. Guanfeng, which is consistent with the anticipated consequence of atmospheric transportation and mixture. The increasing trend of ^7Be monthly mean concentration relates to the decrease of sunspot number and the baseline of the influence for ^7Be is about 4 mBq/m^3 . The increasing trend of ^7Be annual mean concentration could also be influenced by sunspot number decrease. Volume-weighted concentrations of ^7Be and ^{210}Pb in rainfall at Mt. Guanfeng/Guiyang are 0.72 Bq/L and 0.27 Bq/L , respectively; their annual depositional fluxes are $0.080 \text{ Bq/(cm}^2 \cdot \text{a)}$ and $0.031 \text{ Bq/(cm}^2 \cdot \text{a)}$, respectively. The numerical simulation shows global zonal distribution of ^{210}Pb with mosaic areas of high air concentration and high fluxes, which confirms the simulated results of ^{210}Pb and ^7Be inventories in the sediments of Lake Hongfeng and Erhai.

Key words: Aerosol transfers; ^{210}Pb ; ^7Be ; Monthly and Yearly intervals; Lake Hongfeng; Lake Erhai