

黔中地区近地面空气 $^{210}\text{Pb}$ 的高浓度U型分布特征

万国江 杨伟 王仕禄 万恩源 吴丰昌 S.N. Lee 王长生 黄荣贵

(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, 贵阳 550002; Environmental Measurements Laboratory, Department of Homeland Security, NY 10014-4811, USA. E-mail: gjw@ms.gyig.ac.cn)

摘要 认识 $^{210}\text{Pb}$ 的空气浓度变化对湖泊沉积和流域侵蚀示踪, 对污染物全球扩散模型的建立和验证, 以及对生态系统受天然辐照的评价等多领域都是关键的环节. 基于云贵高原特殊的环境背景、沉积作用和大气模拟研究的前期进展, 自2001年12月20日起, 利用500 NE型气溶胶采样器, 连续2年逐周在贵阳观风山采集近地面空气滤膜样品. 通过中国和美国两个实验室对 $^{210}\text{Pb}$ 浓度的 $\alpha$ -能谱同步系统观测表明, 月均浓度呈现出规则的“U”型年分布; 冬季为高值期, 春末和夏季为低值期; 年均浓度 $2.77\pm 0.63 \text{ mBq}\cdot\text{m}^{-3}$ , 为全球若干站点中最高平均浓度值的近4倍. 影响黔中地区空气 $^{210}\text{Pb}$ 物质来源的可能因素有: 土壤中较高U-Ra系的 $^{222}\text{Rn}$ 释放; 碳酸盐岩溶蚀作用; 煤、磷资源开发、加工和利用的影响. 制约黔中地区空气 $^{210}\text{Pb}$ 高浓度和U型年分布特征的重要因素在于 $^{222}\text{Rn}$ 的析出. $^{210}\text{Pb}$ 月均浓度随降水量呈现良好的幂函数关系, 并随气温呈现良好的分组线性关系. 其中: No.1组(6~11月)反映了较高温度季节土壤 $^{222}\text{Rn}$ 的相对低释放; No.2组(12~5月)映射了较低温度季节土壤 $^{222}\text{Rn}$ 的相对高析出. 以降水和气温均权影响模拟计算获得的 $^{210}\text{Pb}$ 月均浓度与实测值之间具有很好的一致性, 反映出黔中地区近地面空气 $^{210}\text{Pb}$ 浓度呈现出规则的“U”型年分布特征主要由区域性的降水和气温制约; 同时还说明其年内气温和降水的变幅制约着 $^{210}\text{Pb}$ 月均浓度的高值与低值之比. 在月时间尺度下, 降水量和气温作为影响土壤(岩石)中 $^{222}\text{Rn}$ 析出的主要因素, 获得了很好的映证.

关键词  $^{210}\text{Pb}$  空气浓度 U型年分布 黔中地区

近30年间, 随着认识区域环境质量和全球气候变化问题的需要, $^{210}\text{Pb}$ 被广泛应用于大气传输途径、流域侵蚀作用和水体沉积过程的示踪. 地表岩石-土壤中U-Ra系衰变释放的 $^{222}\text{Rn}$ 在空气中扩散并继续衰变为 $^{210}\text{Pb}$ . 这部分 $^{210}\text{Pb}$ 因其与母体 $^{226}\text{Ra}$ 分离, 通称为非平衡 $^{210}\text{Pb}$ (在土壤-沉积物系统研究中标记为 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ ; 空气中的 $^{210}\text{Pb}$ 基本上都属非平衡, 通常不另作标记). 当 $^{210}\text{Pb}$ 在大气中生成之后, 很快地附着于亚微米级气溶胶微粒并开始其环境生物地球化学运移. $^{210}\text{Pb}$ 在不同地域空气中的浓度分布变化和沉降到达地表环境的通量是整个运移过程的重要环节. 这一环节对于污染物全球扩散模型的建立和验证, 对于沉积过程示踪和沉积计年, 对于流域侵蚀示踪对比, 以及对于生态系统受天然辐照的评价等多领域都是重要的依据.

前期研究表明:(1) 云贵湖泊沉积物中 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 的比活度和累计值较其他地区湖泊高, 土壤中 $^{226}\text{Ra}$ 也较高<sup>[1-6]</sup>; (2) 氡及其子体产生的照射是天然辐射照射的主要组成, 贵州室外空气 $^{222}\text{Rn}$ 浓度较高, 但观测值很少<sup>[7]</sup>; (3) 在中国西南地区近地面空气中 $^{210}\text{Pb}$ 的浓度明显地高, 但缺乏实证<sup>[8]</sup>. (4) 美国环境测量

实验室(EML)自1963年起启动的地表空气采样计划(SASP)中, 大部分采样站点位于近海地域<sup>[9]</sup>, 在全球示踪模拟中仍然存在着一定的局限性. 基于上述背景, 在黔中地区开展 $^{210}\text{Pb}$ 空气浓度的观测具有特殊价值. 本文根据贵阳观风山站点连续2年逐周对空气 $^{210}\text{Pb}$ 浓度的系统观测结果, 旨在报道年内U型分布和高浓度的总体特征, 以提供多领域研究应用的基础.

## 1 采样及分析

观测点位于贵阳观风山侧, N  $26^{\circ}34'19.3''$ , E  $106^{\circ}43'22.1''$ , 海拔1080 m. 采样设备置于距地面近30 m高. 采样利用EML测量表层大气低水平核素的表层大气采样系统(SASS, Model 500NE Aerosol Sampler). 采样器(Fuji型)配备有 $20.3 \text{ cm}\times 25.4 \text{ cm}$ 的矩形过滤器, 面积 $407 \text{ cm}^2$ . 过滤材料(Dynaweb, DW7301L)由三层组成, 在两层100%聚脂保护棉之间夹100%的聚丙烯网滤膜. 采样器的流速为 $0.4\sim 1.6 \text{ m}^3/\text{min}$ . 自2001年12月20日起, 连续2年, 每周采集1个样品, 即每个样品的采样时间为168 h左右, 每个样品的空气量校正到0标准体积为 $6\times 10^3\sim 2$

$\times 10^4 \text{ m}^3$ . 聚丙烯网滤膜气溶胶样品经等份分割后, 分别由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(HDH)与美国环境测量实验室(EML)同步进行对比测量. 两个实验室测量数据散点的线性回归分析表明, 两者之间具有很好的相关性((EML- $^{210}\text{Pb}$ ) = 0.973 × (HDH- $^{210}\text{Pb}$ ), 相关系数  $r = 0.85$ ).

$^{210}\text{Pb}$  比活度系用美国 Canberra 公司生产的 S-100 系列 16384 道能谱仪进行  $\gamma$ -谱测定. 聚丙烯网滤膜气溶胶样品均封装成一定形状直接置于 GC5019 同轴高纯锗(HPGe)探测器(效率 25%)计数测量. 仪器良好的稳定性, 测试过程中无道漂, 单个样品计数时间为  $3.6 \times 10^4 \sim 1.8 \times 10^5 \text{ s}$ .  $^{210}\text{Pb}$  计数峰的位置为 46.5 keV, 样品测量计数的误差范围按 1 个标准差控制, 本批样品测量计数的实际误差为  $\pm 1.4\% \sim \pm 6.4\%$ . 多核素放射性标准源由美国同位素产品实验室(Isotope Products Laboratories)提供.

## 2 结果及讨论

### 2.1 观风山近地面空气 $^{210}\text{Pb}$ 的高浓度 U 型年分布

图 1 绘出 2001-12-20 ~ 2004-01-12 期间贵阳观风山近地面空气中  $^{210}\text{Pb}$  浓度逐周测量结果的变化趋势, 并绘出其同期降水量和气温变化.

图 1 可见: 在 2002 与 2003 两个年度间,  $^{210}\text{Pb}$  在贵阳观风山近地面空气中的浓度具有相似的年际周期性变化特征; 并在年内存在着变幅不等的周期, 每

一周期的时间间隔为 2 至 6 周不等. 这种年内短周期的形成可能直接与气象条件变化有关, 是气流传输的具体示踪应用问题. 我们将在与其他示踪核素(如  $^7\text{Be}$  等)对比的基础上另文讨论. 根据逐周(2002-01 ~ 2003-12)观测结果加权计算出月均浓度于表 1, 并绘出其月均浓度变化趋势于图 2. 影响区域性  $^{210}\text{Pb}$  空气浓度变化的原因很多, 但其制约性的因素在于空气  $^{210}\text{Pb}$  母体  $^{222}\text{Rn}$  的来源及区域气象条件.

观风山近地面空气  $^{210}\text{Pb}$  的月均浓度呈现出规则的“U”型年分布特征(图 2). 冬季(11 月 ~ 次年 1 月)为高值期, 春后逐渐降低; 春末和夏季(5 ~ 8 月)为低值期, 秋后逐渐增高. 高值与低值之比约为 2.5. 在 95% 的置信区间, 2002 和 2003 两年间贵阳观风山空气  $^{210}\text{Pb}$  的年均浓度为  $2.77 \pm 0.63 \text{ mBq} \cdot \text{m}^{-3}$ . 其中 2002 年为  $2.59 \pm 0.57 \text{ mBq} \cdot \text{m}^{-3}$ , 2003 年为  $2.94 \pm 0.74 \text{ mBq} \cdot \text{m}^{-3}$ , 两年间的变化幅度为 12%.

在 SASP 的站点观测资料中, 呈现出这种规则的“U”型分布特征的站点并不多见. 加拿大安大略湖 Moosonee 和美国阿拉斯加 Barrow 站点空气  $^{210}\text{Pb}$  浓度的年内分布特征与此相似(图 2). 但是, 其“U”型分布较贵阳错位 1 个月, 高值期出现在冬季和初春(12 月 ~ 次年 2 月), 低值期分别出现在 5 ~ 9 月和 6 ~ 9 月; 高值与低值之比也较贵阳大, 分别为 2.7 和 9.9; 其年均浓度分别为  $0.49$  与  $0.43 \text{ mBq} \cdot \text{m}^{-3}$ , 仅为贵阳观风山的 1/5 ~ 1/6. 瑞士位于阿尔卑斯山区, 与贵阳

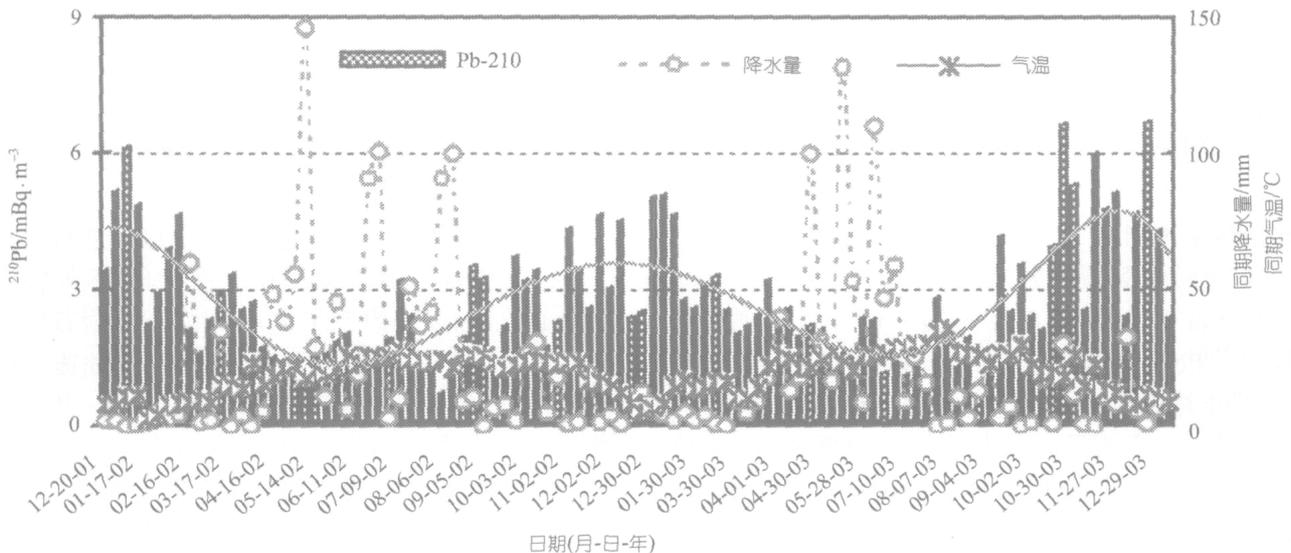


图 1 贵阳观风山近地面空气中  $^{210}\text{Pb}$  浓度逐周测量结果的变化趋势与同期降水量和气温对比 2001-12-20 ~ 2004-01-12. 图中: 横坐标标出每件样品采样的起始日期, 坐标轴刻度线之间的分类数为 4

表1 贵阳观风山近地面空气中<sup>210</sup>Pb月平均浓度(2002-01-01~2003-12-31. 单位: mBq·m<sup>-3</sup>)

月份	2002年	2003年	平均
1	4.15±0.56	4.22±0.38	4.19±0.35
2	3.30±0.48	2.99±0.12	3.15±0.25
3	2.67±0.19	2.49±0.16	2.58±0.12
4	1.78±0.22	2.36±0.10	2.07±0.12
5	1.58±0.10	1.75±0.12	1.66±0.08
6	1.60±0.12	2.21±0.15	1.90±0.10
7	2.19±0.25	1.31±0.12	1.75±0.14
8	1.43±0.26	1.98±0.22	1.71±0.17
9	2.67±0.34	2.62±0.45	2.64±0.28
10	2.85±0.27	3.83±0.64	3.34±0.35
11	3.63±0.32	4.81±0.45	4.22±0.28
12	3.28±0.35	4.68±0.53	3.98±0.32
平均	2.59±0.57	2.94±0.74	2.77±0.63

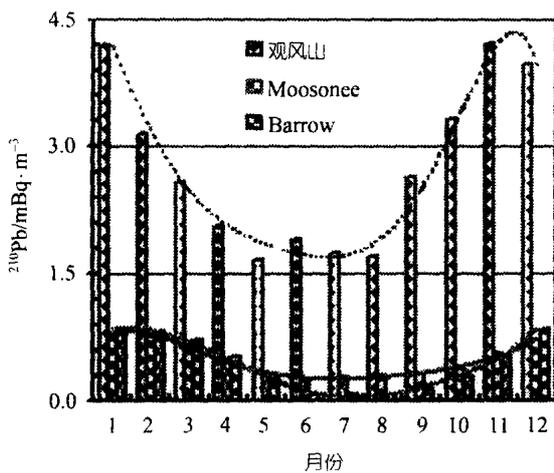


图2 贵阳观风山(2002-01~2003-12)与加拿大安大略湖Moosonee 站点(1974-08~1976-08和1981-10~1999-08)和美国阿拉斯加Barrow 站点(1975-09~1976-08和1981-10~1999-09)近地面空气中<sup>210</sup>Pb月均浓度的年分布对比(安大略湖和阿拉斯加资料系根据文献[9]数据整理)

地势地貌基本相似. 其Freiburg 空气<sup>210</sup>Pb 浓度(1973~1981 年间)年际周期并不明显, 平均浓度为  $11.9 \pm 0.4$  fCi·m<sup>-3</sup>(即  $0.44 \pm 0.02$  mBq·m<sup>-3</sup>)[10], 约为贵阳观风山<sup>210</sup>Pb 平均浓度的1/6. 全球若干站点空气多年平均<sup>210</sup>Pb 浓度为  $0.015 \sim 0.710$  mBq·m<sup>-3</sup> (据文献[9]数据整理). 贵阳观风山<sup>210</sup>Pb 的平均浓度为其最高值的近4倍. 但是, 贵阳观风山近地面空气<sup>210</sup>Pb 的较高浓度状况与全球模拟的较高浓度和较大沉降通量分

布带[11]相吻合. 上述情况寓意着近地面空气<sup>210</sup>Pb 浓度变化具有明显的区域性特点.

### 2.2 观风山近地面空气<sup>210</sup>Pb 浓度年分布特征的成因分析

<sup>222</sup>Rn 的半衰期仅3.8 d, 近地面空气<sup>210</sup>Pb 浓度变化基本上应与<sup>222</sup>Rn 同步. 岩石、土壤中U-Ra系衰变的<sup>222</sup>Rn 主要通过扩散与对流方式进入地面空气中, 其析出主要取决于地质背景和气象因素.

影响黔中地区空气<sup>210</sup>Pb(或<sup>222</sup>Rn)物质来源的可能因素有三种:

(1) 土壤中较高U-Ra系的<sup>222</sup>Rn 释放. 贵州表生沉积物铀的地球化学背景推荐值为  $3.31 \times 10^{-6}$ [12]; 黔中地区表土以黄壤和石灰土为主, 其<sup>226</sup>Ra 比活度较高, 分别为  $78.1 \pm 3.5$ ,  $79.7 \pm 5.2$  Bq·kg<sup>-1</sup>; 位于黔中地区的红枫湖沉积物中<sup>226</sup>Ra 平均比活度为  $66.1 \pm 8.8$  Bq·kg<sup>-1</sup>[1]. 上述资料说明区域性的较高U-Ra系背景提供了较高<sup>222</sup>Rn 逸散的物源条件.

(2) 碳酸盐岩溶蚀作用. 黔中地区碳酸盐岩分布广泛. 虽然岩石中铀系元素含量不高(石灰岩约为  $1.14 \times 10^{-6}$ , 白云岩约为  $0.92 \times 10^{-6}$ ), 但是岩石的溶蚀作用强烈. 黔中碳酸盐岩地区的化学侵蚀速率可达  $0.06$  mm·a<sup>-1</sup>[13], 约为硅酸岩区域的2倍. 从而可能增大U-Ra系物质从岩石中释放到水体和沉积物中的量, 为<sup>222</sup>Rn 向大气逸散进一步提供了可能.

(3) 煤、磷资源开发、加工和利用的影响. 煤、

1) 陈志岳, 郑章华. 贵州省环境放射性水平与放射性污染趋势预测. 《公元2000年贵州区域环境预测》专题研究之二十一, 1985. 10

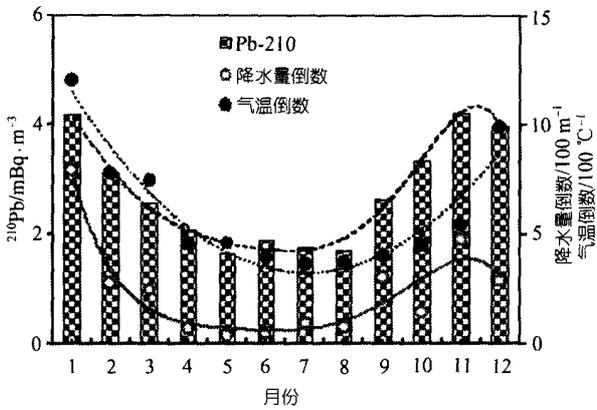


图 3 观风山近地面空气 <sup>210</sup>Pb 月均浓度与同期降水和气温资料对比

磷是贵州地区的优势矿产资源. 一般煤中含铀( $161 \pm 87$ ) $\times 10^{-6}$ . 在煤炭资源的开采、加工, 特别是燃煤过程中可能产生 <sup>226</sup>Ra 释放或 <sup>222</sup>Rn 逸散. 贵州磷矿石含铀可达 0.01%~0.09%, 在其开采、加工过程可能产生 U-Ra 系的释放. 特别是含铀磷块岩加工生产的磷肥中, <sup>226</sup>Ra 比活度可达  $(2\sim 5) \times 10^3 \text{ Bq} \cdot \text{kg}^{-1}$ . 虽然该地区存在着较高 U-Ra 系物源的上述地球化学背景, 但是, 制约其近地面空气 <sup>210</sup>Pb 高浓度和 U 型年分布特征的重要因素还在于 <sup>222</sup>Rn 的析出.

氡的析出率受气象条件影响较大, 是多种气象因素变化造成<sup>[14]</sup>. 通常, 每年温度最高的 6~8 月, 空气中 <sup>222</sup>Rn 浓度最低; 温度最低的 1 月和 12 月, <sup>222</sup>Rn 浓度最高<sup>[15]</sup>. 采样点同期降水量及实测的空气温度变化趋势(图 3)表明, 在该 2 年的月均尺度下, 近地面空气 <sup>210</sup>Pb 月均浓度与降水量倒数和气温倒数之间具有良好的同步变化趋势. 降水量和气温作为影响岩石、土壤中 <sup>222</sup>Rn 析出的主要因素, 在月时间尺度下获得了很好的映证.

黔中地区 <sup>210</sup>Pb 月均浓度随降水量呈现良好的幂函数关系(图 4), 并随气温呈现良好的分组线性关系(图 5). 其中: No.1 组(6~11 月)反映了较高温度季节土壤 <sup>222</sup>Rn 的相对低释放; No.2 组(12~5 月)映射了较低温度季节土壤 <sup>222</sup>Rn 的相对高析出. 根据图 4 与图 5 所得函数关系, 以降水和气温均权影响模拟计算获得的 <sup>210</sup>Pb 月均浓度与实测值之间具有很好的一致性(图 6). 上述结果反映出黔中地区近地面空气 <sup>210</sup>Pb 浓度呈现出规则的“U”型年分布特征主要由区域性的降水和气温制约; 同时也说明其年内气温和降水的

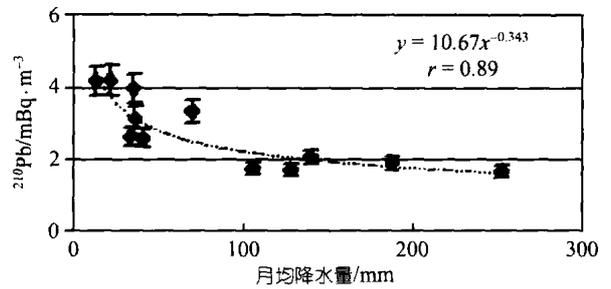


图 4 贵阳观风山空气 <sup>210</sup>Pb 月均浓度与同期降水量关系

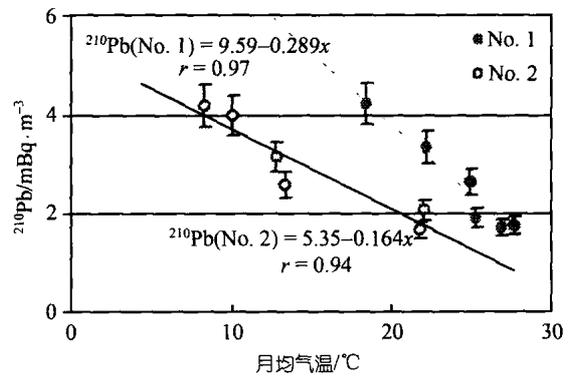


图 5 贵阳观风山空气 <sup>210</sup>Pb 月均浓度与同期气温关系

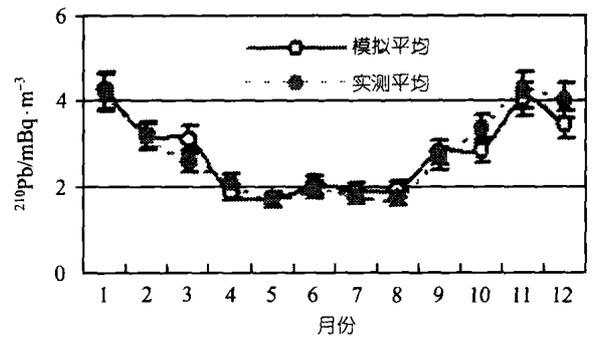


图 6 贵阳观风山空气 <sup>210</sup>Pb 月均浓度与模拟结果对比

变幅制约着 <sup>210</sup>Pb 月均浓度的高值与低值之比. 模拟值中, 3, 10 及 12 月出现的较小差异, 说明还存在影响 <sup>222</sup>Rn 析出或 <sup>210</sup>Pb 运移的其他次级因素, 有待进一步研究和讨论.

此外, 地球大气中高 <sup>210</sup>Pb 浓度存在于陆地气团中, 而低 <sup>210</sup>Pb 浓度与海洋气团的频繁到达有关<sup>[16]</sup>. 已有研究表明, 芬兰空气中低 <sup>210</sup>Pb 浓度与北大西洋温暖而高盐分水汽的到达和增强的气旋活动有关. 芬兰南部 <sup>210</sup>Pb 浓度的几年波动与大西洋西北部的状

态相联系<sup>[17]</sup>。黔中地区位于云贵高原中部,在青藏高原向东部丘陵平原过渡的斜坡面上,属山原宽谷盆地。由于纬度较低,海拔较高,地面起伏崎岖,太平洋季风气候影响,冷暖空气常在此交绥,形成云贵静止锋。贵阳观风山近地面空气<sup>210</sup>Pb的这种高浓度U型分布表征出内陆地域、低扩散能力和季风气候共同影响的特征。对于近地面空气<sup>210</sup>Pb浓度的定点观测而言,其年际间较稳定的周期变化说明其区域性U-Ra系物源、氡的析出条件、陆地气团与海洋气团相互影响、以及降水清除作用等的相对稳定性。

最近,我们通过瓦里关山近地面<sup>7</sup>Be、<sup>210</sup>Pb和臭氧浓度变化的对比。由<sup>7</sup>Be/<sup>210</sup>Pb的不同的输送过程显示了对近地面臭氧浓度变化的示踪价值<sup>[18]</sup>。

关于各种<sup>222</sup>Rn源的逸散通量及其比例关系、降水对空气<sup>210</sup>Pb的清除作用及<sup>210</sup>Pb的沉降通量,尚需进一步专题研究和讨论。

致谢 本研究获得国家自然科学基金(批准号:40373038)、国家重点基础研究发展规划(批准号:2002CB412300)资助。

### 参 考 文 献

- 万国江,黄荣贵,王长生,等.红枫湖沉积物顶部<sup>210</sup>Po<sub>ex</sub>垂直剖面的变异.科学通报,1990,35(8):612~615
- Wan G J, Santschi P, Sturm M, et al. Natural (<sup>210</sup>Pb, <sup>7</sup>Be) and fallout (<sup>137</sup>Cs, <sup>239,240</sup>Pu, <sup>90</sup>Sr) radionuclides as geochemical tracers of sedimentation in Greifensee, Switzerland. Chemical Geology, 1987, 63: 181~196
- Wan G J, Bai Z G, Qing H, et al. Geochemical records in recent sediments of Lake Erhai: implications for environmental changes in a low latitude-high altitude lake in southwest China. Journal of Asian Earth Sciences, 2003, 21(5): 489~502
- 徐经意,万国江,王长生,等.云南省泸沽湖、洱海现代沉积物中<sup>210</sup>Pb、<sup>137</sup>Cs的垂直分布及其计年.湖泊科学,1999,11(2):110~116
- 胥思勤,万国江.云南省程海现代沉积物<sup>137</sup>Cs、<sup>210</sup>Pb的分布及计年研究.地质地球化学,2001,29(1):28~31
- 万国江,陈敬安,胥思勤,等.<sup>210</sup>Pb<sub>ex</sub>沉积通量突发增大对湖泊生产力的指示——以程海为例.中国科学, D 辑, 2004, 34(2): 154~162
- 潘自强.我国空气中氡及其短寿命子体产生的照射.辐射防护,2003,23(3):129~137
- Lee H N, Feichter J. An intercomparison of wet precipitation scavenging schemes and the emission rates of <sup>222</sup>Rn for simulation of global transport and deposition of <sup>210</sup>Pb. Journal of Geophysical Research, 1995, 100: 253~270
- EML website at [http://www.eml.doe.gov/databases/sasp/sasp\\_data\\_search.htm](http://www.eml.doe.gov/databases/sasp/sasp_data_search.htm)
- KUeR (Kommission zur Überwachung der Radioaktivität) Bericht. 25 Jahre Radioaktivität Überwachung in der Schweiz. 1982
- Lee H N, Wan G J, Zheng X D, et al. Measurements of <sup>210</sup>Pb and <sup>7</sup>Be in China and Their Analysis Accompanied with Global Model Calculations of <sup>210</sup>Pb. Journal of Geophysical Research, 2005, 109, D22203, doi:10.1029/2004JD005061
- 何邵麟.贵州表生沉积物地球化学背景特征.贵州地质,1998,15(2):149~156
- 万国江,等著.碳酸盐岩与环境(卷一).北京:地震出版社,1995.16~40
- 李韧杰.氡析出率的测定及其影响因素的探讨.铀矿冶,2000,19(1):56~61
- 程业勋,王南萍,侯胜利,等.空气氡的大地来源理论研究.辐射防护通讯,2001,21(2):15~18
- Preiss N, Mélières M A, Pourchet M. A compilation of data on lead-210 concentration in surface air and fluxes at the air-surface and water-sediment interfaces. Journal of Geophysical Research, 1996, 101: 28847~28862
- Paatero J, Hatakka J, Holmén K, et al. Lead-210 concentration in the air at Mt. Zeppelin, Ny-Ålesund, Svalbard. Physics and Chemistry of the Earth, 2003, 28: 1175~1180
- 郑向东,万国江,汤洁,等.瓦里关山近地面气溶胶中<sup>7</sup>Be和<sup>210</sup>Pb的观测及其对臭氧浓度变化的示踪.科学通报,2005,50(1):72~76

(2004-10-19 收稿, 2005-03-03 收修改稿)