

中国农业科学院

博士学位论文

应用于土壤侵蚀的环境放射性核素示踪技术方法研究

姓名：李俊杰

申请学位级别：博士

专业：土壤学

指导教师：李勇

20080601

摘 要

目前环境放射性核素示踪技术在土壤侵蚀和环境演变的研究中得到了广泛应用, 已经成为流域与环境系统研究领域的主要组成部分。尤其是高分辨率的核技术定量化研究方面, 成为研究中的关键手段, 克服了传统研究土壤侵蚀规律的方法的局限性, 拓宽了土壤侵蚀研究手段, 可以深入研究土壤侵蚀的规律。

本论文从核示踪方法、技术与应用角度, 对环境放射性核素野外原位示踪和传统示踪的方法进行比较研究, 通过环境放射性核素国际分析比对研究探讨了环境放射性核素分析的不确定性, 并应用建立的分析方法对我国青藏高原地区土壤侵蚀进行环境放射性核素示踪研究。得到以下几点主要结论:

1. 应用 ISOCS 原位 γ 谱仪系统现场测定环境放射性核素是快速、准确评价土壤侵蚀和泥沙空间再分布的有效示踪技术。可以解决风蚀地区难以确定环境放射性核素的参考点的问题。核素在土壤剖面中的分布状况和探头实际探测面积是影响原位环境放射性核素比活度测定结果的重要因素。测量条件为探头距地面 1m, 准直器角度 90° , 探头照射面积 2.91m^2 是满足该技术测量准确性的最佳测量条件。应用原位测定技术示踪土壤侵蚀, 经模型计算, 内蒙古锡林郭勒草原地区的土壤侵蚀速率为 $0.8\text{ t}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{yr}^{-1}$ 。

2. 由国际国内的分析比对研究表明: ^{137}Cs 是人工放射性核素, 使用 γ 谱仪分析不受铅室本底的影响, 受土壤母质的影响较小, 分析的合成不确定度较小, 用较短的测量时间就能达到要求的精度。 ^{210}Pb 是自然界的天然放射性核素, 用 γ 谱仪分析时对仪器的要求比较高, 需要考虑土壤母质, 铅室本底, 装样容器形状和材料等不确定度来源因素的影响, 进行精确的无源效率刻度。而且要达到要求的精度, 需要较长的测量时间。保证环境放射性核素足够的测量准确度和精确度, 是成功应用环境放射性核素进行示踪研究的关键所在。

3. 采集自天然基质的土壤标准物质, 放射性水平较低, 测量的不确定度较大。研制低活度的天然基质环境放射性标准物质, 最重要的是选择没有侵蚀的、放射性含量相对较高的地点采样。我们选取位于黄土高原地区寿阳县的峁顶部位采集黄土样品作为土壤标准物质的基质来源, 分析结果表明: ^{137}Cs 的比活度为 4.23Bq/kg , ^{210}Pb 的比活度为 80.43Bq/kg 。均匀性检验的 3 组样品 ^{137}Cs 和 ^{210}Pb 比活度的标准偏差分别为 0.22Bq/kg 和 2.10Bq/kg 。3 组样品 ^{137}Cs 和 ^{210}Pb 的比活度分别在 0.05 水平上无显著差异, 均匀性较好。该标准物质可以提供给环境放射性核素测量实验室用来控制分析质量和评价测量过程, 也可用来进行国际间放射性核素测量分析能力的比对研究。

4. 运用环境放射性核素示踪技术, 评价了青藏高原东西样带土壤侵蚀的分布格局及其与人类活动的关系。结果表明: (1) 青藏高原东西样带 ^{137}Cs 背景值介于 $452.7\text{--}1714.1\text{Bq/m}^2$ 之间, 呈从西向东增加的分布特征, 和海拔高度的变化趋势总体一致。 ^{210}Pb 背景值介于 $2612\text{--}7377\text{Bq/m}^2$ 之间, 也早从西向东增加的分布特征, 和海拔高度的变化趋势总体一致。 ^{137}Cs 和 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 背景值区域分布呈现显著线性相关, 相关性关系式为 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}} = 3.6 \times ^{137}\text{Cs} + 1466.2$, $R^2 = 0.9519$; (2) 长江源区沱沱河典型坡面 ^{137}Cs 与 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 迁移规律相同。 ^{137}Cs 的剖面分布特征是正常剖面上部被侵蚀掉, 表层 ^{137}Cs 含量低, 分布深度浅, 属典型的风蚀土壤剖面。 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 土壤剖面分布达到土层 60cm 深度。 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 的最大值出现在土壤表层 0-2cm。以沱沱河为中心的长江源地区是典型的风蚀区, 年侵蚀速率在

2.5 t·ha⁻¹·yr⁻¹。此区是高原重要的沙尘暴源区之一；(3) 黄河源区玛多典型坡面 ¹³⁷Cs 在坡面上部造成明显堆积，在中部和下部含量骤然减少。²¹⁰Pb_{ex} 面积浓度从坡上到坡下呈递增趋势，是由近 100 年来 ²¹⁰Pb_{ex} 在水力侵蚀作用下沿坡面向下迁移造成的。玛多土壤剖面 ²¹⁰Pb_{ex} 从表层到下部呈现指数递减趋势。80-100mm 土层内出现空白区，与土壤剖面 ¹³⁷Cs 空白区出现的位置接近，这是 20 世纪 50 到 60 年代该地区发生的极端暴雨事件造成的。近 40 年来，玛多牧业活动造成坡面土壤扰动比自然因素的影响大，土壤堆积速率为 0.3 t·ha⁻¹·yr⁻¹；(4) 玛沁东倾沟乡和军牧场的研究结果表明，东倾沟乡高寒草甸 ¹³⁷Cs 在土壤表层 0-20mm 高度富集，在 20-40mm 急剧降低。由于该地区降雨量较多，¹³⁷Cs 随降雨湿沉降到地表的量较多，另外，土层较薄，土壤中物理性粘粒含量较少，¹³⁷Cs 富集在土壤表层，没有向下淋溶迁移。²¹⁰Pb_{ex} 分布特征和 ¹³⁷Cs 一样。土壤堆积速率为 4.2 t·ha⁻¹·yr⁻¹；玛沁军牧场高寒灌丛 ¹³⁷Cs 在土壤表层 0-20mm 高度富集，在 20-40mm 土层内急剧下降。²¹⁰Pb_{ex} 分布特征和 ¹³⁷Cs 一样。玛沁属三江源生态保护核心区，该区高山草甸和灌丛植被的水土保持效益较好；(5) 玛沁军功镇典型水蚀地貌土壤剖面 ¹³⁷Cs 在 8-10cm 富集，从表层到 10cm，¹³⁷Cs 含量随着土层加深呈指数递增。在 10-16cm 土层，¹³⁷Cs 含量随土层加深呈指数递减。在 16-22cm 处出现 ¹³⁷Cs 含量的空白区。²¹⁰Pb_{ex} 分别在 6-8cm，14-16cm，20-24cm 出现空白区。¹³⁷Cs 和 ²¹⁰Pb_{ex} 含量的空白区是 20 世纪 50 到 60 年代该地区发生的极端暴雨事件造成的。玛沁军功镇由于植被破坏造成的水力侵蚀严重，净侵蚀速率为 8 t·ha⁻¹·yr⁻¹；(6) 近四十年来，青藏高原三江源地区由于人类活动和气候事件的影响，加速了高原地区土壤侵蚀的发生和发展。

关键词：环境放射性核素，核素示踪技术，原位测定，国际比对，青藏高原，土壤侵蚀，侵蚀速率

Abstract

At present, tracing technique using environmental radionuclides has been widely applied in the research of soil erosion and environmental evolution; it has been the major component of the research of catchments and environmental systems. In particular, the quantitative research of high-resolution nuclear technology has been the key means to overcome the limitations of the method of traditional soil erosion research, to broaden the means to study soil erosion, to deeply study the rule of soil erosion.

From the point of view of nuclear tracing method, technique and application, the paper research the comparison between in-situ measurement of environmental radionuclides and traditional laboratory measurement, discuss the uncertainty of environmental radionuclides measurement by the proficiency test and intercomprision of environmental radionuclides measurement, study the soil erosion in Tibet Plateau of China using tracing technique of environmental radionuclides. From this dissertation, the following conclusion can be drawn:

1. The in-situ measurement of environmental radionuclides using ISOCS portable γ spectrometry system is an effective tracing technique that can rapidly and accurately assess the soil erosion and spatial redistribution of soil. It can resolve the problem that difficult to determine the reference site of environmental radionuclides in wind erosion area. The distribution of environmental radionuclides in soil profile and the detection area of detector are the important factors that influence the activity of environmental radionuclides by in-situ measurement. The optimum measurement condition that can achieve the accurate results is the detector is 1m distance above the ground, the angle of collimator is 90° , the detection area of detector is 2.91m^2 . Using the in-situ measurement technique to tracing the wind erosion, the wind erosion rate calculated by conversion model in Inner-mongolia Xilinhot grassland is $0.8\text{ t}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{yr}^{-1}$.

2. The results of proficiency test and international intercomparision indicated: ^{137}Cs is man-made radionuclide, the results measured by γ spectrometry have no influence of background of lead shield, and the combine uncertainty is low, short measurement time of can achieve the accuracy expected. ^{210}Pb is natural radionuclide existed in nature, it require higher measurement condition using γ spectrometry. We should take the source of uncertainty from soil matrix, background of lead shield, the shape and material of sample container into consideration; make the accurate non-source efficiency calibration. It needs long measurement time for good precision expected. Achieving the accuracy and precision is the key issue that applies the environmental radionuclides to trace the soil erosion.

3. The activity of radionuclides of soil reference materials sampling from natural matrix is very low, the uncertainty of measurement is large. It is important for making the reference material to select the sampling site with high activity radionuclides and no erosion. We select Shouyang in loess plateau as the sampling site, to collect soil sample to be the matrix of reference material. The results of measurement indicate: the activity of ^{137}Cs is 4.23Bq/kg ; the activity of ^{210}Pb is 80.43Bq/kg . The standard deviation of ^{137}Cs and ^{210}Pb activity is 0.22Bq/kg , 2.10 Bq/kg . The results using one-way ANOVA analysis indicate

that the activity of ^{137}Cs and $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ between PT samples of 3 groups have no distinct differences, the homogeneity is good. The PT samples can be provided to make the proper quality control measurement and assessment of measurement procedure for the environmental radionuclides analysis laboratory, also can be provided to do the proficiency and intercomparison in environmental radionuclides measurement.

4. Using the tracing technique of environmental radionuclides, the distribution pattern of soil erosion and the relationship with human being activity from west to east in Qing-Tibet Plateau were assessed. The results indicated that: (1) From west to east region in Qing-Tibet plateau, the background value of ^{137}Cs is in the range from 452.7 Bq/m^2 to 1714.1 Bq/m^2 , the distribution characteristic is the background value of ^{137}Cs is increasing from west to east region with the elevation decreasing. ^{210}Pb background value from west to east region in Qing-Tibet plateau is in the range from 2612 Bq/m^2 to 7377 Bq/m^2 . The distribution characteristic of ^{210}Pb is same as ^{137}Cs . The regional distribution of ^{137}Cs and $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ shows significant correlation, the equation of correlation is $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}} = 3.6 \times ^{137}\text{Cs} + 1466.2$, $R^2 = 0.9519$; (2) In Tuotuo River of Changjiang headstream, the migration pattern of ^{137}Cs and $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ in typical slope has no difference. The distribution characteristic of ^{137}Cs is that the topsoil in the soil profile is eroded, ^{137}Cs activity in topsoil is low, and the distribution depth is shallow. It is typical soil profile with wind erosion. The distribution of $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ reaches in the 60cm depth in soil profile. The maximum of $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ is in the 0-2mm of surface soil. Tuotuo River of Changjiang headstream is a typical wind erosion area, soil erosion rate is $2.5 \text{ t} \cdot \text{ha}^{-1} \cdot \text{yr}^{-1}$. This area is one of the important sources of dust storms of Tibet plateau; (3) In Maduo county of Yellow River headstream region, ^{137}Cs significantly deposit in the upper slope, and decrease in middle slope and lower slope. The inventory of $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ from upper slope to lower slope showed increasing trend, it is caused under water erosion along the downward slope of the migration. From the surface to the bottom in Maduo soil profile, $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ showed exponential decreasing trend. In the soil profile, there is a blank area of $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ in the 80-100mm; the depth of the blank area is same as the depth of ^{137}Cs . This is caused by heavy rain in the extreme events from the 1950s to 1960s in the 20th century. The last 40 years, animal husbandry activities in Maduo have more disturbances to soil than the impact of the natural factors. The soil deposition rate is $0.3 \text{ t} \cdot \text{ha}^{-1} \cdot \text{yr}^{-1}$; (4) The results showed that: in Dongqinggou of Maqin, in the 0-20mm of surface soil is enriched layer of ^{137}Cs , in the 20-40 mm is low activity. Because of more rainfall in the region, ^{137}Cs deposite to the surface soil with the rainfall, the thin layer of soil and less physical clay content, ^{137}Cs concentrate in the soil surface, no leaching downward migration. The distribution characteristic of $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ is same as ^{137}Cs . Soil deposition rate is $4.2 \text{ t} \cdot \text{ha}^{-1} \cdot \text{yr}^{-1}$; In Jun pasture, ^{137}Cs enrich in the 0-20mm of surface soil, decrease in the 20-40 mm depth. The distribution characteristic of $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ is same as ^{137}Cs . Dongqinggou and Jun pasture of Maqin is the core area of Sanjiangyuan ecological protection reserve, the alpine meadow and shrub vegetation have better effectiveness of soil and water conservation, soil erosion is not serious; (5) In the Jungongzhen of Maqin, the result of serious water erosion site shows that ^{137}Cs enrich in the 8-10cm of soil profile, from surface soil to 10cm, ^{137}Cs shows exponential increasing trend with depth of soil profile, from 10cm to 16cm, ^{137}Cs shows exponential decreasing trend

with depth of soil profile. There is blank area of ^{137}Cs in the 16-22cm of soil profile. There are blank area of $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ in the 6-8cm, 14-16cm and 20-24cm of soil profile. The blank area of ^{137}Cs and $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ was caused by heavy rain in the extreme events in the region from 50 to 60 years in the 20th century. The water erosion caused by vegetation destroy in Jungongzhen of Maqin is serious; the soil erosion rate is $8\text{t}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{yr}^{-1}$; (6) In the past 40 years, in Sanjiangyuan region of Tibet Plateau, human activity and climate events have accelerated the occurrence and development of soil erosion.

Key word: Environmental radionuclides, Tracing technique using radionuclides, In-situ measurement, Proficiency test, Qing-Tibet Plateau, Soil erosion, Erosion rate

独 创 性 声 明

本人声明所呈交的论文是我个人在导师指导下进行的研究工作及取得的研究成果。尽我所知，除了文中特别加以标注和致谢的地方外，论文中不包含其他人已经发表或撰写过的研究成果，也不包含为获得中国农业科学院或其它教育机构的学位或证书而使用过的材料。与我一同工作的同志对本研究所做的任何贡献均已在论文中作了明确的说明并表示了谢意。

研究生签名：李俊生

时间：2008年6月11日

关于论文使用授权的声明

本人完全了解中国农业科学院有关保留、使用学位论文的规定，即：中国农业科学院有权保留送交论文的复印件和磁盘，允许论文被查阅和借阅，可以采用影印、缩印或扫描等复制手段保存、汇编学位论文。同意中国农业科学院可以用不同方式在不同媒体上发表、传播学位论文的全部或部分内容。

(保密的学位论文在解密后应遵守此协议)

论文作者签名：李俊生

时间：2008年6月11日

导师签名：

李俊生

时间：2008年6月11日

第一章 环境放射性核素示踪技术的研究背景

1.1 环境放射性核素及其示踪技术的研究意义

原子核是由质子和中子组成的。原子核中质子数用 Z 表示,中子数用 N 表示,原子核中质子数和中子数的和称为质量数,用 A 表示。质子和中子统称为核子。具有一定 Z 和 A 值的原子核称为一种核素,用 A_ZX 表示, X 为元素符号,例如 3_1H , ${}^{14}_6C$, ${}^{238}_{92}U$ 等。由于 Z 值等于原子序数,已知元素符号时,原子序数就已知,所以对一种核素而言经常省略 Z ,表示为 AX ,例如 ${}^{60}Co$, ${}^{137}Cs$ 等。在自然界发现的核素中以铀的电子荷数为最大, $Z=92$ 。人们用人工方法制造了 $Z>92$ 的核素,称之为超铀元素。目前已发现了 2000 多种核素,在这些核素中有 300 多种是稳定的,其余可自发转变成其他核素,称之为放射性核素。有许多天然和人工生产的核素都能发射各种射线。有的发射 α 射线,有的发射 β 射线,有的发射 α 或 β 射线的同时也发射 γ 射线,有的三种射线均有。原子核自发地放射各种射线的现象,称为放射性,能自发地放射出射线的核素被称为放射性核素,也叫不稳定核素。放射性核素有天然和人工放射性核素之分,天然放射性核素是指自然界天然就存在的放射性核素,主要有三种天然放射系的核素,另外还有一些非系列的放射性核素。也可用人工方法来产生放射性核素,叫人工放射性核素。已知的人工放射性核素已远超过天然放射性核素的种类(刘广山, 2006)。本文所提到的环境放射性核素示踪技术是指通过无损探测和识别技术对环境中所存在的放射性核素所自发辐射出 γ 射线进行甄别,并以环境放射性核素所具有的独一无二的基因特征作为标记物质来追踪地表环境中物质的迁移和传输等过程。

在过去的 50 年来,随着核技术的发展以及核技术在环境研究领域中得到应用(柴之芳, 1999),应用人工和天然放射性核素研究环境问题的研究越来越受到人们的重视。目前,以 ${}^{137}Cs$ 技术为代表的环境放射性核素示踪技术已广泛地应用于土壤侵蚀、沉积物计年、环境污染等方面的研究中。众所周知, ${}^{137}Cs$ 是大气层核试验的产物,所以 ${}^{137}Cs$ 在全球范围内的分布一直得到国际社会的广泛关注。20 世纪 80 年代以来,应用 ${}^{137}Cs$ 技术研究土壤侵蚀等环境问题的有关文献逐年大量地增加。国际原子能机构(IAEA)多年来也在逐步加强环境核素示踪技术的研究和开发, ${}^{137}Cs$ 技术为主流的环境放射性核素示踪技术评价土壤流失和土壤保持措施便是其中之一。目前,环境核素示踪技术甚至被认为是环境研究领域绝无仅有的、独一无二的研究手段和技术。为此,研究简便、快速、高精度的环境放射性核素示踪技术很有理论价值和实际意义,

本项目主要就人工放射性核素 ${}^{137}Cs$,天然放射性核素 ${}^{210}Pb$ 和宇宙射线产生的 7Be 进行研究。人工放射性核素 ${}^{137}Cs$,天然放射性核素 ${}^{210}Pb$ 和宇宙射线产生的 7Be 已经被用来定量评价土壤侵蚀与沉积速率和土壤再分布(Ritchie and McHenry,1990;Walling,1998;walling et al.,1999a,b;Zapata and Garcia-Agudo,2000;万国江,2000;唐翔宇等,2002)。 ${}^{137}Cs$ 是自然界原本不存在的核素,其半衰期为 30.1 年,由于半衰期短,地壳中基本不存在天然的 ${}^{137}Cs$,它是来自于大气层核试验的产物,是目前示踪土壤侵蚀和沉积的独一无二的示踪元素。 ${}^{137}Cs$ 在全球都有分布(Playford et al.,1993;Cambray et al.,1989;Carter and Moghissi,1977)。地球表层环境中的 ${}^{137}Cs$,主要来源于 20 世

纪 50~70 年代期间的大气层核试验。高密度的热核武器试验开始于 1952 年 11 月,进入大气平流层在全球范围内传播。大气层中核试验产生的 ^{137}Cs 核尘埃可分为粗尘埃($>1\mu$)和细尘埃($<1\mu$)。粗尘埃很快沉降到核试验临近区域,细尘埃降落到地表可长达 2~3 年,主要随降水降落到地表,可被土壤颗粒吸附,一般赋存于 0~18cm 深的表土层。 ^{137}Cs 的迁移主要随被吸附的土壤颗粒运移,因此是侵蚀泥沙研究中很有价值的人工环境核同位素(唐克丽, 2002)。 ^{137}Cs 沉降受到降水量与每年地面核试验次数的影响(Davis, 1963)。 ^{137}Cs 的全球沉降开始于 1954 年,1963 年和 1964 年达到沉降的最高峰,70 年代以后逐渐降低。在 80 年代中期沉降最低。(Cambray et al.,1989)。自然界中的人工核素绝大多数来源于大气层核试验后散落的放射性碎屑,但 1986 年 4 月的前苏联切尔诺贝利核事故泄露的人工核素引起 ^{137}Cs 向大气层的扩散,是唯一一次非核武器试验产生的人工核素在自然环境中的大量蓄积(Playford et al., 1993),影响了全球的沉降总量(Volchok and Chieco,1986)。有关研究表明,切尔诺贝利核事故泄露的 ^{137}Cs 导致了全球自然环境中的 ^{137}Cs 的总蓄积量增加了约 5%。 ^{137}Cs 沉降的年代特征能够用来研究湖泊、水库和冲积平原沉积剖面的年代学特征。 ^{137}Cs 是人工放射性核素,使用伽玛谱仪很容易测量(Ritchie and McHenry,1973;Walling and Quine,1993)。

^{137}Cs 沉降量的时间分布:据北半球典型站英国的测定, ^{137}Cs 核尘埃的沉降主要发生于 1954~1970 年,其中 1963 年沉降量最大, 1500Bq/m^2 ; 1970 年后极微,年沉降量 $<100\text{Bq/m}^2$; 1986 年的 ^{137}Cs 沉降量骤增,高达 700Bq/m^2 , 此因西欧受前苏联切尔诺贝利核事故的影响。

^{137}Cs 沉降量的全球空间分布:全球 ^{137}Cs 累计沉降量(1996 年水平,经过衰减校正)的空间分布大致如下:北半球 ^{137}Cs 累计沉降量大于南半球,前者多 $>800\text{Bq/m}^2$,后者多 $<800\text{Bq/m}^2$; 北纬 $40^\circ\sim 50^\circ$ 是 ^{137}Cs 累计沉降量高值区, $1600\sim >3\,200\text{Bq/m}^2$, 显然是由于核试验主要集中在美国和前苏联的地区。 ^{137}Cs 累计沉降量 $>2\,400\text{Bq/m}^2$ 的区域,主要分布于欧洲西部、北美东部和北美西海岸地区,显然是这二个地区降水量较多的缘故。

中国 ^{137}Cs 本底值的分布情况:国内有关研究表明黄河中游地区的 ^{137}Cs 本底值介于 $1\,470.6\sim 2\,440.0\text{Bq/m}^2$, 呈西北向东南增加的趋势,和降水量变化的趋势一致。长江上游地区的 ^{137}Cs 本底值差异较大, $620.9\sim 3\,394.5\text{Bq/m}^2$ 。 ^{137}Cs 本底值总的变化趋势是北高南低,纬度较高的甘肃天水嘉陵区(北纬 $34^\circ 30'$)为 $2\,573.2\text{Bq/m}^2$; 云南彝良(北纬 $27^\circ 20'$)为 $1\,510.4\text{Bq/m}^2$ 。西南季风区的 ^{137}Cs 本底值较低,云南元谋(金沙江河谷)为 620.9Bq/m^2 , 这和水汽主要来源于低纬度地区有关。四川西部泸定贡嘎山区 ^{137}Cs 本底值最高为 $3\,394.5\text{Bq/m}^2$, 这可能和该区降水较多有关。

^{210}Pb 是 ^{238}U 放射衰变系列产生的天然放射性核素。它是气体 ^{222}Rn 衰变的产物, ^{222}Rn 由土壤中逸散到大气层中,再经由一系列短寿命子体衰变形成 ^{210}Pb 。 ^{210}Pb 形成后随降雨或粉尘沉降到湖泊水面和流域地表,但同时在沉积物和土壤中的 ^{226}Ra 也还会不断产生 ^{222}Rn , 并衰变出 ^{210}Pb 。样品中与所含 ^{226}Ra 处于放射性平衡状态的 ^{210}Pb 被称为补偿 ^{210}Pb (Supported ^{210}Pb), 比活度大小与样品中的 ^{226}Ra 的含量有关。而经由大气沉降的 ^{210}Pb 称为过量 ^{210}Pb (Unsupported ^{210}Pb 或 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$)。与其母体 ^{226}Ra 不平衡(Robbins, 1978)。只有过量 ^{210}Pb 才有核素示踪研究的意义。通过测定土壤中的 ^{210}Pb , ^{226}Ra 和 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 能够计算出来, 可用来计算土壤运动和沉积物剖面计年。能否准确测定过量 ^{210}Pb 的比活度是湖泊或流域环境 ^{210}Pb 核素示踪研究的基础。伽玛谱仪能够用来测定 ^{210}Pb 和 ^{226}Ra (Joshi, 1987)。 ^{137}Cs 沉降随时间发生变化,而 ^{210}Pb 的大气层沉降是个常数(Crickmore et al.,1990;Nozaki et al.,1978)。也有数据表明大气层 ^{210}Pb 的沉积速率呈现很大的变异,变化范围

在 $30\text{--}370\text{Bq m}^{-2}\text{ yr}^{-1}$ (Appleby and Oldfield, 1992; Robbins, 1978)。

^7Be 是一种在地球大气对流层和平流层中由于宇宙射线轰击 O 原子和 N 原子靶核而产生的天然放射性核素。 ^7Be 的产量是相对的常数, 在地表产生恒定的沉降 (Wallbrink and Murray, 1994, 1996a; Krishnaswami et al., 1980)。 ^7Be 的日均沉降范围在 $140\text{--}740\text{Bq m}^{-2}$ (Wallbrink and Murray, 1994)。 ^7Be 同样可以使用伽玛谱仪进行测定 (Murray et al., 1987)。

关于 ^{137}Cs , ^{210}Pb 和 ^7Be 的化学特性的研究结果已有很多 (Schultz et al., 1960; Davis, 1963; Robbins, 1978; Wallbrink and Murray, 1994)。当 ^{137}Cs , ^{210}Pb 和 ^7Be 沉降到地表后, 与土壤颗粒中的粘粒及有机质颗粒结合紧密, 在环境中存在几乎是不可交换态, 难以被水淋溶, 植物和动物摄取量很少, 它们随土壤颗粒的移动发生再分布 (Tamura, 1964; Cremers et al., 1988; Robbins, 1978; Olsen et al., 1986)。生物和化学过程对吸附态的 ^{137}Cs , ^{210}Pb 和 ^7Be 变化影响很小, 水和风的物理作用是影响 ^{137}Cs , ^{210}Pb 和 ^7Be 在地表景观迁移的主导因素。准确地测定环境样品中的 ^{137}Cs , ^{210}Pb 和 ^7Be 相对比较容易 (Ritchie and McHenry, 1973; Walling and Quine, 1993; Joshi, 1987; Murray et al., 1987)。 ^7Be 可以提供短期的 (<30 天) 平均土壤再分布速率和途径的信息, ^{137}Cs 可以提供中期的 (~40 年) 平均土壤再分布速率和途径的信息, 而 ^{210}Pb 可以提供长期的 (~100 年) 平均土壤再分布速率和途径的信息。而且, ^{137}Cs , ^{210}Pb 和 ^7Be 可以被用来研究小流域的土壤侵蚀过程 (Wallbrink and Murray, 1993; Walling and Woodward, 1992; Wallbrink et al., 1999)。

测定 ^7Be , ^{137}Cs , ^{210}Pb 和 ^{14}C 在沉积环境中垂直分布情况, 可以提供从一周 (^7Be) 到一个世纪 (^{14}C) 尺度的沉积物的沉积年代学信息, 这方面的研究日前已有很多 (Ritchie and Ritchie, 1998, 2001; 高明, 2006)。环境放射性核素 ^{137}Cs , ^{210}Pb 和 ^7Be 的比较见表 1-1 所示。

表 1-1 环境放射性核素 ^{137}Cs , ^{210}Pb 和 ^7Be 的比较

Table 1-1 Comparison of the environmental radionuclides: ^{137}Cs , ^{210}Pb and ^7Be

核素	^{137}Cs	$^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$	^7Be
来源	核试验	自然地化过程	天然宇宙射线产生
半衰期	30.2 年	22.3 年	53.3 天
沉降时间	1954 年开始	> 100 年	天-月
沉降模式	主要在 1954 和 1963 年沉降, 在 80 年代停止*	连续沉降, 年季间的差 异较小	每天连续沉降
全球分布	北半球高, 南半球低	不清楚(?)	不清楚(?)
耕地/草地侵蚀地 点的剖面分布	均匀分布/指数递减	均匀分布/指数递减	指数递减
耕作的影响	是	是	否
估算侵蚀速率的时间	年平均	年平均	次降雨

注: *1986 切尔诺贝利核事故造成了额外的沉降, 但只限制在局部地区, 对北半球影响不大。

Note: * An exception is the Chernobyl incident which caused ^{137}Cs deposition in 1986. However, Chernobyl fallout has a limited spatial distribution.

由于森林破坏、过度放牧以及不合理的耕作措施等人类活动引起的土壤侵蚀和土壤质量退化

是世界性的环境问题之一。它造成的水土流失不仅严重破坏了生态环境,影响当地的工农业生产和人民生活,同时也给下游地区造成大量的泥沙淤积、水体污染以及水体富营养化,给人民的生命财产安全造成极大威胁。因而深入地研究土壤侵蚀等环境问题产生的机理,揭示其发生、发展规律,可为水土流失防治及其措施的优化布局提供科学依据,具有重要意义。利用放射性核素示踪技术,特别是 ^{137}Cs 示踪技术来定量评价土壤侵蚀速率,有利于为土壤侵蚀研究开拓新的研究手段,为侵蚀预报模型某些参数的确定等方面的量化研究拓宽途径。

1.2 环境放射性核素示踪技术原理

人工核素 ^{137}Cs 的最大特点是原来自然环境中不存在,由核爆产生后才释放到自然环境中。因此主要存在于地球的最表层,极适用于地表过程的环境示踪,又因为没有环境本底值的干扰,所以用于环境示踪分析和建立示踪模型时,方法更加简便、精确。

Rogowski 和 Tamura(1965,1970a,b)以及 Dahlman 和 Auerbach(1968)把 ^{137}Cs 作为一个示踪元素添加到侵蚀小区内,通过测定小区下部的径流、土壤流失和 ^{137}Cs 的流失来追踪它的运动。所有的研究都表明土壤流失和 ^{137}Cs 流失具有显著的指数相关关系,结论是地表景观 ^{137}Cs 的迁移与土壤的运动有关, ^{137}Cs 能够用来评价土壤再分布的模式。Ritchie et al.(1974)也发现了土壤流失和 ^{137}Cs 流失之间的指数相关关系。Ritchie 和 McHenry(1975)把这些数据和早期的研究结果结合起来(Rogowski and Tamura,1965,1970a,b;Menzel,1960;Frere and Roberts,1963;Graham,1963),进一步证实了土壤流失和核素流失之间的指数相关关系的结论。McHenry 和 Ritchie(1977)研究表明田间 ^{137}Cs 的空间分布模式可以用来确定区域内的净侵蚀和堆积。

^{137}Cs 技术应用的基本假设和要求在一些文献中都有详细的论述(Walling and Quine,1991,1993;Ritchie and McHenry,1990;de Jong et al., 1983;Loughran et al., 1988)。虽然目前应用 ^{137}Cs 技术评价土壤流失速率和模式简单易行且备受推崇,但是这项技术的一些重要的假设和潜在的限制因素的不确定性,在实际应用中应该加以注意(Ritchie and McHenry,1990;Walling and Quine,1991;Loughran et al.,1992;Walling and Quine,1995;Walling, 1998; P. Porto, et al., 2003)。

评价土壤 ^{137}Cs 的再分布通常是根据耕地土壤和非耕地土壤的不同,比较采样点的面积浓度(单位面积的总活度)与代表该地点总沉降通量的面积浓度值之间的差异。因为关于核素大气沉降的长期定位观测资料很少,所以核素的沉降通量(参考点的面积浓度)通常在邻近采样点附近,没有侵蚀和堆积,没有扰动的地点采集样品测定。如果采样点 ^{137}Cs 面积浓度低于当地参考点面积浓度,说明土壤中 ^{137}Cs 流失了,即发生了侵蚀。同样,如果采样点土壤 ^{137}Cs 面积浓度大于参考点的水平,表明土壤中 ^{137}Cs 发生了沉积。 ^{137}Cs 测算土壤侵蚀量的基本原理即:某一土壤剖面的 ^{137}Cs 面积浓度低于或高于当地 ^{137}Cs 本底值,则表明该土壤剖面发生侵蚀或堆积。所以,根据采样点面积浓度与参考点面积浓度差值的大小可以定性和定量地评价土壤的侵蚀和堆积(Walling and Quine, 1993; Walling and He,1999a;S.P.Theocharopoulos et al.,2003;冯明义,文安邦,2002;王晓燕等,2003)。

通过测定土壤 ^{137}Cs 面积浓度定量评价土壤侵蚀和沉积速率,需要建立面积浓度差值与土壤侵蚀/堆积速率之间的相关关系(Ritchie et al.,1974)。已有许多研究人员利用修正或转化模型将

^{137}Cs 面积浓度的减少或增加值换算成土壤的侵蚀或堆积速率 (Ritchie and McHenry, 1990; Walling and Quine, 1990, 1993; Walling And He, 1997, 1999a)。

在应用 ^{137}Cs 技术评价土壤侵蚀时,除了要明确研究目标以及获得相关的研究资料以外,仍需要充分地了解 ^{137}Cs 技术应用过程中存在的优点和不足。国外的相关研究表明 ^{137}Cs 技术在土壤侵蚀与沉积研究中有其独特的优势,但也存在许多不足之处 (Walling and Quine, 1995; IAEA, 1998; Walling, 2002; 郑永春, 2002a, b)。概括起来, ^{137}Cs 技术的主要优势包括: (1) 仅需一次采样就可以评价中期尺度 (30-40 年) 的土壤侵蚀速率。(2) 土壤侵蚀速率是综合的、中期尺度的平均值,不受极端事件的影响。(3) 采样不会对研究地点景观造成破坏。(4) 提供同一流域内侵蚀和沉积的数据信息。(5) 可以土壤再分布、土壤侵蚀和土壤沉积的过程量化。 ^{137}Cs 技术的主要不足包括: (1) 成功应用这项技术需要一个多学科的研究梯队支持。这限制了该技术在落后国家的应用。(2) 环境放射性核素分析实验室的建立需要大量经费支持。(3) 低活度伽玛谱仪测量需要有效的质量保证和控制。(4) 应用 ^{137}Cs 转化模型计算土壤侵蚀速率存在不确定性。(5) 该技术不能评价由土地利用和管理措施引起的土壤侵蚀速率的短期变化。(6) 该技术仍需进一步标准化后,才能在全球广泛应用。

1.3 环境放射性核素测定方法

保证高精度的环境放射性核素的测量结果,是环境放射性核素示踪技术应用过程中的关键问题。应环境放射性核素的测量包括鉴别放射性核素的存在、测量样品放射性强度和能量等,因此,选择合适的探测器并进行准确的测量,对试验取得可靠结果至关重要。随着放射性核素的广泛应用和探测技术的进展,为提高示踪试验的准确性和对低活度样品或低能量射线样品提供了有利条件。探测器种类繁多,选择何种测量技术和使用那种探测器取决于试验所用放射性核素性质、能量、强度和实验室设备条件 (王福钧, 1989)。

本项目主要就 γ 射线的探测和分析技术进行研究。所以首先要对 γ 射线的一些基本的物理特性和简单的探测原理有所了解。 γ 射线和物质相互作用,主要是发生光电效应、康普顿效应和电子对效应,并且每种效应都产生相应的高能次级电子。这些次级电子继续和物质相互作用,使物质的原子、分子电离和激发,直到耗尽它的全部动能。如果在某种物质中所产生的电离和激发的信号,能从该物质中引出,经收集放大而成为可供分析记录的电脉冲信号,这种物质就可被用来作为 γ 探测器的探测介质 (丁富荣等, 2004)。 γ 射线在任何物质中都可发生前述的三种效应,但不是任何物质都可作为 γ 探测器的探测介质。次级电子在物质中产生电离和激发时,将产生电子离子对、闪光或电子空穴对等。显然,这些信号在导体和不透明的绝缘材料中是无法引出的。目前能够用作 γ 探测器的探测介质的物质主要有气体、闪烁体和半导体三类。

气体是带电粒子的良好的探测介质。原则上,探测带电粒子的各种气体探测器都可以用作 γ 射线的探测器,只是其探测效率太低。这是由于气体的密度小,对 γ 射线的吸收本领很小。尤其对高能 γ 射线,它和气体的原子直接相互作用产生计数概率很小。气体计数管对高能 γ 射线的探测,往往是靠 γ 射线在计数管的金属内壁上打出次级电子进入计数管的气体中,引起气体的电离激发而产生计数的。通常的气体 γ 计数管都采用铜或铁作阴极。

闪烁体是透明的绝缘体。 γ 射线与闪烁体相互作用所产生的次级电子可以再和它作用,使其

原子分子电离和激发。显然，产生的电子离子是无法从物质中引出的，但其过程中所产生的闪光可以从物质中透射出来，被收集转换成电脉冲放大后，可供分析记录。因此，闪烁体可作为 γ 射线探测器的探测介质。闪烁体可分有机和无机两大类，有机闪烁体又分液体闪烁体、有机晶体和塑料闪烁体三种。这些闪烁体对 γ 射线有中等大小的吸收本领。有机闪烁体的 γ 探测器有比较高的探测效率。尽管其能量分辨率不好，但响应快、时间分辨好。因此，常以这类探测器用作快符合装置上的 γ 探测器。无机闪烁体的典型代表是铊激发的碘化钠晶体和碘化铯晶体。它们的原子序数高、密度大，对 γ 射线有极高的吸收本领。其时间响应快，能量分辨率也好，是 20 世纪 50 年代以来探测 γ 射线的主要探测器。

高纯度的半导体材料锗和硅，是可用来 γ 射线探测的良好介质。由这类材料发展起来的 Si(Li)、Ge(Li) 和 HpGe (High Pure Germanium detector) 的各种型号的探测器，具有特别高的能量分辨率，并且有较高的探测效率。因此，半导体 γ 探测器是 γ 射线能谱分析的理想工具。随着制作工艺水平的提高，探测器的灵敏体积逐渐增大，其探测效率已和 NaI(Tl) 不相上下，因而逐渐取代了 NaI(Tl)。

按历史上出现的先后，锗探测器分为锗（锂）探测器 [Ge(Li), Lithium drifted Germanium semiconductor detector] 和高纯锗半导体探测器。Ge(Li) 要在低温下使用和保存。HpGe 在低温下使用，但可在室温下保存。目前多用的是高纯锗探测器。据结构上的差异，高纯锗探测器分为同轴型、平面型、低能型和井型几种。不同型号的探测器的应用范围不同。锗探测器要在低温下使用，同时晶体要保持在真空中，其结构如图 1-1 所示。

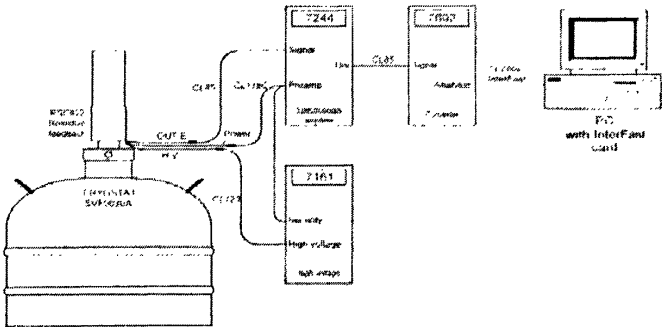


图 1-1 锗探测器结构示意图

Fig.1-1 The configuration of HPGe detector

放射性核素中，不同的核素衰变将发射具有不同能量的特征 γ 射线。对于一个待测的样品，如果将其辐射的 γ 射线按能量顺序分别记录，就可以获得样品辐射的 γ 能谱。根据 γ 谱上的射线能量和脉冲计数量，可以很容易判断发射核素的种类及确定其活度。 γ 谱仪就是应这种需要发展起来的一种 γ 辐射的测量设备。

γ 谱仪主要由探测器、放大系统、脉冲幅度分析记录系统、数据处理系统和输出输入系统组成，如图 1-2 所示为其工作原理方框图。

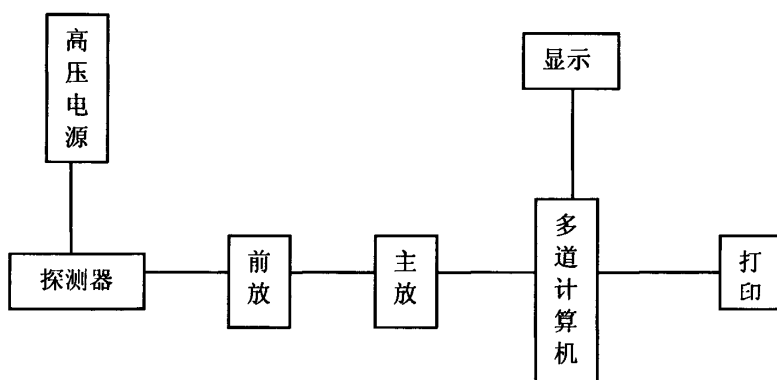
图 1-2 γ 谱仪的原理框图

Fig.1-2 Electronic components for a gamma-spectrometric system

探测器是谱仪的核心部件, 可使用 NaI(Tl), CsI 和各种半导体的 γ 探测器。但是, 现在比较流行的主要是采用高纯锗制作的各种探测器, 因为高纯锗 (HPGe) 比 NaI(Tl) 的能量分辨率高的多 (P.P.Povinec, 2008)。

放大系统包括前级放大器和线性放大器, 其功能是将探测器输出的电脉冲线性放大到可供分析记录的幅度。

脉冲幅度分析记录系统的功能是将脉冲幅度数字化, 然后按数字将其记录在相应的地址处。通常用多道分析器 (MCA) 完成这项任务。

数据处理系统。可以根据实验者的需要和安排, 处理、计算测量获得的数据, 由输入输出系统输出所需的结果 (田东风等, 2005)。

γ 谱的测量分析比较复杂。目前常用的 γ 谱仪每种类型又有各种型号的探测器。谱仪的种类和型号不同, 其功能也不同, 适用范围也不同, 谱仪的基本指标反映了谱仪的基本特性和适用范围, 是实验工作者选择谱仪的依据。实验室可以根据测量分析的对象和要求, 选择购买适用的 γ 谱仪系统。 γ 谱仪的基本指标包括: (1) 探测效率: 表征探测器对 γ 射线的探测本领, 探测效率越高, 对 γ 射线的探测本领越大, 它是 γ 谱仪最重要的指标之一。影响探测效率的因素很多。探测效率首先取决于探测器的类型、几何形状和尺寸大小, 再则强烈地依赖于 γ 射线的能量及源到探测器之间的距离; (2) 能量分辨: 表征 γ 谱仪对两支能量相近的 γ 射线的分辨能力, 也是谱仪的主要指标之一。 γ 谱仪的能量峰分辨率由全能峰的峰高一半位置上的全峰宽表征, 并用符号 FWHM 表示。对高分辨率的半导体 γ 谱仪, FWHM 的单位是 keV。因能量分辨与射线的能量有关, 给出能量分辨率时应说明效应的射线能量。(3) 峰形: 表征全能峰底部形状特性的, 主要鉴别一个峰是单能峰还是重峰, 特别是高分辨的 γ 谱仪, 谱分析一般是由计算机自动分析, 其判断单能峰还是重峰就是依据这一指标进行的。(4) 峰康比: 表征 γ 谱仪在高能 γ 射线的康普顿连续谱影响下对低能 γ 射线的探测能力, 峰康比越大, 这种能力越大。(5) γ 谱仪的能量线性: γ 射线的能量与脉冲幅度的线性程度表征 γ 谱仪能量线性指标。在 γ 谱上通常由 γ 射线与相应全能峰峰高道址的关系曲线函数与直线函数的偏差表示。它由探测器的类型、放大系统和脉冲幅度模拟数字转换决定。线性的好坏直接影响谱仪对 γ 射线能量的确定和对核素种类识别的能力及准确性。(6) 稳

定性：是 γ 谱仪的重要指标， γ 谱的测量分析工作，往往要求谱仪不但有短时间的稳定性，而且还要有长时间的稳定性。谱仪的不稳定性，将使计数道漂移、峰变形、分辨变差、使谱仪的分析计算复杂化，并影响分析结果的可靠性。(7) 允许计数率：谱仪保持正确工作的状态下，能够允许通过的最大计数率，也是它的一个重要指标。允许最大计数率的大小表征谱仪的数据获取速度，允许的计数率越高，数据获取越快，可大大地减少测量的时间。这对多核素的混合样品和短半衰期的核素测量特别有利（田东风，2005）。

在定量分析的 γ 谱仪系统上，探测效率刻度是其最重要的一项工作，它直接影响活度测量的不确定度。探测效率刻度结果的可靠性和测量条件的选择有密切的关系，选择最佳测量条件可以获得较小的不确定度，也可给测量分析带来方便。

高纯锗谱仪传统效率刻度方法及不确定性：一个高纯锗谱仪测量系统的探测效率取决于探测器的本征效率、样品的特性（几何形状、材料种类、材料密度和分布等）、样品与探测器间几何位置以及周围材料等诸多因素。为了确定某种样品在特定几何条件下的探测效率，传统的效率刻度方法是选择与样品特性相近的标准样品（核素活度含量已知）在特定几何条件下对系统进行效率刻度。这样的方法存在以下不确定性：(1) 标准样品的放射性剂量必须进行定期检定，增加了不确定性；(2) 标准样品中放射性物质半衰期不同，使得不同核素峰的计数率的差异随时间增大，进而影响效率刻度精度，增加了刻度的不确定性；(3) 放射性物质经过价格半衰期后，标准样品不再适合效率刻度，如果继续使用，分析的不确定性会增大；(4) 标准样品与实际样品的差异校正繁琐，不确定性因素很难完全消除；(5) 系统刻度与样品测量无法同时进行；(6) 不同测量位置分别刻度耗时费力，不确定性较大。

传统的高纯锗谱仪效率刻度费时费力，不确定因素较多，这些不足始终困扰着人们，堪培拉（CANBERRA）公司无源效率刻度技术解决了这一难题。

高纯锗无源效率刻度方法及其不确定性分析：CANBERRA 公司无源效率刻度方法包括：探测器的表征、ISOCS/LabSOCS 软件（源项特征、源与探测器位置关系和周围材料分布等）、利用 ISOCS/LabSOCS 刻度的数据对高纯锗谱仪进行刻度。探测器的表征是实现无源效率刻度的关键，而确保探测器点源效率空间分布计算的准确性必须有如下两点基本的技术保证：确切了解探测器内部详细结构，以保证探测器数学模型的合理性和可靠性；必须对蒙特卡洛数学模型的计算结果进行实际测量验证（许淑艳，2006）。CANBERRA 公司具备了上述条件，首先，CANBERRA 公司是探测器生产厂家，了解探测器内部所有细节特征，其探测器数学模型最合理准确；其次，采用蒙特卡洛数学模型计算的探测器点源空间效率结果结果实际测量验证，而且验证的测量点位于探测器不同几何位置，包括轴向上方 0° 、 45° 、 90° （垂直轴向）和 135° 的测量点。这种不同方位的多点验证强暴了探测器全方位点源效率分布的准确性。由此可以看出 CANBERRA 公司的表征不是一个单纯的蒙特卡洛模拟计算，表征中结合了具体实验刻度验证和模型优化处理等特殊步骤。CANBERRA 公司的无源效率刻度方法是高纯锗效率刻度的一个突破，自从问世至今世界上有 400 多个用户，德国、意大利和美国的一些研究机构，采用传统的有源效率刻度方法和 CANBERRA 公司的无源效率刻度方法分别对谱仪系统进行刻度，然后分析测量同样的样品，结果表明，两种方法得到的结果几乎一致（F.L.Bronson.,2003）。2002 年美国 48 届放射生物和化学测量年会有研究者针对 48 种样品进行了全面的比较和分析，得出的结论是，在 95%置信水平两种方法刻度的谱仪系统对同一样品的分析结果一致（朱文凯，2004）。

1.4 传统示踪和野外原位示踪技术

应用 ^{137}Cs 技术评价土壤侵蚀和沉积速率和模式是目前较为先进的技术,克服了许多其他技术的不足,在全球范围内得到广泛应用(Ritchie and McHenry, 1990; IAEA, 1998; Walling and Quine, 1992, 1995; Walling and He, 1997; Walling, 1998; Walling, 2002)。 ^{137}Cs 示踪技术以测定方法划分,可分为传统示踪和野外原位示踪两种方法。传统示踪技术的程序包括:野外采集土样→运回室内→经风干→过 2mm 筛→Gamma 谱仪测定→土壤中放射性活度计算→标准样品比对→与参考点比较→土壤侵蚀量计算。目前广泛应用的土壤侵蚀(水蚀或风蚀)的 ^{137}Cs 示踪法属于传统示踪方法。据 Jerry C.Ritchie(<http://hydrolab.arsusda.gov/cesium>)统计,到 2003 年 7 月份为止,全球在过去 50 年共有 3010 篇 ^{137}Cs 示踪的研究论文发表,绝大多数论文是应用传统的 ^{137}Cs 示踪技术研究土壤水力侵蚀或湖泊泥沙沉积。而与风蚀直接相关的论文不足 20 篇,主要集中在 ^{137}Cs 面积活度的流失与土壤风蚀量的关系。与传统方法不同,本论文中提出的野外原位示踪法,是指无需采集土壤样品,在野外应用便携式 γ 谱仪现场原位测定土壤中的环境放射性核素面积含量(Bq/m^2),从而计算土壤的侵蚀速率。与传统的核素示踪技术相比,现场原位示踪技术具有测定时间短、测定地表面积大因而代表性强、没有破坏性,可对同一研究地点进行反复动态测定,无需参考点做对照。据文献检索,自从 1972 年 Beck 等人首次应用便携式 γ 谱仪现场原位测定环境中的放射性核素以来至今的研究报道仍不多见。由于受研究手段和研究思路的限制,目前为止,还没有关于应用多核素(^{137}Cs , $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 和 ^7Be)原位定量监测土壤侵蚀(水蚀或风蚀)的报道。国内外 10 多年来土壤侵蚀的环境放射性核素示踪研究存在许多不足之处和亟待解决的问题,包括:(1) 采样的面积和参考点问题。目前传统的土壤侵蚀(风蚀和水蚀)的环境放射性核素示踪如 ^{137}Cs 示踪存在 3 方面不足:一是很小的采样面积(大多在 150cm^2)很难代表研究区域的空间变异性;二是很难找到没有侵蚀或不受人活动影响的参考点与研究地点进行比较;三是大量的钻孔采集样品对地表造成破坏,而且实验室测定 1 个样品一般需要 12 甚至 24 个小时(要求测量精度达到 6%),如果 γ 谱仪探测效率 < 30%,需要时间甚至在 48 小时以上。(2) 国外应用便携式 Gamma 谱仪原位测定 ^{137}Cs 估算土壤侵蚀(水力侵蚀)的论文存在两方面不足:(1) 因其(属于 P-型)探测器,只能测定 ^{137}Cs ,不能测定低能量的环境放射性核素;(2) 探测器在无铅室屏蔽条件下很难准确确定所测定的地表面积。

快速、原位、动态监测和评价区域土壤侵蚀速率及其与水土保持工程措施的关系是未来土壤侵蚀核素示踪领域的研究方向。但是,目前我国在这方面的研究思路和研究手段仍值得进一步探索。与国外相比,我国目前普遍采用的土壤侵蚀的传统环境放射性核素示踪研究存在较大不确定性,面临更大的挑战。由于受强烈人类活动的影响,我国在寻找过去 40 年没有侵蚀或沉积的永久草地或农用地作为与邻近侵蚀地点的参考点更加困难。无法确定参考点,很小的采样面积、非常有限的样本数和很长的室内测定,是 ^{137}Cs 和 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 示踪技术在我国土壤侵蚀研究中应用的最大困难,迫切需要寻求新的永久方法和研究思路来解决这一问题。

1.5 放射性核素标准样品的研制

标准物质是具有一种或多种足够均匀和很好确定的特性值,用以校准设备,评价测量方法或给材料赋值的材料或物质。环境放射性同位素标准物质,泛指自然界存在的半衰期足够长、稳定性可保证其具备量值传递和应用的一些天然的或人工的放射性物质(韩永志,2001)。用环境放射性同位素标准物质可以发现和校准放射性分析仪器的系统误差,检验和评价环境放射性实验室分析方法及实验室的分析水平。同位素标准物质的水平越高,不确定度越小,可以发现和研究的误差就越精细。目前,国内关于环境放射性同位素分析不确定性的研究已得到很大的关注。影响环境放射性同位素分析的不确定性因素有许多。很多的研究结果都表明标准物质的几何形状、矿物/物质组成、粒径组成、密度、质量、容器、测定时间等都会影响环境放射性分析的准确性。

传统的土壤侵蚀的 ^{137}Cs 示踪法,在实验室内用HPGe γ 谱仪测量土壤样品的放射性活度时,待测土壤样品与标准土壤样品相比通常会存在样品体积、密度等方面的差别,所以会给测量带来分析误差。四川大学周刚用蒙特卡罗方法分析了这些差别对待测土壤样品中 ^{137}Cs 放射性活度测量准确性带来的影响大小,并给出了对这些影响进行修正的方法,以及能够到达的修正程度。其研究表明:对于密度与标准样品相同,高度为5.5cm的待测样品,不予修正时由高度差别引起的测量误差可达25%,当样品量更少,密度更低时引起的误差会更大(周刚,等,2006)。

也可以通过环境放射性分析仪器的测量原理出发,分析环境放射性分析误差的来源,刘兆华总结了用相对测量法测量环境样品放射性活度时,产生的几个方面的误差来源有:(1)当待测样与标准样在介质密度和组成成分上存在差别时产生的误差;(2)当待测样与标准样相比,在样品体积上存在差别时产生的误差;(3)待测样和标准样的全能峰计数的计数误差导致样品活度的测量误差;(4)标准样品的放射性活度的误差引起待测样活度测量的误差;(5)待测样和标准样含水量不同产生的测量误差。他认为除第4项应该由标样制备者给出外,其它四项都可由想办法使其误差尽量减少。例如,可以通过实验或蒙特卡罗模拟计算减小来源于第一、二两方面的误差;可以通过认真扣除本底,采用解谱方法以及增大测量时间来减小第三种误差来源;使样品充分干燥减小第五种来源引起的测量误差(刘兆华,2005)。

在环境样品放射性测量中,探测效率是衡量谱仪工作特性的重要参数之一。在达到同样精度的情况下,效率越高,越可以减少测量时间,从而提高谱仪的利用率。影响探测效率的因素主要有几何条件、物质减弱因子、作用几率、电子学系统的记录效率等。四川大学张文德通过实验和模拟发现,圆柱形样品最佳探测效率对应的尺寸大约在底面半径 $R=6.0\text{cm}$ 左右,而并非在 $R=3.75\text{cm}$ 左右。产生这种现象的原因主要由两方面因素,一是因为样品内的自吸收影响,二是因为样品与探测器之间的立体角的影响。他认为可以把传统的环境样品盒尺寸 $\Phi 7.5\text{cm} \times 7.5\text{cm}$ 改成底面半径和高分别约为 $\Phi 12\text{cm} \times 3\text{cm}$ 的尺寸,使测量探测效率尽可能达到最佳(张文德等,2007)。

国际原子能机构的研究人员通过用HPGe γ 谱仪测定空气滤膜样品的研究发现,除了计数统计误差外,对于半衰期较长的核素来说,刻度源和待测样品的均匀性是放射性活度测定不确定度的主要来源(Marck Makarewicz, 2005)。丹麦化工大学的研究也表明,环境放射性样品的测量的不确定性不仅来自于计数统计误差,而且样品的几何形状和本底,以及样品的尺寸、物质组成都影响测量的不确定度。他们的研究认为刻度步骤也是环境放射性分析不确定度的来源之一,刻度就是

用已知的刻度源与未知的样品进行比较。但是,通常情况下,刻度标准物质与待测样品不可能在同样的测量条件下,两者的尺寸、形状、组成物质往往存在差异。这样大部分样品就会存在和样品缺乏均匀性,以及与样品自吸收,记数效率,几何形状相关联的不确定度(K.Heydorn, 2004)。

以上的研究可以说明,在环境放射性测量中,选择标准样品要保证标准样品与待测样品的形状、密度、高度、重量、容器要基本相同,原则上标准样品与待测样品的矿物组成,测量时间也要相同。如果测量的是土壤样品,土壤类型应大致相同,保证相同的介质。即测量条件要保证一致,只有这样,测量结果才具有准确性。因为只有满足了以上条件,标准样品与待测样品才会有了相同的探测效率和符合相加干扰因子。这种通常应用的仪器常数法直接、简单,避免符合相加修正,如果标准样品的精度足够高,那么就可以得到较高的分析精度。但是缺点在于如果测定的核素很多,需要每个被测核素的标准样品,这对于环境放射性实验室来说是很难满足的。

在环境放射性分析中,如果实验室的标准样品与待测样品的核素不同时,通常应用探测效率法。即当需要使用谱仪测量不同样品中不同核素活度时,由于存在着自吸收、探测器损失等因素,谱仪系统对不同能量的 γ 射线存在着探测效率的修正问题,必须对谱仪进行效率刻度以建立 γ 射线的全能峰效率随能量变化的效率曲线。这样使用一个标准体源对谱仪系统进行刻度后,可以测量多种核素的活度。为了在满足测量准确度的前提下找出最简捷的测量方法,就需要研究制备标准体源/物质的方法,减少测量不确定因素的干扰,提高测量的精确度和准确度。

探测效率法现在是比较通用的,需要合适的标准源进行刻度,从低能端到高能端各能量端进行仔细的刻度,可以得到比较高的精度。但是需要进行符合相加修正,这比较麻烦。现在世界上比较先进的谱分析软件已经突破了这个技术难题。用户可以不需要标准放射源做精确的效率刻度,软件可以模拟不同的标准样品,只要输入相关的信息,样品几何特征,样品类型,矿物组成,密度,以及刻度好的相关的能量线,这样就可自动地进行样品的分析计算。目前无源效率刻度的HPGe γ 能谱仪,可应用于广泛范围的几何条件,提供0到500米距离范围内的正确刻度,测定的能量范围从45keV到7000keV。刻度的精确度达到百分之几。能够在探测器任何角度上进行精确的刻度。消除了购买放射标准、创立定制分布和排放放射性废物的费用。这项技术将逐渐被用户所接受并广泛应用于环境放射性的测定。

国际国内的大量研究表明,标准样品在环境放射性核素分析中具有重要作用,标准样品的质量直接影响到环境放射性分析的准确性和精确性。放射性分析工作者需要从放射性核素分析的不确定性角度出发,研究同位素标准样品制备的质量保证方法与关键技术。

环境放射性同位素标准物质是标准物质整体中的一个分支,它是环境放射性测量的专业性标准物质,是核技术相关的环境评价、放射性计量传递的重要工具,对环境放射性计量和相关的科学研究的发展起着非常重要的作用。

环境放射性同位素标准物质,主要是天然的放射性物质,也包括人工长寿命的放射性物质。国内外研制最多的是广泛应用于核材料研究、勘探、开发、环境评价及其它领域半衰期较长的天然放射性核素,像铀钍镭钾等。而人工核素的标准物质,由于多种原因尚未大量开发。目前世界上环境放射性标准物质以有近千种,这类标准物质中天然的占绝大部分,人工的为数不多。至1995年,我国已发布这类一、二级标准物质104种,前者98种,后者仅6种。天然放射性铀钍镭钾的标准物质,主要是它们的矿石、矿物和金属或化合物为主要原料和相应的填充基料一起,经严格的工艺加工制成,属于环境放射性同位素标准物质。用于地质年龄和同位素比值测定的亦归入此

类标准物质。人工放射性标准物质有 ^3H 、 ^{14}C 、 ^{137}Cs 、 ^{60}Co 4 个核素的 6 种；像 ^{32}P 、 ^{131}I 、 ^{199}Au 、 ^{133}Ba 等人工放射性核素，虽在农业、卫生等方面已有相应的技术、产品加以应用，但因半衰期比较短等原因，尚无相应的标准物质。

各国对环境放射性标准物质的研制都十分重视，随着核技术的不断发展，在各专门机构的指导下，虽起步较晚，但发展迅速，所占全部标准物质的比例约为 10: 1。我国的这类标准物质，发展情况与世界的趋势相似，其数量在全国各类标准物质中占 11.9%。

由于对标准物质重要性认识的普遍提高，总体上看，标准物质出现了由量少面窄到量多面广，由缓慢发展到高速度的发展阶段。其应用也由局限在钢铁、冶金、地质领域扩展到了国民经济发展的各个领域。环境放射性标准物质近期也得到了大发展。据不完全统计，世界上研制环境放射性标准物质的国家和组织，包括美、中、英、法、前苏联、德、日和国际原子能机构等有 40 多个。应用最初仅限于核工业系统，至今已面向世界能源、地质、冶金、煤炭、石油、化工、教育、卫生、环保、地震、农业等方面。放射性同位素标准物质的研制，国内外相比各具特色，均按规范科学严谨地进行；均是稳定可靠，每隔三五年进行复查，适时的去劣存优；均是采用最准确可靠的分析技术，用不同原理方法进行定值，花费大，涉及单位多，有时往往采用互尽义务、分享使用标准物质的成果。国内主要由具备条件的一个或几个单位加工，定值时或用绝对法经两个或两个以上的单位；或由若干家用准确可靠的方法；或用两种以上不同原理的准确方法；由两个或两个以上分析者独立进行。即按中华人民共和国一级标准物质国家计量技术规范进行。由于某些放射性标准物质有特定的测量手段，国内这方面的权威单位有限，所以放射性标准物质的研制定值单位或 3-5 家，或 2-3 家，有的往往只有一家。一系列铈钍镭粉末放射性同位素标准物质的分析比对，确认我国的该系列标准物质的均匀性好、定值的精密度和准确度相当高，不少指标已优于国外，专家认为该系列标准物质已进入世界先进水平。我国研制的这些标准物质因与待测样相近，较符合放射性测量的要求。用于环境、生物、农业方面研究样品的放射性水平比较低，且样品的种类繁多， γ 谱仪的刻度将面对多种介质和核素，在放射性分析实验室很难用一两种刻度方法满足各种测量要求。即使水平较高的实验室，也不能做到对各种被测样品和核素进行刻度。而且，也不可能有一个实验室能够提供所有放射性同位素标准，能提供得只限于少数核素。至于各种介质的标准物质，能提供的种类就更少了（黄治俭，1994）。

中国计量科学研究院在 90 年代研制了一种被天然和人工放射性核素污染过的河流沉积物标准物质。由多个实验室用多种正确可靠的方法对 9 种放射性核素进行了定值。核素的活度浓度 0.02~0.6Bq/g，总不确定度 4.6%~19.2%(3 σ)。标准物质中核素品种较全，含量适当而均匀，经过实际使用考验证明，均匀性和稳定性良好。这种标准物质是天然基质的，同掺合标准物质相比，它与实际测量样品更加相似。当测量相似基质时，可以用来检查和控制分析质量，研究和评价分析方法，检验和校准测量仪器，这种天然基质的标准物质，被认为是适合于环境放射性分析过程中质量控制的理想标准物质（谭金波，等，1995）。

我国的环境放射性同位素标准样品虽然属于世界先进水平，但是仍存在很多问题与不足，迫切地要求放射性分析工作者研制系统的放射性同位素标准样品，以提高我国放射性分析的水平，填补该领域的不足与空白，满足相关学科研究的需求。

1.6 本项目研究的目标和内容

研究目标:

研究、探索土壤侵蚀的多核素 (^{137}Cs , $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$, ^7Be) 原位动态监测的新技术、土壤环境放射性核素室内分析技术的不确定性、以及低活度环境放射性标准样品制作技术, 并应用环境放射性核素示踪技术定量评价青藏高原高海拔地区典型生态景观土壤侵蚀格局, 阐明人类活动对土壤侵蚀格局与过程的影响。

研究内容:

本项目是受国际原子能机构(IAEA) 亚太地区国际合作项目“控制土壤侵蚀, 改善水土质量”资助, 在 IAEA-ALMERA (国际原子能机构环境放射性核素比对网络实验室) 大量研究实践基础上, 得出的宝贵研究成果。本研究对于提高环境放射性核素测量技术的精确性以及不断完善土壤侵蚀的环境放射性核素示踪技术具有非常重要的意义。主要研究内容包括:

(1) 环境放射性核素的野外原位监测技术研究

应用 ISOCS 现场 γ 谱仪原位测定土壤中 ^{137}Cs 和 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$, 并在原位测定点, 采集土样运回实验室, 用室内 HPGe γ 谱仪测定 ^{137}Cs 和 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 的含量, 通过两种测量方法的比对, 查明影响原位测定的关键性因素: 确定探测器的有效测量面积, 评价核素剖面分布对原位监测核素面积浓度的影响, 以及 ISOCS 现场 γ 谱仪测定土壤 ^{137}Cs 和 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 的适用性。建立土壤侵蚀多核素动态原位示踪的新方法。

(2) 环境放射性核素室内测定技术的不确定性研究

通过国际间实验室的环境放射性核素分析比对研究, 查明影响环境放射性核素室内分析过程中存在的主要问题, 发现影响分析结果不确定性的主要因素, 建立分析质量控制的程序和方法, 以及分析比对结果的评价方法。

(3) 环境放射性核素标准样品制作技术研究

研究制定低活度放射性核素标准样品制备的标准及规程, 完善标准物质的定值的方法以及不确定度、均匀性和稳定性、质量控制的关键技术。

(4) 环境放射性核素示踪技术在青藏高原土壤侵蚀研究中的应用

应用环境放射性核素示踪和计年技术, 研究青藏高原东西样带典型生态景观土壤环境放射性核素的区域分布特征, 土壤侵蚀速率格局的变化过程和驱动机制, 确定人为活动在土壤侵蚀演变过程中的相对重要性。

技术路线：

图 1-3 为本研究的总体设计思路。

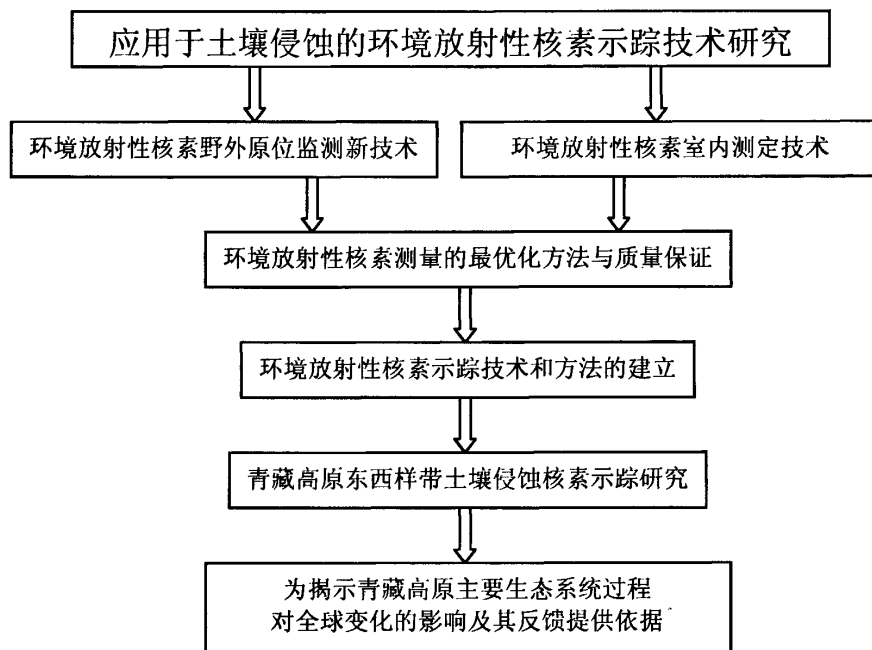


图 1-3 本论文研究的总体思路

Fig.1-3 The total design of the thesis

第二章 环境放射性核素的野外原位监测技术研究

^{137}Cs 和 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 是目前广泛应用于土壤侵蚀评价的环境放射性核素。 ^{137}Cs 系 20 世纪 50 年代和 60 年代的核爆炸产生而散落在大气中的人工放射性核素。 ^{137}Cs 在全球沉降开始于 1954 年, 1963-1964 年达到高峰, 随即降低, 80 年代初期结束 (1986 年的俄罗斯核事故造成的 ^{137}Cs 沉降只局限于欧洲)。与 ^{137}Cs 不同, ^{210}Pb 系天然放射性核素。 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 是土壤/岩石中的 ^{238}U 的衰变系列产物 ^{222}Rn 释放到大气后再沉降到地表的放射性核素 (Zapata F., 2002)。 ^7Be 则是宇宙射线引起大气层中粒子辐射的产物, 随降水或大气尘埃沉降到地表。研究表明, 散落在地表的 ^{137}Cs , $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 和 ^7Be 被土壤细颗粒吸附, 但是很难被植物吸收。水力、风力作用过程是控制 ^{137}Cs , $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 和 ^7Be 在地球表层发生再分布的主导因子。

^{137}Cs , $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 和 ^7Be 传统示踪技术应用的原理, 主要是通过测定采样地点的单位面积环境核素的总活度与该地点附近的参考点 (没有侵蚀或泥沙沉积的地区, 用于估算当地大气散落的环境核素的背景值) 累积环境核素面积活度比较而获得环境放射性核素在空间的再分布情况。通过测定采样地点环境放射性核素的流失或堆积量与试验获得的土壤流失量之间的关系, 可定量估算土壤侵蚀或堆积速率 (李勇等, 2005)。目前已经建立了应用 ^{137}Cs 技术定量评价农地和非农地土壤侵蚀的经验和理论模型, 根据其半衰期不同, ^{137}Cs , $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 和 ^7Be 可以分别确定土壤侵蚀动态: 包括短期 (<30 天)、中期 (40 年) 和长期 (100 年) 平均速率。

传统的土壤侵蚀的环境放射性核素示踪如 ^{137}Cs 和 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 示踪存在 3 方面不足: 一是很小的采集样品面积 (大多在 150 cm^2) 很难代表研究区域的空间变异性; 二是很难找到没有侵蚀或不受人类活动影响的参考点与研究地点进行比较; 三是大量的钻孔采集样品不仅具有很大的破坏性 (尤其对自然保护区), 而且实验室测定 1 个样品一般需要 12 甚至 24 个小时 (要求测量精度达到 6%), 如果 Gamma 谱仪效率 <30%, 需要时间甚至在 48 小时以上。而应用 ISOCS 现场 γ 谱仪原位技术可以克服以上的困难, 省去了土壤采样、运输和处理等工作, 相对于实验室测定, 可以比较快速的得到分析数据。而且减少了对原地貌的扰动, 探测地表面积较大, 具有代表性。所以, γ 谱仪原位测定技术具有很大的应用潜力 (Valery Ramzaev et al., 2005; Golosov V N et al., 2000)。

我们应用 ISOCS 现场 γ 谱仪原位测定了内蒙古草原土壤中 ^{137}Cs 和 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$, 并在原位测定点, 采集土样运回实验室, 用室内 HPGe γ 谱仪测定 ^{137}Cs 和 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 的含量, 目的是通过两种测量方法的比对, 查明影响原位测定的关键性因素: 确定探测器的有效测量面积, 评价核素剖面分布对原位监测核素面积浓度的影响, 以及 ISOCS 现场 γ 谱仪测定土壤 ^{137}Cs 和 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 的适用性。建立土壤侵蚀多核素动态原位示踪的新方法。

2.1 研究区域

原位测定点选在内蒙古锡林郭勒草原, 该区属锡林郭勒盟境内锡林河流域 ($43^{\circ}26'\sim 44^{\circ}39'\text{N}$, $115^{\circ}32'\sim 117^{\circ}12'\text{E}$), 地势东南高, 西北低, 属中温带半干旱大陆性季风气候, 也是我国北部土壤

风蚀最为严重的地区之一。草原原始面貌保存较好,在我国温带草原区具有较强的典型性。成土母质以第四系和第三系沉积物为主,土壤类型主要为栗钙土。区内主要的草原类型为典型草原和草甸草原。典型草原主要有羊草草原、大针茅草原、克氏针茅草原、羊茅草原等 5 个群系,草甸草原主要有贝加尔针茅草原和线叶菊草原两个群系。

具体的研究地点为中国科学院内蒙古草原生态系统定位研究站,该地自 1980 年起进行围栏封育试验,是研究不同放牧强度和草场管理影响土壤风蚀速率的理想基地,其地貌特征为典型的低丘-平原地形,主要草类是羊草群落,每年秋季(10~12 月)到来年春季(1~5 月)的西北风侵蚀过程是导致该区土壤流失退化的主要气候因素。本试验在实验站区内选择一个全山坡,按照西北到东南方向的迎风坡和背风坡方向,包括坡底部、坡中部、坡上部、坡顶部和背风坡 5 个不同坡位,(分别用 site-1, site-2, site-3, site-4, site-5) 进行 ^{137}Cs 和 ^{210}Pb 原位测定,原位测定样点的高程分布见图 2-1 所示。

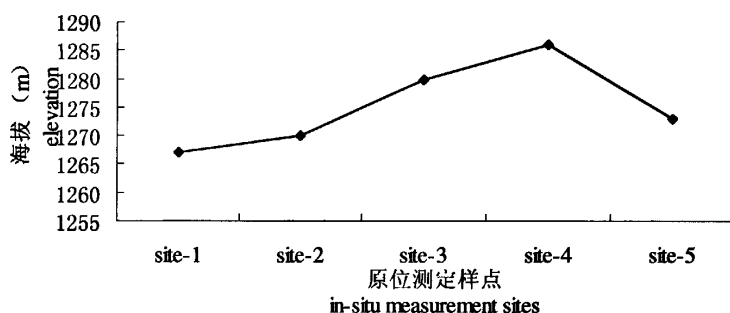


图 2-1 内蒙锡林郭勒草原 ^{137}Cs 和 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 面积浓度原位测定样点高程

Fig. 2-1 In-situ measurement sites of ^{137}Cs and $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ inventories along NW wind direction in Inner Mongolia Xilinhot grassland

2.2 测量系统

2.2.1 ISOCS 现场 γ 谱仪测量系统

ISOCS 现场 γ 谱仪测量系统的组成: BE5030 宽能型高纯锗便携式探测器、数据采集处理系统(包括 Inspector2000 数字化谱仪、手提电脑、Genie-2000 分析软件)、液氮罐、全球定位系统(GPS)、ISOXSHID 屏蔽车、野外运输车。该系统由美国堪培拉(CANBERRA)公司生产。

2.2.2 LabSOCS 实验室 γ 谱仪测量系统

LabSOCS 实验室 γ 谱仪测量系统组成: 使用美国堪培拉公司 γ 谱仪系统, 探测器为 BE5030 型, 晶体尺寸为 $\Phi 80\text{mm} \times 30\text{mm}$, 可测量 γ 射线能量范围为 3keV(千电子伏)~3MeV(百万电子伏), 系统使用 Canberra747E 铅室, 壁厚度为 10cm, 使用 DSA-1000 数字化谱仪, Genie-2000 谱分析软

件分析谱数据。对 ^{60}Co 1332.5keV 的能量峰的能量分辨率(FWHM)为 1.643keV。

两套谱仪的主要技术指标如表 2-1 所示。

表 2-1 两套谱仪的主要技术指标 (对 ^{60}Co 1332.5keV 的能量峰)

Table 2-1 Main technical indicators for two set of gamma detectors (Co-60 @1332.5keV)

性能 characteristics	现场谱仪 in-situ detector(BE5030)	室内谱仪 laboratory detector(BE5030)
工作偏压 Voltage (V)	5000	4500
能量分辨率 Resolution (FWHM, keV)	2.060	1.643
相对效率 Relative efficiency (%)	50.00	50.92
峰对称性 Peak symmetry (FWTM/FWHM)	<2.0	<2.0

2.3 研究方法

2.3.1 原位测定程序

原位测定时，探头固定在离地面一定的高度，使用铅准直器将来自周围环境介质的射线屏蔽，准直器角度可以根据要求设定。图2是ISOCS现场谱仪原位测定的模拟示意图。探头距地面1m，准直器角度90°，探头照射的面积为3.14m²。

现场谱仪探测器安装在一辆测试车上。由于测试车的存在，一部分由土壤中射出的 γ 谱线被测试车阻挡，不能到达 γ 谱仪，使得 HPGe γ 谱仪的计数率减少，因此会给计算带来一定的影响。在实际运算时要对面积进行校正(牛胜利等，2005)。比如准直器 90°时，探头照射面积是 3.14m²，而计算中应减去测试车的阻挡面积 0.23m²，所以探头实际照射面积是 2.91m²。

能量刻度：原位测定采用中国计量科学研究院 ^{152}Eu 标准源，用 121.78, 244.69, 344.27, 411.11, 443.97, 778.89, 867.32, 964.01, 1085.78, 1112.02 和 1407.95keV 11 个 γ 射线特征能量峰进行能量刻度，能量(E)和半高宽(F)刻度方程分别为：

$E(\text{keV})=0.569+0.206C$ (1)

$F=0.817+0.060\times E^{1/2}$ (2)

式中，C 为道数(Channel number，反映多道分析仪记忆特定能量水平的位置)。

能量刻度线见图 2-2 所示。横坐标表示道数 (C)，纵坐标表示能量 (E)。

效率刻度：本文采用高纯锗谱仪无源效率刻度方法完成核素的测量。高纯锗谱仪是放射性核素定性和定量测量的一种方法，传统高纯锗谱仪采用标准放射性样品对系统进行效率刻度，这种方法存在很多缺陷和不足。人们一直以来梦寐以求一种与传统效率刻度方法精度相当，而又不需要使用放射源的方法。

美国堪培拉 (CANBERRA) 公司与美国洛斯阿拉莫斯 (Los Alamos) 国家实验室经过多年的研究，于上世纪末推出了用于高纯锗谱仪现场应用的无源效率刻度方法 (ISOCS)，随后，又在此基础上推出了实验室条件下高纯锗谱仪的无源效率刻度方法 (LabSOCS)。

本研究通过高纯锗伽玛谱仪原位测定和实验室测定结果的比对研究，证明了无源效率刻度是

高纯锗效率刻度的一个较大突破。其测定结果精度很高，与有源效率刻度方法相比，减少了不确定性。

效率刻度是本研究中应用 ISOCS 系统进行土壤核素原位测定的难点和关键点，因为预先不知道土壤中 ^{137}Cs 和 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 的剖面分布情况，在进行效率刻度时，可以根据经验给深度参数一个估计值，还可以改变深度参数的值，生成不同的刻度曲线进行计算 (Roland R et al., 2002)。本试验预先给定研究地区的 ^{137}Cs 和 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 在土壤中的穿透深度为 15cm。准直器分别使用 3 个不同角度 (30°, 90°, 180°)，并对测定结果进行了比较，以确定探头的有效探测面积，选择一个适合测量的最佳角度。

根据刻度因子由实验效率值用双对数多项式拟合得到一条效率刻度曲线方程如下：
 $\ln \epsilon = -4.828 \times 10 + 2.052 \times 10 \ln E - 2.906 (\ln E)^2 - 1.208 \times 10^{-1} (\ln E)^3 + 5.329 \times 10^{-2} (\ln E)^4 - 2.988 \times 10^{-3} (\ln E)^5$
式中：E为γ射线的能量；ε为效率。
效率刻度曲线见图2-3所示。横坐标表示道数 (C)，纵坐标表示效率。

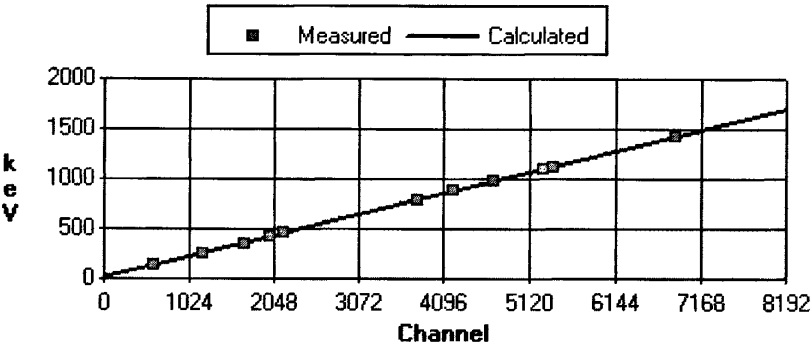


图2-2 能量刻度线

Fig.2-2 Energy calibration line

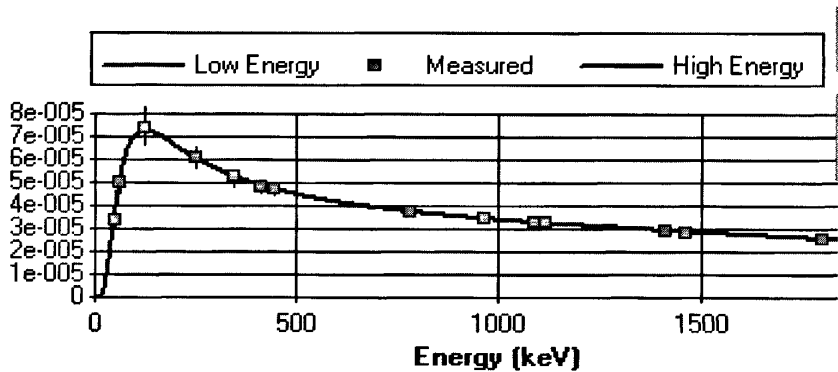


图2-3 效率刻度曲线

Fig.2-3 Efficiency calibration curve

在 ISOCS 现场谱仪的原位测定中， ^{137}Cs 采用 661.6keV 的能量峰。总 ^{210}Pb 采用 46.5keV 的能量峰。因为 ^{226}Ra (186.21keV) 的 γ 发射率相对较低，不能直接测定，用其子体 ^{214}Pb (351keV)

和 ^{214}Bi (609keV) 替代, 取两子体的加权平均值即为 ^{226}Ra 的活度值 (Nir-El Y, et al., 1999; 刘广山等, 2003)。这样分析的一个重要条件是土壤中子体 ^{214}Pb 或 ^{214}Bi 与母体 ^{226}Ra 达到放射性衰变平衡, 从而土壤中子体的活度即为母体的活度。由于原位测定对于土壤没有任何扰动与破坏, 所以土壤中 ^{214}Pb 或 ^{214}Bi 与母体 ^{226}Ra 处于放射性衰变平衡。原位测定的 ^{226}Ra 活度值由 ^{214}Pb 和 ^{214}Bi 活度值的加权平均得到。 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 活度值由总的 ^{210}Pb 减去 ^{226}Ra 的值得到(苏 琼等, 2005)。核素原位测定测量时间均为 3600s, 其结果用单位 Bq/m^2 表示。野外原位测定现场见图 2-4 和图 2-5 所示。原位测定谱线见图 2-6 所示。



图 2-4 点源 ^{152}Eu 能量刻度
Fig.2-4 Energy calibration using Eu-152



图 2-5 原位测定采集数据
Fig.2-5 Measurement in progress

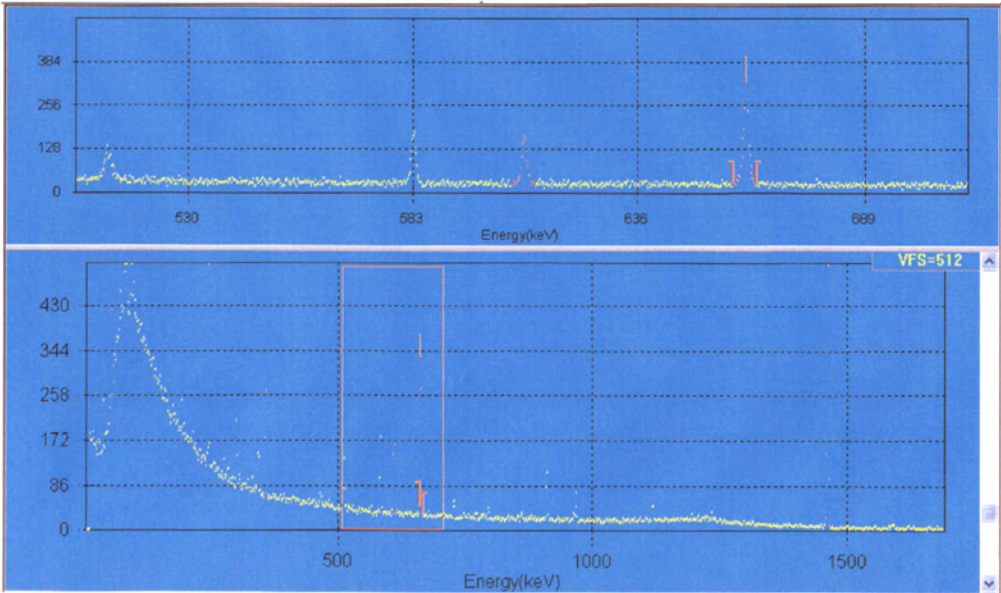


图 2-6 原位测定谱线
Table 2-6 Spectrum of in-situ measurement

2.3.2 用于室内测定核素 ^{137}Cs 和 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 土壤样品的采集和测定

在完成原位 ^{137}Cs 和 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 测定的同一位置，按照图 2-7 采集的土壤样品用于室内测定，以确定核素的实际剖面分布深度（中间点）和原位测定区域的实际面积浓度（周围 4 个点）。核素剖面分布深度的采样程序为：用长 50cm、宽 19cm 的矩形铁框垂直插入 5cm 表层土壤中，从表层向下按 0~2mm, 2~4mm, 4~8mm, 8~12mm, 12~16mm, 16~20mm, 20~40mm, 40~60mm, 60~90mm, 90~120mm, 120~150mm, 150~170mm 共 12 层分层采样。其余周围 4 个点用荷兰 Eijkelpkamp 公司钻孔直径 8cm 根钻采集，垂直钻入地面 15cm 采集原状土体，按对角线取样法，采 4 钻带回实验室。土壤样品运回实验室后，风干，研磨，过 2mm 筛，剔除大石块及植物根系等杂物，装入尺寸为 $\Phi 101\text{mm} \times 25\text{mm}$ 的有机玻璃圆柱形盒内，密封放置 28d，使用美国堪培拉 BE5030 型 LabSOCS γ 谱仪系统测定。测定时间为 36000~86400s，样品重复测试结果相对误差在 $\pm 4.7\%$ 。每个样点采集的 4 个土壤样品室内分析测定，取其平均值作为该点的室内测定值。

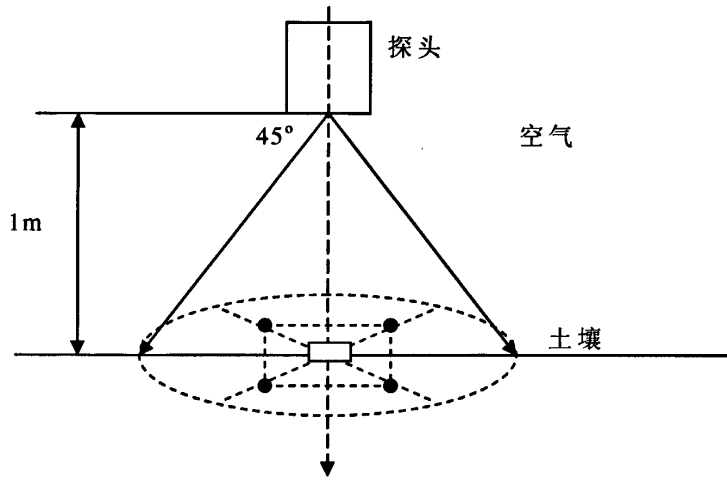


图2-7 ISOCS现场 γ 谱仪原位测定和土壤样点采样示意图

Fig. 2-7 Diagram of measurement of fallout radionuclide (FRN) using ISOCS γ spectrometry and sampling points for laboratory calibration of FRN

注：图中 ● 为柱状采样点。□ 为剖面采样点

Note: ● Core sampling point □ Profile sampling point

本文中实验室测定的 ^{137}Cs 和 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 单位是比活度 (Bq/kg)，可根据下列公式来换算成 ^{137}Cs 和 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 的面积浓度，即单位面积内测定核素的 Bq 数：

$$A_a = AM_T / S$$

式中： A_a 表示样点单位面积 ^{137}Cs 和 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 的含量 (Bq/m²)， A 表示样点采集土壤的 ^{137}Cs 和 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 比活度， M_T 为相应样点土钻采集的土样质量 (kg)， S 为土钻横断面积 (m²)。

2.4 结果与分析

2.4.1 探测器测量面积对原位测定 ¹³⁷Cs 和 ²¹⁰Pb 结果的影响

表 2-2 是 ISOCS γ 谱仪在同一样点 (site-1) 上, 设置不同角度准直器 (30°, 90°, 180°) ¹³⁷Cs 和 ²¹⁰Pb 的测定结果, 30°准直器探测面积最小 (0.23m²), 90°准直器可保证合适的探测面积 (2.91 m²), 180°准直器探测面积认为是半径为 10m 的圆面积 (313.77 m²)。

表 2-2 同一样点不同角度准直器原位测定 ¹³⁷Cs 和 ²¹⁰Pb 的结果

Table 2-2 The results of ¹³⁷ Cs and ²¹⁰ Pb of in situ measurement using different collimator in same site						
准直器 collimator(°)	¹³⁷ Cs			²¹⁰ Pb		
	计 数 率 cps	总活度±不确定度 total activity±uncertainty(Bq)	精度 precision(%)	计 数 率 cps	总活度±不确定度 total activity±uncertainty(Bq)	精度 precision(%)
30	0.09	6.36×10 ³ ±7.80×10 ²	12.26	0.04	4.77×10 ⁴ ±4.11×10 ⁴	86.16
90	0.32	6.31×10 ³ ±4.02×10 ²	6.37	0.52	4.20×10 ⁴ ±1.37×10 ⁴	32.62
180	0.76	1.11×10 ⁶ ±5.92×10 ⁴	5.33	0.73	4.87×10 ⁶ ±9.07×10 ⁵	18.62

表 2-2 的结果表明, 采用不同的准直器角度, 随着探头的探测面积增大, 探测器对于 ¹³⁷Cs 和 ²¹⁰Pb 的计数率增大。180°准直器时测定的 ¹³⁷Cs 和 ²¹⁰Pb 总活度最大, 测量的精度最好; 90°时 ¹³⁷Cs 和 ²¹⁰Pb 总活度最小, 测量精度为 32.62%; 30°时与 90°准直器时测定的结果相差不大, 测量的精度最差。

2.4.2 探测器测量深度对原位测定 ¹³⁷Cs 和 ²¹⁰Pb 结果的影响

2.4.2.1 预先假定核素剖面分布深度下的 ¹³⁷Cs 和 ²¹⁰Pb_{ex} 原位与室内测定值的比较

表 2-3 是预先假定核素剖面穿透深度为 15cm, 探头距地面 1m, 准直器角度 90°, 测量时间为 3600s 条件下的 ¹³⁷Cs 和 ²¹⁰Pb_{ex} 测定结果与室内测定值的比较。

表 2-3 预先假定核素剖面分布深度下的 ¹³⁷Cs 和 ²¹⁰Pb_{ex} 原位与室内测定值的比较

Table 2-3 Comparison between in-situ and laboratory measurements of ¹³⁷ Cs and ²¹⁰ Pb _{ex} inventories, calculated following presupposed profile distribution of the fallout radionuclides in soil						
核素 element	样点 site	原位 in-situ(Bq/m ²)	精度 precision(%)	室内 laboratory (Bq/m ²)	精度 precision(%)	偏差 relative error (%)
¹³⁷ Cs	site-1	2166±138	6.37	2890±380	13.15	-33.4
	site-2	2092±140	6.69	2544±341	13.40	-21.6
	site-3	2016±133	6.60	3004±416	13.85	-49.0
	site-4	2351±158	6.72	2754±374	13.58	-17.1
	site-5	2139±140	6.55	3128±234	7.48	-46.2
²¹⁰ Pb _{ex}	site-1	12267±4705	38.36	6443±3003	46.61	47.5

site-2	10753±3323	30.91	4578±2683	58.61	57.4
site-3	13443±3351	24.93	5253±2943	56.03	60.9
site-4	10786±3625	33.61	5408±2739	50.65	49.9
site-5	7181±3359	46.77	5740±2577	44.90	20.1

注：表中室内测定值为 4 个采样点的平均值，其测量不确定度为 4 个采样点的（测量面积为 2.91m²）合成不确定度。

Note: The measured values in laboratory in Table 3 are the mean value of four sampling points indicated in Figure 2. The uncertainty of the results is a combined uncertainty of four sampling points (The measurement area is 2.91 m²).

表 2-3 表明：原位测定的 ¹³⁷Cs 面积浓度比室内测定结果低，¹³⁷Cs 的原位测定值在 2016~2351 Bq/m² 之间，平均为 2153 Bq/m²，室内测定值在 2544~3128 Bq/m² 之间，平均为 2864 Bq/m²。但原位测定结果的精度显著高于室内测定结果，有 3 个点的原位与室内测定结果的相对偏差超过 30%。

5 个点原位测定的 ²¹⁰Pb_{ex} 面积浓度显著高于室内测定，除 site-5 样点外，其他 4 个样点原位测定结果的精度也都高于室内测定精度。²¹⁰Pb_{ex} 的原位测定值和室内测定值范围分别在 7181~13443 Bq/m² 和 4578~6443 Bq/m²，平均值为 10886 Bq/m² 和 5484 Bq/m²，2 种方法测定结果偏差相对较大，有 2 个样点的偏差值超过 50%。

2. 4. 2. 2 输入核素剖面实际分布深度下的 ¹³⁷Cs 和 ²¹⁰Pb_{ex} 原位与室内测定值的比较

图 2-8 和图 2-9 是在原位样点（site-4）上，按 12 层分层采样，在实验室测定 ¹³⁷Cs 和 ²¹⁰Pb_{ex} 的活度（Bq/kg），绘制出的 ¹³⁷Cs 和 ²¹⁰Pb_{ex} 在土壤中的垂直剖面分布图。Site-4 样点分布在坡面顶部比较平坦的部位，可以认为是较好的参考点，即该处无侵蚀、无堆积发生。

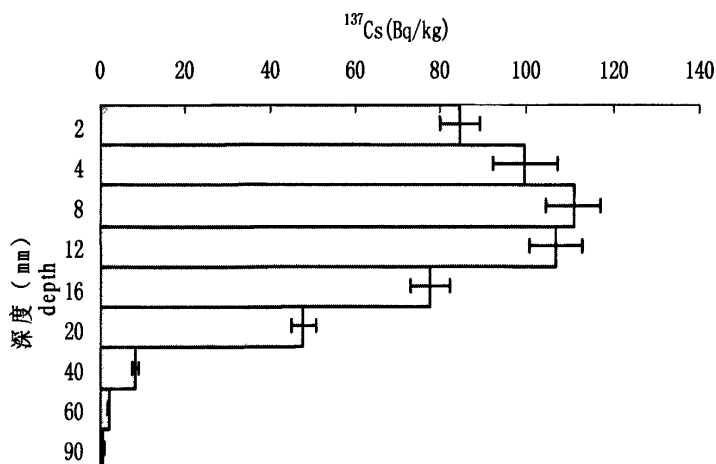


图 2-8 原位样点 ¹³⁷Cs 的土壤剖面分布

Fig.2-8 Profile distribution of ¹³⁷Cs activity at in-situ measurement site

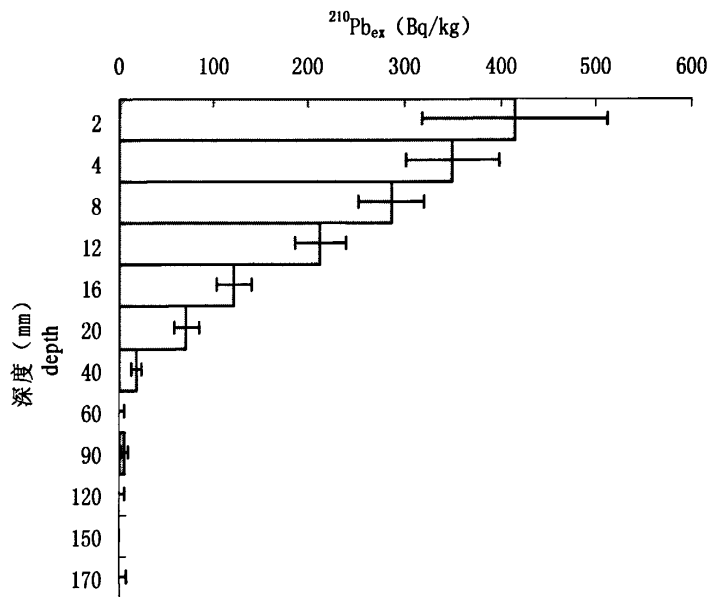


图 2-9 原位样点 ²¹⁰Pb_{ex} 的剖面分布

Fig.2-9 Profile distribution of ²¹⁰Pb_{ex} activity at in-situ measurement site

表 2-4 为输入核素剖面实际分布深度参数设为 90mm 时 ¹³⁷Cs 和 ²¹⁰Pb_{ex} 的原位与室内测定结果比较。

表 2-4 输入核素剖面实际分布深度参数时 ¹³⁷Cs 和 ²¹⁰Pb_{ex} 的原位与室内测定结果比较

Table 2-4 Comparison between in-situ and laboratory measurements of ¹³⁷Cs and ²¹⁰Pb_{ex} inventories, calculated following the real profile distribution of the fallout radionuclides in the soil

核素 element	样点 site	原位 in-situ(Bq/m ²)	精度 precision(%)	室内 laboratory (Bq/m ²)	精度 precision(%)	偏差 relative error (%)
¹³⁷ Cs	site-1	2850±182	6.39	2890±380	13.15	-1.4
	site-2	2752±184	6.69	2544±341	13.40	7.6
	site-3	2652±175	6.60	3004±416	13.85	-13.3
	site-4	3092±207	6.69	2754±374	13.58	10.9
	site-5	2814±185	6.57	3128±234	7.48	-11.2
²¹⁰ Pb _{ex}	site-1	9612±3956	41.16	6443±3003	46.61	33.0
	site-2	8283±2795	33.74	4578±2683	58.61	44.7
	site-3	10704±2818	26.33	5253±2943	56.03	50.9
	site-4	8380±3049	36.38	5408±2739	50.65	35.5
	site-5	5430±2825	52.03	5740±2577	44.90	-5.7

注：表中室内测定值为 4 个采样点的平均值。其测量不确定度为 4 个采样点（测量面积为 2.91m²）的合成不确定度。
Note: The measured values in laboratory in Table 4 are the mean of four sampling points indicated in Figure 2. The uncertainty of the results is a combined uncertainty for four sampling points (The measurement area is 2.91 m²).

表 2-4 结果表明，在输入核素剖面实际分布深度参数时 ¹³⁷Cs 原位测定与室内测定结果更为接

近, 相对偏差的绝对值变小。 ^{137}Cs 的原位测定值范围在 2652~3092 Bq/m^2 , 平均值为 2832 Bq/m^2 , 这与室内测定值范围 (2544~3128 Bq/m^2) 和平均值 (2864 Bq/m^2) 相一致。与预先假定核素剖面分布深度下的 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 原位测定结果 (表 3) 相比较, 各样点 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 面积浓度原位测定值显著降低, 在 5430~10704 Bq/m^2 之间, 平均为 8482 Bq/m^2 。而室内测定值范围在 4578~6443 Bq/m^2 , 平均值为 5484 Bq/m^2 , 原位测定的浓度为室内测定值的 1.5 倍。

2.4.3 根据原位测定结果计算坡面土壤侵蚀速率

从 site-4 样点 ^{137}Cs 和 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 的剖面分布来看, 该处无侵蚀也无堆积, 所以可以假定坡面顶部 site-4 样品为参考点, 然后根据 ^{137}Cs 迁移-扩散模型计算出坡面上各点的侵蚀速率, 结果见表 2-5 所示。

表 2-5 内蒙古锡林浩特草原典型坡面土壤侵蚀速率

Table 2-5 The erosion rate of slope scale in Inner Mongolia Xilinhot grassland

样点	海拔 (m)	面积浓度 (Bq/m^2)	侵蚀速率 ($\text{t}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{yr}^{-1}$)	净侵蚀速率 ($\text{t}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{yr}^{-1}$)
Site-1	1267	2850	-0.63	
Site-2	1270	2752	-0.89	
Site-3	1280	2652	-1.15	-0.8
Site-5	1273	2814	-0.72	
Site-4(参考点)	1286	3092	-	

2.5 讨论

核素的土壤剖面分布是影响原位环境放射性核素测定结果的重要因素 (张佳媚等, 2005)。由于核素在土壤剖面中的分布深度不同, 仅仅根据预先假定的核素剖面分布深度会明显低估或过高计算环境放射性的面积浓度。原位测定点 ^{137}Cs 呈现单峰曲线的土壤剖面分布, 土层 90mm 以下没有 ^{137}Cs 。 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 的土壤剖面分布则呈现指数递减, 90mm 以下没有 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 。所以, 原位测定效率刻度中核素土壤剖面分布深度取估计值 150mm, 会产生测量误差, 需要根据实际情况进行校正。ISOCS 现场谱仪系统可根据核素土壤剖面分布实测值校正原来的效率刻度曲线, 从而对多道能谱仪记录的原位测定点的环境放射性核素含量进行修正。本研究结果表明: 在预先了解核素的土壤剖面分布真实值情况下, 原位测定计算的 ^{137}Cs 面积浓度与室内测定值符合较好。而 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 原位测定平均值是室内测定值的 1.5 倍, 这可能与原位测定时间不足和 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 射线穿透深度有关, 有待进一步研究。

本研究结果说明: 测量角度对田间原位监测环境放射性的结果有显著影响, 当准直器角度 30° 时, 由于探测面积较小, 探头的计数率较低, 不确定度较大, 精度也较差; 而当准直器角度 90° 时, 探测面积变大, 探头的计数率变大, 不确定度变小, 测量精度较好; 准直器角度 180° 时, 探

头探测的面积最大,可实际探测面积不好确定,180°的准直器角度可以达到较大的计数率,减少了不确定度,提高了测量精度。当探测器的准直器角度为180°时,有研究认为其有效测量面积半径为10m的圆面积(Walling and He.,2000; 刘广山等,2001),但对此缺乏试验证据。由于探测器有效探测面积具有很大的不确定性,给计算测量点核素的面积浓度带来很大误差。显然,探测器的准直器角度为180°时适合于较大的空间尺度(直径大于10m)的放射性含量的定性测定,但不适合较小空间尺度环境放射性含量差异性的定量研究(Chesnokov A V, et al.,1999;Tyler A N, et al.,1996)。

比较表2-3和表2-4中原位和室内测定 ^{137}Cs 和 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 面积浓度的测量精度后(不确定度与面积浓度的比值的百分率)发现:原位监测明显优于室内测定,这说明原位测定不仅可以大大缩短测量时间,尤其可以减小由野外采样带来的测量误差,如野外原位测定只用1h就能达到室内测定10~48h的测量精度。

本研究的测量条件是探测器高度距地面1m,探测器测量面积为 2.91m^2 ,测量时间为3600s,使用ISOCS刻度软件,该软件具有自吸收校正,半衰期校正,干扰校正,以及活度加权平均等功能。应用ISOCS现场 γ 谱仪测定土壤中的 ^{137}Cs 面积浓度与室内测定值相一致,二者的平均偏差仅为8%,具有较高的精度。原位测定的 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 面积浓度与室内测定值偏差较大,其原因有待进一步确定。

本次原位测定实验中,没有测出 ^7Be ,而在原位测定点采集土样带回实验室分析发现存在 ^7Be ,原因可能是因为探头高度设置不合理,也可能是因为表层土壤 ^7Be 含量很低,低于探头最小探测限。还需要进一步的试验来验证这一结果。

本研究中原位探头有两套定位装置:三脚架和手推车,手推车配备有铅室屏蔽,并可以随意调节探头照射角度,这样减少了环境背景以及地形对于测量结果的干扰。原位测定可以快速测定出各样点 ^{137}Cs 和 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 的面积浓度,并可根据测定结果很快确定参考点,在野外可以实时动态地监测核素分布情况,估算出土壤迁移再分布速率。能否应用 ^{210}Pb 以及 ^7Be 来监测土壤侵蚀速率还需要进一步研究验证。

2.6 小结

应用ISOCS原位 γ 谱仪原位监测环境放射性核素 ^{137}Cs 和 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 面积浓度的精度明显好于室内测定,是快速、准确评价土壤侵蚀和泥沙空间再分布的有效示踪技术。可以解决风蚀地区难以确定环境放射性核素无侵蚀、无堆积的参考点的问题。

核素的土壤剖面分布深度和探头实际探测面积是环境放射性核素原位测定中需要考虑的主要因素,是环境放射性核素 ^{137}Cs 和 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 面积浓度原位测定结果不确定度的主要来源因素。

利用非农耕地 ^{137}Cs 迁移-扩散模型,将原位测定结果换算为坡面不同样点的侵蚀速率,在迎风坡的坡面上,侵蚀速率的变化特征是:坡底<坡中<坡上。内蒙古锡林浩特草原土壤侵蚀速率为 $0.8\text{t}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{yr}^{-1}$ 。

第三章 环境放射性核素室内测定技术的分析比对研究

实验室分析要保证测量结果的精确与可靠,就必须有相应的质量保证程序,而且需要定期参加实验室间的比对,保证实验室分析结果是可溯源的,可比较的结果(姜让荣等,2000)。参加国际间实验室之间的比对是一个实验室分析活动的重要环节,可以使参加比对的实验室明白实验室分析中存在的系统误差(朱文凯等,2005)。比对分析是多个实验室或多种方法或多台仪器或不同的人员分析同一量,然后将结果进行分析比较。比对分析的结果可以是已知的,也可以是未知的。对未知量的分析结果经分析确定为分析对象的特性量值时的分析称为定值分析。国际比对分析,在很多情况下,比对分析一方面检验各参加实验室的测量水平;另一方面可能作为定值分析,作为研制某种标准物质的一部分工作。有时,这种分析由一些权威机构参加,要求参加者有良好的技术设备条件和严格的质量保证措施。也可能分析在大量实验室进行,最后用统计分析方法建立标准物质特性量的标准值(刘广山,2006)。为了提高相关实验室的分析水平,解决分析中所遇到的困难,国际原子能机构(IAEA)专门设立了分析质量管理处(AQCS),负责组织实验室间的分析水平比对,以评价实验室分析结果的准确度。分析水平比对是AQCS将同样的标准样品分发给参加测验的实验室,实验室按照日常分析程序进行分析,并在指定的期限内报告分析结果给AQCS(王远大等,1999;F.Zapata.,2002)。

2006年国际原子能机构AQCS组织了一次放射性核素分析水平国际比对。本次比对共有16个国家(包括阿根廷、澳大利亚、巴西、加拿大、中国、智利、日本、摩洛哥、巴基斯坦、波兰、罗马尼亚、俄罗斯、土耳其、英国、美国、越南)的18个实验室参加。这次比对是IAEA CRP DL50.08“应用放射性核素评价可持续流域管理的水土保持措施有效性”项目参与成员国之间的“测定添加核素土壤中 ^{137}Cs 和 ^{210}Pb 活度的分析水平比对”。比对目的是对分析实验室分析结果精确性的方法进行评价,帮助国际原子能机构环境核素比对网络实验室(ALMERA)提高分析结果的质量,以及建立可溯源的标准分析方法。检验每个参加比对的实验室分析结果的精确度与准确度;鼓励每个实验室通过分析结果发现分析过程中的不足,并找出改进的方法;鼓励每个实验室使用正确的质量控制措施;对所有参加比对的实验室结果进行综合评价,使实验室之间相互比较分析的结果。

本实验室(CAAS-ALMERA)是IAEA批准的全球环境放射性分析实验室(IAEA/ALMERA)网络成员,是这次IAEA国际比对研究的主要成员之一。IAEA提供的五个土壤标准样品,标号分别为1、2、3、4、5,样品均为200g。同时IAEA还提供分析比对的注意事项和比对样品均匀性介绍的有关资料(IAEA/AL/166,2006)。

3.1 实验材料与方法

3.1.1 PT 标准样品设计

比对的5个标准样品设计如下：

- A. 样品3是环境本底样品，¹³⁷Cs和²¹⁰Pb的活度很低，用其作为空白样品添加¹³⁷Cs和²¹⁰Pb。
- B. 样品1和样品5是两个平行样品，其¹³⁷Cs的活度是空白样品的10倍，²¹⁰Pb的活度是空白样品的5倍。
- C. 样品2和样品4是另外两个平行样品，其¹³⁷Cs和²¹⁰Pb的活度是前两个平行样品1和样品5的2倍。

土壤本底样品是从中国采集的黄土。在添加¹³⁷Cs和²¹⁰Pb之前，先将土壤研磨粉碎，过0.1mm筛，并均匀混合。添加核素之前测定结果表明，土壤中除¹³⁷Cs外，没有其他人工放射性核素，¹³⁷Cs比活度为 $2.6 \pm 0.2\text{Bq/kg}$ ，²¹⁰Pb比活度为 $48 \pm 1.5\text{Bq/kg}$ （参考时间：2006-01-01），在105℃下烘干后的土壤湿度为 $2.3\% \pm 0.2\%$ 。

在土壤本底样品中，添加用甲醇稀释的同位素溶液，通过实验确定适宜的固液比，使溶液可被土壤全部吸收，并均匀润湿，然后在40℃的烘箱内放12个小时，使样品全部变干。在进行密封以前，使其与周围的湿度达到平衡。经过处理以后的湿度是 $2.4\% \pm 0.2\%$ ，和没经过处理样品的湿度($2.3\% \pm 0.2\%$)相差不大。为了检验土壤标准样品的质量，所有的土壤标准样品都用γ谱仪进行测定，检验其均匀性（IAEA/AL/166，2006）。

均匀性检测在添加了核素的3个样品中进行，通过在每个瓶子中各取3份60g的样品，测定其中的¹³⁷Cs和²¹⁰Pb的比活度。测定结果根据单因素方差分析（one-way ANOVA）进行评价。均匀性检验的结果见表3-1所示。均匀性检验的结果表明样品内的均匀性具有很满意的结果。

表 3-1 PT 标准样品均匀性检测的结果

Table 3-1 The results of homogeneity test measurements

样品编号	²¹⁰ Pb		¹³⁷ Cs	
	R (cps)	U(R)/R	R (cps)	U(R)/R
133-1	6.09E-02	3.5%	6.96E-02	2.0%
133-2	6.28E-02	3.4%	6.79E-02	2.1%
133-3	6.27E-02	3.1%	6.84E-02	2.1%
244-1	6.16E-02	3.5%	7.14E-02	2.1%
244-2	5.93E-02	3.5%	7.03E-02	2.0%
244-3	6.41E-02	2.1%	6.93E-02	2.1%
325-1	5.92E-02	3.5%	7.33E-02	2.0%
325-2	6.22E-02	1.1%	7.05E-02	1.0%
325-3	6.25E-02	3.4%	6.98E-02	2.1%
平均值	6.17E-02		7.01E-02	
标准偏差	0.0016	-	0.0016	-
相对标准偏差	2.7%		2.3%	

3.1.2 LabSOCS 系统无源效率刻度方法分析测定

采用美国 CANBERRA 公司 LabSOCS 系统对标准样品 ¹³⁷Cs 和 ²¹⁰Pb 进行了测量。测量用 LabSOCS 系统主要配置装备有：一台 BE5030 型 HPGe 探测器，探测效率为 50.9%，对 ⁶⁰Co 1332.5keV 的能量峰的能量分辨率(FWHM)为 1.643keV，晶体尺寸为 Φ80mm×30mm，可测量 γ 射线能量范围为 3keV~3MeV；系统使用 Canberra747E 铅室，壁厚为 10cm；使用 DSA-1000 数字化谱仪；Genie-2000 谱分析软件分析谱数据，该软件具有 γ 能谱的寻峰、峰面积计算、本底扣除、自吸收校正、半衰期校正、干扰校正、以及活度加权平均等功能。比对样品是直接放在 HPGe 探测器的端帽上测定，为防止对探头造成污染，探头表面加一个有机玻璃防护盖。

3.1.3 能量刻度

采用中国计量科学研究院¹⁵²Eu标准源进行能量刻度。刻度时选用11个特征能量峰，即121.78，244.69，344.27，411.11，443.97，778.89，867.32，964.01，1085.78，1112.02和1407.95keV，能量刻度曲线如图3-1所示。能量(E)和半高宽(F)刻度方程分别为：

$$E=-1.558\times10^{-1}\text{keV}+2.120\times10^{-1}\times\text{Ch}$$

$$F=8.478\times10^{-1}\text{keV}+2.543\times10^{-2}\times E^{1/2}$$

式中：E表示能量，F表示核素全能峰的能量分辨率，即半高宽（FWHM），Ch为道数。

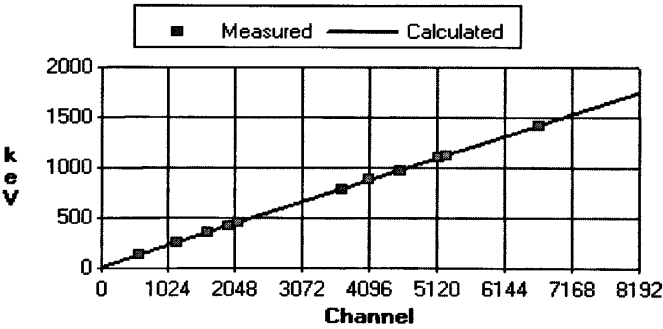


图3-1 能量刻度曲线

Fig.3-1 Energy calibration line

3.1.4 无源效率刻度

无源刻度是指利用模拟计算方法计算出标准源分布与测量几何条件下的探测效率,形成数据库资源,测量时通过参数设置调用这些数据资源实现谱仪效率刻度的方法。在实际应用中,由于源几何分布的复杂性,很难建立类似的测量条件进行谱仪的效率刻度,无源效率刻度是其有效的替代方法(F. L. Bronson, 2003)。

LabSOCS刻度软件使用探测器表征的数据及源的几何信息来完成无源效率刻度。探测器表征已由厂家完成,源参数由用户输入,这些参数主要包括样品的形状、大小、材料类型、密度和探测器到样品的距离等。

首先,根据样品的形状,从LabSOCS定义的九种标准几何模板(简单的箱体、复杂的箱体、简单的柱体、复杂的柱体、管道、圆平面、矩形平面、井和马林杯、球体)中选择“简单的柱体”。

其次,输入样品的参数。对样品作一些简单的物理测量并把结果输入到LabSOCS“简单的柱体”模板中。样品的元素组成为: H:1.07%、O:51.35%、Na:1.39%、Mg: 1.33%、Al:6.58%、Si:27.52%、K:1.76%、Ca:5.37%、Ti:0.37%、Fe:3.26%。有机玻璃盒子的元素组成为: H:8.05%、C:59.99%、O:31.96%。

最后, LabSOCS 刻度软件将输入样品参数(样品的几何参数、样品元素组成、装样盒的几何组成)和工厂对探测器的表征数据结合起来,产生一条效率刻度曲线。此曲线已进行了样品的半衰期和自吸收校正。软件选择的 γ 射线能量计算点为: 46.53、59.54、88.03、122.06、165.85、391.69、661.65、898.02、1173.22、1332.49、1836.01keV, 因为环境样品中放射性核素放出的 γ 射线能量主要在这个范围。效率刻度曲线分别见图 3-2, 3-3, 3-4, 3-5 和 3-6 所示。

由实验效率值用双对数多项式拟合得到能量-效率曲线方程, 5个样品的效率刻度方程按样品序号分别如下:

$$(1) \ln(\text{Eff}) = -82.80 + 85.72 \ln(E) - 39.92 \ln^2(E) + 10.29 \ln^3(E) - 1.515 \ln^4(E) + 1.185 \times 10^{-1} \ln^5(E) - 3.809 \times 10^{-3} \ln^6(E)$$

$$(2) \ln(\text{Eff}) = -85.73 + 88.58 \ln(E) - 41.09 \ln^2(E) + 10.54 \ln^3(E) - 1.545 \ln^4(E) + 1.205 \times 10^{-1} \ln^5(E) - 3.861 \times 10^{-3} \ln^6(E)$$

$$(3) \ln(\text{Eff}) = -83.00 + 85.98 \ln(E) - 40.08 \ln^2(E) + 10.33 \ln^3(E) - 1.522 \ln^4(E) + 1.191 \times 10^{-1} \ln^5(E) - 3.829 \times 10^{-3} \ln^6(E)$$

$$(4) \ln(\text{Eff}) = -80.39 + 83.40 \ln(E) - 39.02 \ln^2(E) + 10.10 \ln^3(E) - 1.494 \ln^4(E) + 1.173 \times 10^{-1} \ln^5(E) - 3.781 \times 10^{-3} \ln^6(E)$$

$$(5) \ln(\text{Eff}) = -81.15 + 84.13 \ln(E) - 39.31 \ln^2(E) + 10.17 \ln^3(E) - 1.502 \ln^4(E) + 1.178 \times 10^{-1} \ln^5(E) - 3.793 \times 10^{-3} \ln^6(E)$$

式中：Eff 表示效率，E 表示 γ 射线的能量。

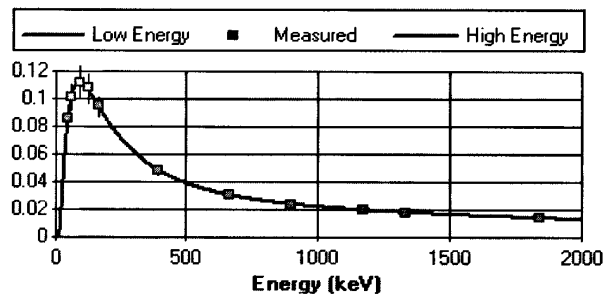


图 3-2 效率刻度曲线 (1)

Fig.3-2 Efficiency calibration curve (1)

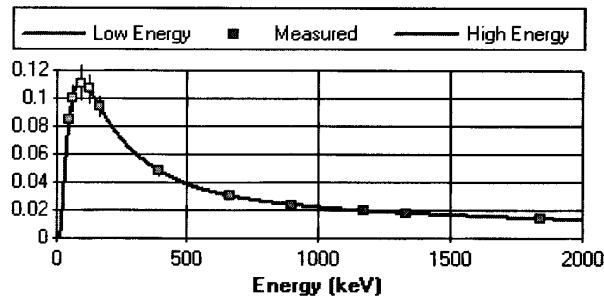


图 3-3 效率刻度曲线 (2)

Fig.3-3 Efficiency calibration curve (2)

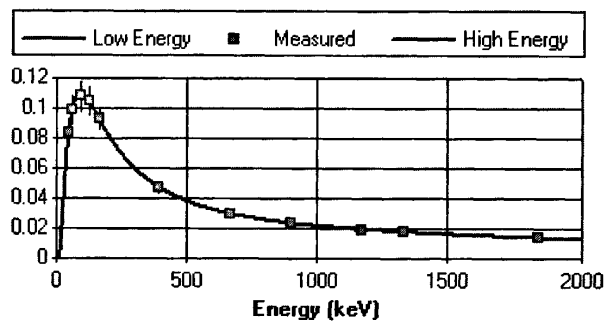


图 3-4 效率刻度曲线 (3)

Fig.3-4 Efficiency calibration curve (3)

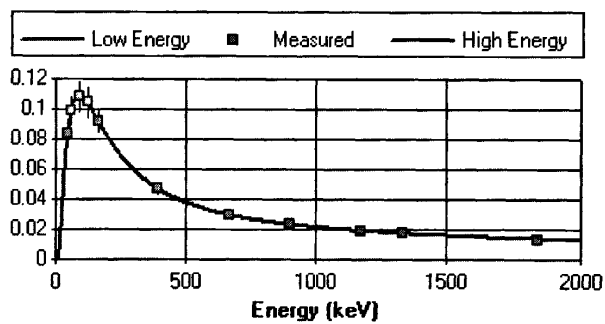


图 3-5 效率刻度曲线 (4)

Fig.3-5 Efficiency calibration curve (4)

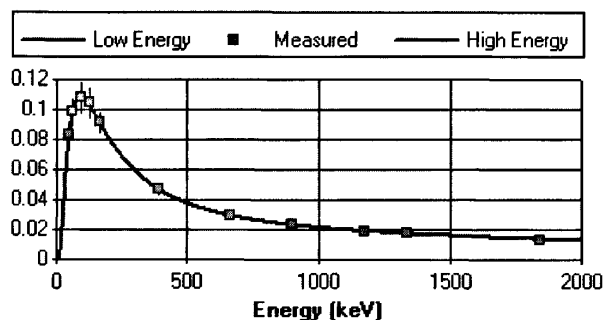


图 3-6 效率刻度曲线 (5)

Fig.3-6 Efficiency calibration curve (5)

3.1.5 标准样品 γ 能谱测量与分析

将标准样品充分混合均匀, 装入 $\Phi 101*25\text{mm}$ 的圆柱体有机玻璃盒密封待测。采用LabSOCS系统的 γ 谱仪进行测量。样品测量时间为18500-86400s, 测量 ^{210}Pb 活度用46.5keV (分支比4.25%) 能量峰的 γ 射线计数获得, 测量 ^{137}Cs 用661.6keV (分支比85.12%) 能量峰 γ 射线计数获得, 采用Genie-2000 γ 能谱分析软件对5个样品谱进行分析后, 生成核素定量分析报告。如上所述, 该谱仪系统采用无源效率刻度方法(LabSOCS)对样品进行效率刻度

大气滤膜测定用锡纸制成气包样品, 直接使用 γ 谱仪系统测定。测定时间为80000-86400s, 样品重复测试结果相对误差在 $\pm 4.7\%$ 。 ^{210}Pb 、 ^{137}Cs 和 ^7Be 活度分别由能谱中能量为46.5 keV、661.6 keV 和 477.6 keV 的 γ 射线全能峰计数得到, ^{226}Ra 主要依据能量351 keV(^{214}Pb)和609 keV(^{214}Bi)的 γ 射线全能峰计数的加权平均得到。

3.2 γ 谱仪稳定性检验

Genie-2000 软件具有核素分析质量保证的功能, 使用 Model S505 质量保证程序可以建立一个系统性能指标的数据库, 比如探头效率以及核素分析指标等需要监测的指标。每次分析之后, 可以把通过 QA (质量控制) 软件把这些指标输入到数据库中, 如果这些数据指标超出了设定好的允许的警戒限和错误限, QA 软件就会给出警告。QA 软件的质量保证程序的结果可以使我们对于

核素分析结果的精确性和准确性增强信心。

我们在 IAEA 标准样品分析比对研究中，应用 QA 软件质量保证程序观察与核素分析结果相关的指标的变化情况发现，各项观测指标都在允许的范围之内，没有超出警戒限和出现错误的范围。

如图 3-7 所示，应用 Genie-2000 软件 QA 程序对 ^{210}Pb (46.5keV) 和 ^{137}Cs (661.2keV)能量峰的中心道位置进行检验发现， ^{210}Pb 和 ^{137}Cs 能量峰的中心道位置非常稳定，没有发生道址漂移的现象，说明探头性能非常稳定，以及能量刻度曲线的准确度较高。

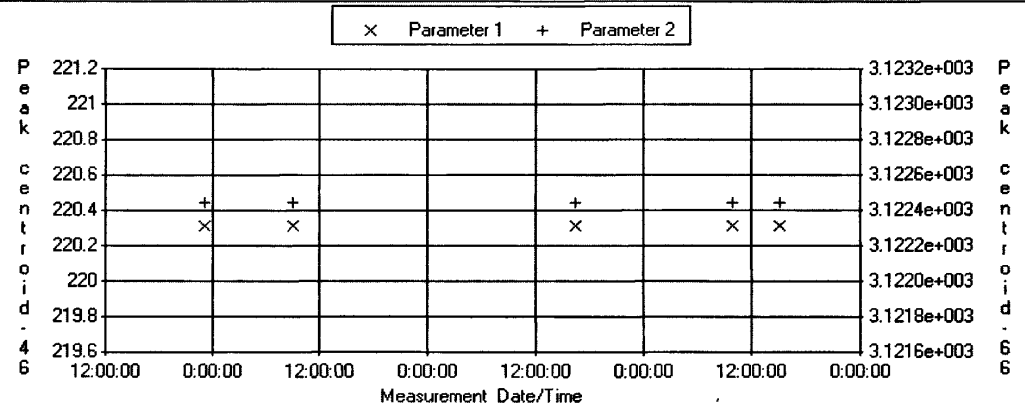


图 3-7 ^{210}Pb 和 ^{137}Cs 能量峰中心道的变化

Table 3-7 The change of peak centroid of ^{210}Pb and ^{137}Cs

能量分辨率表征 γ 谱仪对两支能量相近 γ 射线的分辨能力，也是谱仪的主要指标之一。 γ 谱上的全能峰，其计数与能量的关系近似高斯分布。定义全能峰的峰高一半位置上的全峰宽为谱仪的能量分辨，用符号 FWHM(半高宽)表示。图 3-8 和图 3-9 所示，应用 Genie-2000 软件 QA 程序对 ^{210}Pb (46.5keV) 和 ^{137}Cs (661.2keV)能量峰的分辨率进行检验发现， ^{210}Pb (46.5keV) 和 ^{137}Cs (661.2keV)能量峰的分辨率观测值，即 FWHM(半高宽)都在允许值范围之内，没有发现超出范围的异常值。说明探测器对 ^{210}Pb (46.5keV) 和 ^{137}Cs (661.2keV)两个核素都有很好的能量分辨率。

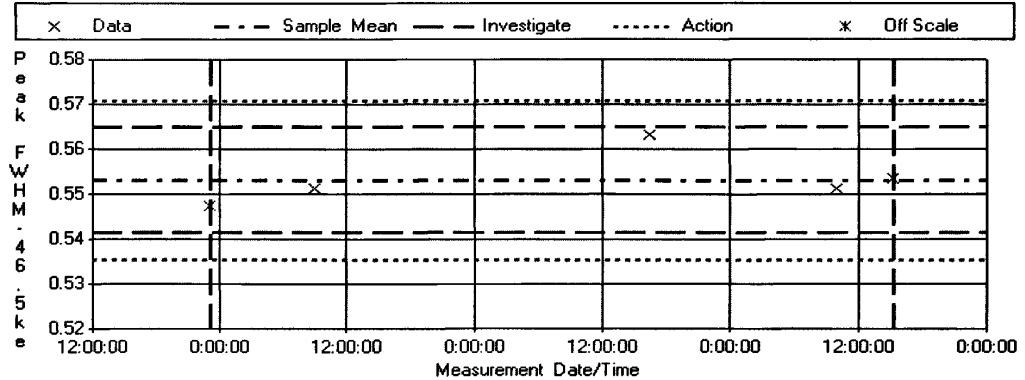


图 3-8 ^{210}Pb 能量峰 FWHM 的变化

Table 3-8 The change of peak FWHM of ^{210}Pb

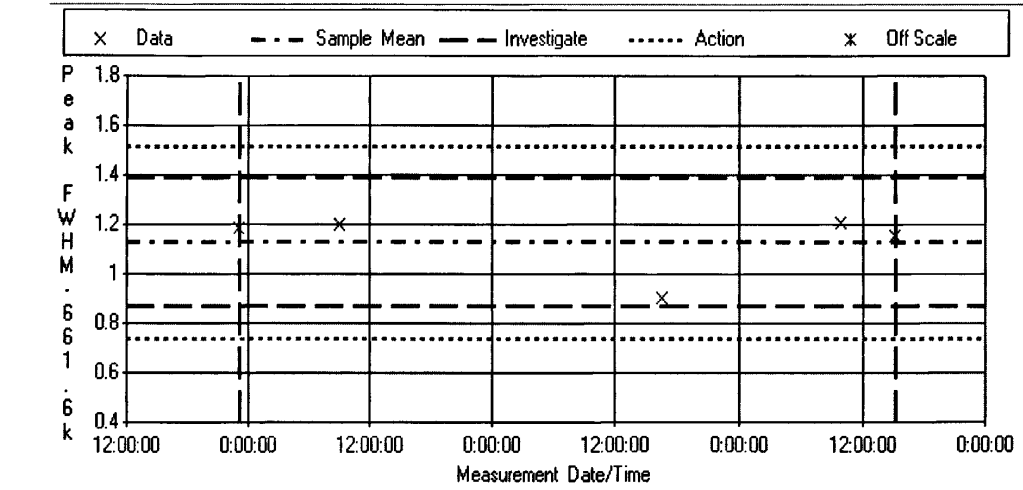


图 3-9 ^{137}Cs 能量峰 FWHM 的变化
Table 3-9 The change of peak FWHM of ^{137}Cs

全能峰探测效率表示在 γ 谱上某种能量的 γ 射线全能峰面积上的计数与源发射该种射线的数目之比。在 γ 谱的测量分析方法中，全能峰的探测效率特别重要，因为该方法的主要内容就是通过全能峰面积计数的测定，来测定被测对象中相应辐射核素的活度，因此其相应的探测效率是不可缺少的。图 3-10 和图 3-11 所示，应用 Genie-2000 软件 QA 程序对 ^{210}Pb (46.5keV) 和 ^{137}Cs (661.2keV) 能量峰的全能峰效率进行检验，结果表明 ^{210}Pb (46.5keV) 和 ^{137}Cs (661.2keV) 能量峰的全能峰的效率观测值都在允许值范围之内。

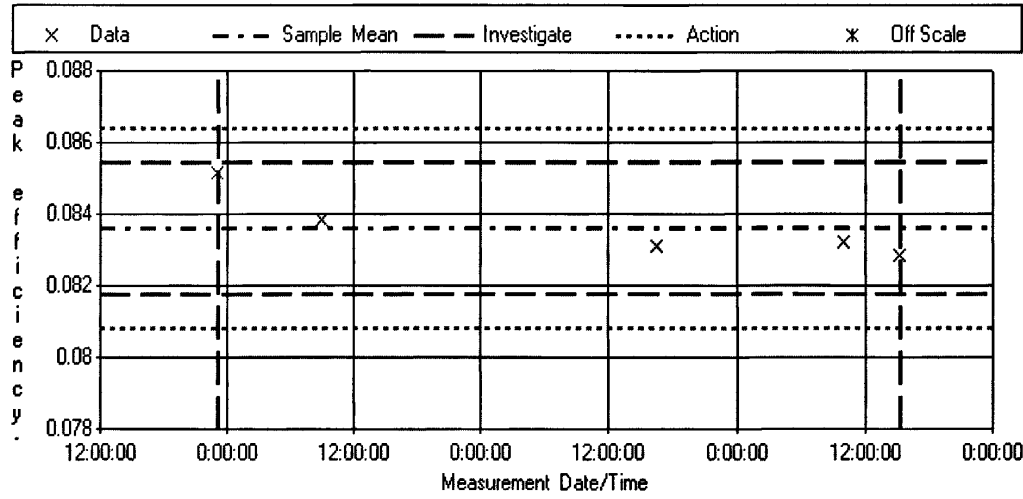


图 3-10 ^{210}Pb 能量峰效率的变化
Table 3-10 The change of peak efficiency of ^{210}Pb

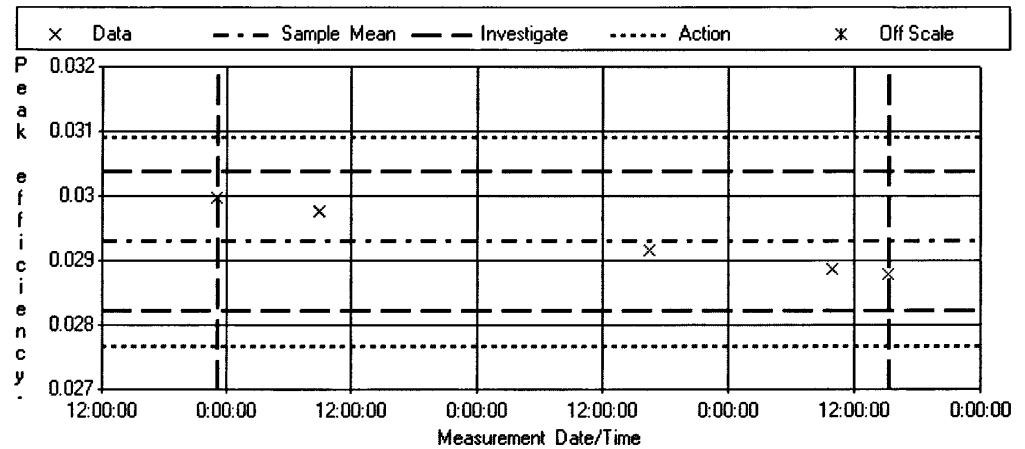


图 3-11 ¹³⁷Cs 能量峰效率的变化

Table 3-11 The change of peak efficiency of ¹³⁷Cs

低水平 γ 谱的测量因为放射性水平很低，在各种本底的干扰下，经常要提出这样的问题：样品中有没有放射性？能不能探测到？放射性的量是多少？我们通常采用的放射性测量方式是用 t 时间测量空白本底的计数 N_b ，再用同样的时间 t 测量样品，获得计数 N_s ，则样品中在 t 时间内的净计数为 $N_0=N_s-N_b$ 。那么能不能用 $N_0>0$ 和 $N_0\leq 0$ 来判断样品中有无放射性呢？由于本底辐射和核衰变都是统计性涨落的事件，显然是不可能的。 $N_0>0$ 时，样品中不一定有放射性； $N_0\leq 0$ 时，样品中也不一定没有放射性。因此，放射性测量中必须用统计学的概率方法在定义探测极限，常用的指标是最小探测极限，用 MDA 表示，即在规定的测量标准偏差的条件下，可被测定的最小放射限。图 3-12 和图 3-13 是应用 Genie-2000 软件 QA 程序对 ²¹⁰Pb (46.5keV) 和 ¹³⁷Cs (661.2keV) 的 MDA 进行检验的情况，结果表明 ¹³⁷Cs 和 ²¹⁰Pb 的 MDA 都在允许值范围之内，没有发现警戒值和超出范围的值。

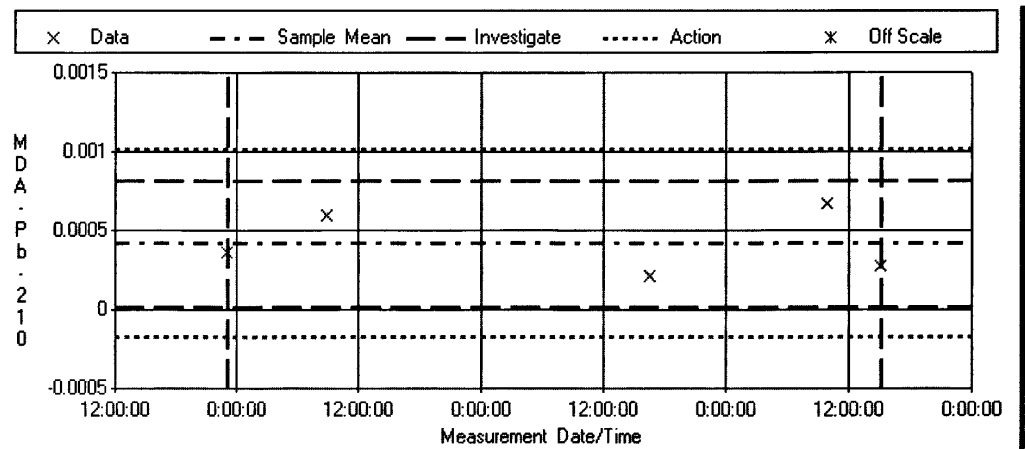


图 3-12 ²¹⁰Pb 的 MDA 变化

Table 3-12 The change of MDA of ²¹⁰Pb

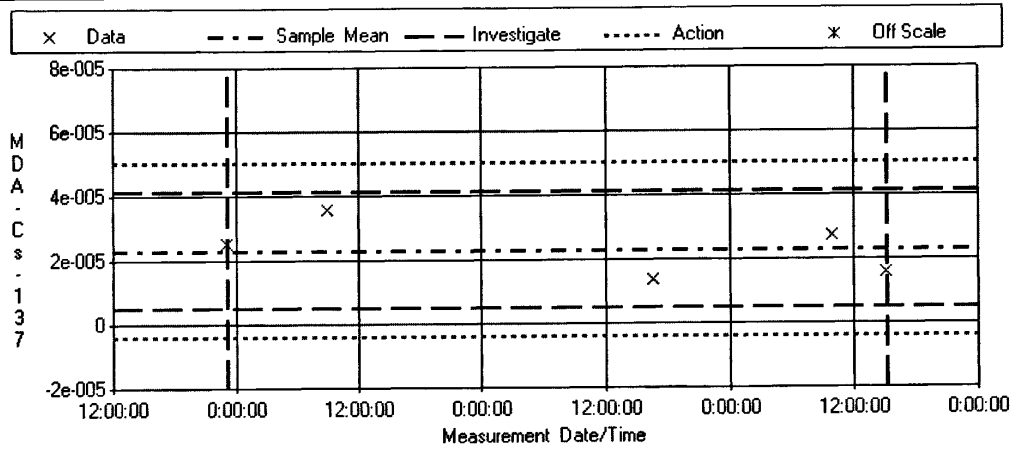


图 3-13 ¹³⁷Cs 的 MDA 变化

Table 3-13 The change of MDA of ¹³⁷Cs

3.3 不同能量范围核素分析的不确定性分析

由于原子核的放射性，衰变存在统计涨落。因此多次测量相同时间间隔内的放射性计数，即使保持相同的实验条件，每次测量的结果并不相同，而是围绕某一平均值上下涨落，有时甚至有很大差别。放射性计数的统计性是放射性原子核衰变本身固有的特性，与使用的测量仪器及技术无关。核衰变测量的统计误差决定于测量的总计数的大小，计数越大，绝对误差越大而相对误差却越小。图 3-14 是大气滤膜样品 ⁷Be 比活度随计数时间的变化情况，可以看出，在测量开始时，经过 3600 秒的计数时间，测得大气滤膜样品 ⁷Be 的比活度最小，然后逐渐增加；测量时间为 10800 秒时，的比活度趋于稳定；然后随着测量时间的增加，测定值±不确定度（1σ）在平均值（约定真值）附近上下波动。

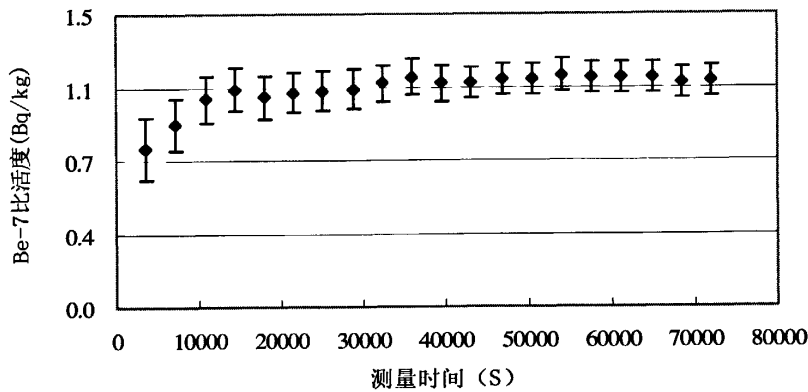


图 3-14 大气滤膜样品 ⁷Be 比活度随测量时间的变化

Fig.3-14 The change of activity of ⁷Be of air filter sample with count time

图 3-15 是大气滤膜样品中 ^{210}Pb 比活度随计数时间的变化情况，开始测量时，测定的不确定度较大，且上下波动较大，测量时间超过 20000 秒后，其测量的不确定度减小，测定值上下波动趋于稳定，测定值接近于平均值。

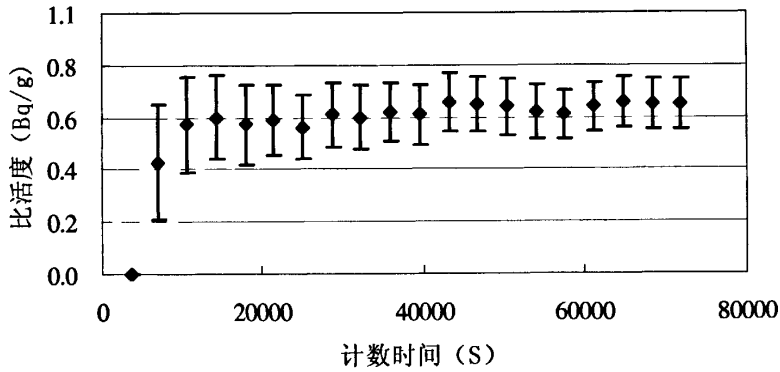


图 3-15 大气滤膜样品 ^{210}Pb 比活度随计数时间的变化

Fig.3-15 The change of activity of ^{210}Pb of air filter sample with count time

图 3-16 是大气滤膜样品 ^{40}K 比活度随计数时间的变化情况，可以看出，在测量开始时， ^{40}K 比活度的测量不确定度较大，且上下波动的幅度较大，测量时间超过 20000 秒时，测定值趋于稳定，上下波动较小，且测量不确定度变小。测定值基本在平均值附近上下波动。

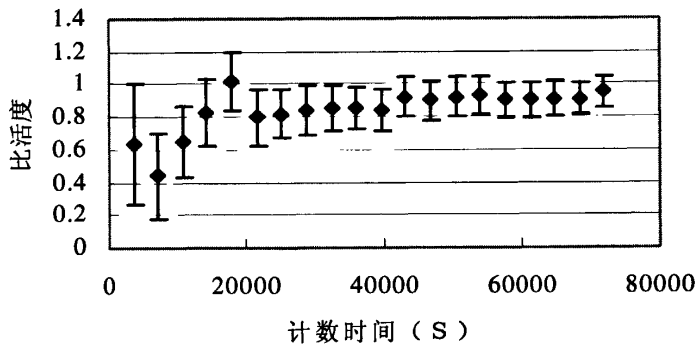


图 3-16 大气滤膜样品 ^{40}K 比活度随计数时间的变化

Fig.3-16 The change of activity of ^{40}K of air filter sample with count time

可以看出，大气滤膜样品中 3 个核素比活度随计数时间的变化都是一致的，即测量开始时，核素测量的不确定度较大，核素比活度上下波动幅度较大，超过一定的测量时间，核素的不确定度逐渐变小，其比活度趋于稳定，上下波动幅度变小，基本在平均值附近波动。所以保证放射性核素分析足够的测量时间，是低活度放射性核素达到分析质量精度要求的关键所在。低活度放射

性核素分析最佳测量时间的确定,是放射性核素分析实验室提高分析效率需要研究的关键问题之一。

另外,放射性核素全能峰的积分面积与其计数时间通常呈正相关关系,所以通过观察低活度样品全能峰面积与计数时间的关系,可以检验仪器稳定性,校正仪器误差,减少分析的不确定性。图 3-17 是大气滤膜样品 ^7Be 全能峰面积与其计数时间的关系, ^7Be 能量峰的积分面积随着计数时间的增加逐渐增加,两者之间呈显著的线性正相关,回归方程为 $y=0.0218x-20.481$, $R^2=0.9991$ 。

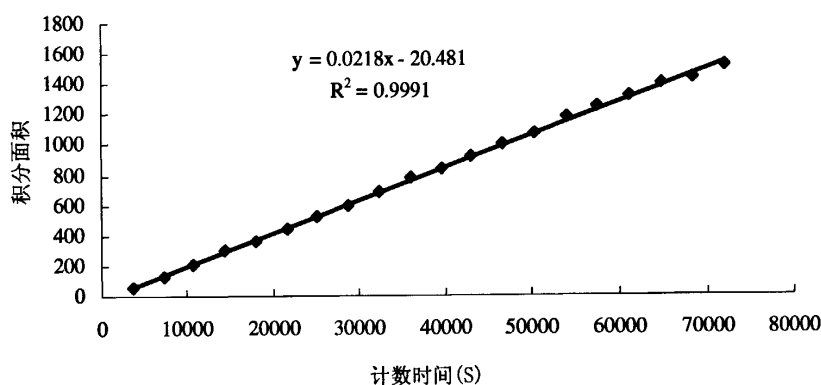


图 3-17 大气滤膜样品 ^7Be 能量峰积分面积随计数时间的变化

Fig.3-17 The change of peak area of ^7Be of air filter sample with count time

图 3-18 是大气滤膜样品 ^{210}Pb 全能峰面积与其计数时间的关系, ^{210}Pb 能量峰的积分面积随着计数时间的增加逐渐增加,两者之间呈显著的线性正相关,回归方程为 $y=0.0085x-22.637$, $R^2=0.9976$ 。

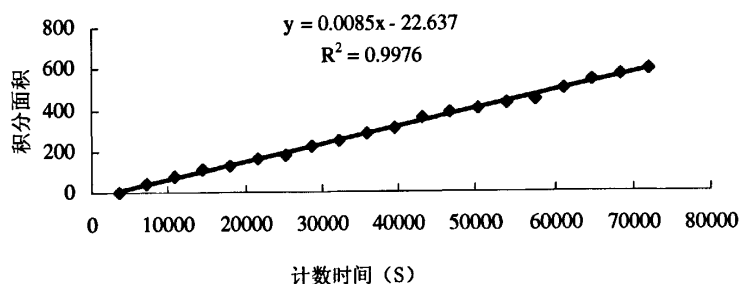


图 3-18 大气滤膜样品 ^{210}Pb 积分面积随计数时间的变化

Fig.3-18 The change of peak area of ^{210}Pb of air filter sample with count time

图 3-19 是大气滤膜样品中 ^{40}K 全能峰积分面积随计数时间的变化，其回归方程为 $y=0.0337x-28.405$ ， $R^2=0.9998$ 。

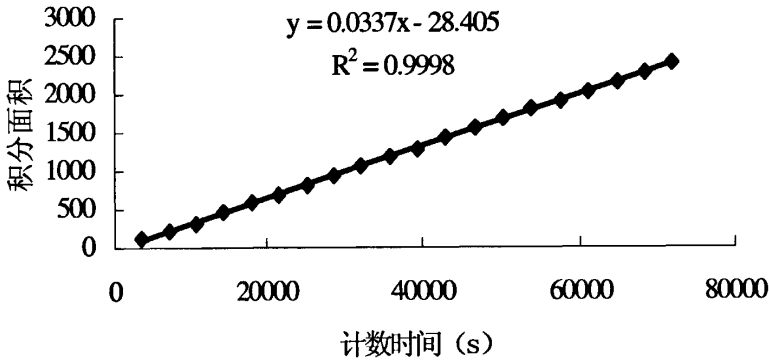


图 3-19 大气滤膜样品 ^{40}K 能量峰积分面积随计数时间的变化

Fig.3-19 The change of peak area of ^{40}K of air filter sample with count time

从以上的分析可知，从低能端 (^{210}Pb) 到高能端 (^{40}K) 不同能量段核素全能峰的积分面积随时间都呈显著的线性相关。说明该分析仪器的分析条件较好，刻度较准确，可以满足不同能量段低活度环境样品环境放射性核素的精确分析。

还可以通过样品全能峰计数率与样品的比活度的相关关系来检验分析的准确性。

图 3-20 是大气滤膜样品 ^7Be 计数率与比活度的线性相关关系，回归方程为 $y=56.253x-0.0637$ ， $R^2=0.9909$ 。呈显著的线性正相关。

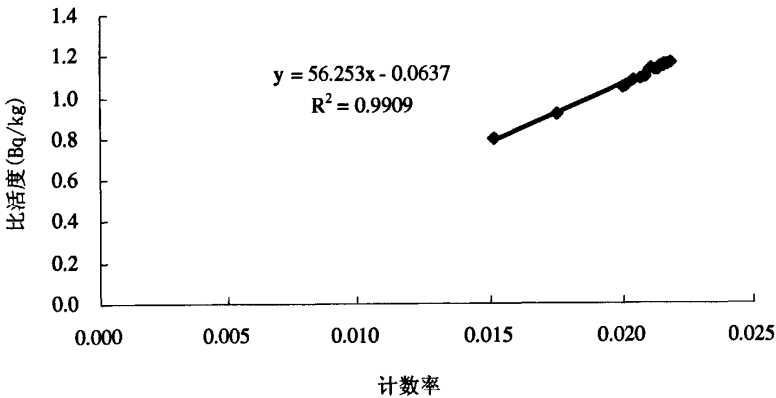


图 3-20 大气滤膜样品 ^7Be 计数率与比活度的相关性

Fig.3-20 The correlativity between cps and activity of ^7Be in air filter sample

图 3-21 是大气滤膜样品中 ^{210}Pb 计数率与比活度的相关性关系,回归方程为 $y=82.462x+6\times 10^{-5}$, $R^2=0.9996$ 。

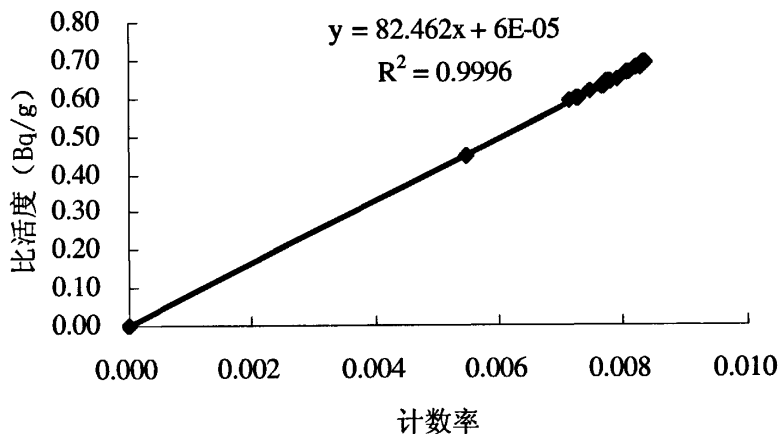


图 3-21 大气滤膜样品中 ^{210}Pb 计数率与比活度的相关性

Fig.3-21 The correlativity between cps and activity of ^{210}Pb in air filter sample

图 3-21 是大气滤膜样品 ^{40}K 计数率与比活度的相关性关系,其回归方程为 $y=94.484x-2.2246$, $R^2=0.7946$ 。

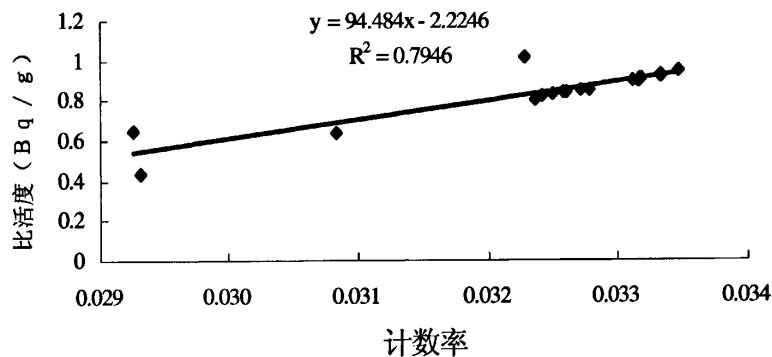


图 3-22 大气滤膜样品 ^{40}K 计数率与比活度的相关性

Fig.3-22 The correlativity between cps and activity of ^{40}K in air filter sample

大气滤膜样品核素计数率与比活度的相关分析可以说明,分析仪器的测量条件较好,不确定度较小,能满足低水平环境放射性核素分析的要求。

所以,使用这套 γ 谱仪测量系统可以满足国际间低水平环境放射性核素分析比对的要求,可以取得比较满意的分析结果。

3.4 ALMERA-CAAS 标准样品比对结果与分析

标准样品测定谱线分析步骤中的主要参数及分析结果见表 3-2。

表 3-2 标准样品测定谱线分析步骤中的主要参数及分析结果

Table3-2 Main parameters and results of analytical step of measurement

分析步骤	Sample code 01		Sample code 02		Sample code 03		Sample code 04		Sample code 05	
Analytical step	¹³⁷ Cs	²¹⁰ Pb	¹³⁷ Cs	²¹⁰ Pb	¹³⁷ Cs	²¹⁰ Pb	¹³⁷ Cs	²¹⁰ Pb	¹³⁷ Cs	²¹⁰ Pb
净峰面积 Net peak area	3370	6720	4190	7490	998	3370	3640	6750	7600	15500
不确定度 Uncertainty	74.04	123.36	76.49	129.23	69.08	141.73	65.52	122.85	108.49	201.31
本底面积 Ambient background	0	19.2	0	11.7	0	48.4	0	10.4	0	44.4
不确定度 Uncertainty	0	16.8	0	10.2	0	42.4	0	9.09	0	38.9
扣除本底面积 Subtracted area	3370	6700	4190	7470	998	3320	3640	6740	7600	15400
不确定度 Uncertainty	74.0	124	76.5	130	69.1	148	65.5	123	108	205
峰效率 Peak efficiency (%)	3	8.51	2.98	8.38	2.91	8.31	2.89	8.13	2.82	8.28
不确定度 Uncertainty (%)	0.14	0.84	0.14	0.82	0.13	0.82	0.13	0.82	0.13	0.81
活度 Activity (Bq/kg)	20.21	284.76	40.23	513.67	2.40	56.53	41.84	541.91	20.32	289.14
不确定度 Uncertainty (Bq/kg)	1.02	29.23	1.97	52.63	0.20	6.24	2.05	55.61	0.97	29.45

表 3-2 中，¹³⁷Cs 和 ²¹⁰Pb 的活度与不确定度由它们的特征峰的净面积，本底值，扣除本底后峰面积，以及无源效率刻度计算出的特征峰效率值及不确定度等参数计算得到。从表 3-2 的主要参数可以看出，¹³⁷Cs 不受本底的影响，分析的不确定度比较小；²¹⁰Pb 受本底的影响，²¹⁰Pb 的分析结果不确定度较大，测量精度较低 (K.Heydorn.,2004) 。

目前，许多的分析实验室提供的分析结果只给出重复性标准偏差，而没有表明分析结果的不确定度，ISO/IEC 17025:2005要求实验室在给出测量结果时，要表明测量的不确定度。用于评价实验室分析结果的评价体系有很多种，不同评价系统的结果的意义是不同的(苏琼等，1991)。在各种各样的统计指标中， Z_{score} 和 U_{score} 是经常使用的统计指标， Z_{score} 的不足之处在于没有考虑评价参与者测量结果的不确定度。 U_{score} 这个评价指标既考虑了参与者测量结果的不确定度，也考虑了约定真值的不确定度在内。当把分析不确定度考虑在内以后， Z_{score} 指标得分较高的实验室， U_{score} 指标的得分不一定在同一水平上。IAEA使用的评分系统考虑了报告数据的准确度和精确度，它既包括了约定真值的合成不确定度，也包括了参加比对实验室报告结果的合成不确定度。根据被采用的新的评价方法，报告的分析结果通过准确度和精确度的评价指标体系进行评价，来确定是否“可接受”或“不接受”的结果。分析结果必须通过所有评价的指标，才能是最后“可接受”的结果。这个方法的优点是检验了参加比对实验室分析结果不确定度的可信度。这种方法不仅可以突出影响报告数据精度的测量方法上的问题，还可以确定不确定度估计方面的不足 (A.Fajgelj et al.,2006)。

另外，其它3个统计指标： Z_{score} ，IAEA/Laboratory result ratio，相对偏差可以作为参加实验室分析结果评价信息的补充。

IAEA 要求采用的评价指标体系及计算公式如下 (A.Fajgelj et al.,2006) 。

(1) R-bias (相对偏差)

$$R-bias = \frac{Value_{Analyst} - Value_{IAEA}}{Value_{IAEA}} \times 100\%$$

式中：R-bias表示相对偏差；Value_{Analyst}表示分析实验室的测定值；Value_{IAEA}表示IAEA给的测定值。

(2) The Z-score value (Z-值)

$$Z_{Score} = \frac{Value_{Analyst} - Value_{IAEA}}{\sigma}$$

根据适用性原则，标准偏差的目标值 $\sigma = 0.10 \times Value_{IAEA}$ ，实验室的得出的值，如果 $|z_{score}| < 2$ ，结果满意；如果 $2 < |z_{score}| < 3$ ，结果有问题；如果 $|z_{score}| > 3$ ，结果不满意。

(3) The U_{score} value (U-值)

$$u_{test} = \frac{|Value_{IAEA} - Value_{Analyst}|}{\sqrt{Unc_{IAEA}^2 + Unc_{Analyst}^2}}$$

式中：Unc_{IAEA}是IAEA标准值的不确定度；Unc_{Analyst}是分析实验室测定值的不确定度。这次水平测验，u-检验的限值为2.58，如果 $u < 2.58$ ，测定结果通过检验。

(4) Trueness (准确度)

$$A1 = |Value_{IAEA} - Value_{Analyst}|$$

$$A2 = 2.58 \times \sqrt{Unc_{IAEA}^2 + Unc_{Analyst}^2}$$

如果 $A1 \leq A2$ ，测定结果是可接受的结果。

(5) Precision (精确度)

$$P = \sqrt{\left(\frac{Unc_{IAEA}}{Value_{IAEA}}\right)^2 + \left(\frac{Unc_{Analyst}}{Value_{Analyst}}\right)^2}$$

如果用上面的计算公式得出的评价指标 $P \leq 20\%$ （对样品中的 ^{137}Cs 和 ^{210}Pb ），则结果是满意的值。

表 3-3 本实验室对样品进行测定后用 IAEA 给定的评价标准分析评价的结果。从表 3-3 的结果来看，所有样品 ^{137}Cs 的测定不确定度都小于 10%， ^{210}Pb 的测定不确定度都小于 12%。除样品 3（本底样品）的 ^{210}Pb 外， ^{137}Cs 和 ^{210}Pb 的相对偏差都小于 10%；所有样品 ^{137}Cs 和 ^{210}Pb 的 Z_{score} 绝对值都小于 2；所有样品 ^{137}Cs 和 ^{210}Pb 的 U_{score} 值都小于 1.64。表明本实验室的测定值与 IAEA 的标准值没有明显差异。所有样品 ^{137}Cs 和 ^{210}Pb 的 Lab/IAEA 值在 0.92~1.18 范围之内。根据评价标准， ^{137}Cs 和 ^{210}Pb 的准确度和精确度值都属于可接受的值。这样， ^{137}Cs 和 ^{210}Pb 的分析结果达到了所有要求的评价指标标准，最后的评价打分中属于“可接受”的结果，即说明通过了 IAEA 的比对。

表3-3 ALMERA-CAAS实验室标准样品¹³⁷Cs和²¹⁰Pb测定值的评价结果（校正时间：2006-1-1）

Table 3-3 Analytical Performance Evaluation of ALMERA-CAAS Laboratory ¹³⁷Cs and ²¹⁰Pb in spiked soil

Reference date: 2006-1-1

样号 code	核素 analyte	国际原子能机构 IAEA		农科院 ALMERA 实验室 ALMERA-CAAS				评价标准 acceptance criteria							
		标准值 value	不确定度 uncertainty	测定值 value	不确定度 uncertainty	相 对 偏差 r-bias	Z-值 Z _{score}	U-值 U _{score}	Lab/ IAEA	准确度 trueness				精确度 precision	
		[Bq/kg]	[Bq/kg]	[Bq/kg]	[Bq/kg]	%	%			A1	A2	得分 score	P	得分 score	
1	¹³⁷ Cs	20.30	0.50	20.21	1.02	5.05	0	-0.04	0.08	1.00	0.09	2.93	A	5.62%	A
	²¹⁰ Pb	289.00	7.00	284.76	29.23	10.26	-1	-0.15	0.14	0.99	4.24	77.55	A	10.55%	A
2	¹³⁷ Cs	38.40	0.80	40.23	1.97	4.90	5	0.48	0.86	1.05	1.83	5.49	A	5.32%	A
	²¹⁰ Pb	530.00	11.30	513.67	52.63	10.25	-3	-0.31	0.30	0.97	16.33	138.88	A	10.47%	A
3	¹³⁷ Cs	2.60	0.20	2.40	0.20	8.33	-8	-0.77	0.71	0.92	0.20	0.73	A	11.34%	A
	²¹⁰ Pb	48.00	1.50	56.53	6.24	11.04	18	1.78	1.33	1.18	8.53	16.56	A	11.47%	A
4	¹³⁷ Cs	38.40	0.80	41.84	2.05	4.90	9	0.90	1.56	1.09	3.44	5.68	A	5.32%	A
	²¹⁰ Pb	530.00	11.30	541.91	55.61	10.26	2	0.22	0.21	1.02	11.91	146.41	A	10.48%	A
5	¹³⁷ Cs	20.30	0.50	20.32	0.97	4.77	0	0.01	0.02	1.00	0.02	2.82	A	5.37%	A
	²¹⁰ Pb	289.00	7.00	289.14	29.45	10.19	0	0.00	0.01	1.00	0.14	78.10	A	10.47%	A

注：A=acceptable(可接受的)

Note: A :acceptable

3.5 参加比对的 8 个实验室的比对结果与分析

根据 3.4 节中的评价指标体系，对 8 个 IAEA-ALMERA network 成员实验室的标准样品 ¹³⁷Cs 和 ²¹⁰Pb 分析结果进行比对，评价结果及得分如下。

表 3-4 1 号样品 ¹³⁷Cs 比活度的比对分析

Table 3-4 Data Evaluation of ¹³⁷Cs in spiked soil, sample code 01

标准值		20.3		¹³⁷ Cs, sample code 01									
不确定度		0.50											
Lab	实验室结果							Acceptance criteria					Final score
	Cs-137	Unc.		Bias	Z-Score	U-Score	Lab/IAEA	Trueness		Precision			
	(Bq/kg)	(Bq/kg)	%					(%)	A1	A2	Score	P	
01	20.10	1.10	5.5%	-1.0%	-0.10	-0.17	0.99	0.20	3.12	A	6.0%	A	A
02	20.20	1.10	5.4%	-0.5%	-0.05	-0.08	1.00	0.10	3.12	A	6.0%	A	A
03	20.10	1.10	5.5%	-1.0%	-0.10	-0.17	0.99	0.20	3.12	A	6.0%	A	A
04	19.00	1.00	5.3%	-6.4%	-0.64	-1.16	0.94	1.30	2.88	A	5.8%	A	A
05	17.24	1.25	7.3%	-15.1%	-1.51	-2.27	0.85	3.06	3.47	A	7.7%	A	A
06	19.70	0.90	4.6%	-3.0%	-0.30	-0.58	0.97	0.60	2.66	A	5.2%	A	A
07	19.60	1.03	5.3%	-3.4%	-0.34	-0.61	0.97	0.70	2.95	A	5.8%	A	A
08	18.80	1.00	5.3%	-7.4%	-0.74	-1.34	0.93	1.50	2.88	A	5.9%	A	A

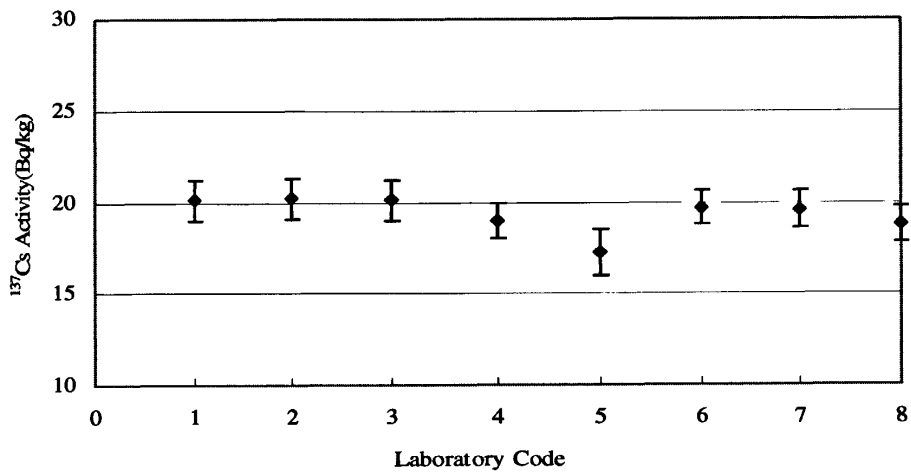


图 3-23 1 号样品 ¹³⁷Cs 比活度的比对
Fig.3-23 The activity of ¹³⁷Cs in spiked soil, sample code 01

表 3-5 1 号样品 ²¹⁰Pb 比活度的比对分析
Table 3-5 Data Evaluation of ²¹⁰Pb in spiked soil, sample code 01

标准值	289.2	(Bq/kg) ²¹⁰ Pb, sample code 01											
不确定度	6.98												
Lab	实验室结果						Acceptance criteria						Final
	Pb-210	Unc.		Bias	Z-Score	U-Score	Lab/IAEA	Trueness			Precision		score
	(Bq/kg)	(Bq/kg)	%	(%)				A1	A2	Score	P	Score	
01	260	37.00	14.2%	-10.1%	-1.01	-0.78	0.90	29.25	97.15	A	14.4%	A	A
02	324.70	26.30	8.1%	12.3%	1.23	1.30	1.12	35.45	70.20	A	8.5%	A	A
03	260.00	37.00	14.2%	-10.1%	-1.01	-0.78	0.90	29.25	97.15	A	14.4%	A	A
04	281.00	14.00	5.0%	-2.9%	-0.29	-0.53	0.97	8.25	40.36	A	5.5%	A	A
05	275.90	20.40	7.4%	-4.6%	-0.46	-0.62	0.95	13.35	55.63	A	7.8%	A	A
06	278.00	13.00	4.7%	-3.9%	-0.39	-0.76	0.96	11.25	38.07	A	5.3%	A	A
07	273.00	12.40	4.5%	-5.6%	-0.56	-1.14	0.94	16.25	36.72	A	5.1%	A	A
08	243.10	16.00	6.6%	-16.0%	-1.60	-2.64	0.84	46.15	45.04	A	7.0%	A	A

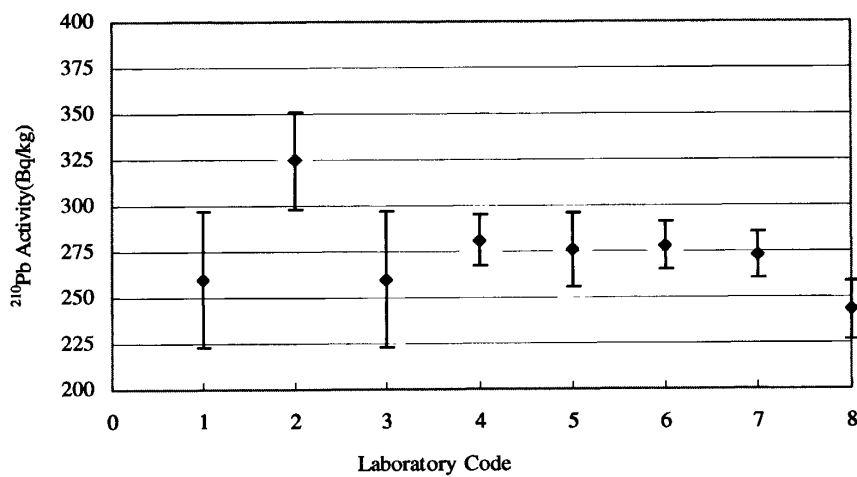


图 3-24 1 号样品 ^{210}Pb 比活度的比对

Fig.3-24 The activity of ^{210}Pb in spiked soil, sample code 01

表 3-6 2 号样品 ^{137}Cs 比活度的比对分析

Table 3-6 Data Evaluation of ^{137}Cs in spiked soil, sample code 02

标准值	38.4	¹³⁷ Cs, sample code 02											
不确定度	0.83												
Lab	实验室结果							Acceptance criteria					Final
	Cs-137	Unc.		Bias	Z-Score	U-Score	Lab/IAEA	Trueness		Precision		score	
	(Bq/kg)	(Bq/kg)	%	(%)				A1	A2	Score	P		Score
01	39.50	2.10	5.3%	2.9%	0.29	0.49	1.03	1.10	5.83	A	5.7%	A	A
02	39.50	1.90	4.8%	2.9%	0.29	0.53	1.03	1.10	5.35	A	5.3%	A	A
03	39.50	2.10	5.3%	2.9%	0.29	0.49	1.03	1.10	5.83	A	5.7%	A	A
04	38.00	1.60	4.2%	-1.0%	-0.10	-0.22	0.99	0.40	4.65	A	4.7%	A	A
05	34.02	2.07	6.1%	-11.4%	-1.14	-1.96	0.89	4.38	5.75	A	6.5%	A	A
06	39.00	1.60	4.1%	1.6%	0.16	0.33	1.02	0.60	4.65	A	4.6%	A	A
07	39.10	1.72	4.4%	1.8%	0.18	0.37	1.02	0.70	4.93	A	4.9%	A	A
08	37.20	1.70	4.6%	-3.1%	-0.31	-0.63	0.97	1.20	4.88	A	5.1%	A	A

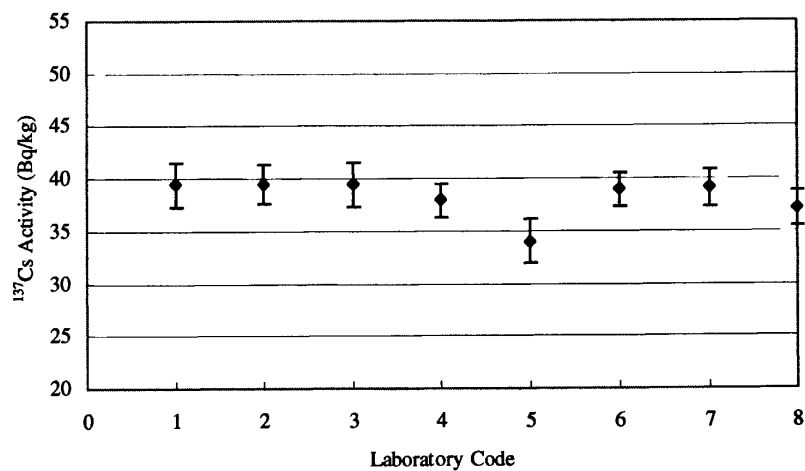


图 3-25 2 号样品 ¹³⁷Cs 比活度的变化

Fig.3-25 The activity of ¹³⁷Cs in spiked soil, sample code 02

表 3-7 2 号样品 ²¹⁰Pb 比活度的比对分析

Table 3-7 Data Evaluation of ²¹⁰Pb in spiked soil, sample code 02

标准值	530	(Bq/kg)												²¹⁰ Pb, sample code 02	
不确定度	11.3														
Lab	实验室结果											Acceptance criteria			Final
	Pb-210	Unc.		Bias	Z-Score	U-Score	Lab/IAEA	Trueness			Precision		score		
	(Bq/kg)	(Bq/kg)	%	(%)				A1	A2	Score	P	Score			
01	525.00	57.00	10.9%	-0.9%	-0.09	-0.09	0.99	5.00	149.92	A	11.1%	A	A		
02	579.80	37.70	6.5%	9.4%	0.94	1.27	1.09	49.80	101.54	A	6.8%	A	A		
03	525.00	57.00	10.9%	-0.9%	-0.09	-0.09	0.99	5.00	149.92	A	11.1%	A	A		
04	514.00	22.00	4.3%	-3.0%	-0.30	-0.65	0.97	16.00	63.81	A	4.8%	A	A		
05	508.40	34.90	6.9%	-4.1%	-0.41	-0.59	0.96	21.60	94.64	A	7.2%	A	A		
06	511.00	22.00	4.3%	-3.6%	-0.36	-0.77	0.96	19.00	63.81	A	4.8%	A	A		
07	500.00	21.00	4.2%	-5.7%	-0.57	-1.26	0.94	30.00	61.53	A	4.7%	A	A		
08	430.90	23.60	5.5%	-18.7%	-1.87	-3.79	0.81	99.10	67.51	N	5.9%	A	W		

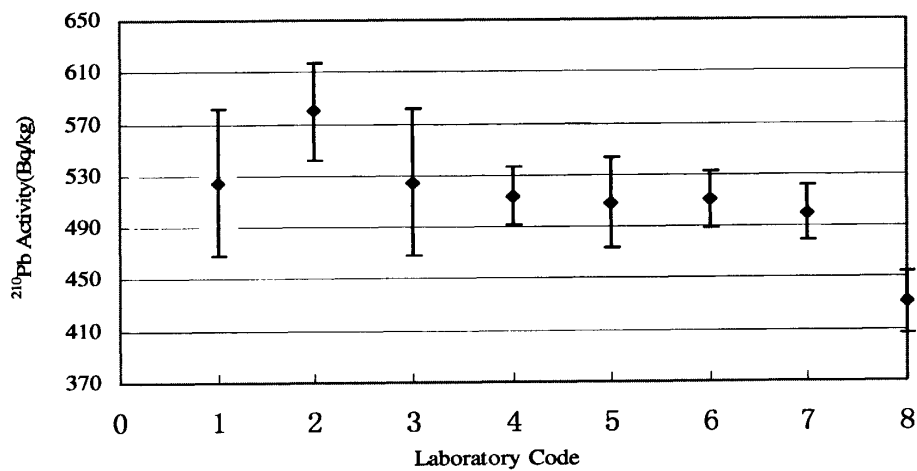


图 3-26 2 号样品 ^{210}Pb 比活度的比对

Fig.3-26 The activity of ^{210}Pb in spiked soil, sample code 02

表 3-8 3 号样品 ^{137}Cs 比活度的比对分析

Table 3-8 Data Evaluation of ^{137}Cs in spiked soil, sample code 03

标准值		2.62		(Bq/kg)										¹³⁷ Cs, sample code 03									
不确定度		0.20																					
Lab	实验室结果												Acceptance criteria										Final
	Cs-137		Unc.		Bias	Z-Score	U-Score	Lab/IAEA	Trueness			Precision			score								
	(Bq/kg)	(Bq/kg)	%	(%)					A1	A2	Score	P	Score										
01	2.54	0.25	9.8%	-3.1%	-0.31	-0.25	0.97	0.08	0.83	A	12.5%	A	A										
02	2.70	0.60	22.2%	3.1%	0.31	0.13	1.03	0.08	1.63	A	23.5%	N	W										
03	2.54	0.25	9.8%	-3.1%	-0.31	-0.25	0.97	0.08	0.83	A	12.5%	A	A										
04	2.50	0.40	16.0%	-4.6%	-0.46	-0.27	0.95	0.12	1.15	A	17.7%	A	A										
05	1.82	0.59	32.6%	-30.4%	-3.04	-1.27	0.70	0.80	1.62	A	33.4%	N	N										
06	2.57	0.35	13.6%	-1.9%	-0.19	-0.12	0.98	0.05	1.04	A	15.6%	A	A										
07	2.26	0.38	16.8%	-13.7%	-1.37	0.84	0.86	0.36	1.11	A	18.5%	A	A										
08	2.50	0.30	12.0%	-4.6%	-0.46	-0.33	0.95	0.12	0.93	A	14.2%	A	A										

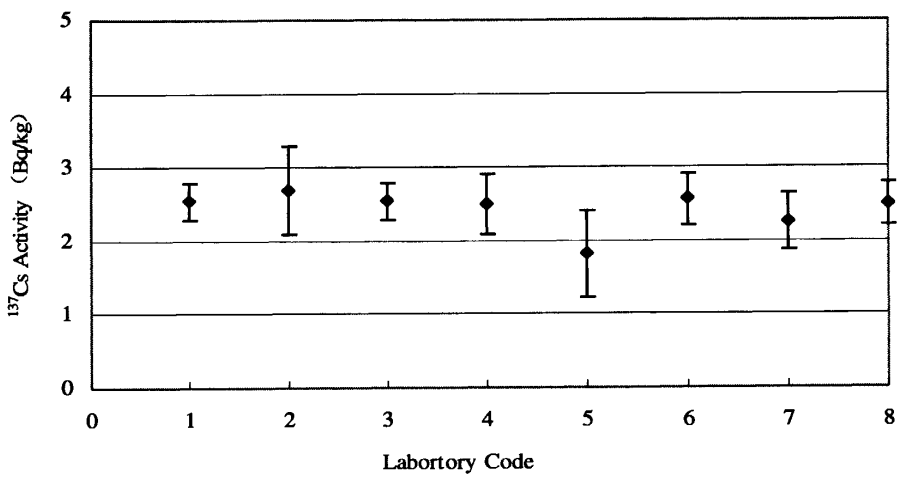


图 3-27 3 号样品 ¹³⁷Cs 比活度的比对

Fig.3-27 The activity of ¹³⁷Cs in spiked soil, sample code 03

表 3-9 3 号样品 ²¹⁰Pb 比活度的比对分析

Table 3-9 Data Evaluation of ²¹⁰Pb in spiked soil, sample code 03

标准值	48	(Bq/kg) ²¹⁰ Pb, sample code 03											
不确定度	1.5												
Lab	实验室结果							Acceptance criteria					Final
	Pb-210	Unc.		Bias	Z-Score	U-Score	Lab/IAEA	Trueness			Precision		score
	(Bq/kg)	(Bq/kg)	%	(%)				A1	A2	Score	P	Score	
01	39.00	27.00	69.2%	-18.8%	-1.88	-0.33	0.81	9.00	69.77	A	69.3%	N	W
02	102.80	22.10	21.5%	114.2%	11.42	2.47	2.14	54.80	57.15	A	21.7%	N	N
03	39.00	27.00	69.2%	-18.8%	-1.88	-0.33	0.81	9.00	69.77	A	69.3%	N	W
04	56.00	6.00	10.7%	16.7%	1.67	1.29	1.17	8.00	15.96	A	11.2%	A	A
05	52.89	8.27	15.6%	10.2%	1.02	0.58	1.10	4.89	21.68	A	15.9%	A	A
06	50.00	5.00	10.0%	4.2%	0.42	0.38	1.04	2.00	13.47	A	10.5%	A	A
07	54.10	5.20	9.6%	12.7%	1.27	1.13	1.13	6.10	13.96	A	10.1%	A	A
08	32.50	8.50	26.2%	-32.3%	-3.23	-1.80	0.68	15.50	22.27	N	26.3%	N	N

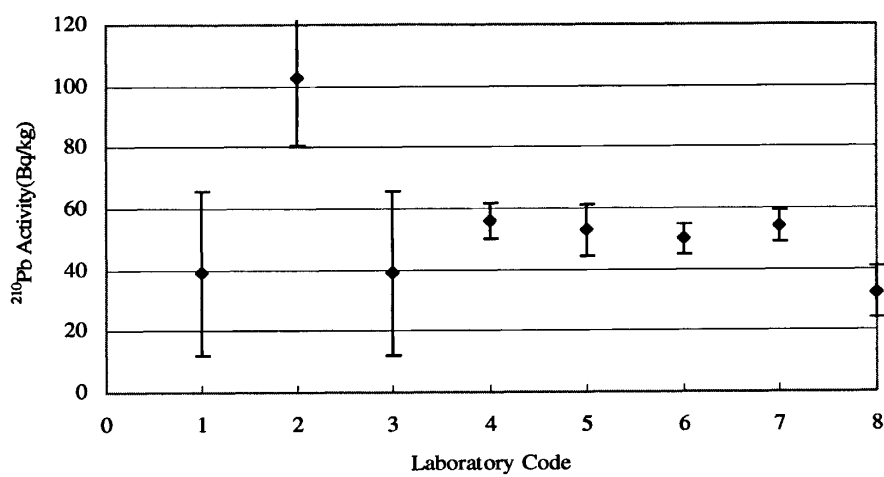


图 3-28 3 号样品 ²¹⁰Pb 比活度的比对

Fig.3-28 The activity of ²¹⁰Pb in spiked soil, sample code 03

表 3-10 4 号样品 ¹³⁷Cs 比活度的比对分析

Table 3-10 Data Evaluation of ¹³⁷Cs in spiked soil, sample code 04

标准值	38.4	(Bq/kg)												¹³⁷ Cs, sample code 04			
不确定度	0.83																
Lab	实验室结果											Acceptance criteria			Final		
	Cs-137	Unc.		Bias	Z-Score	U-Score	Lab/IAEA	Trueness			Precision		score				
	(Bq/kg)	(Bq/kg)	%	(%)				A1	A2	Score	P	Score					
01	39.40	2.10	5.3%	2.5%	0.25	0.43	1.03	0.98	5.82	A	5.7%	A	A				
02	38.30	1.80	4.7%	-0.3%	-0.03	-0.06	1.03	0.12	5.11	A	5.2%	A	A				
03	39.40	2.10	5.3%	2.5%	0.25	0.43	1.03	0.98	5.82	A	5.7%	A	A				
04	38.00	1.60	4.2%	-1.1%	-0.11	-0.24	0.99	0.42	4.65	A	4.7%	A	A				
05	35.41	2.12	6.0%	-7.8%	-0.78	-1.32	0.92	3.01	5.87	A	6.4%	A	A				
06	38.60	1.60	4.1%	0.5%	0.05	0.10	1.00	0.18	4.65	A	4.7%	A	A				
07	38.60	1.72	4.5%	0.5%	0.05	0.09	1.00	0.18	4.92	A	4.9%	A	A				
08	36.90	2.00	5.4%	-4.0%	-0.40	-0.70	0.96	1.52	5.58	A	5.8%	A	A				

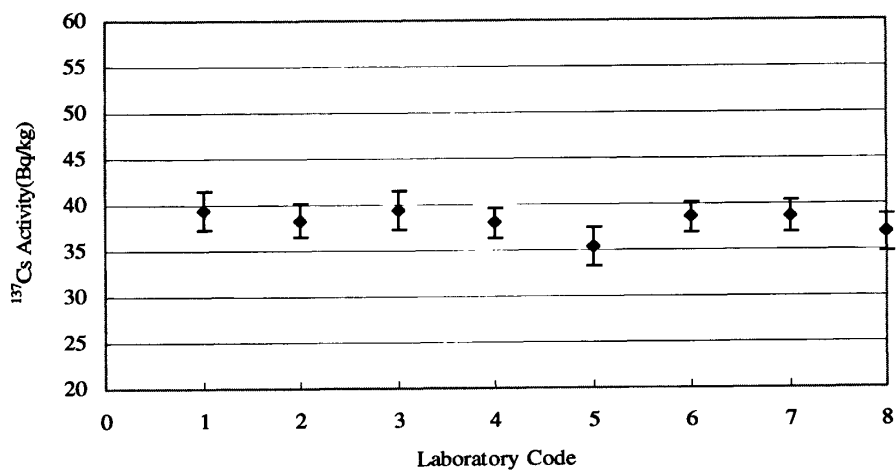


图 3-29 4 号样品 ^{137}Cs 比活度的比对

Fig.3-29 The activity of ^{137}Cs in spiked soil, sample code 04

表 3-11 4 号样品 ^{210}Pb 比活度的比对分析

Table 3-11 Data Evaluation of ^{210}Pb in spiked soil, sample code 04

标准值		530		(Bq/kg)										210Pb, sample code 04				
不确定度		11.3																
Lab	实验室结果							Acceptance criteria					Final					
	Pb-210	Unc.		Bias	Z-Score	U-Score	Lab/IAEA	Trueness			Precision		score					
		(Bq/kg)	(Bq/kg)					%	A1	A2	Score	P		Score				
01	482.00	54.00	11.2%	-9.1%	-0.91	-0.87	0.91	48.00	142.34	A	11.4%	A	A					
02	551.10	36.40	6.6%	4.0%	0.40	0.55	1.04	21.10	98.33	A	6.9%	A	A					
03	482.00	54.00	11.2%	-9.1%	-0.91	-0.87	0.91	48.00	142.34	A	11.4%	A	A					
04	514.00	22.00	4.3%	-3.0%	-0.30	-0.65	0.97	16.00	63.81	A	4.8%	A	A					
05	495.70	34.10	6.9%	-6.5%	-0.65	-0.95	0.94	34.30	92.68	A	7.2%	A	A					
06	508.00	22.00	4.3%	-4.2%	-0.42	-0.89	0.96	22.00	63.81	A	4.8%	A	A					
07	504.00	21.50	4.3%	-4.9%	-0.49	-1.07	0.95	26.00	62.66	A	4.8%	A	A					
08	438.00	32.30	7.4%	-17.2%	-1.72	-2.67	0.83	91.30	88.29	N	7.7%	A	W					

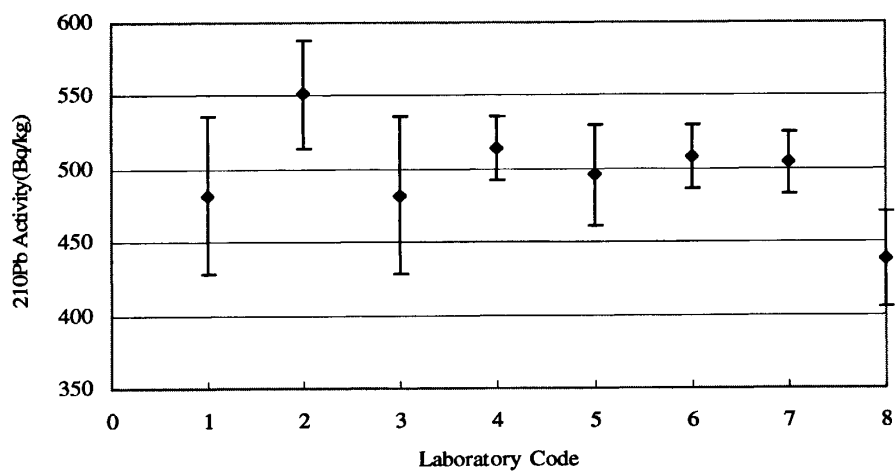


图 3-30 4 号样品 ^{210}Pb 比活度的比对

Fig.3-30 The activity of ^{210}Pb in spiked soil, sample code 04

表 3-12 5 号样品 ^{137}Cs 比活度的比对分析

Table 3-12 Data Evaluation of ^{137}Cs in spiked soil, sample code 05

标准值		20.3		(Bq/kg)										¹³⁷ Cs, sample code 05				
不确定度		0.50																
Lab	实验室结果							Acceptance criteria					Final					
	Cs-137	Unc.		Bias	Z-Score	U-Score	Lab/IAEA	Trueness		Precision			score					
	(Bq/kg)	(Bq/kg)	%	(%)				A1	A2	Score	P	Score						
01	22.40	1.20	5.4%	10.3%	1.03	1.62	1.10	2.10	3.35	A	5.9%	A	A					
02	20.20	1.20	5.9%	-0.5%	-0.05	-0.08	1.00	0.10	3.35	A	6.4%	A	A					
03	22.40	1.20	5.4%	10.3%	1.03	1.62	1.10	2.10	3.35	A	5.9%	A	A					
04	19.00	1.00	5.3%	-6.4%	-0.64	-1.16	0.94	1.30	2.88	A	5.8%	A	A					
05	17.74	1.27	7.2%	-12.6%	-1.26	-1.88	0.87	2.56	3.52	A	7.6%	A	A					
06	19.30	0.90	4.7%	-4.9%	-0.49	-0.97	0.95	1.00	2.66	A	5.3%	A	A					
07	20.20	1.05	5.2%	-0.5%	-0.05	-0.09	1.00	0.10	3.00	A	5.8%	A	A					
08	18.40	1.00	5.4%	-9.4%	-0.94	-1.70	0.91	1.90	2.88	A	6.0%	A	A					

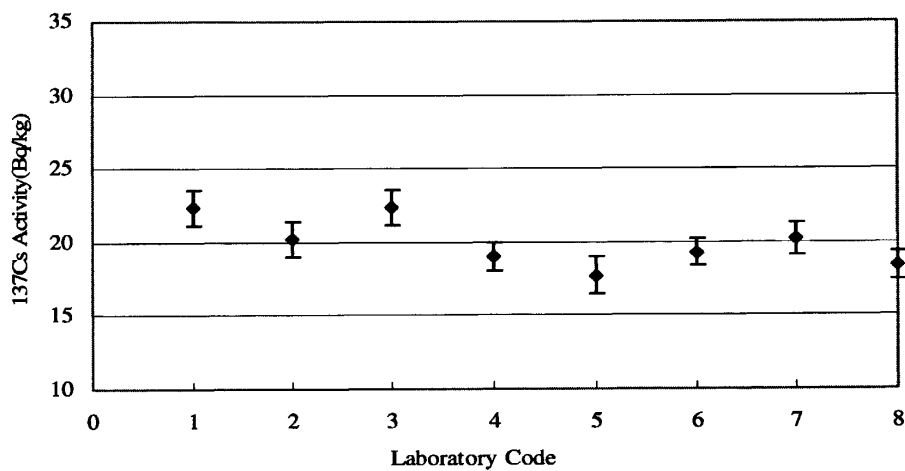


图 3-31 5 号样品 ^{137}Cs 比活度的比对

Fig.3-31 The activity of ^{137}Cs in spiked soil, sample code 05

表 3-13 5 号样品 ^{210}Pb 比活度的比对分析

Table 3-13 Data Evaluation of ^{210}Pb in spiked soil, sample code 05

标准值	289.2		(Bq/kg) ²¹⁰ Pb, sample code 05										
不确定度	6.98												
Lab	实验室结果							Acceptance criteria					Final
	Pb-210	Unc.		Bias	Z-Score	U-Score	Lab/IAEA	Trueness			Precision		score
	(Bq/kg)	(Bq/kg)	%	(%)				A1	A2	Score	P	Score	
01	313.00	41.00	13.1%	8.2%	0.82	0.57	1.08	23.75	107.30	A	13.3%	A	A
02	305.40	27.80	9.1%	5.6%	0.56	0.56	1.06	16.15	73.95	A	9.4%	A	A
03	313.00	41.00	13.1%	8.2%	0.82	0.57	1.08	23.75	107.30	A	13.3%	A	A
04	272.00	13.00	4.8%	-6.0%	-0.60	-1.17	0.94	17.25	38.07	A	5.4%	A	A
05	282.30	20.50	7.3%	-2.4%	-0.24	-0.32	0.98	6.95	55.87	A	7.7%	A	A
06	280.00	13.00	4.6%	-3.2%	-0.32	-0.63	0.97	9.25	38.07	A	5.2%	A	A
07	278.00	12.50	4.5%	-3.9%	-0.39	-0.79	0.96	11.25	36.94	A	5.1%	A	A
08	220.40	14.10	6.4%	-23.8%	-2.38	-4.38	0.76	68.85	40.59	N	6.8%	A	N

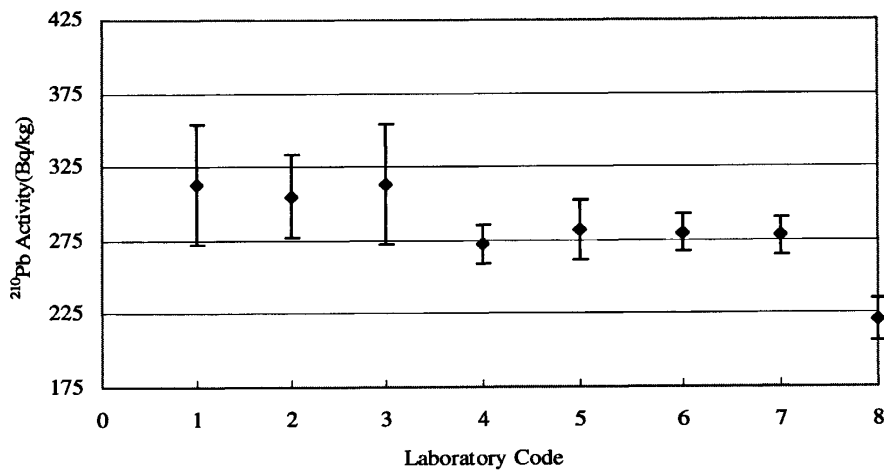


图 3-32 5 号样品 ^{210}Pb 比活度的比对

Fig.3-32 The activity of ^{210}Pb in spiked soil, sample code 05

参加比对的 8 个实验室的比对分析结果表明, ^{137}Cs 的分析结果比 ^{210}Pb 的分析结果评价得分较高。在这次比对中, 核素分析结果的不确定度都考虑在其中。根据制定的评价指标体系对参加比对实验室的分析结果与约定标准值进行比对评价, 在评价体系中考虑了每个实验室分析结果的不确定度。

3.6 讨论

土壤环境样品中放射性核素的含量水平较低, 测量的不确定性较大, 测准较难。放射性分析实验室标准样品的水平不同所带来的差异, γ 射线在不同土壤母质中的自吸收差异, 近距离测量的 γ 射线符合相加等因素都影响核素的测定结果, 所以土壤环境样品中低水平放射性核素活度测量费时费力, 要满足科研要求的精度需要有效的质量保证体系 (P. Arikan, et al., 2004)。

^{137}Cs 是核爆炸产生的散落在大气中的人工放射性核素, 是土壤中原来不存在的核素, 其能量为 661.7keV, 穿透能力较强。它随降雨和大气降尘沉降在地表后被土壤细颗粒吸附。所以, ^{137}Cs 在土壤中受土壤母质的影响较小。与 ^{137}Cs 不同, ^{210}Pb 是天然放射性核素。 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 是土壤/岩石中的 ^{238}U 的衰变系列产物 ^{222}Rn 释放到大气后衰变的子体再沉降到地表的放射性核素(Zapata F,2002)。它是土壤母质中本身就存在的核素, 受土壤母质影响较大, 土壤母质中矿物对 ^{210}Pb 发射的 γ 射线存在自吸收作用, 土壤的矿物组成对分析的不确定性影响较大。且 ^{210}Pb (46.5keV)是低能端的核素, 分支比较小, 穿透土壤的能力较弱, 以及受谱仪铅室本底的影响, 测定不确定度较大, 测量精度难以满足要求。

在韩国举行的第 3 届 IAEA/ALMERA 协调会议上公布的结果表明, 在这次参加放射性核素分析比对研究的 16 个国家的 18 个实验室中, ^{137}Cs 活度的测定结果有 82%达标, 5%不达标, 13%为警戒值。而 ^{210}Pb 活度测定结果只有 33%达标, 50%不达标, 17%为警戒值。本实验室分析比对的结果完全达到评价标准要求 (IAEA/AL/177, 2006)。

这次比对研究是由IAEA统一发放土壤样品,土壤样品基质是采自中国黄土高原地区的黄土母质样品。采用传统的有源刻度方法,由于没有相应的土壤标准体源,造成分析结果误差增大,这是大部分实验室 ^{210}Pb 不达标的原因所在(刘广山,2006)。而使用无源效率刻度软件可以克服制备标准体源,进行效率刻度的困难(L. S. Quindós, et.al.,2006)。考虑到土壤母质对于测定的影响,本实验室采用LabSOCS无源效率刻度方法,按照黄土的矿物组成模拟标准体源的土壤基质,并按照制成的土壤样品几何形状,计算出该测量条件下的探测效率,这就克服了由于测定样品矿物组成和几何条件的复杂性,而难以建立类似的测量条件谱仪的效率刻度的困难。这样与有源刻度方法相比,LabSOCS无源效率刻度简单便捷、可靠,尤其是节省了购买和管理放射源的费用,减少了标准体源矿物组成、核素活度不确定性带来的误差,以及有源效率刻度引起的计数统计和曲线拟合误差(P. Oropesa, et.al., 2000)。

从这次参加国际分析比对研究的整体结果来看,低能端核素 ^{210}Pb (45.6keV)在分析中问题较多,分析结果的偏差较大,实验室之间的差异较大。造成 ^{210}Pb 分析结果偏差和实验室之间差异较大的原因应该是探头在低能端刻度不合理以及自吸收因子的估计不足。在某些实验室,效率刻度是通过修正的值,所以导致出现较大的差异。

从比对结果来看,很有必要使用 ^{210}Pb 的体源标准样品,对实验室分析的不同的样品基质进行方法校正和质量控制。

与其他化学分析不同,环境放射性核素测量技术属于无损探测与识别技术,是通过测量核素的自发辐射来甄别所测核素的某些特征信息。这种无损测量技术避免了对样品进行化学处理和分析,减少化学处理过程中的不确定性,比化学分析简便而且快速,但是其精度则不及化学分析方法。环境放射性核素无损测量技术的不确定性研究非常重要。

对于土壤环境放射性核素测量不确定度来源的分析,事实上很难做到全面。因为来源的因素实在太复杂。本研究认为只要抓住影响结果的几个主要来源即可。而且,要做到来源因素的分析不重复也是比较难的,核素测量过程中各个环节紧密关联。因此,全面深入地了解核素分析的全过程是解决不确定度来源分析全面、不重复的关键所在(IAEA, 2004)。

环境放射性核素测量的主要误差来源于探头的探测效率、 γ 射线的放射强度、峰面积计数及各种修正的不确定度,而且其中探测效率的不确定度往往是主要的。对刻度拟合的探测效率曲线,其探测效率的估计值,在不同的能量区间其不确定度也不同。在大于200keV的能区,效率与能量的关系在双对数的坐标上有近似直线关系,探测效率的估计值,在不同的能量区间其不确定度最小。小于200keV的能区,成曲线关系,且没有好的标准刻度核素源,效率估计值的不确定度较大。因此,活度测定的不确定度也和 γ 射线的能量范围有关。在大于200keV的能区,活度测定的最大不确定度可小于1%;而在小于200keV的能区,多数核素的结果是1%-4%(田东风等,2005)。

环境样品中放射性活度水平较低,需要有效的质量保证程序,才能确保分析结果的可靠。首先实验室保持适宜温度和湿度,使仪器运转稳定;要定期检查感兴趣核素的能量分辨率,以及能量峰的对称性;如果出现道址漂移,要对仪器进行重新能量刻度;实验室选用无源效率刻度,可以克服有源效率刻度的许多不足;环境样品核素分析容易忽略取样带来的不确定度,所以在取样时要确保样品具有代表性,尽可能地满足分析需要的质量要求;在样品处理过程中,也要避免样品的损失和污染,并保证样品的均匀性;伽玛谱仪分析属于无损物理分析,样品不需要做化学处

理,分析过程中不存在样品损失的问题;另外,为了保证分析的质量,实验室要制定核素分析不确定度评价的方法和程序。在报告分析结果时,要给出分析的不确定度,以确保分析的可信程度,这样分析结果才是完整并有意义的。

3.7 小结

在这次国际分析比对研究中,除本底样品中的 ^{210}Pb 外,本实验室的测定结果与IAEA标准值的相对偏差都小于10%。 Z_{score} 和 U_{score} 值的结果表明,本实验室的测定值与IAEA的标准值没有明显差异。所有样品Lab/IAEA值在0.92-1.18范围之内。这说明本实验室的比对结果,都成功达到了IAEA要求的标准。

标准样品中 ^{137}Cs 分析不受铅室本底的影响,受土壤母质特性的影响较小,分析的合成不确定度较小;采用探测效率50.9%的HPGe宽能 γ 能谱仪,测定时间在36000S以上,就能达到要求的分析精度。 ^{210}Pb 分析对分析仪器的要求比较高,需要考虑土壤母质,铅室本底,装样容器形状和材料等不确定度来源因素的影响,进行精确的无源效率刻度。而且要达到要求的精度,保证样品测量时间在86400S以上。样品中低能端核素 ^{210}Pb 的分析效率较低,分析不确定度较大,这是低活度环境样品分析的主要制约因素,也是环境放射性核素示踪技术应用过程中所面临的主要问题之一。

第四章 环境放射性核素标准样品的制作技术研究

环境放射性标准样品能使被测量或确定的放射性量值在不同地区传递,应用于校准放射性测量装置、评价分析方法或试验方法,以及放射性测量的长期质量保证。环境放射性同位素标准样品的水平高低很大程度上影响环境放射性分析的准确度和精确度。本研究从环境放射性分析的不确定性考虑,研究影响环境放射性分析不确定性的因素,以及标准样品在减少分析不确定度中的作用。本项目基于国内外环境放射性分析的需求,研制低活度环境放射性标准样品,制定标准样品制备的流程与质量保证的关键技术,以填补国内外在该研究和应用领域的空白。

重要性: FRNs 环境放射性同位素 (^{137}Cs 、 ^{210}Pb 和 ^7Be) 示踪技术正在广泛应用于我国的大气沉降过程、沉积物计年、地貌与土壤侵蚀评价、环境污染物溯源等农业、环境、地质、地理和资源调查等前沿领域科学研究和应用研究领域。而同位素示踪分析的精确度和准确度与同位素分析标准样品密切相关。

国家环保总局对人工放射性同位素源的使用和保管有严格规定,而目前我国大多数环境放射性分析部门不具备对同位素源的使用和保管的资质。传统的同位素标准物质采用人工加入同位素的办法研制标准样品。

迫切性: 严格说来,每种土类都应该有标准样品。但目前,我国和国际上任何一个高水平的实验室都不可能提供所有系统的同位素标准样品。所以,目前迫切需要研制我国系统的标准样品。

目前,环境放射性核素技术已广泛地应用于土壤侵蚀、沉积物计年、环境污染等方面的研究中。但是,由于环境样品成分复杂,放射性水平较低,而且用于环境放射性核素测定的标准物质制备费用昂贵,且制备标准物质的环境样品采集存在很多困难。所以,这些因素就造成了环境放射性核素的测量存在很大的不确定性。为了满足国内环境放射性测量的需要,研制、生产和发放各种环境放射性标准物质,用于控制环境放射性测量实验室分析质量和评价测量过程,减少测量的不确定度,这项工作具有很重要的科学意义。

4.1 实验材料与方法

4.1.1 标准样品基质采集及处理

标准样品基质是采集来自于山西省寿阳县农业部旱农试验区的黄土母质样品。考虑到核素在耕地土壤表层的分布较为均匀,采样位置选择位于一个崩坡的平坦顶部耕地,用铁锹采集土样,采样深度为 0-10cm,采样时剪除了地表的杂草和枯落物,采集的样品装入准备好的塑料袋中,样品采集足量,以满足使用的需要,并进行样品编号,记录采样时间和地点。样品带回实验室后,经过风干,剔除石块,草根等杂物,用研磨机研磨粉碎,样品风干和处理过程中要避免污染。研磨后的样品过 0.15mm 筛,并充分混匀,保证样品的均匀性。样品处理好后,分装入大塑料白封袋中,每袋 1000g。标准物质的均匀性检验和定值后续进行,每个样品取 250g,装入 $\Phi 25 \times 101\text{mm}$ 的有机玻璃盒子中,密封待测。

4.1.2 测量仪器

使用两套美国堪培拉公司 γ 谱仪测量系统进行标准物质均匀性检验和定值, 探测器均为 BE5030 型, 其中探头 (S/N:b06110) 可测量 γ 射线能量范围为 3Kev(千电子伏)~3Mev (百万电子伏), 系统使用 Canberra747E 铅室屏蔽, 壁厚为 10cm, 使用 DSA-1000 数字化谱仪解谱, Genie-2000 谱分析软件分析谱数据。对 ^{60}Co 1332.5keV 的能量峰的能量分辨率(FWHM)为 1.643keV, 晶体尺寸为 $\Phi 80\text{mm} \times 30\text{mm}$, 探测效率为 50.93%。另外一个探测器 (S/N:4908) 使用 Canberra747 顶开式铅室屏蔽, 壁厚为 10cm, 使用 Inspector-2000 数字化谱仪解谱, Genie-2000 谱分析软件分析谱数据。对 ^{60}Co 1332.5keV 的能量峰的能量分辨率(FWHM)为 2.060keV, 探测效率为 50%。

4.1.3 测量方法

装入有机玻璃样品中, 密封好的标准样品, 直接使用 γ 谱仪测量系统进行测定。测定时间为 80000-86400s, 样品重复测试结果相对误差在 $\pm 4.7\%$ 。 ^{210}Pb 、 ^{137}Cs 活度分别由能谱中能量为 46.5 keV、661.6 keV 的 γ 射线全能峰计数获得。该谱仪系统采用无源效率刻度方法(LabSOCS)对样品进行效率刻度。

4.1.4 质量保证

该谱仪系统是中国农科院所属的国际原子能机构比对网络实验室 (IAEA-ALMERA) 的主要仪器之一。运行该谱仪系统测定样品 48 小时, 低能端核素测定值与约定真值的最大相对偏差为 3%。高能端的核素测定 24 小时, 测定值与约定真值的最大相对偏差为 4.3%。2006 年国际原子能机构 (IAEA) 组织的环境放射性核素测试能力比对 (PT) 中, 使用该谱仪系统对标准样品完成的测定结果, 都达到了 IAEA 要求的合格水平。

4.2 结果与分析

标准样品是具有良好的特性的稳定的、均匀的物质, 具有量值的准确性, 可以用来校准仪器、评价测量方法的特殊物质。通过标准样品的制作, 我们掌握了标准物质制备的流程和方法。大致分为 3 部分: (1) 标准物质基质的选择与准备: 根据生产实际的需要, 选择标准样品基质来源地, 进行样品基质的采集, 采集好的样品进行风干; (2) 样品的处理与制备: 风干好的样品, 使用研磨机进行粉碎, 样品过筛, 样品充分混匀, 样品分装; (3) 测量方法的标准化: 制备好的标准样品, 进行均匀性检验、定值测定以及稳定性测定, 然后进行数据整理与处理, 最后确定标准值。

均匀性是为了保证不同用户得到的标准物质的特性量值是一致的。标准样品的均匀性水平是标准样品制作技术的关键问题。从 3 组标准样品均匀性检验的结果来看, 三组样品 ^{137}Cs 和 ^{210}Pb 的比活度都很接近。 ^{137}Cs 比活度平均值的标准偏差为 0.22Bq/kg, 相对标准偏差为 5.2%。 ^{210}Pb 比活度平均值的标准偏差为 2.10 Bq/kg, 相对标准偏差为 2.61%。测定结果由单因素方差分析 (one-way ANOVA) 表明, 3 组标准样品 ^{137}Cs 和 ^{210}Pb 的比活度在 0.05 水平上无显著差异, 表明 3 组标准样品的均匀性较好 (如表 4-1 所示), 可以满足国家一级标准物质技术规范的要求 (韩永

志等, 1994)。图 4-1、4-2、4-3、4-4、4-5、4-6 是 3 组标准样品 ¹³⁷Cs 和 ²¹⁰Pb 比活度的分布情况。

表 4-1 标准样品均匀性检验

Table 4-1 The homogeneity test of PT samples						
样品编号	¹³⁷ Cs			²¹⁰ Pb		
	比活度 (Bq/kg)	不确定度 (Bq/kg)	比活度/不确定度 (%)	比活度 (Bq/kg)	不确定度 (Bq/kg)	比活度/不确定度 (%)
1-1	4.32	0.24	5.56	79.19	8.26	10.48
1-2	4.17	0.25	6.00	77.65	8.18	10.53
1-3	4.45	0.25	5.62	81.40	8.51	10.45
1-4	4.42	0.24	5.43	81.38	8.49	10.43
1-5	4.27	0.25	5.85	79.24	8.29	10.46
1-6	4.17	0.25	6.00	80.47	8.41	10.45
1-7	4.38	0.25	5.71	81.32	8.49	10.44
1-8	4.09	0.24	5.87	79.57	8.32	10.46
1-9	4.02	0.25	6.22	81.10	8.47	10.44
1-10	3.55	0.25	7.04	82.06	8.57	10.44
1-11	3.82	0.25	6.54	79.48	8.31	10.46
2-1	4.39	0.23	5.24	80.08	7.97	9.95
2-2	4.50	0.23	5.11	80.23	7.98	9.95
2-3	4.00	0.20	5.00	80.27	7.94	9.89
2-4	4.22	0.22	5.21	78.39	7.80	9.95
2-5	4.28	0.22	5.14	80.08	7.98	9.97
2-6	3.90	0.21	5.38	76.84	7.66	9.97
2-7	4.08	0.21	5.15	81.83	8.13	9.94
2-8	4.22	0.25	5.92	82.44	8.33	10.10
2-9	4.33	0.25	5.77	77.71	7.87	10.13
2-10	4.32	0.25	5.79	81.68	8.25	10.10
2-11	4.24	0.26	6.13	83.62	8.46	10.12
3-1	4.17	0.27	6.47	81.99	8.70	10.61
3-2	4.40	0.26	5.91	84.76	8.88	10.48
3-3	3.97	0.25	6.30	80.47	8.41	10.45
3-4	4.41	0.30	6.80	83.78	9.03	10.78
3-5	4.39	0.29	6.61	78.21	8.46	10.82
3-6	4.13	0.29	7.02	85.03	9.10	10.70
3-7	4.56	0.29	6.36	79.77	8.57	10.74
3-8	4.30	0.29	6.74	78.03	8.48	10.87
3-9	4.39	0.30	6.83	78.65	8.51	10.82
3-10	4.33	0.30	6.93	80.09	8.79	10.98
3-11	4.44	0.29	6.53	76.95	8.34	10.84
第一组平均值	4.15	-	-	80.26	-	-
第二组平均值	4.23			80.29		
第三组平均值	4.32			80.70		
平均值	4.23			80.42		
标准偏差	0.22			2.10		
相对标准偏差	5.2%			2.61%		
标准误差	0.04			0.36		
差异显著性	0.09			0.65		

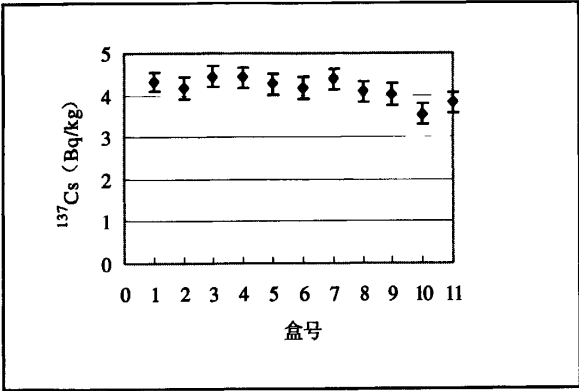


图 4-1 第一组样品 ^{137}Cs 的比活度分布

Fig.4-1 The distribution of ^{137}Cs activity of first group samples

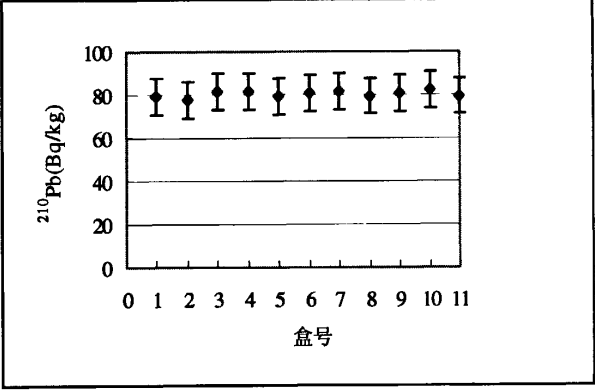


图 4-2 第一组样品 ^{210}Pb 的比活度分布

Fig.4-2 The distribution of ^{210}Pb activity of first group samples

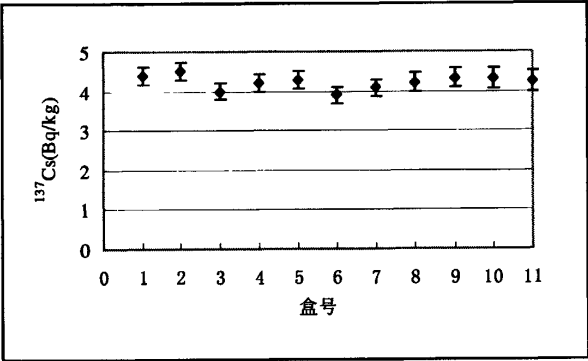


图 4-3 第二组样品 ^{137}Cs 的比活度分布

Fig.4-3 The distribution of ^{137}Cs activity of second group samples

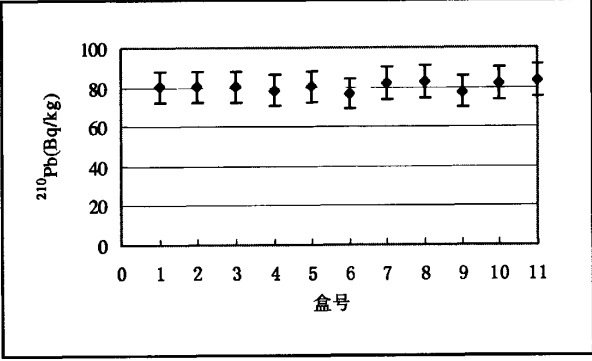


图 4-4 第二组样品 ^{210}Pb 的比活度分布

Fig.4-4 The distribution of ^{210}Pb activity of second group samples

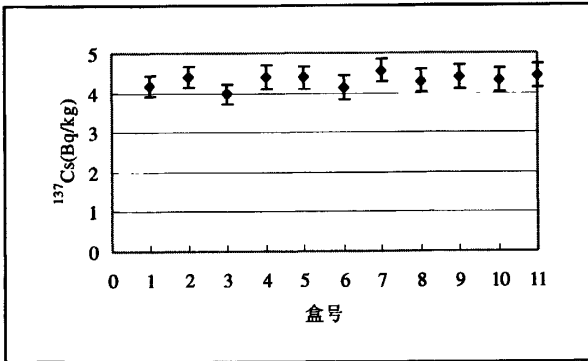


图 4-5 第三组样品 ^{137}Cs 的比活度分布

Fig.4-5 The distribution of ^{137}Cs activity of third group samples

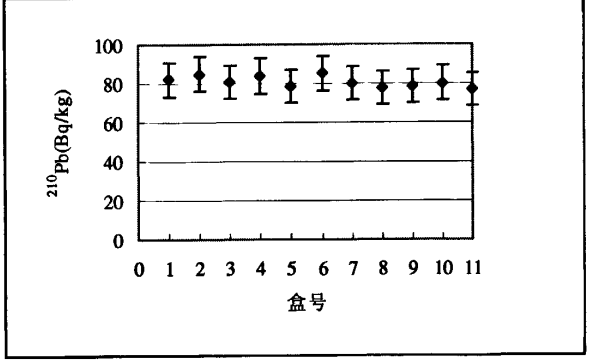


图 4-6 第三组样品 ^{210}Pb 的比活度分布

Fig.4-6 The distribution of ^{210}Pb activity of third group samples

根据标准物质的定值原则，可采用多个实验室以多种准确可靠的方法进行标准物质的定值。

条件允许的情况下,可以组织多个权威实验室对制作的标准物质进行定值。我们将制定好的标准样品分发到亚太地区的6个国家进行分析比对,并同时可以进行定值。

通过对我们制定的一个标准物质的分析和均匀性检验发现,两套 γ 谱仪测定的结果基本一致,均匀性检验没有发现有显著性差异。所以我们的两套高精密的仪器和使用的比较权威的无源效率刻度方法,可以对制定的标准物质进行定值。我们的 γ 谱仪系统使用国家计量院生产的 ^{152}Eu 标准点源进行能量刻度,并对仪器进行定期校准,可以保证仪器的能量和道址匹配,满足测量结果的可溯源性。效率刻度选用国际公认的蒙特卡洛无源效率刻度方法,经2006年的IAEA比对分析结果全部达到要求的标准。

4.3 小结

本研究制作的低活度环境放射性标准物质,由国际原子能机构环境放射性核素分析网络实验室CAAS-ALMERA分析,对其中环境放射性核素 ^{137}Cs 和 ^{210}Pb 比活度进行定值。 ^{137}Cs 的比活度值为 4.23Bq/kg ,不确定度 0.25Bq/kg (1σ)。 ^{210}Pb 的比活度为 80.42Bq/kg ,不确定度 8.36Bq/kg (1σ)。标准物质中不含其它人工放射性核素,含量适当而均匀,对实际使用是比较合适的。

这种标准物质是天然基质的,同掺合标准物质相比,它与实际测量样品更加相似。在测量相似基质的样品时,可用来检查和控制分析质量,研究和评价分析方法,检验和校准仪器,适合于低活度土壤样品环境放射性核素分析质量控制。该标准物质已经发放到亚太地区国际原子能机构合作项目的6个成员国进行环境放射性核素 ^{137}Cs 和 ^{210}Pb 比活度的分析比对,证明该物质均匀稳定性良好。

从定值的结果来看,这种标准物质中 ^{210}Pb 的测定是指总 ^{210}Pb ,不需要等到 ^{226}Ra 与 $^{210}\text{Pb}_{\text{sup}}$ 达到永久衰变平衡(苏琼等,2005; Bum Kyoung Seo,2001),所以不需要进行样品封存24天以上,分析样品制好后,就可以直接上机进行分析测定。

3组标准样品 ^{210}Pb 比活度的标准偏差为 2.10Bq/kg ,相对标准偏差为2.61%。 ^{137}Cs 比活度的标准偏差为 0.22Bq/kg ,相对标准偏差为5.2%。3组标准样品 ^{210}Pb 和 ^{137}Cs 比活度在0.05水平上无显著差异。采用蒙特卡洛无源效率刻度方法的低本底HPGe宽能 γ 谱仪系统,对于低能端核素 ^{210}Pb (46.5Kev)分析的精确度和准确度保证至关重要。

第五章 环境核素示踪技术在青藏高原土壤侵蚀研究中的应用

青藏高原自然地理状况独特且非常脆弱,长江、黄河和澜沧江的发源地都分布在该地区,所以青藏高原水土流失的潜在威胁性很大。青藏高原地区土壤粗骨性强、土层薄,加之气候寒冷、土壤下部有冻土层,易使地表在反复的冻融过程中出现龟裂和草皮剥落,发生土壤侵蚀。据统计,青海省受风力、水力、冻融侵蚀的土地面积1999年已发展到33.4万 km^2 , 占全省总面积的46%,水土流失的面积达18.27万 km^2 (其中水力侵蚀面积4.01万 km^2 , 风力侵蚀面积14.26万 km^2), 占全省土地面积的25.3%和全国水土流失面积的5%,目前,青海省的水土流失面积仍以每年0.021万 km^2 的速度扩大。青海东部地区是青海省水土流失最为严重的地区,总面积约46536.5 km^2 , 地表侵蚀面积约26817.4 km^2 , 占总面积的57.7%。其中强度侵蚀面积约5390 km^2 , 占水土流失面积的20.1%, 占浅山丘陵面积的98.9%; 中度侵蚀面积约8011.3 km^2 , 占水土流失面积的29.87%; 轻度侵蚀面积约13416.7 km^2 , 占水土流失面积的50.03% (范钟庆, 2003)。由此可见,青海省的土壤侵蚀是相当严重的,影响了青海省的经济建设和生态环境。

目前,由于研究手段的限制,对土壤侵蚀的研究多集中在海拔较低的地区,对青藏高原高海拔地区典型生态景观下的土壤侵蚀过程及其和人类活动的关系研究开展的还很少。 ^{137}Cs 核素示踪技术是目前土壤侵蚀研究的主流技术之一,与传统的土壤侵蚀研究方法相比,它只需要一次或几次采集样品,就能快速、准确、定量地评价土壤侵蚀产沙物质再分布空间格局,非常适合于研究基础薄弱、环境恶劣、不适合长期定位观测的地区进行土壤侵蚀的研究。本文选取青藏高原青海省境内典型样带为研究地点,分析了青海省 ^{137}Cs 和 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 背景值的区域变化,以及不同区域坡面尺度上 ^{137}Cs 和 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 的空间分布特征,分析了土壤侵蚀产沙物质空间再分布格局。并根据迁移-扩散模型计算了青藏高原东西各样带的土壤侵蚀速率。

5.1 研究区域与方法

5.1.1 青藏高原及东西样带研究区域概况

青海省位于青藏高原东北部,地理坐标为东经 $89^{\circ}35'\sim 103^{\circ}04'$, 北纬 $31^{\circ}39'\sim 39^{\circ}19'$, 东西长1200km, 南北宽800km, 80%以上的地区在海拔3000m以上,和西藏共同形成了地球“第三极”独特的自然景观。作为黄河、长江、澜沧江的发源地,青海高原的环境状况对中国大部分地区的自然环境乃至全球气候变化都有重大影响。

青海总面积72.12万 km^2 , 为全国总面积的1/13, 仅次于新疆、西藏和内蒙古而居第四位。全省辖1个地级市、一个地区、6个民族自治州、31个县、7个民族自治县、2个州辖市、4个市辖区、3个行政委员会和1个工委, 省会为西宁市。

青海省北部、东部与甘肃省相邻, 东南部与四川省接壤, 南部、西南部与西藏自治区相连, 西北部同新疆维吾尔自治区紧邻, 是西藏、新疆连接内地的重要纽带之一, 也是中国西部地区

的地理中心区域,在现代西部大开发中具有极其重要的地位。

本研究的区域分布选取青藏高原从西到东不同的样带,起于 34°N , 92°E 的可可西里沱沱河地区,止于 34°N , 100°E 的玛沁军功镇地区,长度约 1000 多公里,穿越青海高原主要的土壤侵蚀区,充分考虑了典型性,全面性,易用性等因素,选取了典型高寒草原、紫花针茅草原、高寒草甸、高寒灌丛、水蚀地貌五种景观类型;分别位于沱沱河、玛多、玛沁东倾沟乡、玛沁军牧场、玛沁军功镇。土壤样品采集于 2006 年 8 月 7 日~8 月 27 日进行,采样点分布和采样点概况见图 5-1 和表 5-1 所示。

位于青海省南部唐古拉山脉主峰格拉丹东大冰峰下的沱沱河是长江的正源,我们选取“长江第一桥”附近典型坡面作为沱沱河长江源的采样点。地理位置在 $34^{\circ}12'05.2''\text{N}$, $92^{\circ}26'49.9''\text{E}$ 附近,海拔约 4557m。地貌为冲、洪积平原,地形开阔,略有起伏。地层主要属第四系全新统粉质粘土、细砂、砾砂、圆砾土。采样区域分布于部位较高、排水条件良好、土层较干燥的低缓丘陵。区域气候属高原大陆性气候类型,具有寒冷、干旱、多风等主要特点。根据沱沱河气象站资料,年平均气温为 -4.0°C ,极端最低气温 -45.2°C ,极端最高温 24.7°C ,最热月(7月)平均气温 7.6°C ,最冷月(1月)平均气温 -16.2°C ;年平均降水量 248.5mm,年平均蒸发量 1638.9mm,年平均相对湿度 53%。采样区域原生土壤类型为高山草原土,土壤质地为砂砾质和砂壤质,表层沙砾化。草皮层薄或无,根系较多,腐殖质层厚度 5~10cm,粒状和团粒状结构较发育,有机质含量 $10\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$ 左右,腐殖质层或过渡层之下即为发育良好、颗粒均匀的粒状结构。全剖面微碱性, pH 7.8~8.9,通体石灰反应强烈,钙积层明显(徐蒲生等, 1998)。原生植被属高寒草原,即由耐寒旱的多年生丛生禾草和根茎苔草为优势种所形成的植物群落,为青藏高原典型的地带性高寒植被类型。群落优势种有紫花针茅(*Stipa purpurea*)、青藏苔草(*Carex moorcroftii*)等。该群落具有很强的耐寒、耐旱特性,种类组成贫乏,群落结构简单,层次分化不明显,地表植被较为稀疏。群落总盖度一般为 30%~45%(魏建方, 2003)。

选取位于黄河源头的玛多县典型紫花针茅草原样带作为第 2 个样带的采样点。“玛多”系藏语,意为黄河上游。玛多县于 1957 年设置,为青海省果洛藏族自治州辖纯牧业县。县政府驻黑马河乡玛查里,海拔 4300 米,距州府 254km。地处北纬 $33^{\circ}50'\sim 35^{\circ}40'$,东经 $96^{\circ}50'\sim 99^{\circ}20'$ 之间,东邻青海省玛沁县和兴海县,西靠曲麻莱和称多县,南连达日县,北接都兰县。设黑河乡、黄河乡、花石峡乡、黑海乡、清水乡、扎陵湖乡 6 个乡。截止 2003 年底,全县有人口 1.1 万人,人口密度 0.4 人/ km^2 ,以藏族为主。玛多县地处巴颜喀拉山北麓,布青山以南,阿尼玛卿山以西的黄河谷地,地势自西北向东南倾斜,海拔 4000~5267 米。黄河上游段纵贯县境,年自产地表水资源 $14.3\times 108\text{m}^3$ 。本县素有“百湖之县”的雅称,著名的扎陵湖、鄂陵湖就在县境内,为青海省最大的淡水湖泊。年平均气温 $5\sim -2.4^{\circ}\text{C}$,年日照时数 2495~2799h。 $\geq 0^{\circ}\text{C}$ 积温 553~934 $^{\circ}\text{C}$ 。年降水量在 194~409mm 之间。植物生长季 123~154d,无绝对无霜期。土壤类型有高山寒漠土、高山草甸土、高山草原土、灌丛土、沼泽土、泥炭土、盐土等 7 个土类。植被有草甸、草原、沼泽、灌丛等。全县土地面积 $276.06\times 104\text{hm}^2$ 。可分为 2 个牧业区:①东北部草原、草甸、藏羊、牦牛、马区;②西南部草甸、牦牛、藏羊、马区。全县以牧业为主,畜牧业产值占全县各业产值的 66%。有草地面积 $247\times 104\text{hm}^2$,可利用草地面积 $225.26\times 104\text{hm}^2$,草地类型主要以高寒草原类和高寒草甸类为主,海拔 4500 米以上多为露岩和砾石地,植被稀疏。

选取玛沁东倾沟乡高寒草甸样带作为第3个样带;位于玛沁玛尼沟军牧场的高寒灌丛作为第4

个样带；位于玛沁军功镇的典型水蚀地貌作为第5个采样点。隶属于青海省果洛藏族自治州的玛沁县，地处青海省南部的“三江源”生态保护核心区，辖7乡2镇，总面积1.337万平方公里，位于东经98°48′~100°55′，北纬33°43′~35°16′，境内地势高亢，平均海拔在4100米以上。该地区气候具有典型的高原大陆性气候特点，无四季之分，仅有冷暖季之别，冷季漫长、干燥而寒冷，暖季短暂、湿润而凉爽。温度年差较小而日差较大，太阳辐射强烈。土壤为高山草甸土，土层厚度大于0.3 m。由于过度放牧和全球气候变化等原因，近年来出现了退化程度不等的演替阶段类型。玛沁县东部连接黄南州河南县，南部与甘肃省玛曲县为邻，西部与甘德、达日、玛多三县接壤，北部与海南州兴海、同德两县相连，是一个藏族聚居的纯牧业县。

各采样点样带景观如图 5-2、5-3、5-4、5-5、5-6 所示。



图 5-1 青海样带采样点分布

Fig. 5-1 Location of sampling site in Qinhai province

表 5-1 青海东西样带采样点情况表

Table 5-1 The condition of sampling site from west to east region in Qinhai province

样点位置	经纬度、海拔 (m)	土类	植被、地形及降水
沱沱河长江第一桥附近 (长江源头)	34°12'05.2" N 92°26'49.9" E Elev: 4557 m	高山草原土	紫花针茅草原, 典型高寒草原, 降水量 278mm
玛多城西 10km (黄河源头)	34°58.146' N 98°06.769' E Elev:4279 m	高山草甸土	紫花针茅草原, 坡地 年降水量: 283mm
玛沁东倾沟乡	34°29'14.3" N	高山草甸土	高寒草甸, 坡地

	99°57'23.5" E Elev: 3875 m 34°20'46.8" N		年降水量: 517mm
玛沁玛尼沟军牧场	100°27'58.3" E Elev: 4070 m 34°39'42.2" N	高山草甸土	高寒灌丛, 坡地 年降水量: 517mm
玛沁军功镇 (黄河入青海处)	100°37'22.9" E Elev: 3390 m	高山草甸土	水蚀地貌, 植被稀疏, 坡地 年降水量: 517mm



图5-2 沱沱河长江第一桥附近风蚀地貌景观

Table 5-2 The landscape of wind erosion nearby in the Changjiang river first bridge, Tuotuo River



图 5-3 玛多城西 10km 处紫花针茅草原景观

Fig.5-3 The landscape of Stipa purpurea grassland landscape 10km far from Maduo County



图 5-4 玛沁东倾沟乡典型高寒草甸植被景观

Fig.5-4 The landscape of Alpine shrubs in Dongqinggou, Maqin County



图 5-5 玛沁军牧场高寒灌丛景观

Fig.5-5 The landscape of Alpine shrubs in Jun Pasture, Maqin County



图 5-6 玛沁军功镇典型水蚀地貌景观

Fig.5-6 The landscape of water erosion in Jungongzhen, Maqin County

5.1.2 样品采集

坡地侵蚀模数和侵蚀堆积形态的研究是 ^{137}Cs 技术应用的主要领域, 研究坡地侵蚀速率时, 需要在坡面上设置多个采样点, 采集土壤全样和分层样, 并据此计算坡面平均侵蚀强度或得到坡面侵蚀强度空间分布。此外, 计算坡地侵蚀强度应用的模型——迁移-扩散模型得到的土壤侵蚀速率是点侵蚀速率, 坡地各采样点的空间分布形式, 直接影响到地块侵蚀速率的计算结果(许宜北, 2007)。

本研究采样点布设采用剖面线法, 即根据坡地横坡方向宽度, 间隔一定距离, 顺坡布设剖面线, 一般每个地块布设 2—3 条剖面线。剖面线间隔按地块宽度设定, 一般不超过 5 m。在剖面线上, 按一定间距(通常相隔 4-8m)布设取样点。样点布设不要紧贴坡顶和坡底, 以避免坡上部陡坎垮塌和坡底部取土的影响。同时, 为了分析坡地侵蚀堆积的空间分布, 一般在中央剖面线中部和底部取分层样。取样深度应超过 ^{137}Cs 赋存最大深度。

样品采集采用地形剖面法, 沿顺坡方向布置采样剖面线, 根据坡长布置采样点和土壤剖面样品个数。取样时用直径 8cm 的土钻在同一地点钻取两个深 15cm 的完整土样作为一个土样装入土袋。为准确了解 ^{137}Cs 在该块地土壤中的深度分布, 取 1 个 ^{137}Cs 分层样, 分层样取自坡面下部堆积区。按照 0-2cm, 2-4cm, 4-6cm, 6-8cm, 8-10cm, 10-12cm, 12-14cm, 14-16cm, 16-18cm, 18-20cm, 20-22cm, 22-24cm, 24-26cm, 26-28cm, 28-30cm 进行分层采集, 并记录编号。 ^{137}Cs 背景值是指特定地区保存下来的 ^{137}Cs 沉降总量, 即未受扰动、非积非蚀条件下的 ^{137}Cs 沉积总量。准确估计热核爆炸源 ^{137}Cs 的背景值是利用 ^{137}Cs 散落值测定土壤侵蚀和沉积速率的关键。为获得

当地的 ^{137}Cs 本底值, 选取 ^{137}Cs 多年未扰动的林地或草地取分层样, 取样深度 30-60 cm。参考点不好选择的地区, 直接选取坡面顶部平坦的部位采集样品, 认为 ^{137}Cs 沉积以来未经过任何扰动, 也未发生过土壤侵蚀, 该处的 ^{137}Cs 值作为该流域的背景值。样品装袋, 并附上注有样品编号、时间、地点的标签, 同时, 在野外记录本上对采样点进行相关的描述并对采样地拍照以备后用。

土壤样品经过自然风干后, 研磨过筛(孔径 2.0mm), 剔除草根、石块等杂物, 称 300g 供测试 ^{137}Cs 含量。

5.1.3 样品测试

野外采集的样品, 带回室内后, 先后经过风干、研磨、过筛、称重等过程后, 再进入实验室分析阶段。

1) 风干(烘干)。将采集到的样品平摊在牛皮纸上, 在自然状态下风干(一般需经过 5-7 天), 风干时注意将原样品编号与对应样品放在一起, 以免样品之间混淆。当处于潮湿季节或需要尽快测定样品核素比活度时, 可用烘箱烘干的方法。

2) 研磨。经过风干的土壤样品, 剔除掺杂的草根和石块后, 装入塑料自封袋中。然后将土样铺在特制的不锈钢磨样器上反复碾压, 直至粘结的土块彻底粉碎为止。用于测定放射性核素的土壤样品的研磨并不是要将土壤样品中所有较大颗粒彻底粉碎, 而是将原来粘结在一起的土壤团块分散, 满足测定放射性活度的需要。

3) 过筛。经过研磨的样品, 过孔径 2 mm 筛, 筛上大于 2 mm 部分和筛下小于 2 mm 部分, 分别集中在一起, 待称重。

4) 称重和标记。用天平称量样品筛分后的粒径大于 2 mm 和小于 2mm 部分, 分别记录总重量、大于 2 mm 和小于 2 mm 部分重量, 取粒径小于 2 mm 样品 250~400g 装入塑料袋, 编号标记后密封, 准备测定其 ^{137}Cs 和 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 比活度。

5) 样品的封装。经过前处理的样品, 装入 $\Phi 25\text{mm} \times 101\text{mm}$ 规格的有机玻璃盒中, 用塑料胶布密封保存待测。样品的存放于干燥、通风、无阳光直射的室温环境; 样品袋或样品盒存放时要保持密封, 防止样品吸湿结块, 影响测试; 密封要保证不漏气, 这对测定 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 至关重要。另外样品要作好编号和标签, 防止混淆。

用美国 CANBERRA 公司生产的 HPGe 探测器 Gamma 能谱仪 (Detector: BE5030, Canberra, USA) 进行 ^{137}Cs 与 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 活度测定, Gamma 能谱仪的测定范围为 3Mev-3kev, 相对探测效率: 50.2%, 能量分辨 ($^{60}\text{Co}@1332.5\text{kev}$): 2.2 KeV, 在能量为 662 keV 处测定土壤中的 ^{137}Cs 活度 (Bq/kg), 在能量为 46.5 keV 处测定土壤中的总 ^{210}Pb 活度 (Bq/kg), ^{226}Ra (186.21kev) 不能直接测定, 用其子体 ^{214}Pb (351kev) 和 ^{214}Bi (609kev) 替代, 取两子体的加权平均值即为 ^{226}Ra 的活度值。测定时间 80,000s 左右, 测定误差 < 8%。

工作原理: 通过高纯锗 γ 谱仪测定土壤中的环境放射性核素面积浓度, 利用 ^{137}Cs 面积活度和土壤侵蚀速率间的质量模型计算出土壤侵蚀速率。

5.1.4 计算方法

本文中实验室测定的 ^{137}Cs 和 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 单位是比活度 (Bq/kg)，可根据下列公式来换算成 ^{137}Cs 和 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 的面积浓度，即单位面积内测定核素的Bq数：

$$A_a = AM_T / S \quad (\text{公式5-1})$$

式中： A_a 表示样点单位面积 ^{137}Cs 和 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 的含量(Bq/m^2)， A 表示样点采集土壤的 ^{137}Cs 和 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 比活度， M_T 为相应样点土钻采集的土样质量 (kg)， S 为土钻横断面积 (m^2)。

^{137}Cs 示踪技术在土壤侵蚀领域应用已经历了 40 多年的逐步发展与完善，建立了各种模型来求算土壤侵蚀强度，农耕地侵蚀量计算模型可分为经验模型和理论模型两大类。经验模型最早得到应用，其形式简单，对有经验的研究者来说，其计算精度也可得到保证，但对大多数研究者来说，应用困难比较大，逐渐被理论模型所取代。

理论模型建立在对 ^{137}Cs 沉降、再分配与土壤流失过程认识的基础上，以质量平衡模型应用最广，其中最具代表性的是简化模型 (Mass Balance Model I) 和复杂模型 (Mass Balance Model II)。

简化模型 (Mass Balance Model I)。根据 ^{137}Cs 沉降主要发生于 1950—1970 年代，其中 1963 年 ^{137}Cs 沉降量最大，1963 年前后沉降量基本相当，假定 ^{137}Cs 全部沉降于 1963 年，提出了质量平衡简化模型 (Mass Balance Model I)，其表达式为：

$$A = A_0 \times (1 - \Delta H / H)^{N-1963} \quad (\text{公式5-2})$$

式中： A 为侵蚀地点 ^{137}Cs 面积浓度 ($\text{Bq} \cdot \text{m}^{-2}$)；

A_0 为 ^{137}Cs 本底值 ($\text{Bq} \cdot \text{m}^{-2}$)；

H 为犁耕层厚度 (cm)；

ΔH 为年土壤流失厚度 (cm)；

N 为采样年份。

在此基础上，考虑到 ^{137}Cs 沉降期间，坡面上地表径流直接带走的部分 ^{137}Cs 对侵蚀量计算的影响，提出有效本底值的概念，用坡面径流系数对区域本底值进行修正，将上述公式改进为以下形式：

$$A = A_0 \times (1 - R) \times (1 - \Delta H / H)^{N-1963} \quad (\text{公式5-3})$$

式中： R 为径流系数； $A_0 \times (1 - R)$ 为径流系数修正后的有效本底值。

复杂模型 (Mass Balance Model II)。Walling 和 He (1999) 认识到核爆期间每年沉降到农耕地的 ^{137}Cs ，在犁耕前并未均匀分布于犁耕层内，而是富集在耕作土壤表层，面蚀流失的表层耕作土壤 ^{137}Cs 浓度实际高于耕作土壤平均 ^{137}Cs 浓度，提出农耕地 ^{137}Cs 地表富集和侵蚀分选影响的质量平衡模型 (Mass Balance Model II)，其表达式为：

$$\frac{dA(t)}{dt} = (1 - \Gamma)I(t) - (\lambda + P \frac{R}{d})A(t) \quad (\text{公式5-4})$$

式中: $A(t)$ 为 ^{137}Cs 面积浓度 ($\text{Bq} \cdot \text{m}^{-2}$);
 $I(t)$ 为在某一年份 t 的 ^{137}Cs 沉降量 ($\text{Bq} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{a}^{-1}$);
 Γ 是新沉降的 ^{137}Cs 混入耕层之前的损失率;
 P 为粒度分选系数;
 λ 为 ^{137}Cs 年赋存系数 (0.977);
 d 为耕层土壤重量 ($\text{kg} \cdot \text{m}^{-2}$).

从实际应用来看, Mass Balance Model I 和 Mass Balance Model II 的精度都可以满足研究者需要, Mass Balance Model II 更加精确, 但对大多数研究者来说, 更精确的结果意味着更多的工作量和更细致的研究, Mass Balance Model II 中 Γ 、 P 两个参数对一些研究基础薄弱的地区来说, 可靠确定是很困难的。实际上, 大多数研究者都选择了既可以满足研究精度要求, 应用又相对简单的 Mass Balance Model I 及其改进形式。本研究即选用 Mass Balance Model I 的改进形式计算坡耕地侵蚀量。

本研究应用的是非农耕地的扩散-迁移模型。

$$C_u(t) \approx \frac{I(t)}{H} + \int_0^{t-1} \frac{I(t')e^{-R/H}}{\sqrt{D\pi(t-t')}} e^{-V^2(t-t')/(4D)-\lambda(t-t')} dt' \quad (\text{公式5-5})$$

式中: D 为扩散系数 ($\text{kg}^2 \text{m}^{-4} \text{yr}^{-1}$);
 V 为土壤剖面中 ^{137}Cs 向下迁移的速率 ($\text{kg m}^{-2} \text{yr}^{-1}$).

对于侵蚀的地点来说, 测定的 ^{137}Cs 面积浓度 $A_u(\text{Bq m}^{-2})$ 小于当地参考点的面积浓度值 A_{ref} , 侵蚀速率 R 可以由 ^{137}Cs 面积浓度的减少值 $A_{\text{is}}(t)$ (Bq m^{-2}) 来计算 (即 $A_{\text{ref}} - A_u$) 和表层土壤 ^{137}Cs 的活度值 $C_u(t')$ (由公式 5-5 得到) 根据下式计算:

$$\int_0^t PRC_u(t')e^{-\lambda(t-t')} dt' = A_{\text{is}}(t) \quad (\text{公式 5-6})$$

对于沉积的地点来说, 沉积速率 R' 由沉积点 ^{137}Cs 的活度值 $C_d(t')$ 和 ^{137}Cs 面积浓度的增加值 $A_{\text{ex}}(t)$ 根据下面的关系式计算得到:

$$R' = \frac{A_{\text{ex}}}{\int_{t_0}^t C_d(t')e^{-\lambda(t-t')} dt'} = \frac{A_u - A_{\text{ref}}}{\int_{t_0}^t C_d(t')e^{-\lambda(t-t')} dt'} \quad (\text{公式 5-7})$$

式中 $C_d(t')$ 可根据下式计算:

$$C_d(t') = \frac{1}{\int_s R dS} \int_s P' PC_u(t') R dS \quad (\text{公式 5-8})$$

扩散-迁移模型考虑了 ^{137}Cs 沉降通量的时间变化以及 ^{137}Cs 随时间在土壤剖面上的再分布, 比剖面分布模型有所改进, 它适合于应用在非农耕地地区 (Walling D E., Q. He, P.A. Whelan., 2003;

Walling D E., Y. Zhang., and Q. He, 2007)。本文研究的青藏高原样带都处于不适合种植作物的, 非农耕地的草原地区, 所以非常适合应用 ^{137}Cs 和 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 扩散-迁移模型来计算土壤侵蚀速率。

5.2 结果与分析

5.2.1 ^{137}Cs 背景值区域分布特征

可靠确定研究区域各采样点 ^{137}Cs 沉降的背景值是 ^{137}Cs 示踪技术求算土壤侵蚀速率的重要前提 (Walling and He, 1999; Zapata, 2002)。 ^{137}Cs 沉降背景值样品的采集被认为是制约该技术在青藏高原高海拔地区应用的限制因子之一 (Chappell, 1999)。就本文研究样带而言, 在青藏高原东西样带区域, 通过对土壤侵蚀影响因子和植被、人类扰动及土壤剖面特征的综合评价, 可以确定较可靠的 ^{137}Cs 沉降背景值采样点, 并采集相应土壤样品, 这类采样点包括: 沱沱河、玛多、玛沁东倾沟、军牧场、军功镇。本研究参考点背景值样品的采集, 选择植被覆盖较好, 地表枯落物层完整, 处于相对独立的地貌单元, 不受其他坡的来水来沙影响, 且地势平坦, 没有侵蚀强烈或明显沉积的现象出现的地点, 分别采集背景值样品。

Walling 和 He (Walling and He, 2000) 根据全球尺度 ^{137}Cs 沉降与降雨量、纬度分布等影响因素的关系, 建立了 ^{137}Cs 沉降量计算模型。国内有关研究 (齐永青等, 2006) 分析了该模型的主要特点, 比较了该模型计算结果与我国各地实测 ^{137}Cs 沉降背景值的关系, 指出了该模型存在的主要问题和应用价值。本研究运用该模型对各采样点 ^{137}Cs 沉降本底值进行了模拟计算, 并与实测结果进行了比较 (表 5-2)。

由表 5-2 可见, 各采样点 ^{137}Cs 实测背景值与各自对应的模拟背景值比较接近, 玛多和玛沁东倾沟两地实测背景值与模拟值基本一致, 沱沱河、玛沁军牧场、军功镇实测背景值与模拟值之间误差较大。由此可见, 利用 Walling 和 He 的 ^{137}Cs 沉降量计算模型求算出的采样点背景值与本区域实际 ^{137}Cs 大气沉降情况是比较一致的。对于无法准确采集土壤样品并测定背景值的荒漠、以及可可西里湿地、沼泽等恶劣环境下的采样点, 使用模拟结果作为 ^{137}Cs 背景值是比较可靠的 (刘纪远等, 2007)。位于青海省西部可可西里地区的沱沱河是长江发源地, 该地区海拔 4500m, 常年风蚀严重, 高寒草原植被稀疏, 很难找到绝对没有侵蚀的采样点作为参考点, 而且从选择的参考点背景值分析结果来看, 实测值远远小于模拟值。所以在计算侵蚀速率时, 以 ^{137}Cs 沉降量计算模型计算得到的模拟值作为背景值进行侵蚀速率计算, 这是符合实际情况, 比较可靠的计算方法。玛沁东倾沟、军牧场和军功镇三个样点距离较近, 年降雨量都在 517mm 左右, 但是海拔高度差异较大, 所以不能一概地根据模型模拟值认为该样点背景值是一致的, 应根据其实测值作为各个采样点的背景值。

青海省 ^{137}Cs 背景值介于 $452.7\text{--}1714.1\text{Bq/m}^2$ 之间, 呈从西向东增加的分布特征, 和海拔高度的变化趋势总体一致。 ^{137}Cs 背景值实测值的变化趋势为: 军牧场 > 军功镇 > 东倾沟 > 玛多 > 沱沱河 (如图 5-7 所示)。这与用 ^{137}Cs 模型计算的结果的模拟值基本一致 (图 5-9)。 ^{137}Cs 背景值与地区的降雨量是成正比的。青海省从西到东样带, 降雨量随海拔高度的降低是呈上升的趋势, 所以 ^{137}Cs 背景值也应该是随海拔高度的降低呈上升的趋势。这一结果正好验证了我们的研究假设。根据差

异显著性分析(0.05 显著水平的 Duncan 分析), 结果表明沱沱河、玛多和玛沁东倾沟之间没有显著性差异; 沱沱河与玛沁军牧场、军功镇之间有显著性差异。

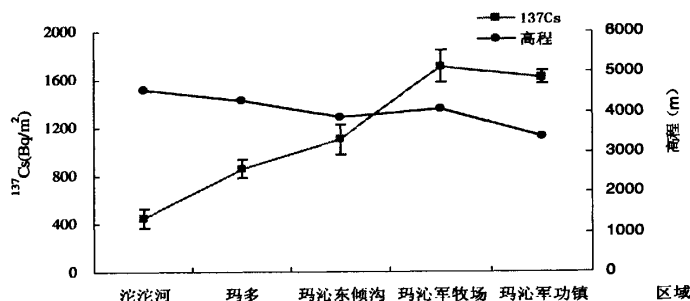


图 5-7 青藏高原东西样带 ^{137}Cs 含量背景值的区域变化

Fig .5-7 The regional change of ^{137}Cs background from west to east in Qing-Tibet Plateau

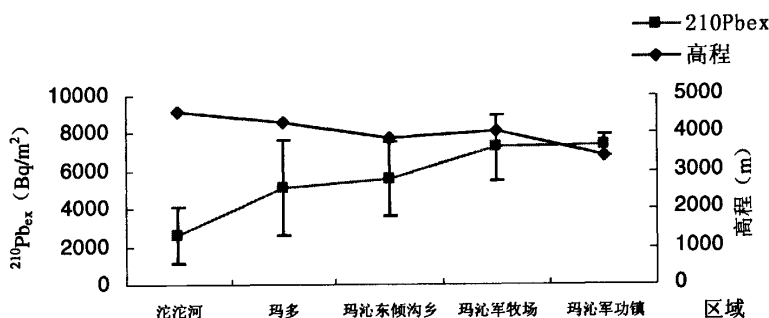


图 5-8 青藏高原东西样带 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 含量背景值的区域变化

Fig. 5-8 The regional change of $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ background from west to east in Qing-Tibet Plateau

青海省 ^{210}Pb 背景值介于 2612-7377Bq/m² 之间, 和 ^{137}Cs 一样呈从西向东增加的分布特征, 和海拔高度的变化趋势总体一致。 ^{210}Pb 背景值实测值的变化趋势为: 军功镇>军牧场>东倾沟>玛多>沱沱河。 ^{210}Pb 背景值与地区间的降雨成正比。青海省从西到东样带, 降雨量随海拔高度的降低是呈上升的趋势, 所以 ^{210}Pb 背景值也应该是随海拔高度的降低是呈上升的趋势。这一结果和我们当初的研究假设是一致的。目前还没有成熟的 ^{210}Pb 沉降量计算模型可以应用, 所以计算侵蚀速率时, 直接用 ^{210}Pb 的实测值作为背景值。

从青藏高原东西样带 ^{137}Cs 和 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 背景值的相关关系来看 (图 5-10), ^{137}Cs 和 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 背景值呈现显著的线性关系, 方程为 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}} = 3.5853 \times ^{137}\text{Cs} + 1466.2$, $R^2=0.9519$ 。由此可见, ^{137}Cs 含量越高的地方, $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 含量也高, 证明 ^{137}Cs 和 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 在青藏高原地区的沉降与分布规律存在相

关性，正是由于这种相关性的存在，假定在一定区域内大气均匀沉降示踪核素，在地面不论微地形的变化还是植被等因素的影响，¹³⁷Cs 含量高的地方，²¹⁰Pb_{ex} 含量也高。可以应用这两种放射性核素来示踪青藏高原地表土壤侵蚀速率，两种核素可以相互验证是多核素示踪技术发展的趋势(项亮，2000 年)。

表 5-2 青藏高原东西样带 ¹³⁷Cs 和 ²¹⁰Pb_{ex} 含量背景值的基本情况

Table 5-2 The condition of ¹³⁷Cs and ²¹⁰Pb_{ex} background from west to east in Qing-Tibet Plateau

采样点	植被	经纬度	海拔 (m)	¹³⁷ Cs (Bq/m ²)		²¹⁰ Pb _{ex} (Bq/m ²)
				模拟背景值	实测背景值	实测
沱沱河	高寒草原	34°12'05.2" N	4557	936	452±82	2612±1495
		92°26'49.9" E				
玛多	高寒草原	34°58.146' N	4279	942	864±145	5140±2493
		98°06.769' E				
玛沁东倾沟	高寒草甸	34°29'14.3" N	3875	1181	1106±123	5598±1958
		99°57'23.5" E				
军牧场	高寒灌丛	34°20'46.8" N	4070	1181	1714±133	7252±1694
		100°27'58.3" E				
军功镇	高寒草甸	34°39'42.2" N	3390	1181	1623±56	7377±542
		100°37'22.9" E				

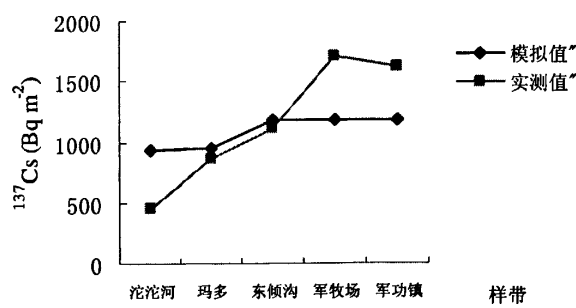


图 5-9 青藏高原东西样带 ¹³⁷Cs 背景模拟值与实测值的关系

Fig. 5-9 The relation between simulated value and real value of ¹³⁷Cs background from west to east in Qing-Tibet Plateau

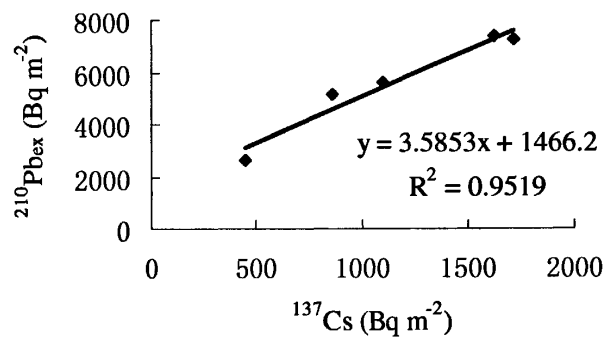


图 5-10 青藏高原东西样带 ^{137}Cs 和 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 背景值的相关关系

Fig. 5-10 The correlativity between ^{137}Cs background and $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ background from west to east in Qing-Tibet Plateau

表 5-3 青藏高原样带 ^{137}Cs 面积浓度背景值的区域变化统计分析

Table 5-3 The statistic analysis of regional change of ^{137}Cs background in Qing-Tibet Plateau

统计指标	^{137}Cs				
	沱沱河	玛多	玛沁东倾沟	玛沁军牧场	玛沁军功镇
平均值 (Bq/m^2)	452.71a	863.77ab	1106.31ab	1714.08b	1662.03b
标准偏差 (Bq/m^2)	135.32	-	138.75	335.27	34.53
范围 (Bq/m^2)	317.39-588.03	-	967.56-1245.06	1378.81-2049.35	1623.12-1689.00

5. 2. 2 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 背景值区域分布特征

青海省 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 背景值介于 2612—7377 Bq/m^2 之间，呈现从西向东逐渐增加的分布特征，和海拔高度的变化趋势一致（如图 5-8 所示）。沱沱河 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 的背景值与其它样带的背景值存在显著性差异。

表 5-4 青藏高原样带 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 面积浓度背景值的区域变化统计分析

Table 5-4 The statistic analysis of regional change of $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ background in Qing-Tibet Plateau

统计指标	$^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$				
	沱沱河	玛多	玛沁东倾沟	玛沁军牧场	玛沁军功镇
平均值 (Bq/m^2)	2612a	5140b	5598b	7252b	7377b
标准偏差 (Bq/m^2)	194	3031	32	64	95
范围 (Bq/m^2)	2418-2806	2109-8171	5566-5630	7187-7316	7377-7564

5.2.3 东西样带坡面景观 ¹³⁷Cs 和 ²¹⁰Pb_{ex} 的空间分布特征

青藏高原的三江源地区（长江、澜沧江和黄河上游地区）是我国江河源区土壤侵蚀最严重的地区。这里山谷比高不大，山峰呈丘状，丘顶浑圆，坡度较低缓，低缓的丘陵坡地是构成青藏高原景观的重要组成部分，是其主要的侵蚀产沙单元，又是黄河、长江泥沙的重要来源之一。在青藏高原丘陵沟壑区的坡地多呈瓦背状起伏，这种地形是在细沟侵蚀和人为过度放牧的共同作用下形成的，是人为加速土壤侵蚀的直接结果。进 50 年来，我国学者就此类坡地的土壤侵蚀问题进行了大量的研究，为土壤侵蚀防治工作提供了大量数据。但是就瓦背状坡地土壤侵蚀速率全坡面分布特征的报道相对较少。以 ¹³⁷Cs 在坡地中的含量和分布特征为基础，运用 ¹³⁷Cs 在草地估算土壤侵蚀速率的模型，将 ¹³⁷Cs 的面积浓度转化为土壤侵蚀速率（李仁英等，2004）。分析坡地土壤侵蚀强度及其空间分布特征，探讨人类活动与自然侵蚀共同作用的结果。

¹³⁷Cs 通过干、湿沉降，主要是湿沉降进入土壤，随土壤颗粒的再分布而发生迁移。在水平方向上，一切引起土壤颗粒发生再分布的作用都会使 ¹³⁷Cs 重新分布和迁移流失。在坡地中，降雨侵蚀与人为作用是导致土壤发生再分布的主要原因。因此，¹³⁷Cs 在坡地土壤中的再分布与降雨侵蚀和人为的扰动密切相关。这也是运用 ¹³⁷Cs 技术示踪土壤侵蚀的理论基础。

5.2.3.1 沱沱河坡面景观 ¹³⁷Cs 和 ²¹⁰Pb_{ex} 的空间分布特征

利用剖面线法布设采样点，在沱沱河坡面上共采 12 个土壤样品。表 5-5 是沱沱河坡面上 ¹³⁷Cs 和 ²¹⁰Pb_{ex} 面积浓度的统计分析。¹³⁷Cs 面积浓度的平均值为 611.67 Bq/m²，而 ¹³⁷Cs 在该研究区参考剖面的含量是 936Bq/m²，流失率为 35%，¹³⁷Cs 的流失程度严重。坡面 ¹³⁷Cs 含量的标准差是 347Bq/m²，变异系数 57%，说明坡地中 ¹³⁷Cs 的流失有明显的分异现象。¹³⁷Cs 在坡地空间分布的差异为研究土壤侵蚀的空间分异格局提供了科学依据。

²¹⁰Pb_{ex} 面积浓度的平均值为 3631Bq/m²，标准差是 851Bq/m²，变异系数为 23%，说明坡地中 ²¹⁰Pb_{ex} 的流失分异现象不明显。

表 5-5 沱沱河典型坡面不同坡位 ¹³⁷Cs 和 ²¹⁰Pb_{ex} 面积浓度的统计分析

Table 5-5 The statistic analysis of ¹³⁷Cs and ²¹⁰Pb_{ex} inventory of different slope position in Tuotuo river

统计指标	¹³⁷ Cs (Bq/m ²)				²¹⁰ Pb _{ex} (Bq/m ²)			
	顶部	上部	中部	下部	顶部	上部	中部	下部
平均值	452.71a	453.59a	453.00a	1087.36a	2612.00a	2673.32a	3953.02a	5285.16b
标准偏差	135.32	173.39	311.09	767.36	194.24	225.37	1398.57	735.00
范围	317.39	280.21	141.91	320.00	2417.76	2447.95	2554.45	4550.16
	-588.03	-626.98	-764.08	-1854.71	-2806.24	-2898.68	-5351.59	-6020.16

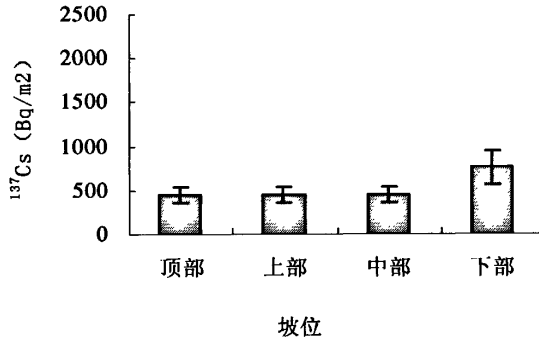


图5-11 沱沱河典型高寒草原坡面景观 ^{137}Cs 的空间分布特征

Fig. 5-11 The distribution characteristic of ^{137}Cs of slope landscape with Alpine grassland in Tuotuo river

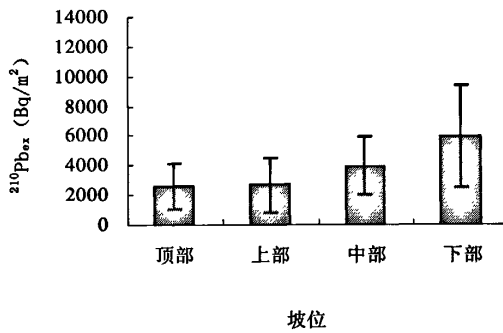


图5-12 沱沱河典型高寒草原坡面景观 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 的空间分布特征

Fig. 5-12 The distribution characteristic of $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ of slope landscape with Alpine grassland in Tuotuo river

图 5-11 是沱沱河典型坡面景观 ^{137}Cs 在坡面上的分布特征, ^{137}Cs 面积浓度的大小顺序为: 下部 > 上部 > 中部 > 顶部, 表现坡的下部 ^{137}Cs 含量高于坡的上部, 这是由于坡面上部的 ^{137}Cs 由于侵蚀作用移动到坡面的下部堆积造成。

图 5-12 是沱沱河典型坡面景观 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 的空间分布特征, $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 面积浓度的大小顺序为: 下部 > 中部 > 上部 > 顶部, 呈现出随坡面向下 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 含量递增的趋势。坡下部 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 面积浓度与其它坡位之间的差异较明显。

沱沱河典型坡面景观 ^{137}Cs 与 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 的空间分布特征基本一致, 都是随着坡面向下含量递增的趋势, 说明 ^{137}Cs 与 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 在坡面上的迁移规律是一样的, 都是在水力侵蚀的作用下随泥沙在坡面下部堆积。 ^{137}Cs 与 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 在坡面上的分布特征是土壤侵蚀特征的反映, 坡面上采集全样分析 ^{137}Cs 与 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 的面积浓度可以示踪坡面尺度上的土壤侵蚀规律, 长江源区沱沱河的坡面核素示踪说明了该地区土壤侵蚀主要是在自然的水力侵蚀造成的, 较少人类活动影响的痕迹。

5.2.3.2 玛多坡面景观 ¹³⁷Cs 和 ²¹⁰Pb_{ex} 的空间分布特征

表 5-6 是黄河源头玛多县坡面上 ¹³⁷Cs 和 ²¹⁰Pb_{ex} 面积浓度的统计分析。¹³⁷Cs 面积浓度的平均值为 950 Bq/m²，而 ¹³⁷Cs 在该研究区背景值含量是 942Bq/m²，说明 ¹³⁷Cs 在该坡面造成堆积。坡面 ¹³⁷Cs 含量的标准差是 402Bq/m²，变异系数 42%，说明 ¹³⁷Cs 在坡面的分布有明显的分异现象。

²¹⁰Pb_{ex} 面积浓度的平均值为 6218Bq/m²，²¹⁰Pb_{ex} 在该研究区的背景值是 5140 Bq/m²，²¹⁰Pb_{ex} 在该坡面也是堆积。坡面 ²¹⁰Pb_{ex} 含量的标准差是 1812Bq/m²，变异系数 29%，²¹⁰Pb_{ex} 在坡面上的分异现象不明显。

表 5-6 黄河源头玛多典型坡面不同坡位 ¹³⁷Cs 和 ²¹⁰Pb_{ex} 面积浓度的统计分析

Table 5-6 The statistic analysis of ¹³⁷Cs and ²¹⁰Pb_{ex} inventory of different slope position in Maduo county

统计指标	¹³⁷ Cs (Bq/m ²)				²¹⁰ Pb _{ex} (Bq/m ²)			
	顶部	上部	中部	下部	顶部	上部	中部	下部
平均值	863.77ab	1756.82a	715.98ab	464.01b	5139.95a	6035.59a	6295.44a	7399.57a
标准偏差	-	883.24	177.08	145.89	3031.05	597.67	1347.62	2270.37
范围	-	873.58-	538.90-	318.12-	2108.90-	5437.93-	4947.82-	5129.20-
		2640.06	893.06	609.90	8171.00	6633.26	7643.06	9669.94

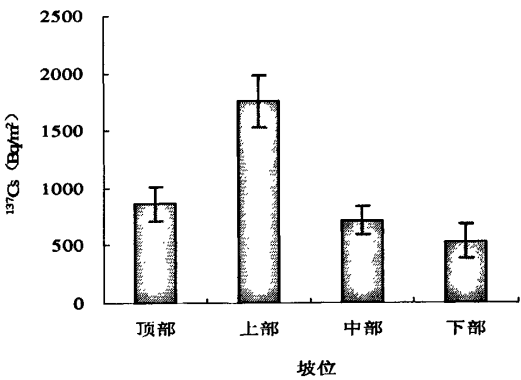


图5-13 玛多紫花针茅草原坡面景观 ¹³⁷Cs 的空间分布特征

Fig. 5-13 The distribution characteristic of ¹³⁷Cs of slope landscape with Stipapurpurea grassland in Maduo county

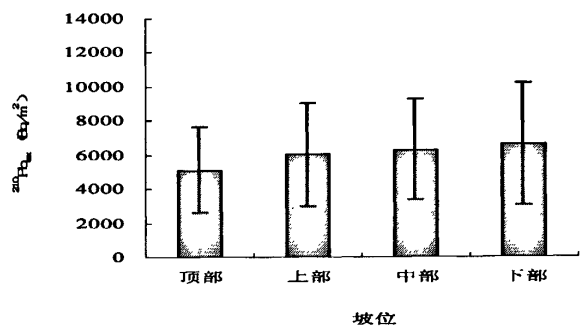


图 5-14 玛多紫花针茅草原坡面景观 ²¹⁰Pb_{ex} 的空间分布特征

Fig. 5-14 The distribution characteristic of ²¹⁰Pb_{ex} of slope landscape with Stipapurpurea grassland in Maduo county

图 5-13 是玛多典型坡面景观 ¹³⁷Cs 的空间分布特征，¹³⁷Cs 面积浓度的大小顺序为：上部>顶部>中部>下部，坡上部与坡下部的 ¹³⁷Cs 面积浓度差异明显。¹³⁷Cs 在坡面的上部造成明显的堆积，在中部和下部含量骤然减少，这可能是由于近 40 年来人为的过度放牧活动干扰造成的。

图 5-14 是玛多典型坡面景观 ²¹⁰Pb_{ex} 的空间分布特征，²¹⁰Pb_{ex} 面积浓度的大小顺序为：下部>中部>上部>顶部，从坡上到坡下是递增的趋势，说明近 100 年来 ²¹⁰Pb_{ex} 在水力侵蚀作用下沿坡面向下迁移的规律。各坡位 ²¹⁰Pb_{ex} 面积浓度差异不明显。

从图 5-13 和图 5-14 的比较发现，玛多典型坡面景观 ¹³⁷Cs 与 ²¹⁰Pb_{ex} 的空间分布特征不一致，说明 ¹³⁷Cs 与 ²¹⁰Pb_{ex} 在坡面上迁移规律不同。

5. 2. 3. 3 玛沁东倾沟坡面景观 ¹³⁷Cs 和 ²¹⁰Pb_{ex} 的空间分布特征

表 5-7 是玛沁东倾沟乡坡面上 ¹³⁷Cs 和 ²¹⁰Pb_{ex} 面积浓度的统计分析。¹³⁷Cs 面积浓度的平均值为 1703 Bq/m²，而 ¹³⁷Cs 在该研究区的模拟背景值是 1181Bq/m²，说明 ¹³⁷Cs 在该地区造成堆积。坡面 ¹³⁷Cs 含量的标准差是 359Bq/m²，变异系数 21%，说明 ¹³⁷Cs 在坡面上的分异现象不明显。

²¹⁰Pb_{ex} 面积浓度的平均值为 8620Bq/m²，²¹⁰Pb_{ex} 在该研究区的背景值是 5598 Bq/m²，²¹⁰Pb_{ex} 在该坡面造成堆积。坡面 ²¹⁰Pb_{ex} 含量的标准差是 1161Bq/m²，变异系数 13%，²¹⁰Pb_{ex} 在坡面上的分异现象不明显。

表 5-7 玛沁东倾沟乡典型坡面不同坡位 ¹³⁷Cs 和 ²¹⁰Pb_{ex} 面积浓度的统计分析

Table 5-7 The statistic analysis of ¹³⁷Cs and ²¹⁰Pb_{ex} inventory of different slope position in Maduo county

统计指标	¹³⁷ Cs (Bq/m ²)				²¹⁰ Pb _{ex} (Bq/m ²)			
	顶部	上部	中部	下部	顶部	上部	中部	下部
平均值	1106.31a	1337.51ab	2261.27b	2106.08b	5598.29a	9697.44b	9821.84b	9360.69b
标准偏差	138.75	813.84	479.94	4.36	32.18	2617.98	1229.82	764.99
范围	967.56-	523.67-	1781.34-	2101.73-	5566.11-	7079.46-	8592.02-	8595.70-
	1245.06	2151.34	2741.21	2110.44	5630.47	12315.42	11051.66	10125.68

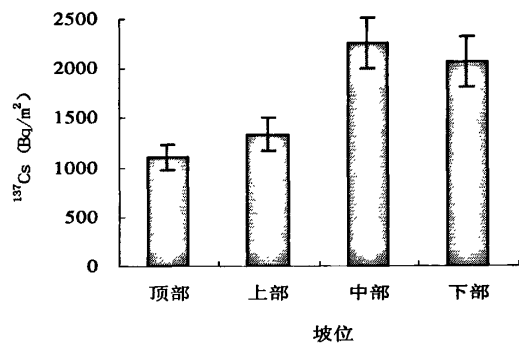


图5-15 玛沁东倾沟乡高寒草甸地貌典型坡面景观 ^{137}Cs 空间分布特征

Fig. 5-15 The distribution characteristic of ^{137}Cs of slope landscape with Stipapurpurea grassland in Dongqinggou, Maqin

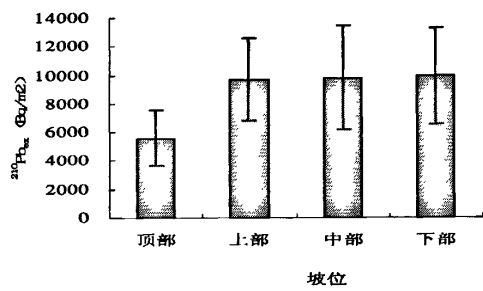


图5-16 玛沁东倾沟乡高寒草甸地貌典型坡面景观 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 空间分布特征

Fig. 5-16 The distribution characteristic of $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ of slope landscape with Stipapurpurea grassland in Dongqinggou, Maqin

图 5-15 是玛沁东倾沟乡典型坡面景观 ^{137}Cs 的空间分布特征， ^{137}Cs 面积浓度的大小顺序为：中部>下部>上部>顶部，坡上部与坡下部的 ^{137}Cs 面积浓度差异明显。这是近 40 年来在水力侵蚀作用下， ^{137}Cs 沿坡面向下迁移的结果，证明了土壤在水力侵蚀作用下沿坡面向下运动。

图 5-16 是玛沁东倾沟乡典型坡面景观 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 的空间分布特征， $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 面积浓度的大小顺序为：下部>中部>上部>顶部。即从坡上到坡下是递增的趋势。各坡位 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 面积浓度差异不明显。

从图5-15和图5-16的比较发现，玛沁东倾沟乡典型坡面景观 ^{137}Cs 与 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 的空间分布特征不是完全一致。总的来看，其迁移规律都是从坡上部向坡下部迁移，造成 ^{137}Cs 与 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 在下部含量较高。

5. 2. 3. 4 玛沁军牧场坡面景观 ^{137}Cs 和 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 的空间分布特征

表 5-8 是玛沁军牧场坡面上 ^{137}Cs 和 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 面积浓度的统计分析。 ^{137}Cs 面积浓度的平均值为 1705Bq/m^2 ，而 ^{137}Cs 在该研究区的模拟背景值是 1181Bq/m^2 ，说明 ^{137}Cs 在该地区造成堆积。坡面

^{137}Cs 含量的标准差是 347Bq/m^2 ，变异系数 20%，说明 ^{137}Cs 在坡面上的分异现象不明显。

$^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 面积浓度的平均值为 8751 Bq/m^2 ， $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 在该研究区的背景值是 7252 Bq/m^2 ， $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 在该地区造成堆积。坡面 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 含量的标准差是 890Bq/m^2 ，变异系数 10%， $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 在坡面上的分异现象不明显。

表 5-8 玛沁军牧场典型坡面不同坡位 ^{137}Cs 和 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 面积浓度的统计分析

Table 5-8 The statistic analysis of ^{137}Cs and $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ inventory of different slope position in Jun Pasture, Maqin county

统计指标	^{137}Cs (Bq/m^2)				$^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ (Bq/m^2)			
	顶部	上部	中部	下部	顶部	上部	中部	下部
平均值	1714.08a	1714.58a	2023.94a	1366.52a	7251.57a	7722.85a	10105.76b	9925.75b
标准偏差	335.27	127.88	292.66	634.08	64.20	640.00	1787.25	1070.39
范围	1378.81	1586.70	1731.28	732.44	7187.37-	7082.86-	8318.51-	8855.37-
	-2049.35	-1842.46	-2316.60	-2000.59	7315.77	8362.85	11893.00	10996.14

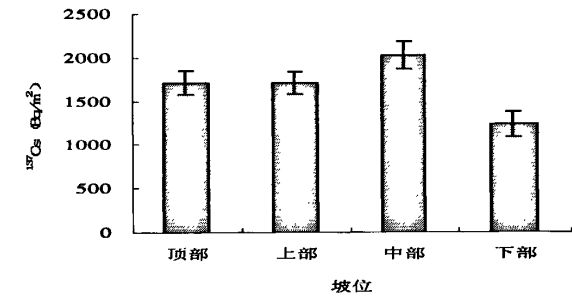


图5-17 玛沁军牧场典型坡面景观 ^{137}Cs 的空间分布特征

Fig. 5-17 The distribution characteristic of ^{137}Cs of slope landscape in Jun Pasture, Maqin county

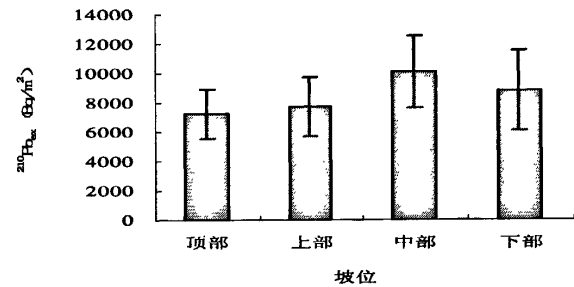


图5-18 玛沁军牧场典型坡面景观 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 的空间分布特征

Fig. 5-18 The distribution characteristic of $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ of slope landscape in Jun Pasture, Maqin county

图 5-17 是玛沁军牧场典型坡面景观 ^{137}Cs 的空间分布特征, ^{137}Cs 面积浓度的大小顺序为: 中部>上部>顶部>下部, 坡面各坡位 ^{137}Cs 面积浓度无明显差异。

图 5-18 是玛沁军牧场典型坡面景观 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 的空间分布特征, $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 面积浓度的大小顺序为: 中部>下部>上部>顶部。顶部和上部 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 面积浓度明显小于中部和下部。

从图5-17和图5-18的比较发现, 玛沁军牧场典型坡面景观 ^{137}Cs 与 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 的空间分布特征不一致。

5. 2. 3. 5 玛沁军功镇坡面景观 ^{137}Cs 和 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 的空间分布特征

表 5-9 是玛沁军功镇坡面上 ^{137}Cs 和 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 面积浓度的统计分析。 ^{137}Cs 面积浓度的平均值为 $74\text{Bq}/\text{m}^2$, 而 ^{137}Cs 在该研究区的背景值是 $1623\text{Bq}/\text{m}^2$, 流失率为 95%。 ^{137}Cs 在该坡面的流失非常严重。

$^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 面积浓度的平均值为 $1476\text{ Bq}/\text{m}^2$, $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 在该研究区的背景值是 $7377\text{ Bq}/\text{m}^2$, 流失率为 80%。 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 在该坡面的流失非常严重。

坡面上 ^{137}Cs 和 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 的分布情况说明了 40 年来该地区存在强烈的水蚀作用, 这可能与该地区过度放牧造成的植被破坏有关。

表 5-9 玛沁军功镇典型坡面不同坡位 ^{137}Cs 和 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 面积浓度的统计分析

Table 5-9 The statistic analysis of ^{137}Cs and $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ inventory of different slope position in Jungongzhen, Maqin county

统计指标	^{137}Cs (Bq/m^2)				$^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ (Bq/m^2)			
	顶部	上部	中部	下部	顶部	上部	中部	下部
平均值	0.00a	0.00a	49.00a	246.56b	1623.46a	1153.33a	1188.27a	1939.25b
标准偏差	0.00	0.00	49.00	188.45	125.37	105.52	111.57	511.29
范围	-	-	0-	58.12-	1498.09-	1047.81-	1076.70-	1427.96-
			97.99	435.01	1748.83	1258.85	1299.84	2450.54

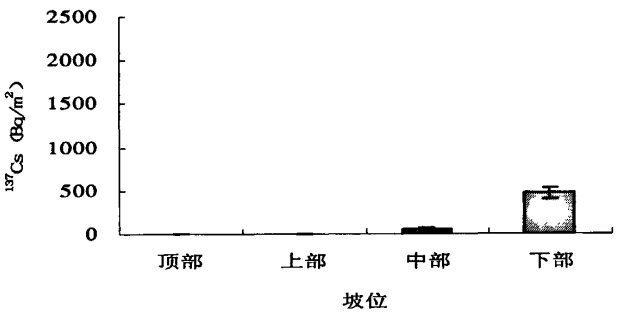


图5-19 玛沁军功镇水蚀地貌典型坡面景观 ^{137}Cs 的空间分布特征

Fig. 5-19 The distribution characteristic of ^{137}Cs of slope landscape with water erosion in Jungongzhen, Maqin county

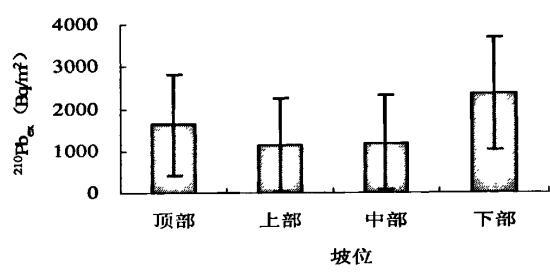


图5-20 玛沁军功镇水蚀地貌典型坡面景观 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 的空间分布特征

Fig. 5-20 The distribution characteristic of $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ of slope landscape with water erosion in Jungongzhen, Maqin county

图 5-19 是玛沁军功镇典型坡面景观 ^{137}Cs 的空间分布特征，上部和顶部 ^{137}Cs 含量都为 0，下部和中部有分布，下部 ^{137}Cs 面积浓度明显高于中部。

图 5-20 是玛沁军功镇典型坡面景观 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 的空间分布特征， $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 面积浓度的大小顺序为：下部>顶部>中部>上部。坡面下部 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 面积浓度明显高于其它各坡位。

从图5-19和图5-20的比较发现，玛沁军功镇典型坡面景观 ^{137}Cs 与 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 的空间分布特征基本一致。 ^{137}Cs 与 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 在强烈的水力侵蚀作用下，上部的 ^{137}Cs 都侵蚀殆尽，向下部迁移，造成下部的 ^{137}Cs 与 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 大量堆积。

5. 2. 4 典型参考点 ^{137}Cs 和 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 的剖面分布

确定研究区域 ^{137}Cs 和 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 本底值，需要选择覆盖较好，没有人类活动的扰动，既无侵蚀、又无堆积的地块作为参考点。并以此参考点作为其它地块是否发生侵蚀或堆积，及侵蚀或堆积强度的判定标准，是运用 ^{137}Cs 和 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 核示踪技术研究土壤侵蚀的基础。选择符合标准的参考点取样点，采集土壤样品，并测定其 ^{137}Cs 和 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 比活度，是确定研究区 ^{137}Cs 和 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 本底值最直接的方法。将实测结果与 Walling 和 He (2000) 的 ^{137}Cs 本底值模型求算的结果，及其他研究者在附近研究地点测定的 ^{137}Cs 本底值进行比较，有助于提高研究区 ^{137}Cs 本底值的可靠性。我们在玛沁军功镇选择典型参考点，采集了分层剖面样品，测定了每层土壤 ^{137}Cs 和 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 比活度（图 5-21 和图 5-22）。

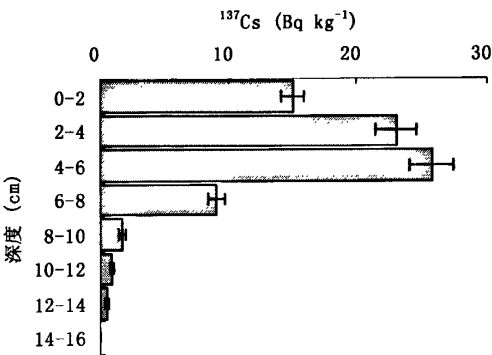


图 5-21 参考点 ^{137}Cs 的剖面分布

Fig. 5-21 The profile distribution of ^{137}Cs in reference site

图 5-21 是玛沁军功镇参考点的 ^{137}Cs 剖面分布情况， ^{137}Cs 含量主要分布在 0-80mm 土壤表层的范围内，同时在 40-60mm 内出现一个 ^{137}Cs 的峰（“富集层”），而 60mm 以下随土壤深度的增加呈现指数递减的趋势。在 12-14mm 以下， ^{137}Cs 含量没有分布。 ^{137}Cs 形成这样的剖面分布的原因有：其一，与 ^{137}Cs 的沉降历史有关， ^{137}Cs 从开始沉降 to 基本停止沉降的过程中， ^{137}Cs 沉降通量随沉降时间的变化基本上是一单峰曲线，在上个世纪 60 年代中期沉降通量最高。其二， ^{137}Cs 主要吸附在土壤的细颗粒中，50% 的 ^{137}Cs 吸附在 $<0.001\text{mm}$ 的土壤颗粒中(李立青, 2003)，而土壤细颗粒又容易在重力作用下和雨水的淋溶下向土壤的深层迁移；所以在富含 ^{137}Cs 的 0-6cm 土层中，如果从很薄的表土层向下（在 6cm 范围内）有物理性粘粒的淋溶迁移，则可导致本来就富含 ^{137}Cs 的土层变得更高，出现 ^{137}Cs 的富集层是完全有可能的。这和黄土高原的研究结果基本一致(李勉, 2002)。

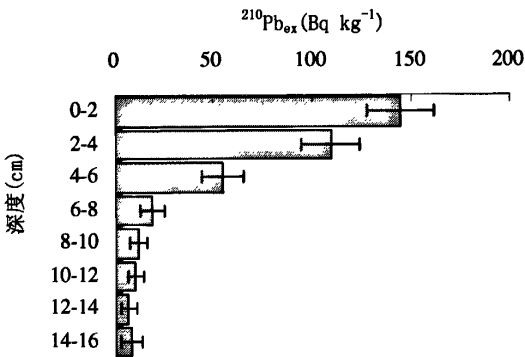


图 5-22 参考点 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 的剖面分布

Fig. 5-22 The profile distribution of $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ in reference site

图 5-22 是玛沁军功镇参考点的 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 剖面分布情况, 可以发现, $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 主要分布在 0-60mm 土层内, 0-60mm 范围内, $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 含量占土壤剖面中 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 总量的 84.87%。 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 剖面分布深度比 ^{137}Cs 的分布深 2cm, 说明 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 比 ^{137}Cs 在土壤中的迁移能力强。在土壤剖面到 0-16cm 内, $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 含量随土层深度的增加呈现指数递减的趋势。 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 浓度峰值出现在沉积剖面的最表层, 其浓度随深度增加而逐渐减少, 这主要是由于放射性衰变所致。

5.2.5 不同样带典型坡面景观坡下部 ^{137}Cs 的剖面分布

核素示踪样品根据研究目的的不同, 可分为土壤全样和土壤分层样。土壤分层样就是分层采集的土壤全样, 多数情况下与全样配合采集, 采样工具一致, 只是在采集过程中将土芯按与地面平行方向分割成 2—5cm 厚的小份, 分别测定各自的核素(^{137}Cs 和 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$)比活度。分层样各份样品核素(^{137}Cs 和 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$)面积活度累计值与该地点全样面积活度是一样的。采集分层样主要是测定不同层位土壤核素(^{137}Cs 和 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$)比活度, 反映核素(^{137}Cs 和 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$)在土壤剖面中的分布形态, 对判断背景值样点是否可靠及同一区域其它全样采集深度是否超过核素(^{137}Cs 和 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$)赋存极限非常重要。由于分层样可以反映核素(^{137}Cs 和 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$)剖面分布形态, 因此可用于判断堆积地点的土壤堆积厚度, 求算该地点的堆积量。我们在东西样带不同的景观选择典型坡面下部采集土壤分层样品, 研究 ^{137}Cs 和 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 在土壤剖面中的分布特征, 以及 ^{137}Cs 和 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 在剖面中的迁移规律和驱动因素。

一般认为, 未被耕作扰动的土壤中, ^{137}Cs 在土壤剖面中的垂直深度分布是符合扩散率的, ^{137}Cs 浓度随深度增加呈指数衰减的趋势 (Ritchie et al, 1972; 杨明义, 1997), 无侵蚀的本底值地块、侵蚀地块、堆积地块的 ^{137}Cs 深度分布形态有所不同, 由于表层土壤流失, 侵蚀土壤剖面 ^{137}Cs 浓度分布曲线往往只相当于未侵蚀土壤剖面曲线的中下部, 含 ^{137}Cs 土层厚度和 ^{137}Cs 面积浓度均有所减少, 堆积土壤剖面 ^{137}Cs 深度分布曲线是未侵蚀土壤剖面深度分布曲线和上覆堆积土深度分布曲线的叠加, 可作为初步判断侵蚀/堆积情况的依据 (李仁英等, 2001)。

图 5-23 是位于长江第一桥附近沱沱河高寒草原植被土壤中 ^{137}Cs 的剖面分布情况, ^{137}Cs 含量只在 0-40mm 的表层土壤中有分布, 40mm 以下没有发现 ^{137}Cs 的分布。在 0-20mm 土层 ^{137}Cs 的含量为 2.69Bq/kg, 显著高于 20-40mm 土层 ^{137}Cs 的含量 (0.80 Bq/kg)。总的来说, ^{137}Cs 含量都很低。这是很典型的风蚀土壤剖面, 特征是正常剖面上部被侵蚀掉, 表层 ^{137}Cs 含量低, 分布深度浅 (严平等, 2000, 2003; 濮励杰等, 1998; 胡云峰等, 2005; 张春来等, 2002)。这样的剖面分布和沱沱河地区特殊的地理位置和气象条件有关。沱沱河地区处在北纬 33°57', 海拔 4500m 的高山地区, 年平均温度 -4.4℃, 地表平均温度为 -0.7℃, 多年冻土层影响, 低温较低。据气象资料显示, 沱沱河地区年大风 (瞬时风速 ≥ 17.2 米/秒, 风力达到或超过 8 级的风) 日数达 128 天。最大风速最大值达到 32.0 米/秒, 是青海省境内年大风日数最高的地区 (王国祯, 2004)。据统计, 1961-2000 年青海的大风、沙尘暴日数表明青海省西南部的五道梁、沱沱河为沙尘暴最高值区, 平均每年在 13 次以上 (王江山, 2004)。该地区分布的高山草原土粗骨性明显, 不但含有石砾, 就小于 1mm 和 2mm 的土壤部分, 其矿质颗粒组成以细砂粒或粗粉粒为主。粘粒含量低。多年的大风天气, 土壤为粗砂砾质, 土层较薄, 土壤含水量少, 这样极端严酷的气候条件, 植物生长低矮稀疏, 覆盖度 20-40%。所以, ^{137}Cs 随降雨沉降到地表以后, 因为常年冻土层的存在和土壤粘粒含量较少, ^{137}Cs

只在表层富集, 迁移不到土层下面。而且表层存在的 ^{137}Cs 在常年的大风恶劣天气作用下, 极易被风力扬起随扬尘吹蚀掉, 或随着雨水冲刷到下游区域。

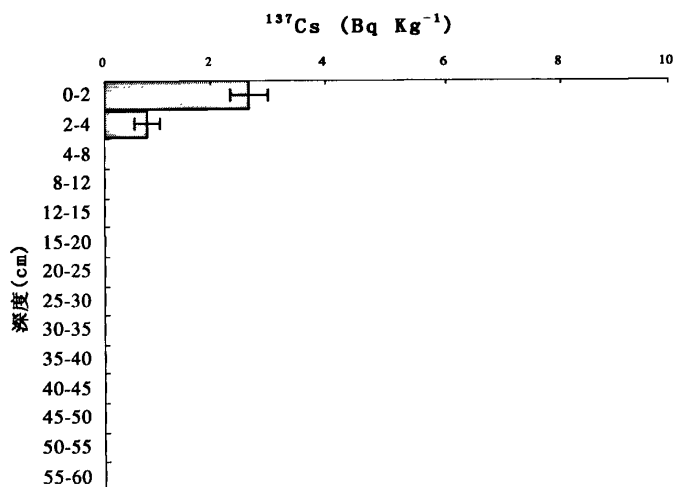


图 5-23 沱沱河高寒草原 ^{137}Cs 的剖面分布

Fig. 5-23 The profile distribution of ^{137}Cs of Alpine grassland, Tuotuo river

图 5-24 是位于玛多城西 10km 黄河发源地典型坡面下部土壤中 ^{137}Cs 的剖面分布情况。从土壤剖面分布来看, ^{137}Cs 主要分布在表层 0-80mm 之内。富集层出现在 60-80mm 土层内。80mm 以下土层指数递减。在 120-160mm 土层内出现 ^{137}Cs 的空白区, 而 160mm 以下又出现分布, 160-180mm 最高, 180mm 以下出现指数递减。这是因为该地区存在强烈的冻融侵蚀和水蚀造成的。120-160mm 土层内出现 ^{137}Cs 的空白区可能是由于上世纪 50 到 60 年代间, 玛多地区存在极端暴雨事件所致。据气象资料显示, 玛多属青海省暴雨 (日降水量 $\geq 50\text{mm}$ 或 12 小时降雨量 $\geq 30\text{mm}$ 或 1 小时降雨量 $\geq 16\text{mm}$) 出现的次多区, 年均 3 次。20 世纪 60 年代是青海省区域性暴雨的多发时期, 出现了 34 次暴雨 (王江山, 2004)。更详细的资料可以查阅历史气象资料进一步验证。玛多土壤类型属高山草甸土, 由于季节性干湿、冷暖变化, 造成地表湿度差异和冻融交替的剧烈变化, 草皮层因冻胀而产生不规则的裂缝。由于高山草甸土的 A1 层特别松软而多孔, 在暖季到来时、地表解冻至 A1 层时, 融冻水使其饱和, 多余水分沿冻层表面呈土内侧渗顺坡流动, 造成上部土层在重力作用下出现滑塌和泥流发生, 或沿冻裂缝沉陷。在冻胀、湿陷滑塌、融冻泥流等冻土现象的破坏下, 加上径流冲刷、风蚀等破坏作用, 助长了土壤侵蚀的加剧, 最后形成了该地区高山草甸土的侵蚀发生形成和扩大蔓延 (马元彪, 1997)。

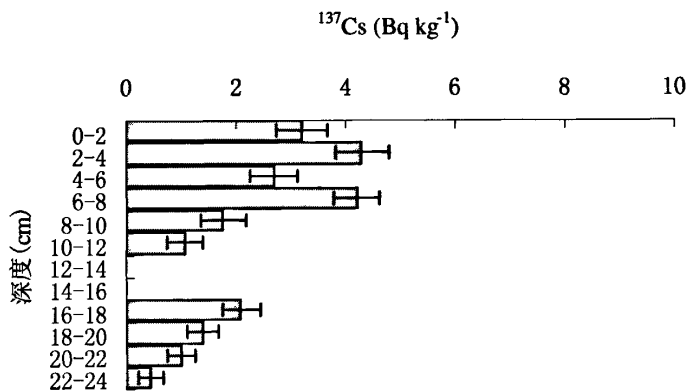


图 5-24 玛多紫花针茅草原 ^{137}Cs 的剖面分布

Fig. 5-24 The profile distribution of ^{137}Cs of Stipapurpurea grassland, Maduo county

图 5-25 是玛沁东倾沟乡高寒草甸植被土壤中 ^{137}Cs 的剖面分布情况，可以发现， ^{137}Cs 含量只分布在 0-60mm 的土壤表层，在 60mm 以下没有分布。在 0-20mm 的表层内 ^{137}Cs 高度富集，含量达到 164.49Bq/kg，而在 20-40mm 又急剧降低，只有 23.29 Bq/kg。在 40-60mm 土层内，含量仅为 1.01 Bq/kg，在图上已显示不出来，近似没有分布。这样的剖面分布与沱沱河的剖面分布极为相似，不同的是 ^{137}Cs 在剖面富集的含量较高。这是由于一方面，该地区降雨较多，年平均降雨量达到 517mm， ^{137}Cs 的沉降通量较高，另外，因为较薄的土层，土壤中物理性粘粒含量较少， ^{137}Cs 富集在土壤表层，没有向下淋溶迁移。 ^{137}Cs 在土壤表层 0-2cm 出现极高的值，而在 2-4cm 又急剧下降，这样的剖面分布比较异常。

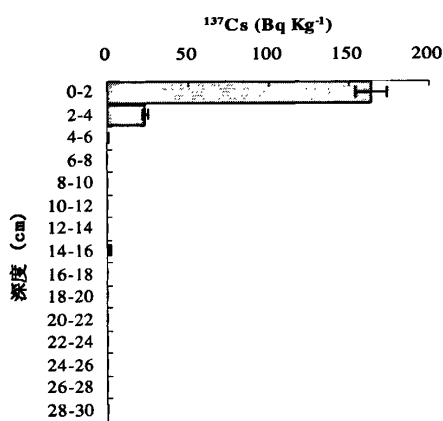


图 5-25 玛沁东倾沟乡高寒草甸 ^{137}Cs 的剖面分布

Fig. 5-25 The profile distribution of ^{137}Cs of Alpine meadow, Dongqinggou, Maqin county

图 5-26 是玛沁军牧场高寒灌丛土壤中 ^{137}Cs 的剖面分布情况, ^{137}Cs 主要分布在 0-40mm, 0-20mm 的土壤表层内含量最高, 为 119.24Bq/kg。在 20-40mm 土层内又急剧下降, 为 24.97Bq/kg。在 40-60mm 土层内还有零星分布, 含量为 2.15 Bq/kg。在 60-80mm 土层内含量为 0.66Bq/kg。从 0-20mm 土层 ^{137}Cs 的分布来看, 与玛沁东倾沟分布极为相似, 含量都是很高的异常值。剖面分布深度来看, 军牧场 ^{137}Cs 剖面分布比东倾沟剖面分布深, 也比沱沱河的剖面分布深。这是因为灌丛植被生长茂密, 总覆盖度 70-90%, 根系分布较深, 具有较好的保水保土的作用, 在降雨作用下, ^{137}Cs 在土壤中随着物理性粘粒向下发生了迁移。

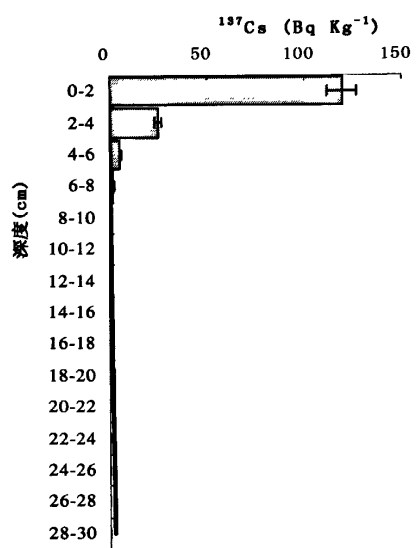


图 5-26 玛沁军牧场高寒灌丛 ^{137}Cs 的剖面分布

Fig. 5-26 The profile distribution of ^{137}Cs of Alpine shrub, Jun pasture, Maqin county

图 5-27 是玛沁军功镇典型水蚀地貌坡面底部 ^{137}Cs 在土壤中的剖面分布。在 8-10cm 处是 ^{137}Cs 含量的富集层。从表层到 10cm, ^{137}Cs 含量随着土层深度加深呈现递增的趋势。在 10-16cm 土层, ^{137}Cs 含量随着土层深度加深是呈现指数递减的趋势。在 16-22cm 处出现 ^{137}Cs 含量的空白区。军功镇参考点 ^{137}Cs 剖面分布 (图 5-21) 显示, ^{137}Cs 的峰值出现在 4-6cm。说明这是一个典型的堆积区。从该处的野外观测来看, 坡面植被稀疏, 由于降雨造成坡面很多细沟形成, 坡面冲刷下来的泥沙都淤积在坡面底部。出现的 ^{137}Cs 含量的空白区是由于上世纪五六十年代该地区出现过较大的极端暴雨事件, 造成了土壤中 ^{137}Cs 的流失。

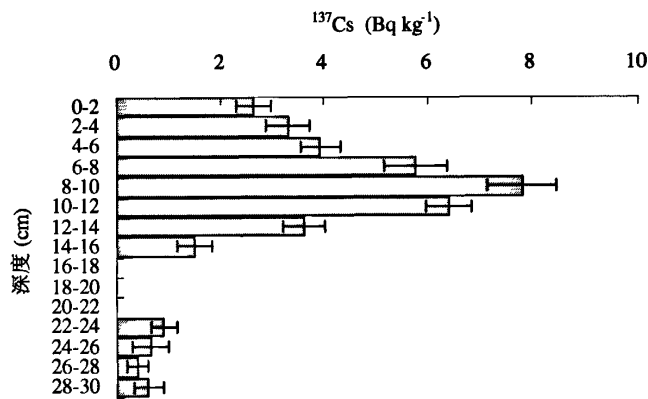


图 5-27 玛沁军功镇水蚀地貌 ^{137}Cs 的剖面分布

Fig. 5-27 The profile distribution of ^{137}Cs of water erosion site, Jungongzhen, Maqin county

5. 2. 6 不同样带典型坡面景观坡下部 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 的剖面分布

$^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 和 ^{137}Cs 含量在非农耕地中的深度分布具有非常相似的剖面形状, 总体来说, 土壤剖面上部的核素浓度最高, 向下呈指数衰减, 但 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 与 ^{137}Cs 的剖面分布有明显差异, ^{137}Cs 峰值浓度一般不出现在土壤最表层, 而在次表层, 而 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 峰值浓度出现在土壤最表层。非农耕地土壤中 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 面积浓度分布可以表述为:

$$A_x=ae^{ha(H-x)} \qquad \qquad \qquad \text{(公式 5-9)}$$

式中, A_x 为深度 x 下的 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 面积浓度($\text{mBq}\cdot\text{cm}^{-2}$), H 为土壤中 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 分布的最大深度(cm), x 为深度(cm), a , ha 为系数。

由公式 5-9, $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 面积浓度跟深度分布是呈指数关系。
我们对不同样带典型坡面景观坡下部采集土壤分层样品, 研究了 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 在土壤剖面中的分布特征。

图 5-28 是沱沱河高寒草原植被景观土壤中 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 的剖面分布情况, 与 ^{137}Cs 的土壤剖面分布相比, $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 的剖面分布较深, 达到土层 60cm 的深度, 在 60cm 以下应该还有分布, 野外采样还没有采到最底层。在 0-15cm 土层, $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 呈现指数递减的趋势。15-30cm 土层, 30-50cm 土层和 50cm 以下土层也是指数递减的趋势。 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 的最大值出现在 0-2cm 的土壤表层。

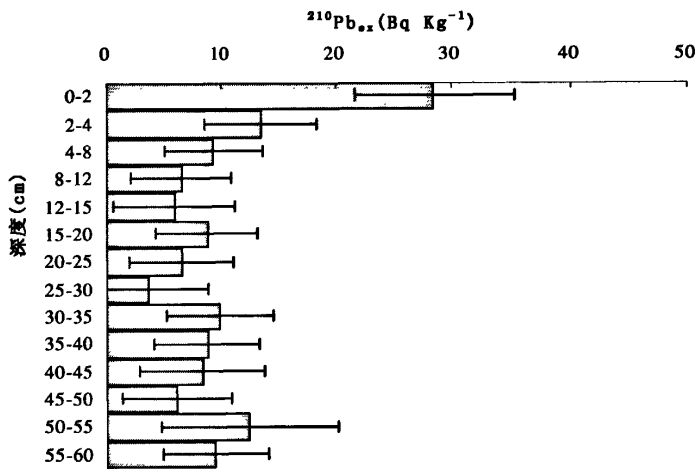


图 5-28 沱沱河紫花针茅草原 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 的剖面分布

Fig. 5-28 The profile distribution of $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ of Alpine grassland, Tuotuo river

图 5-29 是位于玛多典型坡面下部土壤中 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 的剖面分布情况。 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 主要分布在表层 0-80mm 之内，从表层到下部呈现指数递减的趋势。80-100mm 土层内出现空白区，120-140mm 土层也几乎为空白。这与土壤剖面 ^{137}Cs 空白区出现的位置接近。这印证了上面所作的结论，即在上世纪 50 到 60 年代间，该地区存在极端暴雨事件，造成土壤中 ^{137}Cs 和 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 的流失。

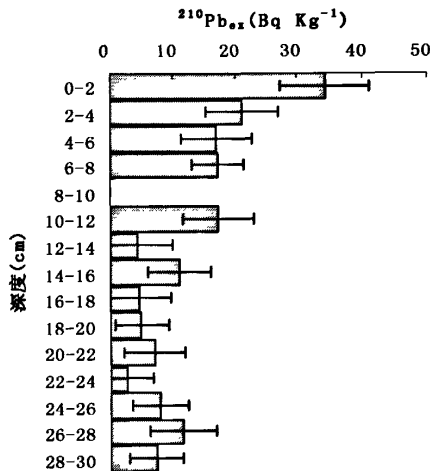


图 5-29 玛多紫花针茅草原 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 的剖面分布

Fig. 5-29 The profile distribution of $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ of Stipapurple grassland, Maduo county

图 5-30 是玛沁东倾沟乡高寒草甸植被土壤中 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 的剖面分布情况。 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 含量主要分布在 0-40mm 的土壤表层。在 0-20mm 的表层内 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 高度富集, 含量达到 592.76Bq/kg, 而在 20-40mm 又急剧降低, 为 90.69 Bq/kg。在 40-60mm 土层内, 含量仅为 26.23 Bq/kg。这样的剖面分布与沱沱河和玛多的剖面分布都极为不同。与 ^{137}Cs 一样, $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 在土壤表层 0-2cm 内大量富集。主要的解释是因为该地区降雨较多, $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 的沉降通量较高, 另外土层较薄, 土壤物理性状较差, 阻碍了 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 向土层下部淋溶入渗。

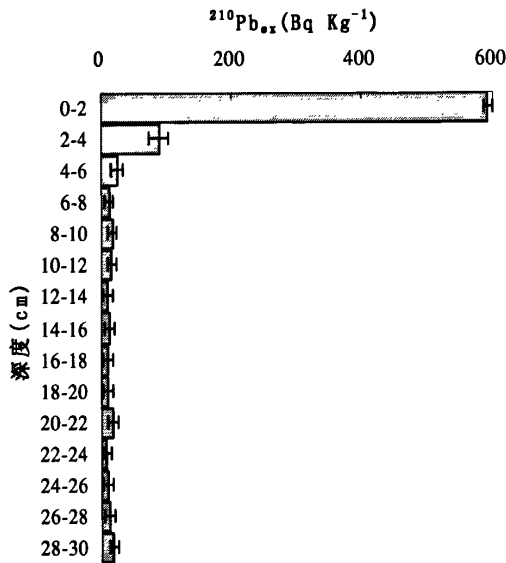


图 5-30 玛沁东倾沟乡高寒草甸地貌 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 的剖面分布

Fig. 5-30 The profile distribution of $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ of Alpine meadow, Dongqinggou, Maqin county

图 5-31 是玛沁军牧场高寒灌丛土壤中 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 的剖面分布情况, $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 主要分布在 0-40mm, 0-20mm 的土壤表层内含量最高, 为 438Bq/kg。在 20-40mm 土层内又急剧下降, 为 85Bq/kg。在 40-60mm 土层内含量为 35.82 Bq/kg。在 60-80mm 土层内含量为 28.04Bq/kg。从 0-20mm 土层 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 的分布来看, 与玛沁东倾沟分布极为相似, 含量都是很高的异常值。这是因为灌丛植被生长茂密, 总覆盖度 70-90%, 根系分布较深, 具有较好的保水保土的作用。

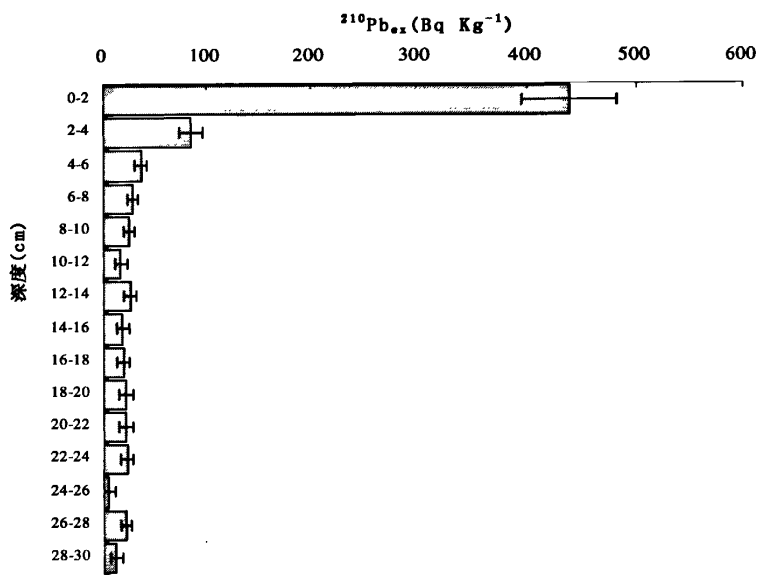


图 5-31 玛沁军牧场高寒灌丛地貌 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 的剖面分布

Fig. 5-31 The profile distribution of $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ of Alpine shrub, Jun pasture, Maqin county

图 5-32 是玛沁军功镇典型水蚀地貌坡面底部 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 在土壤中的剖面分布。从 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 在土壤中的剖面分布来看，该处是一个受降雨引起的土壤侵蚀较严重的区域。分别在 6-8cm，14-16cm，20-24cm 出现 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 的空白区。除此之外，其它各层都有 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 的分布。与图 5-27 相比，空白土层出现的位置大致相同，可以进一步验证五六十年代在该地区存在的极端暴雨事件。

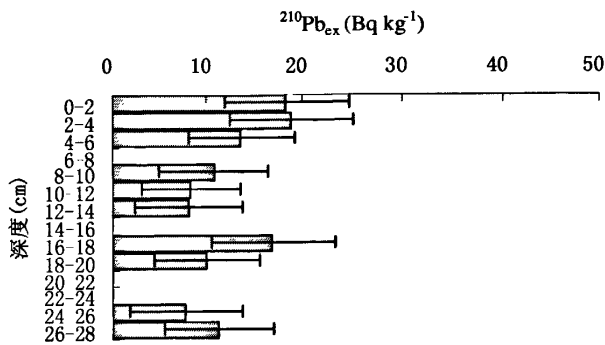


图 5-32 玛沁军功镇水蚀地貌 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 的剖面分布

Fig. 5-32 The profile distribution of $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ of water erosion site, Jungongzhen, Maqin county

5.2.7 沉积点沉积速率估算

根据¹³⁷Cs用于时标记年的原理，不同年份¹³⁷Cs大气沉降通量不同，全球大气沉降通量以1963年为最高，即1963年在沉积剖面中有一峰值（Davis R B. Hess C T, Norton S A, et al.,1984），如果流域土地利用长期保持不变，侵蚀速率各年之间差异不大，则沉积泥沙中¹³⁷Cs含量可以作为不同年份的沉积时标。如湖泊、水库沉积物或冲积平原沉积泥沙剖面中¹³⁷Cs的起始，表征1954年，白下而上，沉积泥沙剖面中¹³⁷Cs第一个峰值，也是最大峰值，表征1963年。此外，受切尔诺贝利核事故影响的地区，1986年沉积泥沙¹³⁷Cs含量出现第二个峰值沉积泥沙剖面中，从¹³⁷Cs出现到第一个峰值之间，为1954—1963年期间淤积泥沙厚度；在第一和第二个¹³⁷Cs含量峰值之间，为1963—1986年期间沉积泥沙厚度；若沉积没有间断，则第二个峰值位置到采样年之间沉积泥沙为1986年来淤积泥沙厚度（严平等，2000）。事实上，对于绝大多数沉积剖面，由于流域侵蚀泥沙来源和侵蚀过程本身的复杂性，加之年际间降雨等气候条件的变化，其¹³⁷Cs赋存量体现的剖面形态也多种多样，而且切尔诺贝利核事故对北半球的核素沉降影响不明显，所以真正能用来可靠断代的¹³⁷Cs沉积时标只有1963年的极大沉降时标。据此我们对玛沁军功镇典型沉积点的¹³⁷Cs剖面分布进行了研究，并根据¹³⁷Cs法示踪定年的理论推断土壤沉积点沉积深度100mm（图5-33）¹³⁷Cs峰值处应为1963年形成的峰，这样就很容易根据计算公式估算出自1963年以来的平均沉积速率（杨洪等，2004）：

$$S=d/t=d/(y-1963)=100/(2006-1963)=2.3\text{mm/a} \quad (\text{式5-9})$$

式中：S为沉积速率，d为沉积厚度，t为沉积速率，y为采样年份。

由式5-9得到，近四十年来该处土壤的沉积速率为2.3mm/a。

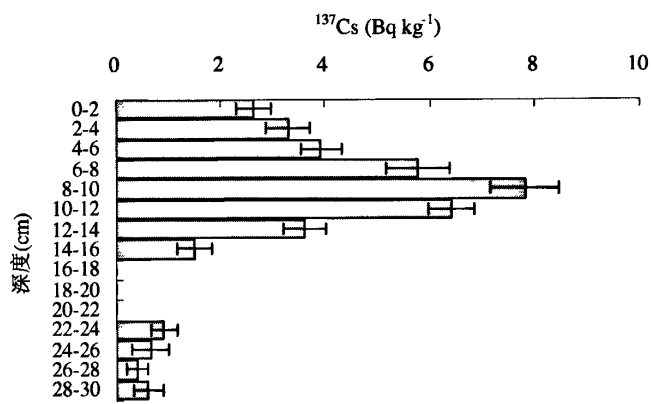


图 5-33 玛沁军功镇水蚀地貌 ¹³⁷Cs 的剖面分布

Fig. 5-33 The profile distribution of ¹³⁷Cs of water erosion site, Jungongzhen, Maqin county

5.2.8 青藏高原东西样带侵蚀速率计算

如前所述, ^{137}Cs 作为示踪核素研究土壤侵蚀, 它具有半衰期长 (30.3 年), 不要求特殊的制样, 并且在较大的区域内沉降相对较为均匀, 而且在土壤剖面内迁移深度较深, 适宜研究不同侵蚀类型等特点, 因而 ^{137}Cs 被广泛用来作为土壤侵蚀的良好示踪剂。通过测定 ^{137}Cs 在地表水平断面和垂直剖面上的空间分布, 可测定流域不同部位土壤侵蚀和沉积速率。采用 Walling 的非农耕地 ^{137}Cs 迁移-扩散模型, 对青藏高原不同样带坡面采样点土壤侵蚀/沉积速率和净侵蚀/沉积速率进行了定量计算, 详细各样带的土壤侵蚀、沉积速率见表 5-10 所示。

表 5-10 青海不同样带土壤侵蚀速率 (由 ^{137}Cs 模型计算得到)

Table 5-10 The erosion/sediment rate of district from west to east in Qing-Tibet Plateau (The result calculated by ^{137}Cs diffusion and migration model)

	沱沱河	玛多	玛沁东倾沟乡	玛沁军牧场	玛沁军功镇
上部 ($\text{t}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{yr}^{-1}$)	-4.38	7.23	1.64	0	-9.93
中部 ($\text{t}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{yr}^{-1}$)	-4.39	-1.95	8.14	1.41	-9.02
下部 ($\text{t}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{yr}^{-1}$)	1.37	-4.31	7.05	-1.63	-7.69
净侵蚀/堆积速率 ($\text{t}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{yr}^{-1}$)	-2.5	0.3	4.2	-0.1	-8

由 ^{137}Cs 模型计算的结果显示, 沱沱河、玛沁军功镇和玛沁军牧场属侵蚀区。侵蚀速率的大小顺序为: 玛沁军功镇>沱沱河>玛沁军牧场。玛多和玛沁东倾沟乡属堆积区, 堆积速率大小: 玛沁东倾沟乡>玛多。

沱沱河是青藏高原中西部地区大风日数出现的中心区, 主体年平均 (1971-2000 年) 大风日数在 168 天, 最高可以达到两天 1 次大风天气, 长江源区的年沙尘暴和扬沙过程的总和在 30 次以上 (韩永翔, 2005)。由沱沱河地区环境核素示踪的结果证明: 以沱沱河为中心的长江源地区是典型的风蚀区, 年侵蚀速率在 $2.5 \text{ t}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{yr}^{-1}$ 。此区可能是高原重要的沙尘暴源区之一。

黄河环抱的玛沁军功镇侵蚀比较严重, 从小流域和沟道冲刷下来的泥沙几乎都输送到黄河干流中, 这一地区的泥沙输移比接近 100%。净侵蚀速率为 $8 \text{ t}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{yr}^{-1}$ 。

相比之下, 玛沁军牧场因为灌丛植被没有受到人为破坏, 水土保持效益较好, 由模型计算得到的年侵蚀速率为 $0.1 \text{ t}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{yr}^{-1}$ 。

玛多和玛沁东倾沟乡的计算结果表明, 两处是堆积区。玛沁东倾沟乡的堆积速率为 $4.2 \text{ t}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{yr}^{-1}$ 。玛多的堆积速率为 $0.3 \text{ t}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{yr}^{-1}$ 。

表 5-11 青海不同样带土壤侵蚀速率 (由 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 模型计算得到)

Table 5-11 The erosion/sediment rate of district from west to east in Qing-Tibet Plateau (The result calculated by $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ diffusion and migration model)

	沱沱河	玛多	玛沁东倾沟乡	玛沁军牧场	玛沁军功镇
上部 ($\text{t}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{yr}^{-1}$)	0.23	1.72	7.2	0.64	-9.97
中部 ($\text{t}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{yr}^{-1}$)	5.05	2.21	7.74	3.87	-9.9
下部 ($\text{t}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{yr}^{-1}$)	10.07	4.33	6.61	3.63	-8.48
净侵蚀速率/堆积速率 ($\text{t}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{yr}^{-1}$)	3.8	2	5.3	2	-9.5

由 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 模型计算的结果显示, 玛沁军功镇的侵蚀速率变化特征是: 上部 > 中部 > 下部。净侵蚀速率为 $9.5 \text{ t} \cdot \text{ha}^{-1} \cdot \text{yr}^{-1}$ 。泥沙输移比接近 100%。这与 ^{137}Cs 模型计算的结果基本上是一致的。由 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 模型计算的玛多和玛沁东倾沟的堆积速率也和上面 ^{137}Cs 模型计算的结果较为接近。但是沱沱河和玛沁军牧场 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 模型计算的结果和 ^{137}Cs 模型计算的结果相反, 这是因为近四十年来, 青藏高原地区人类活动和气候变化的影响, 加剧了两地区土壤侵蚀的发展。

5.3 小结

运用 ^{137}Cs 和 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 示踪技术, 可以快速、高效地获得研究区域 40 年和 100 年来的平均侵蚀速率, 特别适合于青藏高原高海拔的恶劣环境下, 研究基础薄弱, 定位监测资料缺乏的地区进行土壤侵蚀的研究。本研究通过采集青藏高原从西向东样带 5 个典型景观植被类型地点土壤样品, 开展了样带土壤侵蚀速率的 ^{137}Cs 和 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 联合示踪研究, 查明了东西样带 ^{137}Cs 和 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 背景值的区域分布特征, 不同样带典型坡面尺度 ^{137}Cs 和 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 面积浓度的坡面分布规律, 研究了不同样带土壤剖面 ^{137}Cs 和 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 的剖面分布特征及其机制, 并分别应用 ^{137}Cs 和 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 的草地迁移-扩散模型计算了不同样带土壤的侵蚀速率。本研究的主要结论如下:

(1) 青海省 ^{137}Cs 背景值介于 $452.7\text{--}1714.1 \text{ Bq/m}^2$ 之间, 呈从西向东增加的分布特征, 和海拔高度的变化趋势总体一致。差异显著性分析结果表明: 沱沱河、玛多和玛沁东倾沟 ^{137}Cs 背景值在 0.05 水平差异不显著; 沱沱河与玛沁军牧场、军功镇 ^{137}Cs 背景值在 0.05 水平差异显著。

青海省 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 背景值介于 $2612\text{--}7377 \text{ Bq/m}^2$ 之间, 呈现从西向东逐渐增加的分布特征, 和海拔高度的变化趋势一致。沱沱河 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 的背景值与其它样带的背景值在 0.05 水平上差异显著。

东西样带 ^{137}Cs 和 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 背景值呈显著的线性关系, 方程为 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}} = 3.5853 \times ^{137}\text{Cs} + 1466.2$, $R^2 = 0.9519$ 。

(2) 沱沱河典型坡面 ^{137}Cs 与 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 的空间分布特征基本一致, 都是沿坡面从上到下含量逐渐递增, 说明 ^{137}Cs 与 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 在坡面上的迁移规律相同, 都在水力侵蚀的作用下随泥沙在坡面下部堆积。

玛多典型坡面上 ^{137}Cs 面积浓度的大小顺序为: 上部 > 顶部 > 中部 > 下部, 坡上部与坡下部的 ^{137}Cs 面积浓度差异明显。 ^{137}Cs 在坡面的上部造成明显的堆积, 在中部和下部含量骤然减少, 这可能是由于近 40 年来人为的过度放牧活动干扰造成的。 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 面积浓度的大小顺序为: 下部 > 中部 > 上部 > 顶部, 从坡上到坡下是递增的趋势, 说明近 100 年来 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 在水力侵蚀作用下沿坡面向下迁移的规律。各坡位 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 面积浓度差异不明显。

玛沁东倾沟乡典型坡面 ^{137}Cs 与 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 的面积浓度是沿坡面向下递增的趋势, 坡上部与坡下部的 ^{137}Cs 面积浓度差异明显。土壤在水力侵蚀作用下沿坡面向下运动, 在坡面下部造成堆积。

玛沁军牧场典型坡面景观 ^{137}Cs 与 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 的空间分布特征不一致。 ^{137}Cs 面积浓度的大小顺序为: 中部 > 上部 > 顶部 > 下部, 坡面各坡位 ^{137}Cs 面积浓度无明显差异。 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 面积浓度的大小顺序为: 中部 > 下部 > 上部 > 顶部。顶部和上部 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 面积浓度明显小于中部和下部。

玛沁军功镇典型坡面 ^{137}Cs 与 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 的空间分布特征一致。 ^{137}Cs 与 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 在强烈的水力侵蚀作用下, 上部的 ^{137}Cs 流失殆尽, 下部的 ^{137}Cs 与 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 大量堆积。 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 面积浓度的大小顺序为: 下部 > 顶部 > 中部 > 上部。坡面下部 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 面积浓度明显高于其它各坡位。

(3) 沱沱河高寒草原土壤剖面 0-40mm 的表层土壤中 ^{137}Cs 有分布, 40mm 以下没有 ^{137}Cs 的分布。在 0-20mm 土层 ^{137}Cs 的含量为 2.69Bq/kg, 显著高于 20-40mm 土层 ^{137}Cs 的含量(0.80 Bq/kg)。 ^{137}Cs 的分布特征是正常剖面上部被侵蚀掉, 表层 ^{137}Cs 含量低, 分布深度浅, 这是很典型的风蚀土壤剖面。

玛多土壤剖面 ^{137}Cs 主要分布在表层 0-80mm 之内。富集层出现在 60-80mm 土层内。80mm 以下土层指数递减。120-160mm 土层内出现 ^{137}Cs 的空白区, 160mm 以下有分布, 160-180mm 最高, 180mm 以下出现指数递减。这是该地区强烈的冻融侵蚀和水蚀造成的。120-160mm 土层内出现 ^{137}Cs 的空白区是由于上世纪 50 到 60 年代间, 玛多地区存在极端暴雨事件所致。

玛沁东倾沟乡高寒草甸土壤剖面 ^{137}Cs 分布在表层 0-60mm, 在 60mm 以下没有分布。在 0-20mm 的表层内 ^{137}Cs 高度富集, 含量达到 164.49Bq/kg, 在 20-40mm 急剧降低, 含量为 23.29 Bq/kg。这是由于该地区降雨量较多, ^{137}Cs 的沉降通量较高, 另外, 因为较薄的土层, 土壤中物理性粘粒含量较少, ^{137}Cs 富集在土壤表层, 没有向下淋溶迁移。

玛沁军牧场高寒灌丛土壤剖面 ^{137}Cs 分布在 0-40mm, 0-20mm 的土壤表层内含量最高, 在 20-40mm 土层内又急剧下降。在 40-60mm 土层内还有零星分布。0-20mm 土层 ^{137}Cs 的分布与玛沁东倾沟分布极为相似。军牧场 ^{137}Cs 剖面分布比东倾沟剖面分布深, 也比沱沱河的剖面分布深。这是因为灌丛植被生长茂密, 总覆盖度 70-90%, 根系分布较深, 具有较好的保水保土的作用, 在降雨作用下, ^{137}Cs 在土壤中随着物理性粘粒向下发生了迁移。

玛沁军功镇水蚀地貌土壤剖面 ^{137}Cs 在 8-10cm 处富集层。从表层到 10cm, ^{137}Cs 含量随着土层深度加深呈现递增的趋势。在 10-16cm 土层, ^{137}Cs 含量随着土层深度加深是呈现指数递减的趋势。在 16-22cm 处出现 ^{137}Cs 含量的空白区。这是一个典型的堆积区。 ^{137}Cs 含量的空白区是由于上世纪五六十年代该地区出现过较大的极端暴雨事件, 造成了土壤中 ^{137}Cs 的流失。

(4) 沱沱河高寒草原土壤剖面 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 分布较深, 达到土层 60cm 的深度。在 0-15cm 土层, $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 呈现指数递减的趋势。15-30cm 土层, 30-50cm 土层和 50cm 以下土层也是指数递减的趋势。 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 的最大值出现在 0-2cm 的土壤表层。

玛多土壤剖面 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 主要分布在表层 0-80mm 之内, 从表层到下部呈现指数递减的趋势。80-100mm 土层内出现空白区, 120-140mm 土层也几乎为空白。这与土壤剖面 ^{137}Cs 空白区出现的位置接近。这印证了上面所作的结论, 即在上世纪 50 到 60 年代间, 该地区存在极端暴雨事件, 造成土壤中 ^{137}Cs 和 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 的流失。

玛沁东倾沟乡高寒草甸土壤剖面 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 主要分布在 0-40mm。0-20mm 内 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 高度富集, 而在 20-40mm 又急剧降低。这是因为该地区降雨较多, $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 的沉降通量较高, 另外土层较薄, 土壤物理性状较差, 阻碍了 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 向土层下部淋溶入渗。

玛沁军牧场高寒灌丛土壤剖面 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 主要分布在 0-40mm, 0-20mm 的土壤表层内含量最高。在 20-40mm 土层内又急剧下降。在 40-60mm 土层内含量为 35.82 Bq/kg。在 60-80mm 土层内含量为 28.04Bq/kg。与玛沁东倾沟分布相似。这是因为灌丛植被生长茂密, 总覆盖度 70-90%, 根系分布较深, 具有较好的保水保土的作用。

玛沁军功镇典型水蚀地貌土壤剖面 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 分别在 6-8cm, 14-16cm 和 20-24cm 出现空白区。除此之外, 其它各层都有 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 的分布。空白土层出现的位置与 ^{137}Cs 大致相同, 进一步验证五六十年代在该地区存在的极端暴雨事件。

(5) 近四十年来玛沁军功镇典型沉积点土壤的沉积速率为 2.3mm/a 。

(6) 沱沱河、玛沁军功镇和玛沁军牧场属侵蚀区。以沱沱河为中心的长江源地区是典型的风蚀区，年侵蚀速率在 $2.5\text{ t}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{yr}^{-1}$ 。此区是高原重要的沙尘暴源区之一。黄河环抱的玛沁军功镇水力侵蚀较严重，净侵蚀速率为 $8\text{ t}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{yr}^{-1}$ 。玛沁军牧场植被水土保持效益较好，年侵蚀速率为 $0.1\text{ t}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{yr}^{-1}$ 。玛多和玛沁东倾沟乡属堆积区。玛沁东倾沟乡的堆积速率为 $4.2\text{ t}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{yr}^{-1}$ 。玛多的堆积速率为 $0.3\text{ t}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{yr}^{-1}$ 。

(7) 近四十年来，青藏高原地区人类活动和气候变化的影响，尤其是牧民的过度放牧造成的植被破坏与极端气候事件加速了青藏高原地区土壤侵蚀的发生和发展。

第六章 全文结论

6.1 结论

近年来大气沉降的环境放射性核素示踪技术在土壤侵蚀和环境演变的研究中得到了广泛应用,已经成为流域与环境系统研究领域的主要组成部分。尤其是高分辨率的核技术定量化研究方面,成为研究中的关键手段,克服了传统研究土壤侵蚀规律的方法的局限性,拓宽了土壤侵蚀研究手段,可以深入研究土壤侵蚀的规律。

本论文从核示踪方法、技术与应用角度,对环境放射性核素野外原位示踪和传统示踪的方法进行比较研究,通过环境放射性核素国际分析比对研究探讨了环境放射性核素分析的不确定性,并应用建立的分析方法对我国青藏高原地区土壤侵蚀进行环境放射性核素示踪研究。得到以下几点主要结论:

1. 应用 ISOCS γ 谱仪原位测量系统在野外可以实时动态地监测核素分布情况,可根据测定结果很快确定参考点,测定内蒙古草原土壤中的环境放射性核素 ^{137}Cs 和 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 的面积浓度,并计算出内蒙古锡林浩特草原土壤风蚀速率为 $0.8 \text{ t}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{yr}^{-1}$ 。 ^{137}Cs 的原位测定技术是定量评价土壤侵蚀速率的有效技术。核素在土壤中的剖面分布深度及探头实际照射面积的确定是影响环境放射性原位测定不确定性的的重要因素。

2. 人工放射性核素 ^{137}Cs 分析不受 γ 谱仪铅室本底的影响,受土壤母质的影响较小,分析的合成不确定度较小,用较短的测量时间就能达到要求的精度。 ^{210}Pb 分析对 γ 谱仪的要求比较高,需要考虑土壤母质,铅室本底,装样容器形状和材料等不确定度来源因素的影响,进行精确的无源效率刻度。而且要达到要求的精度,需要较长的测量时间。

3. 制定的3组标准样品 ^{210}Pb 比活度的标准偏差为 2.10Bq/kg , 相对标准偏差为 2.61%。 ^{137}Cs 比活度的标准偏差为 0.22Bq/kg , 相对标准偏差为 5.2%。3组标准样品 ^{210}Pb 和 ^{137}Cs 比活度在 0.05 水平上无显著差异。采用蒙特卡洛无源效率刻度方法的低本底 HPGe 宽能 γ 谱仪系统,对于低能端核素 ^{210}Pb (46.5keV) 分析的精确度和准确度保证至关重要。该标准物质的均匀性和稳定性可以满足低活度放射性核素国际分析比对的要求。

4. 青海省 ^{137}Cs 背景值介于 $452.7\text{--}1714.1\text{Bq/m}^2$ 之间,呈从西向东增加的分布特征,和海拔高度的变化趋势总体一致。青海省 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 背景值介于 $2612\text{--}7377\text{Bq/m}^2$ 之间,呈现从西向东逐渐增加的分布特征,和海拔高度的变化趋势一致。东西样带 ^{137}Cs 和 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 背景值呈显著的线性关系,方程为 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}} = 3.5853 \times ^{137}\text{Cs} + 1466.2$, $R^2 = 0.9519$ 。这主要是由于 ^{137}Cs 和 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 随降雨湿沉降到达地表,从西向东样带随海拔降低降雨量的逐渐增多造成 ^{137}Cs 和 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 的沉降通量增多的结果。

5. 沱沱河高寒草原典型坡面 ^{137}Cs 与 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 的空间分布特征基本一致,都是沿坡面从上到下含量逐渐递增,由于 ^{137}Cs 与 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 在水力侵蚀的作用下随泥沙在坡面上向下迁移造成坡下部堆积。沱沱河高寒草原土壤剖面 ^{137}Cs 在 0-40mm 内有分布,在 0-20mm 内富集。 ^{137}Cs 的分布特征是正常剖面上部被侵蚀掉,表层 ^{137}Cs 含量低,分布深度浅,属于典型的风蚀土壤剖面。沱沱河高

寒草原土壤剖面 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 分布较深, 达到土层 60cm 的深度。在 0-15cm 土层, $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 呈现指数递减的趋势。15-30cm 土层, 30-50cm 土层和 50cm 以下土层也是指数递减的趋势。 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 的最大值出现在 0-2cm 的土壤表层。以沱沱河为中心的长江源地区是典型的风蚀区, 年侵蚀速率在 $2.5 \text{ t}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{yr}^{-1}$ 。此区是高原重要的沙尘暴源区之一。

6. 玛多典型坡面坡上部与坡下部的 ^{137}Cs 面积浓度差异明显。 ^{137}Cs 在坡面的上部造成明显的堆积, 在中部和下部含量骤然减少。 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 面积浓度从坡上到坡下呈递增趋势, 这是近 100 年来水力侵蚀作用下造成 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 沿坡面向下迁移的结果。玛多土壤剖面 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 主要分布在表层 0-80mm 之内, 从表层到下部呈现指数递减的趋势。80-100mm 土层内出现空白区, 与土壤剖面 ^{137}Cs 空白区出现的位置接近。这是 20 世纪 50 到 60 年代间, 该地区发生的极端暴雨事件, 造成土壤中 ^{137}Cs 和 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 流失的结果。近 40 年来玛多地区由于人类扰动造成的土壤流失比自然因素的影响更大。玛多坡面堆积速率为 $0.3 \text{ t}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{yr}^{-1}$ 。

7. 玛沁东倾沟乡和军牧场属三江源地区生态保护核心区, 研究结果表明两地区 ^{137}Cs 和 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 都大致分布在土壤剖面中 0-40mm 内, 在 0-20mm 内高度富集, 在 20-40mm 急剧降低。这是由于该地区较多的降雨量造成 ^{137}Cs 和 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 湿沉降较多, 另外, 因为该地区土层较薄且土壤物理性粘粒含量较少, 阻碍了核素向土层下部淋溶入渗, 造成 ^{137}Cs 和 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 富集在土壤表层。玛沁东倾沟乡的堆积速率为 $4.2 \text{ t}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{yr}^{-1}$ 。玛沁军牧场高寒灌丛植被水土保持效果较好, 几乎没有侵蚀发生。玛沁军功镇典型水蚀地貌 ^{137}Cs 在土壤剖面中 8-10cm 富集, ^{137}Cs 剖面分布呈现单峰曲线。在 16-22cm 土层出现 ^{137}Cs 含量的空白区, 土壤剖面中 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 的空白区出现位置与 ^{137}Cs 相同, 这是 20 世纪 50 到 60 年代间该地区出现的极端暴雨事件造成的。玛沁军功镇由于植被破坏引起的水力侵蚀比较严重, 净侵蚀速率为 $8 \text{ t}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{yr}^{-1}$ 。

8. 近 40 年来, 青藏高原三江源地区由于人类活动和高原极端气候事件的影响, 加速了高原地区土壤侵蚀的发生和发展。

6.2 论文的研究特色与创新点

6.2.1 本论文的研究特色

本论文的研究特色概括为以下几个方面: (1) 以内蒙古锡林浩特草原土壤风蚀为研究对象, 初步建立了环境放射性核素原位示踪土壤风蚀的技术体系; (2) 基于核分析技术的环境放射性核素原位和室内分析技术体系的建立; (3) 联合使用 ^{137}Cs 与 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 示踪青藏高原高海拔地区土壤侵蚀的分布格局及历史。

6.2.2 创新点

(a) 应用 ISOCS γ 谱仪原位测量系统测定内蒙古草原土壤中的环境放射性核素 ^{137}Cs 和 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 的面积浓度, 并估算出土壤侵蚀速率。证明 ^{137}Cs 的原位测定技术是定量评价土壤侵蚀速率的有效技术。这项研究在国际上的公开报道还不多见。

(b) 通过环境放射性核素的国际比对和标准样品的制作研究, 查明了影响环境放射性核素分析不确定性因素的主要来源, 建立了环境放射性核素分析的程序和方法。

(c) 综合了现有的适用于坡面侵蚀的 ^{137}Cs 和 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 示踪技术, 建立了适用于青藏高原地区土壤侵蚀研究的 ^{137}Cs 和 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 示踪技术体系, 评价了青藏高原东西样带土壤侵蚀的分布格局, 进一步发展了 ^{137}Cs 和 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 示踪技术在高海拔地区土壤侵蚀定量研究中的应用。

6.3 本研究的不足之处

本研究利用 ISOCS 原位核素示踪技术定量评价了内蒙古草原风蚀地区的土壤侵蚀速率, 并应用建立的 ^{137}Cs 和 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 核素联合示踪技术评价了青藏高原高海拔地区不同样带坡面尺度上土壤侵蚀的分布格局。这项研究在国际上仍不多见报道, 属于初步性的尝试工作, 所以不可避免地存在一些不足之处, 主要包括以下几个方面:

首先, 环境放射性核素原位测定土壤侵蚀示踪元素 ^{137}Cs 、 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 和 ^7Be 的技术尚需进一步完善。主要体现在原位示踪技术在坡度较大的坡面如何确定坡度等地形因素对测定结果的影响; 以及如果探头使用三脚架测定, 没有铅室屏蔽的条件下, 如何确定探头照射的有效面积, 以及探头高度对于测定结果的影响; 核素在土壤剖面中的分布状况以及核素在不同土壤粒径中含量的百分比等因素对测定结果的影响; 这些问题都是需要在进一步的研究中加以验证。

其次, 本研究取样技术有待进一步改进。就坡面侵蚀来说, 高海拔地区灌草地的空间异质性非常明显, 坡面侵蚀过程十分复杂。一个坡面往往被分割成多个半独立坡面单元, 不仅构成地块之间的界限, 也改变了坡面径流产汇形式, 如何确定取样典型地块以及取样密度是一个难题。本研究中坡地采样方案保证了准确查明该流域内坡地侵蚀模数的需要, 但在查明坡面内部不同地块核素分布和变异特征却存在缺陷, 研究精度受到一定限制。

再次, 本研究是对青藏高原不同样带土壤侵蚀速率的分布研究, 涉及到尺度转化的问题, 如何将坡面尺度尚的分析结果应用到小流域以及区域尺度上, 由于缺少大尺度研究结果的比照, 尺度转换问题得不到很好的解决。

6.4 展望

土壤侵蚀带来的水土流失和洪涝灾害问题, 是青藏高原三江源地区也是我国整个中西部地区面临的主要环境问题之一, 区域水土流失调查研究工作需要进一步加强, 许多重要问题有待于深入研究和进一步探讨。

(1) 原位和室内结合的多核素示踪技术体系的进一步发展。本研究中应用的示踪核素为 ^{137}Cs 和 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$, 今后的工作中需要结合 ^7Be 等核素, 开展多核素复合示踪研究, 充分利用不同核素的沉降、赋存特点, 提高研究精度, 拓展研究的时间尺度。改进坡面侵蚀取样技术, 提高对坡面侵蚀时空变化特征的认识。

(2) 核示踪技术需要与 GPS、RS 和 GIS 技术进一步紧密结合, 充分发挥不同技术的优势, 相互验证, 解决研究精度和空间尺度转化等问题。核示踪技术是小尺度上精确研究的可靠手段;

3S 技术是解决区域土壤侵蚀强度与格局的重要技术手段。二者的联合应用,一方面可以应用 ^{137}Cs 示踪技术快速、准确的查明研究区域典型地点的土壤侵蚀强度,为 RS 调查提供可靠解译标准,提高 RS 解译结果的准确度;另一方面,3S 技术可以高效解决区域侵蚀格局和强度问题,克服单纯应用 ^{137}Cs 示踪技术在大尺度研究方面的不足。

参考文献

1. 柴之芳. 核分析技术与环境科学. 核技术. 1999, 22 (7): 441-448.
2. 丁富荣, 班勇, 夏宗瑄, 等. 辐射物理. 北京: 北京大学出版社, 2004.
3. 范钟庆. 青海省黄土侵蚀与保持水土的对策研究. 青海师范大学学报. 2003, 2: 80-83.
4. 冯明义, 文安邦. 中国土壤侵蚀的 ^{137}Cs 法研究进展. 水土保持学报. 2002, 16 (2): 61-64.
5. 高明, 杨浩, 刘磊, 唐敏. ^7Be 在示踪土壤侵蚀和沉积物中的研究探讨. 2006, 13(5): 282-285.
6. 韩永志. 标准物质的现状及其进展. 化学标准·计量·质量, 2001, 12: 26-30.
7. 韩永志. JJF 1006-1994: 一级标准物质技术规范. 国家标准物质中心. 北京. 1994.
8. 韩永志. 标准物质的制备. 化学分析计量. 2001, 10(2): 34-35.
9. 韩永翔. 青藏高原沙尘及其气候环境意义研究[博士学位论文]. 兰州: 兰州大学, 2005.
10. 胡云峰, 刘纪远, 庄大方, 等. 风蚀土壤剖面 ^{137}Cs 的分布及侵蚀速率的估算. 科学通报, 2005, 50 (9): 933-937.
11. 黄治俭. 关于环境样品 γ 能谱测量中质量控制的几个问题. 辐射防护, 1994, 14(5): 388-396.
12. 姜让荣, 向元益. 全国环境样品中放射性核素 γ 谱分析比对. 核电子学与探测技术, 2000, 20(5): 384-389.
13. 李勇, 张晴雯, 章力建, 等. 应用环境放射性核素示踪技术研究农业立体污染的构思. 核农学报, 2005, 19(5): 396-400.
14. 李立青. ^7Be 和 ^{137}Cs 复合示踪坡耕地土壤侵蚀产沙的空间分布特征[硕士学位论文]. 杨凌: 西北农林科技大学, 2003.
15. 李勉. 小流域侵蚀速率与产沙关系的 ^{137}Cs 、 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 示踪研究[博士学位论文]. 杨凌: 西北农林科技大学, 2002.
16. 李仁英, 杨浩, 唐翔宇. 土壤中 ^{137}Cs 的化学性质及其分布规律. 核农学报, 2001, 15 (6): 371-379.
17. 李仁英, 杨浩, 唐翔宇, 赵晓光. 黄土高原地区 ^{137}Cs 的分布及其影响因子研究. 土壤学报, 2004, 41 (4): 628-631.
18. 刘广山, 黄弈普, 李静. 不平衡铀系和钍系核素的 γ 谱测定. 海洋学报, 2003, 25(5): 65-75.
19. 刘广山, 黄弈普, 蔡毅华, 等. 东太平洋多金属结核中放射性核素的不破坏 γ 谱分析. 海洋学报, 2001, 23(4): 48-58.
20. 刘兆华. 环境样品放射性活度用HPGe γ 谱仪测量的误差来源分析. 中国辐射卫生, 2005, 14 (2): 147-148.
21. 田东风, 龚健, 伍鈞, 等. 核材料 γ 特征谱的探测和分析技术. 北京: 国防工业出版社, 2005.
22. 刘广山. 海洋放射性核素测量方法. 北京: 海洋出版社, 2006.
23. 刘纪远, 齐永青, 师华定, 等. 蒙古高原塔里亚特-锡林郭勒样带土壤风蚀速率的 ^{137}Cs 示踪分析. 科学通报, 2007, 52(23): 2785-2791.
24. 马元彪, 等. 青海土壤. 北京: 中国农业出版社, 1997.

25. 牛胜利, 朱金辉, 赵 军.一种就地 HPGe γ 谱仪校准系数的计算研究.核电子学与探测技术,2005, 25(1): 16~19.
26. 马琨, 马远远, 马斌, 等. 宁南黄土高原土壤 ^{137}Cs 分布与相关影响因子研究. 水土保持学报, 2008, 22 (1): 52-55.
27. 濮励杰, 包浩生, 彭补拙, David L Higgitt. ^{137}Cs 应用于我国西部风蚀地区土地退化的初步结果.土壤学报, 1998, 35 (4): 441-449.
28. 齐永青, 贺秀斌, 等.中国 ^{137}Cs 本底值区域分布研究. 核技术, 2006, 29(1) : 42-50.
29. 苏 琼, 郑 锐, 陈 勇, 等. ^{226}Ra 与 ^{222}Rn 平衡未知样品快速报告 ^{226}Ra 活度的 γ 谱方法的可行性研究.核技术,2005, 25(5): 65-75.
30. 苏琼, 高亚民. 一次低活度核素分析国际比对数据的再分析. 核电子学与探测技术, 1991, 11 (4): 224-230.
31. 苏琼, 郑 锐, 陈 勇, 程建平. ^{226}Ra - ^{222}Rn 平衡未知样品快速报告 ^{226}Ra 活度的 γ 谱方法的可能性研究. 核技术, 2005, 28 (11): 826-832.
32. 唐克丽, 等.中国水土保持.北京: 科学出版社, 2004.
33. 唐翔宇, 杨浩, 李仁英, 赵其国. ^7Be 在土壤侵蚀示踪中的应用研究进展.地理科学进展.2001, 16 (4): 520-525.
34. 谭金波, 唐贞信, 郝润龙.河流沉积物环境放射性标准物质的研制.计量学报, 1995, 16 (2): 137-141.
35. 王远大, 刁立军, 唐培家, 蒋崧生. 参加环境样品中放射性核素活度国际比对的结果. 辐射防护, 1999, 19(3) : 208-213.
36. 王福钧. 农学中的同位素示踪技术. 北京: 农业出版社, 1989.
37. 王江山. 青海天气气候. 北京: 气象出版社, 2004.
38. 王国祯. 青海气象史. 北京: 气象出版社, 2004.
39. 王晓燕, 田均良, 杨明义. 示踪技术在流域泥沙研究中的应用. 泥沙研究. 2003, 1: 18-23.
40. 魏建方. 青藏铁路建设中高寒草原植被恢复与再造技术的研究. 冰川冻土. 2003, 25(1) : 195-198.
41. 万国江, P. G. Appleby.环境生态系统散落核素示踪研究新进展.地球科学进展.2000.15 (2) : 172-177.
42. 徐蒲生, 毛志强, 贺志清. 中国土壤. 北京: 中国农业出版社, 1998.
43. 项亮. 核素示踪对湖泊环境变化的研究[博士学位论文].南京: 中国科学院南京地理与湖泊研究所, 2000.
44. 许淑艳. 蒙特卡罗方法在实验核物理中的应用. 北京: 原子能出版社, 2006.
45. 许宜北. 区域水土流失评价的遥感与核素示踪技术研究[博士学位论文].成都: 中国科学院、水利部成都山地灾害与环境研究所, 2007.
46. 杨明义. ^{137}Cs 法研究小流域土壤侵蚀与沉积空间分布特征[硕士学位论文].杨陵: 中国科学院水利部水土保持研究所, 1997.
47. 杨明义. 多核素复合示踪定量研究坡面侵蚀过程[博士学位论文].杨陵: 中国科学院水利部水土保持研究所, 2001.

48. 严平, 董光荣, 等. 青海共和盆地土壤风蚀的 ^{137}Cs 法研究 (I). 中国沙漠, 2003, 23 (3): 268-274.
49. 严平, 董光荣, 等. 青海共和盆地土壤风蚀的 ^{137}Cs 法研究 (II). 中国沙漠, 2003, 23 (4): 391-397.
50. 严平, 董光荣, 等. 青海共和盆地达连海湖积物 ^{137}Cs 示踪的初步结果. 地球化学, 2000, 29 (5): 469-474.
51. 严平, 董光荣, 等. ^{137}Cs 法测定青藏高原土壤风蚀的初步结果. 科学通报, 2000, 45 (2): 199-204.
52. 杨洪, 易朝路, 刑阳平, 杨涛. $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 和 ^{137}Cs 法对比研究武汉东湖现代沉积速率. 华中师范大学学报, 2004, 38 (1): 109-113.
53. 朱文凯, 陈军, 熊建平, 陈坤. 两套HPGe γ 谱仪对土壤样品的测量结果比对分析. 核电子学与探测技术, 2005, 25(2): 150-153.
54. 朱文凯, 陈军, 熊建平, 陈坤. ISOCS系统无源效率刻度测量方法的准确性检验. 全国第十二届核电子学与核探测技术学术年会论文集, 2004, 374-377.
55. 周钢, 等. 土壤样品中 ^{137}Cs 活度测量的误差分析及修正方法. 核电子学与探测技术, 2006, 26 (3): 345-348.
56. 张文德, 等. 环境样品放射性测量中样品盒形状的最佳选择. 核技术, 2007, 30 (2): 157-160.
57. 张佳媚, 师全林, 白涛, 等. γ 能谱分析土壤样品中几种人工放射性核素的活度. 同位素, 2005, 16 (1): 102-107.
58. 张春来, 邹学勇, 董光荣, 等. 干草原地区土壤 ^{137}Cs 沉积特征. 科学通报. 2002, 47 (3): 221-225.
59. 郑永春, 王世杰. ^{137}Cs 的土壤地球化学及其侵蚀示踪意义. 水土保持学报. 2002a, 16 (2): 57-60.
60. 郑永春, 王世杰, 欧阳自远. 地球化学示踪在现代土壤侵蚀研究中的应用. 地理科学进展. 2002b, 21 (5): 507-516.
61. A. Shakhashiro, A.M.Gondin da Fonseca Azeredo, & U.Sansone, A. Fajgelj. Matrix material for proficiency testing: optimization of a procedure for spiking soil with gamma-emitting radionuclides. Anal Bioanal Chem, 2007, 387:2509-2515.
62. A.Fajgelj, M.Belli, &U.Sansone. Combining and Reporting Analytical Results. The proceedings of the International Workshop Combining and Reporting Analytical Results: The Role of Traceability and Uncertainty for Comparing Analytical Results. Rome. 2006.
63. Appleby, P. G., & Oldfield, F. Application of lead-210 to sedimentation studies. In M. Ivanovich and R.S. Harman (Eds.), Uranium-series disequilibrium: Applications to earth, marine, and environmental science (pp.731-738). Oxford: Clarendon Press. 1992.
64. Beck, H.L., DeCampo, J., & Gogolak, C. In situ Ge (Li) and NaI (Ti) gamma-ray spectrometry. USDOE Report HASL-258. Washington: US Department of Energy. 1972.
65. Bum Kyoung Seo, Kil Yong Lee, Yoon Yeol Yoon, & Dae Won Lee. Direct and precise determination of environmental radionuclides in solid materials using a modified Marinelli

- beaker and a HPGe detector. *Fresenius J Anal Chem*, 2001, 370:264–269.
66. Crickmore, M. J., Tazioli, G. S., Appleby, P. G., & Oldfield, F. The use of nuclear technique in sediment transport and sedimentation problems, IHP-III Project 5.2 SC-90/WS-49. Paris: UNESCO. 1990.
67. Chesnokov A V, Govorun A P, et al. Method and device to measure ^{137}Cs soil contamination in-situ. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*, 1999, 420:336–344.
68. Chappell A. The limitations of using ^{137}Cs for estimating soil redistribution in semi-arid environments. *Geomorphology*, 1999, 29:135–152.
69. Cambray, R. S., Playford, K., Lewis, G.N.J., & Carpenter R.C. Radioactive fallout in air and rain: results to the end of 1988. AERE-R-13575. Harwell: UK Atomic Energy Authority. 1989.
70. Carter, M.W., & Moghissi, A.A. Three decades of nuclear testing. *Health Phys*, 1977, 33:55–71.
71. Canberra Industries, Inc. Genie™ 2000 3.0 Operations Manual. Copyright 2004.
72. Canberra Industries, Inc. Genie™ 2000 Tutorials. Copyright 2004.
73. Canberra Industries, Inc. Genie™ 2000 Spectroscopy Software. Customization Tools. Copyright 2004.
74. Davis, J.J. Caesium and its relationship to potassium in ecology. In V. Schultz and A.W. Klement Jr. (Eds.), *Radioecology* (pp.539-556). New York: Reinhold. 1963.
75. Davis R B, Hess C T, Norton S A, et al. ^{137}Cs and ^{210}Pb dating of sediments from soft-water lakes in New England and Scandinavia, a failure of ^{137}Cs dating. *Chem. Geol.*, 1984, 44: 151–185.
76. Dahlman, R.C., & Auerbach, S.I. Preliminary estimation of erosion and radiocesium redistribution in a fescue meadow, ORNL-TM-2343. Oak Ridge: Oak Ridge National Laboratory. 1968.
77. Frere, M.H., & Roberts, H.J. Jr. The loss of strontium⁹⁰ from small cultivated watershed. *Soil Science Society of America Proceeding*, 1963, 27:82–83.
78. F.L. Bronson. Validation of the accuracy of the LabSOCS software for mathematical efficiency calibration of Ge detectors for typical laboratory samples. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 2003, 255(1):137–141.
79. Graham, E.R. Factors affecting Sr-85 and I-131 removal by runoff water. *Water and Sewage Works*, 1963, 110:407–410.
80. IAEA. Use of ^{137}Cs in the study of soil erosion and sedimentation, IAEA-tecdoc-1028. Vienna: IAEA. 1998.
81. IAEA. Quantifying uncertainty in nuclear analytical measurements. IAEA-TECDOC-1401. Vienna: IAEA. 2004.
82. IAEA. Report on the ALMERA Meeting 2006 at the Korea Institute of Nuclear Safety (KINS) Daejeon, Korea. 2006.
83. K. Heydorn. Evaluation of the uncertainty of environmental measurements of radioactivity,

- Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, 2004, 262(1): 249–253.
84. Menzel, R.G. Transport of strontium-90 in runoff. *Science*, 1960, 131: 499–500.
 85. McHenry, J.R., & Ritchie J.C. Estimating field erosion losses from fallout Cs-137 measurements. IAHS Publication 122(pp.26-33). Wallingford: IAHS Press. 1977.
 86. Marck Makarewicz. Estimation of the uncertainty components associated with the measurement of radionuclides in air filters using γ -ray spectrometry. Accred Qual Assur, 2005.
 87. F. L. Bronson. Validation of the accuracy of the LabSOCS software for mathematical efficiency calibration of Ge detectors for typical laboratory samples. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 2003, 255(1): 137–141.
 88. Golosov V N, Walling D E, Vasnikova E V K, et al. Nikolaev, A.V. Panin. Application of a field-portable scintillation detector for studying the distribution of ^{137}Cs inventories in a small basin in Central Russia. *Journal of Environmental Radioactivity*, 2000, 48:79–94.
 89. He Q, & Walling D E. Calibration of a field-portable gamma detector to obtain in situ measurements of the ^{137}Cs inventories of cultivated soils and floodplain sediments. *Applied Radiation and Isotopes*, 2000, 52: 865–872.
 90. Joshi, S.R. Non-destructive determination of lead-210 and radium-226 in sediments by direct photon analysis. *Journal of Radioanalysis and Nuclear Chemistry Articles*, 1987, 116: 169–182.
 91. Kachanoski, R.G. Estimating soil loss from changes in soil Cesium-137. *Canadian Journal of Soil Science*, 1993, 73: 515–526.
 92. Krishnaswami, S., Benninger, L. K., Aller R. C., & Von Damm, K. L. Atmospherically-derived radionuclides as tracers of sediment mixing and accumulation in near-shore marine and lake sediments: evidence from ^7Be , ^{210}Pb and $^{239,240}\text{Pu}$. *Earth and Planetary Science Letters*, 1980, 47: 307–318.
 93. K. Heydorn. Evaluation of the uncertainty of environmental measurements of our radioactivity. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 2004, 262(1):249–253.
 94. L. S. Quindós, C. Sainz, I. Fuente, J. Nicolás, L. Quindós, & J. Arteche. Correction by self-attenuation in gamma-ray spectrometry for environmental samples. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 2006, 270(2): 339–343.
 95. Loughran, R.J., Elliott, G.L., Campbell B. L., Kiernan K., & Temple-Smith M. G.A reconnaissance survey of soil erosion in Australia. In *Proceedings of the 7th ISCO Conference Sydney, September 1992, Vol 2.1*(pp. 52-63). Sydney: International Soil Conservation Organization.
 96. Murray, A.S., Marten, R., Johnston A., & Martin P. Analysis of naturally occurring radionuclides at environmental levels with gamma spectrometry. *Journal of Radiation and Nuclear Chemistry*, 1987, 115: 263–288.
 97. Nozaki, Y., DeMaster, D.J., Lewis, D.M. & Turekain, K.K. Atmospheric ^{210}Pb fluxes determined from soil profiles. *Journal of Geophysical Research*, 1978, 83 (C8) :4047–4051.
 98. Nir-El Y, Lavi N, et al. In situ gamma-ray spectrometric measurement of uranium in phosphate

- soils. *Journal of Environmental Radioactivity*, 1999, 45:185–190.
99. P. Arıkan, O. Acar, & R. Acar. Establishment of a quality system for nuclear analytical laboratories. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 2004, 259(3):391–394.
100. P. Oropesa, A. Hernández, & R. Gutiérrez. Technical factors of quality management in gamma-ray spectrometry of environmental samples. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 2000, 243(3): 809–816.
101. Playford, K., Toole, J., & Adsley, I. Radioactive fallout in air and rain: results to the end of 1991. AEA-EE-0498. Harwell: UK Atomic Energy Authority. 1993.
102. P. Porto, & D.E. Walling, V. Tamburino, G. Callegari. Relating caesium-137 and soil loss from cultivated land. *Catena*, 2003, 53 :303–326.
103. P.P. Povinec. Low-level gamma-ray spectrometry for environmental samples. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 2008, 10(1):1–7.
104. Roland R, Benke, Kimberlee J, & Kearfott B. Demonstration of a collimated in situ method for determining depth distributions using γ -ray spectrometry. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*, 2002, 482:814–831.
105. Report on the IAEA-CU-2006-02 proficiency test on the determination of ^{137}Cs and ^{210}Pb in spiked soil, IAEA/AL/166, April 2006.
106. Ritchie J C, McHenry J R, & Gill A C. The distribution of ^{137}Cs in the upper 10cm of soil under different cover types in northern Mississippi. *Health Phys*, 1972, 22:197–198.
107. Ritchie, J. C. & McHenry, J. R. Determination of fallout Cs-137 and natural gamma-ray emitting radionuclides in sediments. *International Journal of Applied Radiation and Isotopes*, 1973, 24:575–578.
108. Ritchie, J. C. & McHenry, J. R. Application of radioactive fallout cesium-137 for measuring soil erosion and sediment accumulation rates and patterns: a review. *Journal of Environmental Quality*, 1990, 19:215–233.
109. Ritchie, J. C. & Ritchie C. A. Bibliography of publications of ^{137}Cs studies related to soil erosion and sediment deposition. In *Use of ^{137}Cs in the study of soil erosion sedimentation*, IAEA-TECDOC-1028(pp.63-116), Vienna: IAEA. 1998.
110. Ritchie, J. C. & Ritchie C. A. Bibliography of publications of ^{137}Cs studies related to soil erosion and sediment deposition. <http://hydrolab.arsusda.gov/cesium/>. 2001.
111. Ritchie, J. C., Spraberry, J.A., & McHenry, J.R. Estimating soil erosion from the redistribution of fallout Cs-137. *Soil Science Society of America Proceedings*, 1974, 38:137–139.
112. Ritchie, J. C. & McHenry, J. R. Fallout Cs-137: a tool in conservation research. *Journal of Soil and Water Conservation*, 1975, 30:283–286.
113. Robbins, J.A. Geochemistry and Geophysical application of radioactive lead. In J.O. Nriagu (Ed.), *the biochemistry of lead in the environment* (pp.285-393). Amsterdam: Elsevier. 1978.
114. Rogowski, A.S., & Tamura, T. Movement of ^{137}Cs by runoff, erosion and infiltration on the alluvial Captina silt loam. *Health Physics*, 1965, 11:1333–1340.

115. Rogowski, A.S., & Tamura, T. Environmental mobility of cesium-137. *Radiation Botany*, 1970a, 10:35–45.
116. Rogowski, A.S., & Tamura, T. Erosional behavior of caesium-137. *Health Physics*, 1970b, 18:467–477.
117. S.P.Theocharopoulos, H. Florou, D.E. Walling, H. Kalantzakos, M. Christou, P. Tountas, & T. Nikolaou. Soil erosion and deposition rates in a cultivated catchment area in central Greece, estimated using the ^{137}Cs technique. *Soil & Tillage Research*, 2003, 69:153–162.
118. Tyler A N, Sanderson D C W., et al. Estimating and accounting for ^{137}Cs source burial through in-Situ gamma spectrometry in salt marsh environments. *Journal of Environmental Radioactivity*, 1996, 33(3):195–212.
119. Valery Ramzaev, Hidenori Yonehara, Ralf Hille, et al. Gamma-dose rates from terrestrial and Chernobyl radionuclides inside and outside settlements in the Bryansk Region, Russia in 1996–2003. *Journal of Environmental Radioactivity*, 2005, 1–23.
120. Volchok, H. L., & Chieco, N. A compendium of the Environment Measurement Laboratory's research projects related to Chernobyl nuclear accident. USDOE Rep. EML-460. New York: Environmental Monitoring Laboratory. 1986.
121. Wallbrink, P.J., & Murray A.S. The use of Fallout radionuclide as indicators of erosion processes. *Hydrological Processes*, 1993, 7:297–304.
122. Wallbrink, P.J., & Murray A.S. Distribution of ^7Be in soils under different surface cover conditions and its potential for describing soil redistribution processes. *Water Resources Research*, 1996a, 32: 467–476.
123. Wallbrink, P.J., Murray A.S. & Olley, J.M. Relating suspended sediment to its original soil depth using fallout radionuclides. *Soil Science of America Journal*, 1999, 60:1201–1208.
124. Walling, D.E., & He Q. Improved models for estimating soil erosion rates from caesium-137 measurements. *J Environ Qual*, 1999, 28:611–622.
125. Walling, D.E., & Quine, T.A. Use of caesium-137 as a tracer of erosion and sedimentation: Handbook for the application of the caesium-137 technique. Exeter: UK Overseas Development Administration, Department of Geography, University of Exeter. 1993.
126. Walling, D.E., & Woodward J. C. Use of radiometric fingerprints to derive information on suspended sediment sources. In J. E. Bogen, D. E. Walling and T. Day (Eds.), *Erosion and sediment transport monitoring programmes in river basins*. IAHS publication 210(pp.153–164). Wallingford: IAHS Press. 1992.
127. Walling, D.E., & Quine, T. A. Calibration of ^{137}Cs measurements to provide quantitative erosion rate data. *Land Degradation and Rehabilitation*, 1990, 2:161–175.
128. Walling, D.E., & Quine, T. A. The use of ^{137}Cs measurements to investigate soil erosion on arable fields in the UK: potential applications and limitations. *Journal of Soil Science*, 1991, 42:147–162.
129. Walling, D.E., & Quine, T. A. The use of fallout radionuclide measurements in soil erosion

- investigations in IAEA. In Nuclear techniques in soil-plant studies for sustainable agriculture and environmental preservation. STI/PUB/947(pp.597-619).Vienna:IAEA.1995.
130. Walling, D.E. Use of ^{137}Cs and other fallout radionuclides in soil erosion investigations: Progress, Problems and prospects. In Use of ^{137}Cs in the study of soil erosion and sedimentation. IAEA-TECDOC-1028(pp.39-62). Vienna:IAEA.1998.
131. Walling, D.E., & He Q. Models for converting ^{137}Cs measurements to estimates of soil redistribution rates on cultivated and uncultivated soils. Report to the IAEA as a contribution to the IAEA Co-ordinated Projects on Soil Erosion and Sedimentation. Exeter: Department of Geography, University Of Exeter.1997.
132. Walling, D.E., & He Q. Improved models for estimating soil erosion rates from caesium-137 measurements. Journal of Environmental Quality, 1999, 28: 611–622.
133. Walling, D.E., & He Q. Final Report on IAEA Technical Contract 10361/RO-RI. The global distribution of bomb-derived ^{137}Cs reference inventories.2000.
134. Walling, D.E. Recent advances in the use of environmental radionuclides in soil erosion investigations. In Nuclear Techniques in integrated plant nutrient, water and soil management. IAEA-CSP-11P (pp.279-301).Vienna:IAEA.2002.
135. Walling, D.E., M.A. Russell, R.A. Hodgkinson, Y. Zhang. Establishing sediment budgets for two small lowland agricultural catchments in the UK. Catena, 2002, 47:323–353.
136. Walling, D.E., Q. He & P.A. Whelan. Using ^{137}Cs measurements to validate the application of the AGNPS and ANSWERS erosion and sediment yield models in two small Devon catchments. Soil & Tillage Research, 2003, 69:27–43.
137. Walling, D.E., Y. Zhang & Q. He. Models for Converting Radionuclide (^{137}Cs , Excess ^{210}Pb , and ^7Be) Measurements to Estimates of Soil Erosion and Deposition Rates. IAEA/RCA Mid-term Progress Review Meetings. Beijing: 2007.
138. Zapata, F. Handbook for the assessment of soil erosion and sedimentation using environmental radionuclides. Kluwer Academic Publishers, 2002.
139. Zapata, F. Final Report of the coordinated research project on “Assessment of soil erosion through the use of the Cs-137 and related technique as a basis for soil conservation, sustainable agricultural production and environmental protection.” Vienna: IAEA. 2001a.
140. Zapata, F. Report of the consultants meeting on “Assessment of soil conservation technologies for sustainable agricultural production” Vienna: IAEA. 2001b.
141. Zapata, F., & Garcia-Agudo, E. Future prospects for the ^{137}Cs technique for estimating soil erosion and sedimentation rates. Acta Geologica Hispanica, 2000, 35: 197–205.

致 谢

光阴似箭，岁月如梭，转眼间三年的博士研究生学习已接近尾声。临别之际，谨以此文答谢三年来曾经帮助过我的老师、同学和朋友们。

本文是在导师李勇研究员的精心指导下完成的，从选题、构思到完成的每一个环节，无不凝聚着导师的心血和智慧。三年来，导师不仅在学业上谆谆教诲，使我的学术水平得到提升；同时导师对科研事业的执着和热忱、一如既往的实干精神、严谨求实的治学态度和吃苦耐劳的生活作风，时刻影响和感染着我，也必将在未来的学习和工作中激励我，令我受益终生。在此，谨向我的导师表示衷心的感谢。

感谢中国科学院西北高原生物研究所汪诗平先生，感谢他在青藏高原野外采样、资料收集和论文撰写中提供的关怀、帮助和人力支持。在他的鼓励 and 帮助下，我战胜了强烈的高原反应，完成了青藏高原东西样带考察，取得了宝贵的第一手实验资料，进一步明确了博士论文的研究方向。在此表示衷心的感谢。

衷心感谢北京师范大学张科利教授、北京大学陈衍景教授、中国农科院环发所崔海信研究员、钟秀丽研究员、杨正礼研究员、中国农科院资划所徐明岗研究员、张成娥研究员在论文开题报告和中期考核时提出的宝贵意见和建议。衷心感谢中国科学院内蒙古锡林郭勒草原定位实验站和中国科学院西北高原生物研究所在野外实验和采样过程中提供的便利条件。感谢课题组张晴雯、李璐、李贵春、李嵘、张卓栋在野外采样、室内样品分析、数据处理和论文撰写过程中给予的诸多关心和支持。感谢德国土壤景观研究所 Roger Funk 博士在野外原位测定实验中给予的帮助。

感谢研究生院和环发所的老师在博士期间给予的关心、帮助和支持，特别感谢环发所人事处姬军红老师给予的指导和帮助。感谢 2005 级博士 3 班全体同学在博士期间给予的帮助和支持。

衷心感谢国际原子能机构和国家理论物理中心 (ICTP) 资助我完成 ICTP 环境核素分析培训班的学习。感谢国际原子能机构 Mr. P. Martin 和 Mr. U. Sansone; 意大利国际理论物理中心 Mr. C. Tuniz 和 Ms. Doreen Sauleek 在学习期间给予的关心和帮助，感谢 Ms. BARBIZZI Sabrina, Mr. BELLI Maria, Mr. DE FELICE Pierino, Mr. DE ZORZI Paolo, Mr. KIM Chang Kyu, Mr. KIS-BENEDEK Gyula 在学习给予的指导和帮助。

特别感谢我的父母在学习和生活上给予的理解、支持和帮助。

本论文研究工作得到了中国农业科学院杰出人才项目、国际原子能机构区域项目 (RAS5043)、合同项目 (Contract No. 12323)、TC 项目 (CPR5015)、德国 DFG 项目的大力资助，在此表示衷心的感谢。

最后向所有关心、帮助和支持过我的老师、同学和朋友们表示真诚的感谢和美好的祝愿！并向论文评阅人和答辩评委老师致以真诚的谢意！

李俊杰

2008 年 5 月

作者简历

李俊杰, 男, 1979 年 12 月生, 山西忻州人。主要从事环境核素示踪技术研究。

主要简历:

2005 年 9 月—2008 年 7 月, 中国农科院农业环境与可持续发展研究所, 农业环境与可持续发展研究所, 土壤学专业, 攻读博士学位, 研究方向为环境核素示踪技术。

2002 年 9 月—2005 年 7 月, 山西农业大学资源环境学院, 土壤学专业, 攻读硕士学位, 研究方向为矿山土地复垦与生态重建, 获农学硕士学位。

1998 年 9 月—2002 年 7 月, 山西农业大学资源环境学院, 农业资源与环境专业, 获农学学士学位。

参加课题:

国家自然科学基金项目(2008.1-2010.12): 长江上游林地冲沟格局发生演变对草灌细根变化的响应。

国家自然科学基金项目(2008.1-2010.12): 应用 ISOCs 监测侵蚀区土壤中 ^{137}Cs , $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$, ^7Be 的适用性。

国家自然科学基金项目(2007.1-2009.12): 耕作侵蚀与水蚀互作驱动的土壤有机碳矿化强度及机理。

德国 DFG 项目(2004-2006): 内蒙古锡林河流域风蚀动力学研究。

中国农科院杰出人才项目(2002-2007): 应用环境核素评价中国西部土壤侵蚀与环境演变。

国际原子能机构 TC 项目(2005-2006): 应用环境核素评价土壤侵蚀与土壤保持措施。

国际原子能机构 CRP 项目(2002-2007): 应用 ^{137}Cs , $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 和 ^7Be 评价中国西部土壤保持措施减少土壤侵蚀、提高土壤质量的有效性。

国家自然科学基金项目(2001.1-2003.12): 黄土区大型露天采煤废弃地生境再造及群落重组。

国家自然科学基金项目(2005.1-2007.12): 黄土区大型露天采煤废弃地生境再造及重组群落初期演变阶段的过程揭示。

教育部科学技术研究重点项目(2001-2003): 黄土高原采煤废弃地生态重建与可持续发展。

发表论文情况:

《复垦土壤母质原始形成环境与化学特征分析》, 山西农业大学学报, 2004, 24 (2), 第二作者

《露天矿区复垦土地绿色农产品生产与开发》, 能源环境保护, 2004, 18 (1), 第二作者

《运城市果园土壤主要微量元素含量与分布特征研究》, 山西农业大学学报, 2005, 25(3), 第一作者

《黄土区大型排土场植被根系的抗蚀抗冲性研究》, 水土保持学报, 2006, 20 (2), 第六作者

《矿区复垦土壤环境质量剖面变化特征研究》，山西农业大学学报，2006，26（1），第三作者
《黄土区大型排土场岩土侵蚀特征研究》，水土保持研究，2006，13（4），第五作者
《矿山工程扰动土人工再造的概念、方法、特点与影响因素》，土壤，2007，39（2），第一作者
《环境核素 ^{137}Cs 和 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 的田间原位监测研究》，核农学报，2007，21（6），第二作者
《土壤样品中 ^{137}Cs 和 ^{210}Pb 活度的比对研究》，核农学报，2008，24（3），第一作者
《Field measurement of environmental radionuclides ^{137}Cs and $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ inventories using in-situ gamma ray spectrometry》，will submit to Journal of environmental radioactivity.