

文章编号: 1001-8166(2010)05-0492-13

# 黔中气溶胶传输的<sup>210</sup>Pb和<sup>7</sup>Be示踪: I. 周时间尺度的解释\*

万国江<sup>1</sup>, 郑向东<sup>2</sup>, Lee H N<sup>3</sup>, Bai Z G<sup>4</sup>, 万思源<sup>1</sup>, 王仕禄<sup>1</sup>,  
杨伟<sup>1</sup>, 苏菲<sup>5</sup>, 汤洁<sup>2</sup>, 王长生<sup>1</sup>, 黄荣贵<sup>1</sup>, 刘鹏<sup>6</sup>

(1. 中国科学院地球化学研究所环境地球化学国家重点实验室, 贵州 贵阳 550002

2 中国气象科学研究院, 北京 100081; 3 Environmental Measurements Laboratory

New York NY10014-7447 USA; 4 ICR World Soil Information Wageningen 6700 AJ the

Netherlands; 5 贵州省气象局, 贵州 贵阳 550002; 6 中国大气本底基准观象台, 青海 西宁 810001)

**摘要:**认识环境核素在不同地域空气中的浓度分布和沉降到地表环境的通量对气溶胶污染物全球扩散模型的建立和验证、沉积过程示踪和沉积计年、流域侵蚀示踪参比, 以及生态系统受天然辐射的评价等多个领域都是关键的依据。自 2001 年以来在贵阳观风山等地逐周连续采样, 对近地面空气和降水中<sup>210</sup>Pb和<sup>7</sup>Be浓度的观测结果表明: ①因气象条件变化, 近地面空气<sup>210</sup>Pb和<sup>7</sup>Be周浓度具有 2~6 周变幅不等的短周期波动。<sup>210</sup>Pb空气浓度在年内的总趋势呈现出受气温变化的总体影响和降水的短暂调控; 而<sup>7</sup>Be空气浓度出现连续不断的峰—谷交替。②两核素在近地面空气周浓度的低值同步, <sup>210</sup>Pb/<sup>7</sup>Be比率较高 ( $\geq 0.8$ ), 显示出海洋性贫<sup>210</sup>Pb/<sup>7</sup>Be气团的入侵影响; 它们高的周浓度也同步耦合, 比率较低 ( $\leq 0.7$ ), 显示出高层大气富<sup>7</sup>Be气团的输入。③<sup>210</sup>Pb和<sup>7</sup>Be的周降水浓度及水—气分配系数在秋末~春季较高, 而春末~秋季明显偏低。周降水浓度随同期空气浓度呈增高趋势, 其季节分界分别为 0.2 Bq/L 和 1 Bq/L, 而  $K_d$  值随同期空气浓度增大呈降低趋势。<sup>210</sup>Pb和<sup>7</sup>Be的降水沉降主要分布在每年的春夏季; 周沉降量随同期降水量呈增大趋势, <sup>7</sup>Be增大的斜率约为<sup>210</sup>Pb的 3 倍; 当近于零降水时, 它们在降水中的初始比率约为 2.5。它们出现高或者较高的周降水沉降都伴随当周或邻周空气浓度的急剧下降; 降水中<sup>210</sup>Pb/<sup>7</sup>Be比率主要分布在  $\leq 0.5$  并与空气中<sup>210</sup>Pb/<sup>7</sup>Be比率基本同步, 显示出两核素被降水清洗的效率基本相近。④2008 年冰冻极端天气过程中, <sup>210</sup>Pb/<sup>7</sup>Be空气浓度同步低谷并存在气溶胶低浓度与高比活度耦合。⑤观风山<sup>7</sup>Be周空气浓度显示低纬度、较高海拔地区的预期水平; 短周期波动反映强下沉气流和低海拔上升气团影响分别在观风山和瓦里关山的滞后性。

**关键词:**气溶胶传输; <sup>210</sup>Pb/<sup>7</sup>Be周时间尺度; 观风山; 瓦里关山

中图分类号: P402 文献标志码: A

## 1 引言

放射性核素广泛存在于地球环境中。无论地球

大气、河湖海洋水体及其沉积物、地表浮土及土壤, 还是各种动植物机体及人体内部, 都普遍存在放射性核素。人类关于地质历史演变过程、地质营力作

\* 收稿日期: 2009-09-24 修回日期: 2010-03-29

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

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

用规律和地球化学环境演化的许多知识都源自放射性核素的示踪应用。在现代环境和生态科学领域, 为认识污染物随气溶胶传输过程和速率、评估区域环境影响及环境变化, 放射性核素更具有重要的示踪价值。此外, 作为环境质量的一个重要指标, 同样需要了解环境遭受放射线辐照的影响, 评价放射性核素产生的污染程度及其对人体健康的可能影响<sup>[1, 2]</sup>。

随着区域环境综合研究的深入, 一些深层次的前缘科学问题急需解决。诸如: 如何辨识人为释放与天然形成的污染物? 在环境中污染物的性质和赋存状态如何转化? 污染物在环境中具有什么样的运移途径和速率? 污染物在环境中的积累类型和定量关系? 污染物在环境中的降解过程和速率? 一些污染事件发生时的环境背景条件等。因而, 查明环境

物质(化学元素或污染物)的环境生物地球化学过程, 如转化与传输的途径、速率、通量和效应等, 构成了认识区域环境质量和全球环境变化的最重要的科学判据。环境中存在的放射性核素具有 3 个基本来源: ①原始的放射性核素; ②宇宙射线作用产生的放射性核素; ③人类社会经济活动过程中产生并释放到环境中的放射性核素。它们具有确知的物源和输入通量、固有的衰变特征和衰变常数。表 1 列出了放射性核素作为几天至几个世纪时间尺度环境示踪应用的主要方面。环境放射性核素的不同来源和不同半衰期, 决定了它们之间在种类组合和赋存分布的明显差异, 是示踪环境生物地球化学过程和标记环境变化速率的重要基础, 提供了示踪环境物质的累积、交换、运移、转化过程和速率的前提<sup>[3]</sup>。

环境核素示踪原理的研究主要包括: 它们的生

表 1 环境放射性核素的示踪应用

Table 1 Tracing application of environmental radionuclides

来源 \ 应用	沉积作用 (沉积计年)	地下水计时	地表水 混合作用	微粒搬运	气体交换	生物活性
U/Th 衰变	<sup>210</sup> Pb(百年尺度) <sup>226</sup> Ra, <sup>230</sup> Th <sup>234</sup> U/ <sup>238</sup> U <sup>228</sup> Th/ <sup>232</sup> Th		<sup>222</sup> Rn/ <sup>226</sup> Ra <sup>228</sup> Ra ( <sup>224</sup> Ra)	<sup>210</sup> Pb/ <sup>222</sup> Rn <sup>234</sup> Th/ <sup>238</sup> U <sup>228</sup> Th/ <sup>228</sup> Ra <sup>230</sup> Th/ <sup>234</sup> U		<sup>222</sup> Rn/ <sup>226</sup> Ra
宇宙射线	<sup>14</sup> C(千年尺度) <sup>32</sup> Si	<sup>14</sup> C/ <sup>3</sup> H <sup>39</sup> Ar/ <sup>32</sup> Si ( <sup>85</sup> Kr)	<sup>7</sup> Be <sup>39</sup> Ar( <sup>14</sup> C) ( <sup>3</sup> H/ <sup>3</sup> He) ( <sup>85</sup> Kr)	<sup>7</sup> Be(季节变化)	<sup>39</sup> Ar	
人为产生	<sup>137</sup> Cs(数十年) <sup>3</sup> H, <sup>55</sup> Fe, <sup>90</sup> Sr <sup>239</sup> Pu, <sup>240</sup> Pu	<sup>3</sup> H, <sup>14</sup> C <sup>85</sup> Kr	<sup>137</sup> Cs <sup>14</sup> C/ <sup>3</sup> H/ <sup>22</sup> Na <sup>90</sup> Sr	<sup>137</sup> Cs <sup>239</sup> Pu, <sup>240</sup> Pu, <sup>55</sup> Fe <sup>60</sup> Co, <sup>54</sup> Mn <sup>241</sup> Am, <sup>65</sup> Zn 等	<sup>3</sup> H/ <sup>3</sup> He <sup>14</sup> C, <sup>85</sup> Kr	<sup>14</sup> C <sup>32</sup> P

注: 据文献[4]修改。括号内的核素不常用, 但是有应用前景

成来源、气溶胶微粒吸附、空气中的配比关系、大气传输过程、全球分布状况、干湿沉降作用、土壤微粒迁移与滞留、生物亲合作用、水体转移和沉降、沉积后作用及沉积归宿等。许多环境过程之间存在有重要的内在联系。认识环境核素在运移过程各个环节的作用机理、速率和通量是示踪应用的基础。特别是它们在不同地域空气中的浓度分布变化和沉降到地表环境的通量是整个运移过程的重要环节, 对污染物全球扩散模型的建立和验证、沉积过程示踪和沉积计年、流域侵蚀示踪参比, 以及生态系统受天然辐照的评价等多个领域都是关键的依据。

<sup>210</sup>Pb, <sup>7</sup>Be 和 <sup>137</sup>Cs 是环境中广泛存在的放射性核素, 对于典型区域及全球环境物质传输途径具有

重要示踪价值。自 20 世纪 90 年代以来, 全球大气中的 <sup>137</sup>Cs 已经处于检测线以下, 难以确定。仅 <sup>210</sup>Pb 和 <sup>7</sup>Be 空气浓度具有观测价值, 通过对它们在近地面空气浓度的长期观测, 对于检验全球浓度分布和模拟沉降通量变化具有特殊意义。全球变化欧洲研究网(ENRICH)于 1999 年 11 月在瑞典 Uppsala 召开“核素示踪全球物质循环国际研讨会”。万国江和 H N Lee 作为唯一中国和美国学者应邀出席并分别完成大会报告, 强调了 <sup>210</sup>Pb 与 <sup>7</sup>Be 两核素组合示踪研究的重要意义。

<sup>210</sup>Pb(半衰期 22.3 年)是 <sup>238</sup>U 系列中 <sup>226</sup>Ra(半衰期 1622 年)衰变中间产物 <sup>222</sup>Rn(半衰期 3.8 天)的 α 衰变子体。<sup>222</sup>Rn 作为一种惰性气体, 自岩石表

面和土壤微粒中逸出后,在低层大气中扩散并继续衰变。由于岩石和土壤中矿物组成的差异, $^{222}\text{Rn}$ 逸散与生成的比率从小于 1% 到大于 30%<sup>[5,6]</sup>。低层大气中的 $^{222}\text{Rn}$ 因逸散比率和气流输送的地区差异而发生变化。 $^{222}\text{Rn}$ 自陆地表面向大气的平均逸散输送通量约为  $0.015\text{ Bq}/(\text{m}^2 \cdot \text{a})$ ,自洋面和冰盖的逸散输送通量较陆地表面低 2~3 个数量级<sup>[6,7]</sup>。所以,大气中的 $^{222}\text{Rn}$ 主要来自陆地表面,并具有明显的区域性分布差异。特别是 $^{222}\text{Rn}$ 与 $\text{CO}_2$ 等温室气体自土层中具有大致相似的逸出机制,因而其示踪意义更加突出。 $^{222}\text{Rn}$ 的衰变子体有 $^{218}\text{Po}$ 、 $^{214}\text{Pb}$ 、 $^{214}\text{Bi}$ 、 $^{210}\text{Po}$ 、 $^{210}\text{Pb}$ 。当 $^{210}\text{Pb}$ 等在大气中生成之后,很快地附着于亚微米级气溶胶微粒并开始其环境生物地球化学运移<sup>[8~10]</sup>。 $^{210}\text{Pb}$ 在不同地域空气中的浓度分布和沉降到地表环境的通量是整个运移过程的重要环节。大气中的 $^{210}\text{Pb}$ 通过干、湿沉降进入湖泊、海湾,并积蓄在沉积物中。沉积物中积蓄的这部分 $^{210}\text{Pb}$ 因其与母体核素 $^{226}\text{Ra}$ 分离,通称为非平衡或过剩 $^{210}\text{Pb}$ (在土壤—沉积物系统的研究中标记为 $^{210}\text{Pb}_e$ ;空气中的 $^{210}\text{Pb}$ 基本上都属非平衡,通常不另作标记)。 $^{210}\text{Pb}$ 的大气浓度具有明显的短时间尺度(日、月)变化特征,但年际变化并不显著<sup>[11]</sup>。

通过 $^{222}\text{Rn}$ 的大气扩散, $^{210}\text{Pb}$ 广泛存在于自然环境中并形成特殊的分配关系; $^{210}\text{Pb}$ 的半衰期耦合于现代人类活动的百年级时间尺度( $1 \times 10^2 \sim 1 \times 10^3$ 年)。因此, $^{210}\text{Pb}$ 是环境地球化学过程的优良示踪剂,在大气扩散、流域侵蚀和现代沉积研究中具很好的示踪价值。通过沉积物柱芯中不同层节样品的 $^{210}\text{Pb}_e$ 比活度分析,便可计算沉积速率或某一层节的沉积年代。1963年 Goldberg<sup>[12]</sup>首次利用 $^{210}\text{Pb}$ 作为格林兰冰芯计年。尔后,Krishnaswami及 Kodice等<sup>[13,14]</sup>分别进行了湖泊和海湾沉积物 $^{210}\text{Pb}$ 计年的探索。近 30 年来, $^{210}\text{Pb}$ 广泛用于现代沉积计年和流域侵蚀速率的测定,取得了很好的进展,显示出 $^{210}\text{Pb}$ 在百年时间尺度上的重要示踪价值<sup>[15]</sup>。

$^7\text{Be}$ 半衰期 53.3 d 是宇宙线轰击大气 $^{14}\text{N}$ 、 $^{16}\text{O}$ 靶核而生成的放射性核素。 $^7\text{Be}$ 在大约 20 km 高度大气层中的产率最大,在平流层的寄宿时间大约为 1 年。随着宇宙线辐射到大气圈强度的减弱,其产率随大气层的厚度及空气密度的增加而减少<sup>[16,17]</sup>。当 $^7\text{Be}$ 形成之后,很快附着于亚微米级气溶胶微粒表面,并随大气动力过程而迁移,通过干、湿沉降进入地表环境而终结。平流层作为 $^7\text{Be}$ 产生和富集的源地,通过全球尺度的 Brewer-Dobson 环流可以将 $^7\text{Be}$

输送到对流层;或者当平流层与对流层发生交换时进入对流层<sup>[17~19]</sup>。在平流层向对流层输送过程中,随着高度的降低,空气稀释作用加强。所以,来自对流层较高部位的气溶胶将更富集 $^7\text{Be}$ 。 $^7\text{Be}$ 在对流层空气中的浓度也随地球表面海拔高度而增加。基于宇宙线变化可能引起 $^7\text{Be}$ 产率变化,太阳黑子活动从源头上对 $^7\text{Be}$ 浓度产生重要影响,业已建立 11 年主周期、2~3 年周期和 1 年周期<sup>[20,21]</sup>。近地面空气中 $^7\text{Be}$ 的浓度不仅受产率控制,还受平流层和对流层之间的物质交换、对流层垂直方向的物质输送、不同纬度之间水平方向的物质输送、干—湿沉降等因素的综合影响<sup>[17,22~25]</sup>。它们具有直接散落特征,散落分布存在纬度效应和海拔效应。由于 $^7\text{Be}$ 具有确知的来源、赋存和运移特征,已经被广泛应用于大气物质传输、表土季节性迁移和微粒混合作用的示踪研究<sup>[21,25,26~31]</sup>。

基于上述背景, $^{210}\text{Pb}$ 和 $^7\text{Be}$ 在不同地域空气中的浓度分布和沉降特征构成了多领域研究的基础,两核素的同時观测可能提供关于气溶胶大气传输的有用信息。特别是:它们作为环境物质传输示踪的独立性和相互依存性?它们在不同时间尺度下在空气和降水中的比率变化?它们沉降通量变化与降水事件和降水量之间的关系?这些科学问题受到较多的研究关注。

云贵高原是全球环境变化的敏感地区之一。黔中地区位于云贵高原中部,系青藏高原向东部丘陵平原过渡的斜坡面上的内陆区,纬度较低、海拔较高。该区既受控于西环流南支气流,又受西环流北支西南气流的影响;兼受东南季风和西南季风的作用,南北冷暖空气常在此交绥,形成云贵静止锋。前期研究表明:云贵湖泊沉积物中 $^{210}\text{Pb}_e$ 的比活度和累计值较其他地区高,土壤中 $^{226}\text{Ra}$ 也较高<sup>[32~35]</sup>; $^{210}\text{Pb}$ 在中国西南地区近地面空气中的浓度明显地高<sup>[36]</sup>。在黔中地区观测示踪核素的空气浓度和沉降通量具有特殊意义。我们前期在云贵深水湖泊水库沉积作用和流域侵蚀过程方面积累了翔实的资料,为进一步了解全球性扩散污染物的区域分布差异,认识环境物质(及污染物)在这一典型区域的扩散运移,项目组自 2001 年以来在贵阳观风山侧( $106^\circ 43' 22.1''\text{E}$ ,  $26^\circ 34' 19.3''\text{N}$ ,海拔 1 080 m)(图 1)逐周连续采样,对近地表空气和降水中 $^{210}\text{Pb}$ 、 $^7\text{Be}$ 浓度开展了长期连续观测。其部分观测结果已经相继发表<sup>[37~44]</sup>。现拟在已刊内容基础上补充后期观测资料,以期给出一个较系统的研究进展。限于文

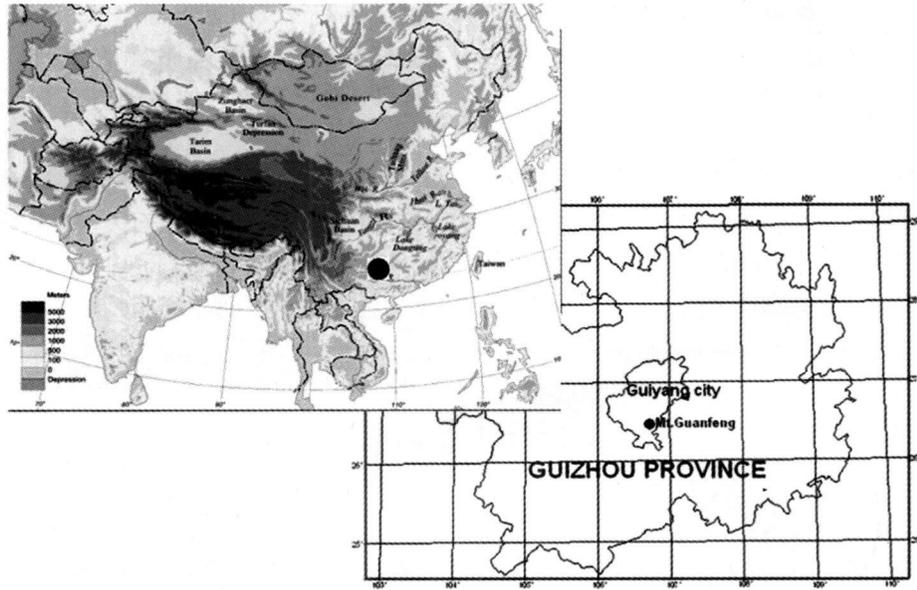


图 1 贵阳观风山观测点区位

Fig 1 Surface air sampling location at Guiyang site (circle) in China

字篇幅, 拟分两部分成文。第 I 部分主要介绍研究背景、方法和周时间尺度的解释; 第 II 部分主要剖析月和年时间尺度的特征。

## 2 采样的科学性和分析数据的国际可比性是环境核素示踪应用的关键

采样设备置于中国科学院地球化学研究所环境地球化学国家重点实验室 (HDH) 楼顶, 距地面约 30 m。作为比对的观测点还有位于青藏高原东北部的瓦里关山大气本底观象台 (GAW) ( $100.898^\circ\text{E}$ ,  $36.287^\circ\text{N}$  海拔 3 810 m)。GAW 是全球唯一的位于内陆地区的高山大气本底观测站。

采样是利用美国环境测量实验室 (EML, 即 Environmental Measurements Laboratory USA) 测量低水平核素的表层大气采样系统 (SASS Model 500 NE Aerosol Sampler)。采样器 (Fuji 型) 配备有  $20.3\text{ m} \times 25.4\text{ m}$  的矩形过滤器, 在 2 层 100% 聚酯保护棉之间夹 3 层 100% 的聚丙烯网滤膜过滤材料 (DynaWeb DW7301L), 有效过滤面积  $407\text{ m}^2$ 。采样流速为  $0.4 \sim 1.6\text{ m}^3/\text{min}$ 。每周采集 1 个样品, 即每个样品的采样时间为 168 小时左右。每个样品的空气量校正到国际标准体积为  $5.9 \times 10^3 \sim 1.3 \times 10^4\text{ m}^3$ 。大气降尘样品转移至滤膜后测量; 降水样品用自行设计加工的降水收集器采集, 收集面积  $0.48\text{ m}^2$ , 以确保足够的样品量。降水样品经高倍浓缩后再转移

至滤膜或瓶装测量或经  $\text{Fe}(\text{OH})_3$  共沉淀后测量。

$^{210}\text{Pb}$  和  $^7\text{Be}$  比活度系用美国 Canberra 公司生产的 S-100 系列 16384 道能谱仪进行  $\gamma$  谱测定。聚丙烯网滤膜气溶胶样品封装成一定形状直接置于 GR2019 同轴高纯锗 (HPGe) 探测器 (效率 20%) 计数测量。能谱仪具有良好的稳定性, 测试过程中无道漂, 单个样品计数时间为  $3.6 \times 10^4 \sim 1.8 \times 10^5\text{ s}$ 。 $^{210}\text{Pb}$  和  $^7\text{Be}$  计数峰的位置分别为  $46.5\text{ keV}$  和  $447.7\text{ keV}$ , 样品测量计数的误差范围按 1 个标准差控制, 实际误差为  $\pm 1.4\% \sim \pm 6.4\%$ 。多核素放射性标准源 (Catalog No.: 7500 Source No.: 586-26-6) 由美国同位素产品实验室 (Isotope Products Laboratories) 提供, 并以效率曲线为基础进行不同核素的比活度计算。

低水平核素的精确测量不仅需要高稳定性的测量装置和利用多核素综合标准源进行准确的能量效率标定, 更需要国际间多实验室的数据比对。为确保测量结果的国际可比性, 部分聚丙烯网滤膜气溶胶样品经等份分割后, 曾分别由中国科学院地球化学研究所环境地球化学国家重点实验室与美国环境测量实验室 (EML) 同步进行对比测量。两个实验室测量数据散点的线性回归分析表明, 二者之间具有很好的相关性 ( $[ \text{EML}^7\text{Be} ] = 1.06 \times [ \text{HDH}^7\text{Be} ]$ , 相关系数  $r = 0.96$ ;  $[ \text{EML}^{210}\text{Pb} ] = 1.03 \times [ \text{HDH}^{210}\text{Pb} ]$ , 相关系数  $r = 0.85$ ) (图 2)。

### 3 观风山近地面空气 $^{210}\text{Pb}$ 和 $^7\text{Be}$ 周浓度及其湿沉降的总体趋势

图 3 绘出我们在 2001-12-20 ~ 2006-10-03 及 2008-01-01 ~ 2008-12-31 期间, 连续逐周在贵阳观风山附近采集近地面空气滤膜样品中  $^{210}\text{Pb}$  和  $^7\text{Be}$  的观测结果及同期降水量和气温变化。其中包括前期已经刊出的部分资料<sup>[37, 38]</sup>。由图 3 可见, 因气象条件

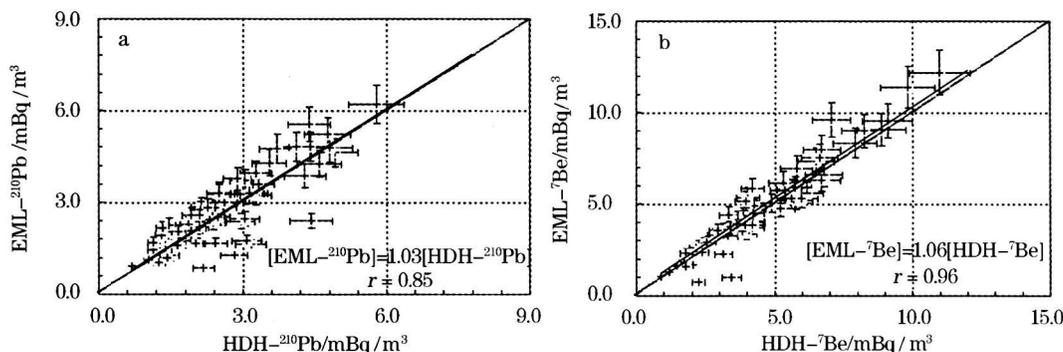


图 2 HDH/CAS 与 EML/USA 对贵阳观风山近地面空气  $^{210}\text{Pb}$  和  $^7\text{Be}$  浓度测量结果对比

Fig 2 Measurement comparison of  $^{210}\text{Pb}$  and  $^7\text{Be}$  concentrations in surface air between HDH/CAS and EML/USA

逐周的近地面空气浓度观测适合于  $^{210}\text{Pb}$  和  $^7\text{Be}$  季节性变化的认识。对于  $^{210}\text{Pb}$  而言, 可能主要受地区性  $^{222}\text{Rn}$  自岩石—土壤逸出、海洋和陆地气团的传输以及湿清除的影响。而  $^7\text{Be}$  季节性变化的驱动, 则一方面可能包括平流层与对流层之间的交换和传输、对流层内部的垂直向下传送和水平流动, 以及湿清除; 另一方面还可能产生于太阳旋转速度的 27 天周期, 或者从几个小时到几天的太阳的 flares lasting 按 Forbush 减少的调节<sup>[17, 20]</sup>。所以, 需要辩识因气象条件变化对  $^{210}\text{Pb}$  和  $^7\text{Be}$  浓度产生的影响。这也同时说明  $^{210}\text{Pb}$  和  $^7\text{Be}$  浓度变化的耦合关系具有综合示踪的价值。

#### 3.1 近地面空气 $^{210}\text{Pb}$ 和 $^7\text{Be}$ 周浓度波动受大气降水过程影响

从产生  $^{210}\text{Pb}$  和  $^7\text{Be}$  的源头考虑, 它们在一个地区近地面空气的浓度可能因地理区位和地质表土特征的影响而具有一定的区域背景。其中,  $^{210}\text{Pb}$  较多地依赖于区域岩石表土性质、纬度和大陆度特征; 而  $^7\text{Be}$  则更多地受控于纬度和海拔高度。然而, 天气过程和气流的传输则可能对它们在区域近地面空气浓度产生较大影响。特别是大气降水对气溶胶的清洗作用, 更是导致它们在区内的空气浓度产生急剧变化的重要原因。

变化, 贵阳观风山近地面空气  $^{210}\text{Pb}$  和  $^7\text{Be}$  浓度具有明显的 2 ~ 6 周变幅不等的短周期变化特征。空气  $^{210}\text{Pb}$  浓度在年内的总趋势呈现出气温变化的总体影响和降水的短暂调控。而  $^7\text{Be}$  浓度呈现出周时间尺度上的剧烈变化, 连续不断的峰—谷交替。这种频繁的频率变化一方面表明  $^7\text{Be}$  作为环境变化良好示踪剂的敏感特征, 同时也说明影响  $^7\text{Be}$  浓度变化的各种因素之间相互制约的复杂性。

气流传输和降水形成过程可能从以下 3 个方面对近地面空气  $^{210}\text{Pb}$  和  $^7\text{Be}$  周浓度产生重要影响: ① 携带水汽的低纬暖—湿气流中的贫  $^{210}\text{Pb}$  和  $^7\text{Be}$  气团的输入; ② 暖—湿气流之上的干—冷下沉气流所携带贫  $^{210}\text{Pb}$  和富  $^7\text{Be}$  气团的入侵; ③ 降水过程对气溶胶的清除及对  $^{222}\text{Rn}$  自岩石和土壤逸出的抑制。因此, 降水过程在一定程度上反映中尺度天气系统中低纬暖—湿气流与高纬干—冷气流的相互作用, 可能指示  $^{210}\text{Pb}$  和  $^7\text{Be}$  周浓度变化的敏感性。降水量的增加或减少的变化, 相应指示暖—湿上升气流或干—冷下沉气流的变化及其在观测地点的主导作用; 而持续长时间的均匀降水, 则可能抑制气流变化对  $^{210}\text{Pb}$  和  $^7\text{Be}$  浓度的影响, 对近地面的气溶胶粒子起着显著的湿清除作用。

由图 3 资料可知, 2002-06-18 2002-07-30 2002-10-19 2003-06-26 2003-07-24 2003-08-14 2004-09-07 2005-02-08 2005-08-16 2005-09-27 2006-06-27 2006-08-01 2008-01-22 及 2008-10-28 等日开始的观风山近地面空气  $^7\text{Be}$  周浓度都处于当年的最低值或次低值 ( $0.7 \sim 1.2 \text{ mBq/m}^3$ ), 并与  $^{210}\text{Pb}$  低的周浓度 ( $0.7 \sim 1.8 \text{ mBq/m}^3$ ) 同步,  $^{210}\text{Pb}/^7\text{Be}$  浓度比率处于较高状态 ( $\geq 0.8$ ), 显示出海洋性贫  $^{210}\text{Pb}$  和  $^7\text{Be}$  气团

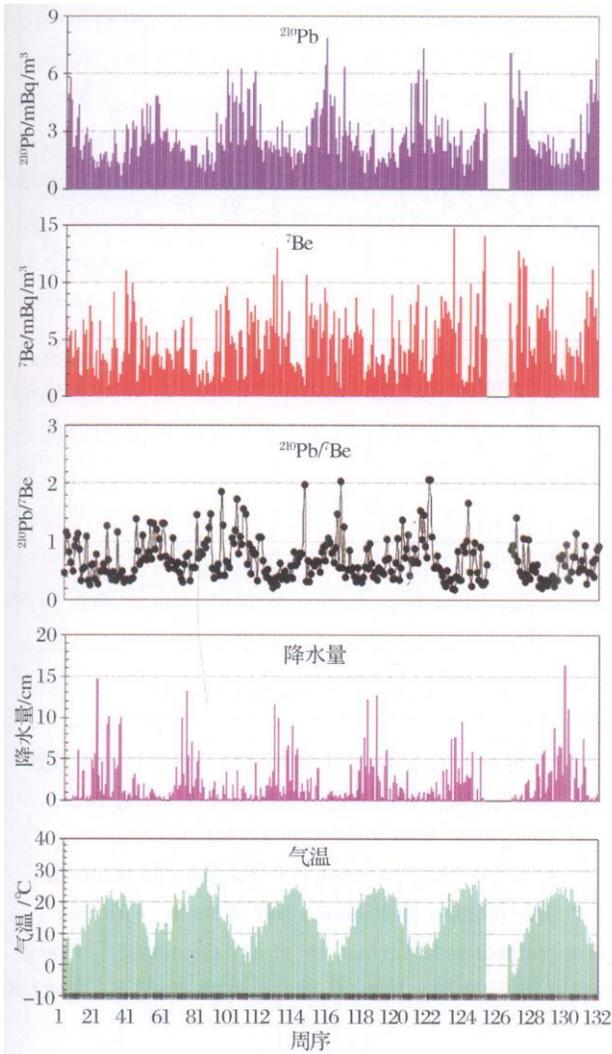


图 3 贵阳观风山近地面空气  $^{210}\text{Pb}$  和  $^7\text{Be}$  浓度及比率的逐周变化趋势与同期降水量和气温对比 (2001-12-20 ~ 2006-10-03 日, 2008-01-01 ~ 2008-12-31)  
(据文献 [ 37 38 ] 及后续资料综合整理)

Fig 3 Weekly changes in  $^{210}\text{Pb}$  and  $^7\text{Be}$  concentrations and their ratios in surface air at Mt. Guanfeng / Guiyang versus rainfall and air temperatures during 2001-12-20 ~ 2006-10-03 and 2008-01-01 ~ 2008-12-31

横坐标为采样日期的周序; 第 1 周的产品 2001-12-20 ~ 2001-12-27 取样; 依此类推

的入侵。相应地, 近地面空气  $^7\text{Be}$  的高浓度与  $^{210}\text{Pb}$  的高浓度也存在同步耦合关系。如: 2002-08-29 2002-09-05 2002-09-26 2002-10-03 2003-09-25 2003-10-16 2003-10-23 2004-05-04 2004-05-18 2004-06-08 2004-09-14 2005-09-06 2005-12-13 2005-12-20 2006-05-16 2006-07-25 2006-08-22 2006-09-12 2006-09-19 2008-02-05 2008-02-12 2008-02-26 2008-03-04 2008-06-24 2008-12-02 等

日开始的近地面空气  $^7\text{Be}$  周浓度都处于当年的最高值或次高值 (8.0 ~ 14.7 mBq/m<sup>3</sup>), 并与  $^{210}\text{Pb}$  高的周浓度 (2.3 ~ 6.2 mBq/m<sup>3</sup>) 同步,  $^{210}\text{Pb} / ^7\text{Be}$  浓度比率处于较低状态 ( $\leq 0.7$ ), 显示出高层大气富  $^7\text{Be}$  气团的输入。观风山地区在几年的观测期间, 近地面空气  $^7\text{Be}$  与  $^{210}\text{Pb}$  周浓度的同步低值或高值现象表明, 海洋性气团与高空下沉气团的交互影响及降水天气对气溶胶的清洗构成了重要影响; 而  $^{210}\text{Pb} / ^7\text{Be}$  浓度比率的反向关系正好表明降水对气溶胶的清洗影响的短暂性和对  $^{222}\text{Rn}$  自岩石和土壤逸出影响的延续性。

上述波动现象还反映气流相互过程对观测点  $^7\text{Be}$  空气浓度的突出影响, 即使在非主要降水期,  $^7\text{Be}$  周浓度的峰值也几乎都与同周或前一周的零降水或小于 0.9 mm 的弱降水同步。当降水量增加时, 暖-湿上升气流在观测点起主导作用, 紧随着的是  $^7\text{Be}$  空气浓度的降低; 反之, 当降水量降低时, 干-冷下沉气流起主导作用,  $^7\text{Be}$  空气浓度则上升。观风山比较均匀持续性降水导致了最低的  $^7\text{Be}$  空气浓度值。当降水停止之后的气流交换, 高层大气的富  $^7\text{Be}$  气团输送入近地面, 从而使得  $^7\text{Be}$  空气浓度急速回升, 雨季期间仍然可能出现空气  $^7\text{Be}$  较高周浓度值 (如: 2004-06-08 2006-07-25 及 2006-08-22 等日开始的  $^7\text{Be}$  周浓度高值)。

### 3.2 近地面空气 $^{210}\text{Pb} - ^7\text{Be}$ 周浓度变化与降水清洗的季节性差异

为定量表达大气降水对空气中某种物质的清洗作用及对近地面空气  $^{210}\text{Pb}$  和  $^7\text{Be}$  浓度变化构成的重要影响, 我们引入“水气分配系数”的概念 [ 38 ]。如果  $C_w$  和  $C_a$  分别表示大气降水和同期空气中  $^{210}\text{Pb}$  或  $^7\text{Be}$  的浓度, 则其水气分配系数 ( $K_d$ ) 为:

$$K_d = C_w / C_a$$

当水气分配系数 ( $K_d$ ) 处于高值, 说明该核素在降水中的浓度较高或在空气中的浓度明显下降; 反之, 则表明该核素被降水的较少清洗或对空气浓度的较小影响。图 4 与图 5 分别绘出 2005-09-20 ~ 2006-09-19 及 2008-01-01 ~ 2008-12-30 两年度间,  $^{210}\text{Pb}$  及  $^7\text{Be}$  在贵阳观风山逐周降水浓度及水-气分配系数与空气浓度关系的观测资料。

由图 4 和图 5 可见, 秋末-春季 (10 ~ 5 月间) 降水中  $^{210}\text{Pb}$  和  $^7\text{Be}$  的浓度及其水-气分配系数较高; 而春末-秋季 (4 ~ 11 月间) 降水中  $^{210}\text{Pb}$  和  $^7\text{Be}$  的浓度及其水-气分配系数明显偏低。在春夏和秋冬之交 (4 ~ 5 月及 10 ~ 11 月), 上述关系存在一定

程度的交替变化。<sup>210</sup>Pb和<sup>7</sup>Be的周降水浓度总体上随同期空气浓度略呈同步增高趋势,但4~11月间<sup>210</sup>Pb的变化趋势更平稳。这一现象既表明了降水清洗作用的存在,也说明水汽气团自身所携带核素的可能影响。<sup>210</sup>Pb和<sup>7</sup>Be周降水浓度的季节分界分别约为0.2 Bq/L和1 Bq/L。由图还可见,尽管季节变化,水—气分配系数 $K_d$ 值随同期空气浓度增大都呈降低趋势;<sup>7</sup>Be的 $K_d$ 值降低趋势相近,而<sup>210</sup>Pb的 $K_d$ 值降低趋势在4~11月间更明显一些。降水中低的周浓度分布时段可能与季风影响、海洋性气团的高频入侵及相对低的降水清洗效率有关;而其高值时段则显示出对流性气团的高频影响和降水对大气<sup>210</sup>Pb和<sup>7</sup>Be的显著清洗作用。这种季节性的降水清洗效率差异正是<sup>210</sup>Pb和<sup>7</sup>Be耦合用于示踪大气物质传输的一个重要特点。

从<sup>210</sup>Pb和<sup>7</sup>Be各个时段的水—气分配系数比较(图6)可见,二者之间具有较好的正相关关系。但是,<sup>7</sup>Be的 $K_d$ 值约为<sup>210</sup>Pb的1.4倍,或在 $1 \times 10^4$ 基数上按大约1.1倍的比例递增。这种相关关系的存

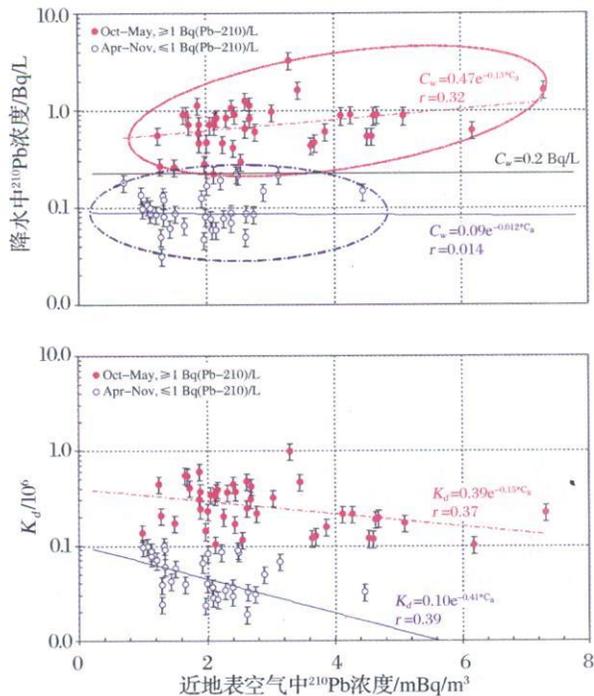


图4 贵阳观风山<sup>210</sup>Pb逐周降水浓度及水—气分配系数与空气浓度关系的对比(2005-09-20~2006-09-19, 2008-01-01~2008-12-30)

Fig. 4 Weekly variations of <sup>210</sup>Pb concentrations in precipitation (above) and comparison of the  $K_d$  with <sup>210</sup>Pb concentrations in surface air at Mt. Guanfeng, Guiyang during 2005-09-20~2006-09-19 and 2008-01-01~2008-12-30

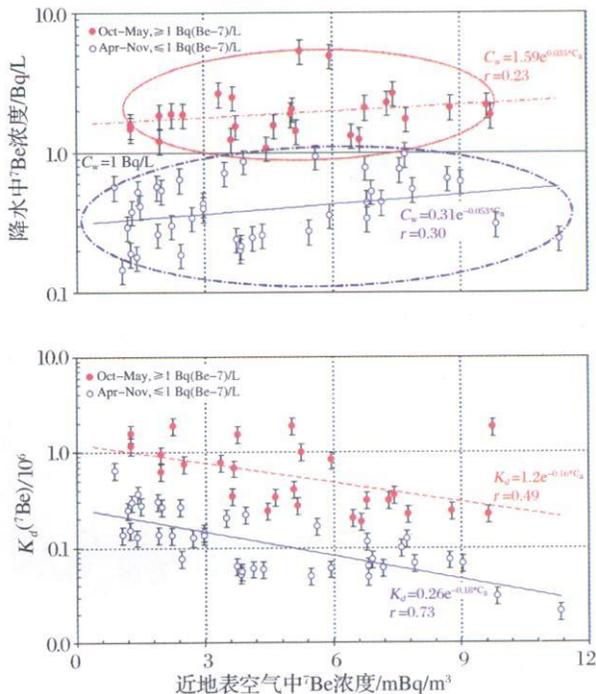


图5 贵阳观风山<sup>7</sup>Be逐周降水浓度及水—气分配系数与空气浓度关系的对比(2005-09-20~2006-09-19, 2008-01-01~2008-12-30)

Fig. 5 Weekly variations of <sup>7</sup>Be concentrations in precipitation and comparison of the  $K_d$  with <sup>7</sup>Be concentrations in surface air at Mt. Guanfeng, Guiyang during 2005-09-20~2006-09-19 and 2008-01-01~2008-12-30

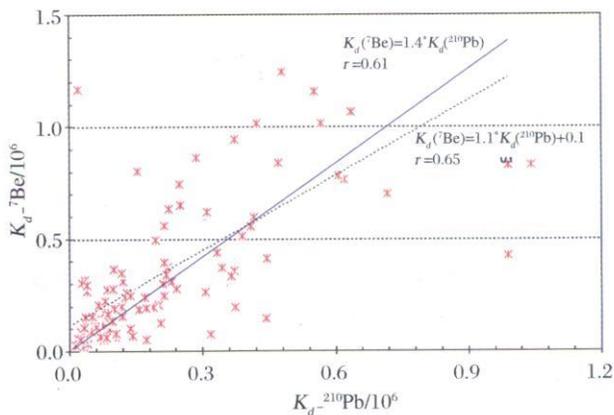


图6 贵阳观风山大气<sup>210</sup>Pb与<sup>7</sup>Be的水—气分配系数比较关系

Fig. 6 Comparison of  $K_d$  between <sup>210</sup>Pb and <sup>7</sup>Be at Mt. Guanfeng, Guiyang

在可能归咎于气团水汽中两核素活度的差异,<sup>7</sup>Be高于<sup>210</sup>Pb还可能因两核素在气溶胶中的赋存状态差异而产生的不同清洗效率。

### 3.3 <sup>210</sup>Pb/<sup>7</sup>Be 周湿沉降量的变化特点

大气降水是 <sup>210</sup>Pb 与 <sup>7</sup>Be 产生湿沉降的基本要素。观风山地区的主要降水期在每年 3 月初至 9 月底, 频次较高。但几乎所有 <sup>210</sup>Pb 和 <sup>7</sup>Be 的周湿沉降变化都显示出随不同程度降水量和降水频率的波动。图 7 绘出 2005-09-20 ~ 2006-09-19 和 2008-01-01 ~ 2008-12-30 两个年度期内贵阳观风山大气降水 <sup>210</sup>Pb 与 <sup>7</sup>Be 的周沉降量与同期降水量变化的散点关系。从图 7 可见, <sup>210</sup>Pb 和 <sup>7</sup>Be 的周沉降量随同期降水量呈同步增大的趋势, 显示出两核素被降水清洗的效率基本相近; <sup>7</sup>Be 的增大斜率约为 <sup>210</sup>Pb 的 3 倍; 当近于零降水时, <sup>7</sup>Be 与 <sup>210</sup>Pb 在降水中周沉降量的初始临界比率约为 2.5 (= 7.92 / 3.14)。

事实上, <sup>210</sup>Pb 与 <sup>7</sup>Be 的降水沉降量还受控于水汽携带核素自生的浓度。图 8 分别绘出 2005-09-20 ~ 2006-09-19 及 2008-01-01 ~ 2008-12-30 两个周年时期内贵阳观风山大气降水 <sup>210</sup>Pb 与 <sup>7</sup>Be 周沉降量及

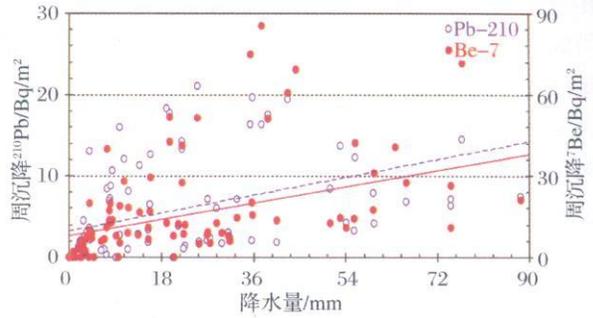


图 7 贵阳观风山大气降水 <sup>210</sup>Pb 与 <sup>7</sup>Be 的周沉降量随同期降水量变化趋势 (2005-09-20 ~ 2006-09-19 2008-01-01 ~ 2008-12-30)

Fig 7 Weekly variations of depositional fluxes of <sup>210</sup>Pb and <sup>7</sup>Be versus precipitation at Mt. Guanfeng, Guiyang during 2005-09-20 ~ 2006-09-19 and 2008-01-01 ~ 2008-12-30

图中的散点趋势线, 虚线:  $^{210}\text{Pb} = 0.12 \times \text{降水量} + 3.14$   
 $r = 0.47$ ; 实线:  $^7\text{Be} = 0.33 \times \text{降水量} + 7.92$   $r = 0.50$

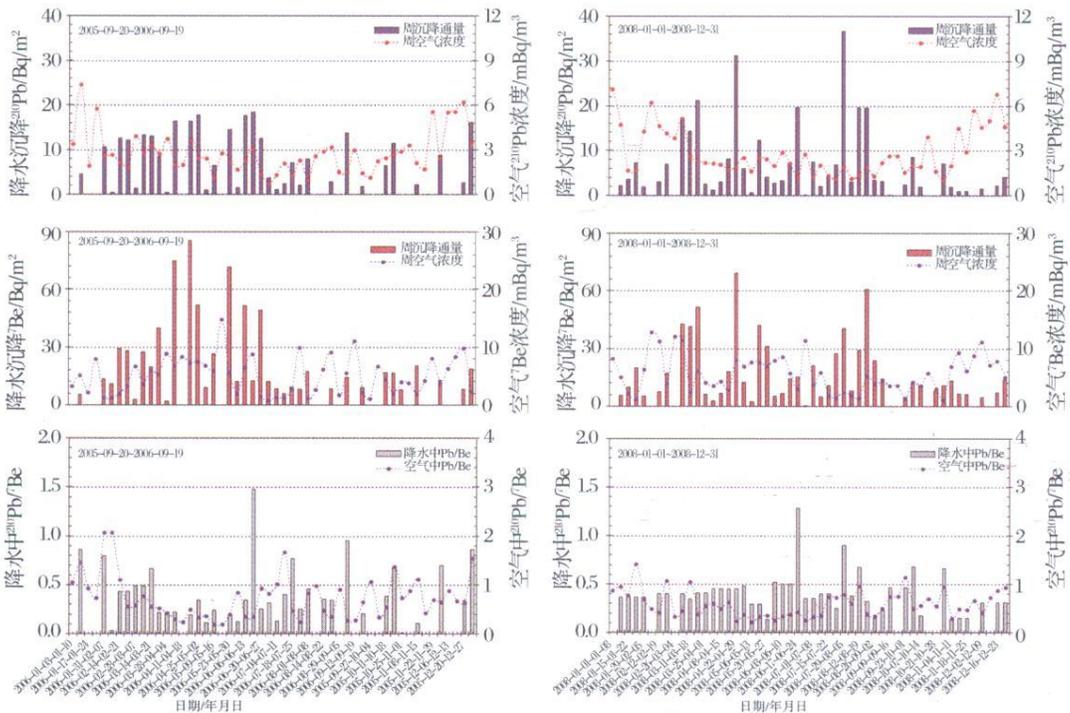


图 8 贵阳观风山大气降水 <sup>210</sup>Pb 与 <sup>7</sup>Be 周沉降量及比率变化 (2005-09-20 ~ 2006-09-19 2008-01-01 ~ 2008-12-30)

Fig 8 Weekly variations of depositional fluxes of <sup>210</sup>Pb and <sup>7</sup>Be in rainfall and their ratio at Mt. Guanfeng/Guiyang during 2005-09-20 ~ 2006-09-19 and 2008-01-01 ~ 2008-12-30

其比率变化。由图 8 可见, 它们的降水沉降主要分布在每年的春-夏季节, 而秋-冬季节随降水量和降水频次而减少。它们出现高或者较高的周降水沉降都伴随当周或邻周大气浓度的急剧下降; 降水

中 <sup>210</sup>Pb / <sup>7</sup>Be 比率主要分布在  $\leq 0.5$  并与空气中 <sup>210</sup>Pb / <sup>7</sup>Be 比率基本同步。但是, 2 个年度中都在 6 月份 (分别出现在 2006-06-13 ~ 2006-06-20 及 2008-06-17 ~ 2008-06-24 两个周时段) 出现降水中 <sup>210</sup>Pb /

$^{7}\text{Be}$  比率极高 ( $>1$ ) 的现象。在该观测周内, 空气中  $^{210}\text{Pb}/^{7}\text{Be}$  比率未见异常; 空气中  $^{7}\text{Be}$  浓度在当周或次周较高, 而降水中  $^{7}\text{Be}$  沉降量偏低或不高; 空气中  $^{210}\text{Pb}$  浓度在当周或次周较高, 而降水中  $^{210}\text{Pb}$  沉降量高或很高。这一特异现象可能产生于强对流天气的持续性清洗影响。

### 3.4 冰冻极端天气过程对气溶胶传输的影响

2008年 1~2月, 我国南方地区发生了 50年一遇的大范围持续性低温雨雪冰冻极端天气过程。其时间段分别为 01-10~01-16, 01-18~01-22, 01-25~01-29, 01-31~02-02。这次气象灾害范围广、强度大、持续时间长, 对交通运输、能源供应、电力传输、通讯设施、农业生产、群众生活造成严重影响和损失。贵州 43个县(市)的冻雨天气持续时间突破了历史记录。

丁一汇等<sup>[45]</sup>对冰雪凝冻天气成因进行了气象学论证。根据他们的解释, “这次低温、雨雪冰冻灾害形成的原因不是单一的, 是多种因素在同一时段, 同一地区相互配合和迭加的结果。其中 La Niña 事件是灾害发生的气候背景, 它为雨雪冰冻天气提供

了冷空气侵袭中国南方的前提条件; 欧亚大气环流异常持续性是造成冷空气不断侵袭中国南方的直接原因; 孟加拉湾和南海地区暖湿气流的北上是大范围冻雨和降雪形成并持续在中国南方的必要条件”。

大气环流异常和暖湿气流的北上可能对气溶胶物质的传输构成明显影响。历年同期对比表明: 2008年该时段(01-08~01-29三周内)低温和微弱降水, 观风山地区空气  $^{210}\text{Pb}/^{7}\text{Be}$  浓度不断下降、具同步低谷状态, 为历年同期最低水平; 在低温雨雪冰冻极端天气过程后期, 随着携带水汽的低纬暖—湿气流中的贫  $^{7}\text{Be}$  气团的输入, 1月 27日及其前后的持续降水,  $^{7}\text{Be}$  空气浓度的进一步下降,  $^{210}\text{Pb}/^{7}\text{Be}$  比率出现回升现象(图 9)。该时段气溶胶呈现出极低的浓度, 耦合了  $^{210}\text{Pb}$  和  $^{7}\text{Be}$  在气溶胶中的高比活度特征。2008年 1~2月  $^{210}\text{Pb}$  和  $^{7}\text{Be}$  的沉降量分别为  $23.5\text{ Bq/m}^2$  和  $62.6\text{ Bq/m}^2$ , 仅分别为 2006年同期的 61% 和 75%, 为 2009年同期的 39% 和 63%。上述  $^{210}\text{Pb}$  和  $^{7}\text{Be}$  分布特征不仅表明雨雪冰冻极端天气过程对气溶胶传输的明显影响; 同时, 也显示出大气  $^{210}\text{Pb}$  和  $^{7}\text{Be}$  对极端天气过程的特殊示踪意义。

### 3.5 观风山与瓦里关山近地面空气 $^{7}\text{Be}$ 周浓度变化的相位差异

瓦里关山特殊的内陆、高海拔和中纬度区位, 注定了  $^{7}\text{Be}$  受平流层向下输送的敏感性。基于瓦里关山和观风山的区位和海拔差异, 对比观测其近地面空气  $^{7}\text{Be}$  浓度变化不仅有助于区域尺度大气和地表环境过程的示踪, 而且对认识全球尺度的污染物传输也具有重要意义。图 10绘出了 2002-10-09~2004-01-21间两地近地面空气  $^{7}\text{Be}$  浓度的逐周观测结果<sup>[40]</sup>。

由于瓦里关山位于接近自由大气的高度, 图 10<sup>a</sup> 看出其近地面空气  $^{7}\text{Be}$  的高浓度特征。其逐周采样测值的变化范围是  $24.5\sim 48\text{ mBq/m}^3$ 。观风山较瓦里关山海拔低约  $2730\text{ m}$ ,  $^{7}\text{Be}$  呈现出较低的浓度分布, 同期变化范围为  $9.5\sim 0.8\text{ mBq/m}^3$ 。海拔差异是制约 2个站点近地面空气  $^{7}\text{Be}$  浓度特征的第一因素。

当空气垂直运动强烈, 可能导致空气  $^{7}\text{Be}$  浓度的明显变化。2个站点  $^{7}\text{Be}$  浓度逐周变化趋势总体相似,  $^{7}\text{Be}$  浓度分布的波峰与波谷具有良好的对应关系。它们既具有 2~6周的短周期波动, 又具有相位差异。在时间上的同步, 表明了两地常受同一中尺度天气系统的影响, 随着天气系统的发展过程而呈现一定相位的超前或滞后现象。当由高纬度气团引起平流层向下输送的下沉运动由北向南传播时,

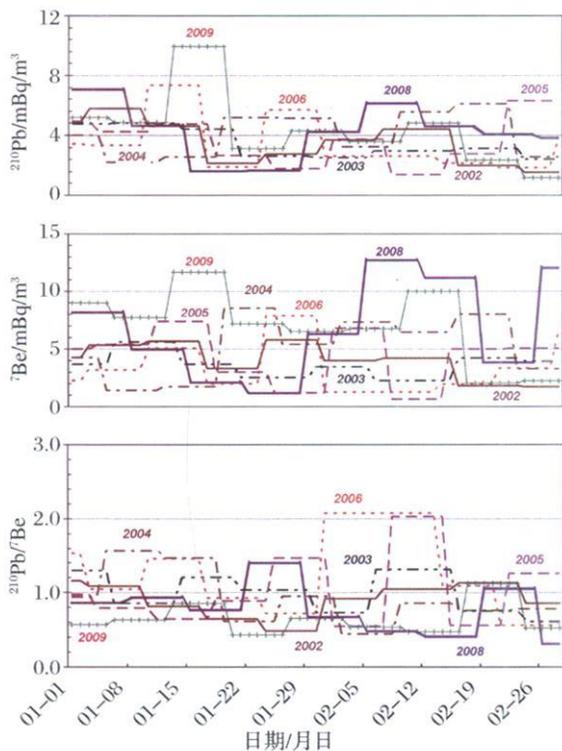


图 9 2008年春雨雪冰冻极端天气过程中贵阳观风山近地面空气  $^{210}\text{Pb}$  和  $^{7}\text{Be}$  周浓度与历年同期对比

Fig. 9 Weekly variations of  $^{210}\text{Pb}$  and  $^{7}\text{Be}$  concentrations in surface air during the extreme freezing disaster in 2008 at Mt. Guanfeng, Guiyang, in contrast with other years

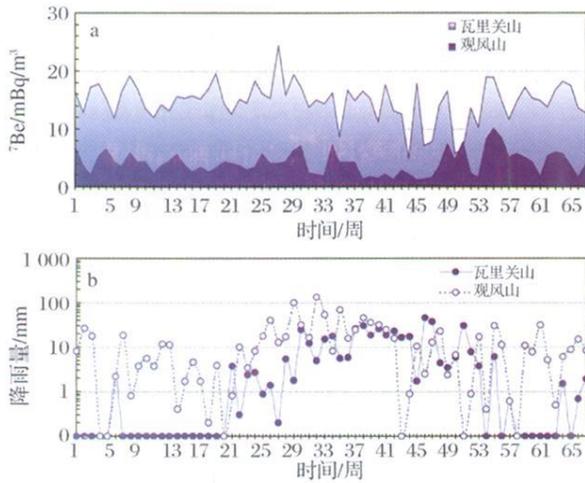


图 10 瓦里关山与观风山近地面空气  $^7\text{Be}$  浓度的逐周对比 (a) 及同期降水变化 (b) (2002-10-09 ~ 2004-01-21)<sup>[40]</sup>

Fig 10 Weekly variations of  $^7\text{Be}$  concentrations in surface air at Mt. Wailiguan and Mt. Guanfeng (a) versus rainfall (b) during 2002-10-09 and 2004-01-21

图中, 横坐标为采样日期的周序; 第 1 周标记

2002-10-09 ~ 2002-10-16 的样品, 相继为第 2 周、第 3 周……

高浓度  $^7\text{Be}$  的现象在瓦里关山超前于观风山; 而当低纬度海洋性气团向北输送时, 低浓度  $^7\text{Be}$  的现象在观风山则超前于瓦里关山。瓦里关山第 54 (55) 周 (2003-10-15 ~ 10-29) 与观风山第 55 周同期出现的  $^7\text{Be}$  浓度峰值同样表明由中尺度过程所引起的平流层—对流层之间的强烈交换和对流层内部的垂直向下传输造成的强下沉过程。春季是北半球平流层向下输送最强的季节<sup>[18]</sup>。第 27 周在瓦里关山出现特别高的  $^7\text{Be}$  浓度 ( $24.5 \text{ mBq/m}^3$ ) 是一种极端的情况, 显示出该地区受到与北半球同步的平流层向下输送的明显影响, 与低层大气持续近一周非常高的稳定的压强系统和高空大气的强下沉有关。

2003 年瓦里关山的总降水量仅  $429.8 \text{ mm}$ , 99.5% 集中于 3 ~ 10 月。当年第 44、50 和 51 周出现特别低的  $^7\text{Be}$  周浓度 (分别为  $4.8$ 、 $5.7$  和  $6.8 \text{ mBq/m}^3$ ), 与持续来自低海拔地区贫  $^7\text{Be}$  气团的强烈上升以及由此引起的湿清除过程有密切的联系。而 4 月中旬 (第 28 周) 前和 10 月中旬 (第 54 周) 后的平均浓度值  $15.8$  ( $24.5 \sim 11.6$ )  $\text{mBq/m}^3$  则反映出海洋气团的较小影响 (图 10)。但由于瓦里关山与观风山两地海拔高度和纬度的差异, 降水量指示气流变化导致的  $^7\text{Be}$  浓度值变化幅度在瓦里关要明显地高于观风山, 这正体现了在周时间尺度范围内瓦里关山对  $^7\text{Be}$  浓度变化的敏感性。

此外, 瓦里关山近地面空气  $^{210}\text{Pb}$  和  $^7\text{Be}$  浓度具短期振荡特征,  $^{210}\text{Pb}$  在夏季有明显的低值, 而  $^7\text{Be}$  的季节性特征并不明显; 与全球其他高山站点的结果相比, 瓦里关山  $^7\text{Be}$  和  $^{210}\text{Pb}$  的空气浓度较高; 近地面臭氧与  $^7\text{Be}$  浓度的变化趋势一致, 臭氧与  $^7\text{Be}$ 、 $^{210}\text{Pb}$  关系具有更高的相关性; 垂直输送对该地区近地面臭氧的收支平衡有较显著的贡献<sup>[39-43]</sup>。

## 4 结 论

自 2001 年以来在贵阳观风山等地区对近地面空气和降水中  $^{210}\text{Pb}$ 、 $^7\text{Be}$  浓度的逐周连续采样观测结果表明:

(1) 观风山近地面空气  $^7\text{Be}$  周浓度低值 ( $0.7 \sim 1.2 \text{ mBq/m}^3$ ) 与  $^{210}\text{Pb}$  低的周浓度 ( $0.7 \sim 1.8 \text{ mBq/m}^3$ ) 同步,  $^{210}\text{Pb}/^7\text{Be}$  比率较高 ( $\geq 0.8$ ), 显示出海洋性贫  $^{210}\text{Pb}$ 、 $^7\text{Be}$  气团的入侵;  $^7\text{Be}$  的高浓度 ( $8.0 \sim 14.7 \text{ mBq/m}^3$ ) 与  $^{210}\text{Pb}$  的高浓度 ( $2.3 \sim 6.2 \text{ mBq/m}^3$ ) 也存在同步耦合关系,  $^{210}\text{Pb}/^7\text{Be}$  比率较低 ( $\leq 0.7$ ) 显示出高层大气富  $^7\text{Be}$  气团的输入。这种同步低值或高值现象表明, 海洋性气团与高空下沉气团的交互影响及降水天气对气溶胶的清洗构成了明显影响。

(2) 观风山近地面空气  $^{210}\text{Pb}$ 、 $^7\text{Be}$  周浓度变化与降水清洗存在季节性差异: 降水中  $^{210}\text{Pb}$ 、 $^7\text{Be}$  的周浓度及其水气分配系数在秋末—春季较高, 而春末—秋季明显偏低; 周降水浓度总体上随同期空气浓度略呈同步增高趋势, 其季节分界分别约为  $0.2 \text{ Bq/L}$  和  $1 \text{ Bq/L}$ ,  $K_d$  值随同期空气浓度增大呈降低趋势。

(3) 观风山  $^{210}\text{Pb}$  和  $^7\text{Be}$  的周降水量随同期降水量呈同步增大的趋势, 显示出两核素被降水清洗的效率基本相近。  $^7\text{Be}$  周降水量随同期降水量的增大斜率约为  $^{210}\text{Pb}$  的 3 倍; 当近于零降水时,  $^7\text{Be}$  与  $^{210}\text{Pb}$  在降水中沉降的初始临界比率约为  $2.5$  ( $= 7.92 / 3.14$ )。它们的降水沉降主要分布在每年的春—夏季节, 秋—冬季较少;  $^{210}\text{Pb}/^7\text{Be}$  在降水中比率主要分布在  $\leq 0.5$  并与在空气中的比率基本同步。

(4) 2008 年 1 ~ 2 月中国南方发生的大范围持续性低温雨雪冰冻极端天气过程期间, 因大气环流异常和暖湿气流的北上的影响, 观风山地区空气  $^{210}\text{Pb}$  与  $^7\text{Be}$  周浓度不断下降、具同步低谷状态, 为历年同期最低水平, 并耦合了  $^{210}\text{Pb}$  和  $^7\text{Be}$  在气溶胶中的高比活度特征,  $^{210}\text{Pb}$  及  $^7\text{Be}$  的实测沉降量分别为  $23.5 \text{ Bq/m}^2$  和  $62.6 \text{ Bq/m}^2$ , 仅分别为 2006 年同期的 61% 和 75%, 为 2009 年同期的 39% 和 63%。既

表明雨雪冰冻极端天气过程对气溶胶传输的明显影响,也显示出大气<sup>210</sup>Pb和<sup>7</sup>Be对极端天气过程的特殊示踪意义。

(5) 观风山与瓦里关山近地面空气<sup>7</sup>Be周浓度变化同步对比观测(2002-10-09 ~ 2004-01-21)表明:由于海拔差异,瓦里关山具高浓度特征(24.5 ~ 4.8 mBq/m<sup>3</sup>)而观风山同期仅为 9.5 ~ 0.8 mBq/m<sup>3</sup>;由于相位差异,当由高纬度气团引起平流层向下输送的下沉运动由北向南传播时,高浓度<sup>7</sup>Be的现象在瓦里关山超前于观风山;而当低纬度海洋性气团向北输送时,低浓度<sup>7</sup>Be的现象在观风山则超前于瓦里关山。

### 参考文献 (References):

- [1] Wan G J, Appleby P G. Radionuclides in ecological systems [J] // Farina A ed. Perspectives in Ecology: A Glance from the VII International Congress of Ecology (NIECOL), Florence, Italy, 19-25 July 1998. Backhuys of Leiden, NL, 1999, 369-379.
- [2] Wan Guojiang, Appleby P G. Progress on fallout radionuclides as tracers in environmental systems [J]. Advances in Earth Sciences, 2000, 15(2): 172-177. [万国江, Appleby P G. 环境生态系统散落核素示踪研究新进展 [J]. 地球科学进展, 2000, 15(2): 172-177.]
- [3] Wan Guojiang. The study of the interface of geochemical Environment [J]. Earth Science Information, 1987, (3): 11-14. [万国江. 地球化学环境界面研究 [J]. 地球科学信息, 1987, (3): 11-14.]
- [4] Sanschi P H. Radionuclides in aquatic sciences [J]. EAWAG/News, 1983, (14/15): 1-6.
- [5] Krishnaswami S, Seidemann D E. Comparative study of <sup>222</sup>Rn, <sup>40</sup>Ar, <sup>39</sup>Ar and <sup>37</sup>Ar leakage from rocks and minerals: Implications for the role of nanopores in gas transport through natural silicates [J]. Geochimica et Cosmochimica Acta, 1988, 52: 655-658.
- [6] Dörflinger H, Münnich K Q. <sup>222</sup>Rn flux and soil air concentration profiles in West Germany. Soil <sup>222</sup>Rn as a tracer for gas transport in the unsaturated soil zone [J]. Tellus B, 1990, 42: 20-28.
- [7] Turekian K K, Nozaki Y, Berninger L K. Geochemistry of atmospheric radon and radon products [J]. Annual Review of Earth and Planetary Sciences, 1977, 5: 227-255.
- [8] Gillette D A, Blifford I H, Fenster C R. Measurement of the aerosol size distribution and vertical fluxes of aerosols on land subject to wind erosion [J]. Journal of Applied Meteorology, 1972, 11: 977-987.
- [9] Appleby P G, Oldfield F. The calculation of <sup>210</sup>Pb dates assuming a constant rate of supply of unsupported <sup>210</sup>Pb to the sediment [J]. Catena, 1978, 5: 1-8.
- [10] Graustein W C, Turekian K K. The effects of forests and topography on the deposition of submicrometer aerosols measured by lead-210 and caesium-137 in soils [J]. Agricultural and Forest Meteorology, 1989, 47: 199-220.
- [11] KUEr (Kommission zur Ueberwachung der Radioaktivität). Bericht 25 Jahre Radioaktivitätsüberwachung in der Schweiz [R]. Freiburg Physics Institute, University of Freiburg, 1982, 1-46.
- [12] Goldberg E D. Geochronology with <sup>210</sup>Pb [J] // Symposium on radioactive dating, Vienna, Austria, International Atomic Energy Agency (AEA), 1963, 121-131.
- [13] Krishnaswami S, Lal D, Martin J M, et al. Geochronology of lake sediments [J]. Earth Planetary Science Letters, 1971, 11: 407-414.
- [14] Koide M, Soutar A, Goldberg E D. Marine geochronology with <sup>210</sup>Pb [J]. Earth Planetary Science Letters, 1972, 14: 442-446.
- [15] Robbins J A, Herche L R. Models and uncertainty in <sup>210</sup>Pb dating of sediments [J] // The XXV International Congress of Societas Internationalis Congress of Societas Internationalis Limnologiae, Spain, Barcelona, August 21-25, 1992. International Association Limnology Proceedings, 1993, 25(1): 217-222.
- [16] Lal D, Peters B. Cosmic ray produced radioactivity on the Earth [M] // Handbuch der Physik, New York: Springer-Verlag, 1967, 46(2): 551-612.
- [17] Feely H W, Larsen R J, Sanderson C G. Factors that cause seasonal variations in beryllium-7 concentrations in surface air [J]. Journal of Environmental Radioactivity, 1989, 9(3): 223-249.
- [18] Holton J R, Haynes P H, McInyre E M, et al. Stratospheric-troposphere exchange [J]. Reviews of Geophysics, 1995, 33: 403-439.
- [19] Zanis P, Schuepbach E, Guggeler H W, et al. Factors controlling beryllium-7 at Jungfraujoch in Switzerland [J]. Tellus B, 1999, 51(4): 789-805.
- [20] Papastefanou C, Pannidou A. Beryllium-7 aerosols in ambient air [J]. Environment International, 1996, 22(1): 125-130.
- [21] Gerasopoulos E, Zerefos C S, Papastefanou C, et al. Low-frequency variability of beryllium-7 surface concentrations over the Eastern Mediterranean [J]. Atmospheric Environment, 2003, 37(13): 1745-1756.
- [22] Dibb J E, Jaffezo J L. Beryllium-7 and lead-210 in aerosol and snow in the dye 3 gas aerosol and snow sampling program [J]. Atmospheric Environment, 1993, 27(17/18): 2751-2760.
- [23] Baskaran M, Coleman C H, Sanschi P H. Atmospheric depositional fluxes of <sup>7</sup>Be and <sup>210</sup>Pb at Galveston and College Station, Texas [J]. Journal of Geophysical Research, 1993, 98(D11): 20555-20571.
- [24] Baskaran M. A search for the seasonal variability on the depositional fluxes of <sup>7</sup>Be and <sup>210</sup>Pb [J]. Journal of Geophysical Research, 1995, 100, 2: 833-2840.
- [25] Al-Amri D, Sayed A M, Yatin H A. Variations in <sup>7</sup>Be concentrations in the atmosphere of Kuwait during the period 1994 to 1998 [J]. Applied Radiation and Isotopes, 2001, 55(3): 413-417.
- [26] Robbins J A, Eadie B J. Be-7: A tracer of seasonal particle transport processed in Lake Michigan [J]. EOS, 1982, 63(45): 957.
- [27] Wan Guojiang, Sanschi P H, Sun M, et al. The comparative

- study using varve counting and radionuclide dating for recent sedimentation rate of Lake Greifensee Switzerland [ J. ]. *Geochimica* 1986 (3): 259-270 [ 万国江, Santachi P H, Sturm M 等. 放射性核素和纹理计年对比研究瑞士格莱芬湖近代沉积速率 [ J. ]. *地球化学*, 1986 (3): 259-270 ]
- [ 28 ] Wan G J, Santachi P H, Sturm M et al. Natural ( $^{210}\text{Pb}$ ,  $^7\text{Be}$ ) and fallout ( $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{239+240}\text{Pu}$ ,  $^{90}\text{Sr}$ ) radionuclides as geochemical tracers of sedimentation in Greifensee, Switzerland [ J. ]. *Chemical Geology* 1987, 63: 181-196
- [ 29 ] Canuel E A, Martens C S, Benninger L K. Seasonal variations in  $^7\text{Be}$  activity in the sediments of Cape Lookout Bight North Carolina [ J. ]. *Geochimica et Cosmochimica Acta* 1990, 54(1): 237-245
- [ 30 ] Bai Zhanqun, Wan Guojiang, Wang Changsheng et al.  $^7\text{Be}$  distribution in surface soil of central Guizhou karst region and its erosion trace [ J. ]. *Progress in Natural Sciences* 1997, 7(1): 66-74 [ 白占国, 万国江, 王长生, 等. 黔中岩溶山区表土层中  $^7\text{B}$  的分布特征及其侵蚀示踪研究 [ J. ]. *自然科学进展*, 1997, 7(1): 66-74 ]
- [ 31 ] Bai Z G, Wan G J, Huang R G et al. A Comparison on Accumulation Characteristics of  $^7\text{Be}$  and  $^{137}\text{Cs}$  in Lake Sediments and Surface Soils in Western Yunnan and Central Guizhou, China [ J. ]. *Catena* 2002, 49: 253-270
- [ 32 ] Wan Guojiang, Huang Rongqun, Wang Changsheng et al. A variance of vertical profile for  $^{210}\text{Po}_{\text{ex}}$  at the top of sediment in Hongfeng Lake [ J. ]. *Chinese Science Bulletin* 1990, 35(22): 1910-1914. [ 万国江, 黄荣贵, 王长生, 等. 红枫湖沉积物顶部  $^{210}\text{Po}_{\text{ex}}$  垂直剖面的变异 [ J. ]. *科学通报*, 1990, 35(8): 612-615 ]
- [ 33 ] Wan Guojiang.  $^{210}\text{Pb}$  dating for recent sedimentation [ J. ]. *Quaternary Sciences* 1997, 17(3): 230-239 [ 万国江. 现代沉积的  $^{210}\text{Pb}$  计年 [ J. ]. *第四纪研究*, 1997, 17(3): 230-239 ]
- [ 34 ] Xu Jinyi, Wan Guojiang, Wang Changsheng et al. Vertical distribution of  $^{210}\text{Pb}$  and  $^{137}\text{Cs}$  and their dating in recent sediments of Luoguo Lake and Erhai Lake, Yunnan Province [ J. ]. *Journal of Lake Sciences* 1999, 11(2): 110-116 [ 徐经意, 万国江, 王长生, 等. 云南省泸沽湖、洱海现代沉积物中  $^{210}\text{Pb}$ 、 $^{137}\text{Cs}$  的垂直分布及其计年 [ J. ]. *湖泊科学*, 1999, 11(2): 110-116 ]
- [ 35 ] Xu Sijin, Wan Guojiang. Vertical distribution of  $^{137}\text{Cs}$  and  $^{210}\text{Pb}$  and their dating in modern sediments of Chenghai Lake, Yunnan Province [ J. ]. *Geology and Geochemistry* 2001, 29(1): 28-31 [ 胥思勤, 万国江. 云南省程海现代沉积物  $^{137}\text{Cs}$ 、 $^{210}\text{Pb}$  的分布及计年研究 [ J. ]. *地质地球化学*, 2001, 29(1): 28-31. ]
- [ 36 ] Lee H N, Feichter J. An intercomparison of wet precipitation scavenging schemes and the emission rates of  $^{222}\text{Rn}$  for simulation of global transport and deposition of  $^{210}\text{Pb}$  [ J. ]. *Journal of Geophysical Research* 1995, 100: 253-270
- [ 37 ] Lee H N, Wan Guojiang, Zheng Xiangdong et al. Measurements of  $^{210}\text{Pb}$  and  $^7\text{Be}$  in China and their analysis accompanied with global model calculations of  $^{210}\text{Pb}$  [ J. ]. *Journal of Geophysical Research* 2004, 109: D22203. doi: 10.1029/2004JD005061
- [ 38 ] Wan Guojiang, Yang Wei, Wang Shili et al. Characteristics of U-pattern distribution of high-concentration  $^{210}\text{Pb}$  in surface air at central Guizhou, China [ J. ]. *Chinese Science Bulletin* 2005, 50(16): 1750-1755. [ 万国江, 杨伟, 王仕禄, 等. 黔中地区近地面空气  $^{210}\text{Pb}$  的高浓度 U 型分布特征 [ J. ]. *科学通报*, 2005, 50(14): 1498-1502. ]
- [ 39 ] Zheng Xiangdong, Wan Guojiang, Tang Ji et al.  $^7\text{Be}$  and  $^{210}\text{Pb}$  radioactivity and implications on sources of surface ozone at Mt. Waibaiwan [ J. ]. *Chinese Science Bulletin* 2005, 50(2): 167-171 [ 郑向东, 万国江, 汤洁, 等. 瓦里关山近地面气溶胶中  $^7\text{Be}$  和  $^{210}\text{Pb}$  的观测及其对臭氧浓度变化的示踪 [ J. ]. *科学通报*, 2005, 50(1): 72-76 ]
- [ 40 ] Wan Guojiang, Zheng Xiangdong, Lee H N et al. A comparison for seasonal variation of  $^7\text{Be}$  concentrations in surface air between Mt. Waibaiwan and Mt. Guanfeng [ J. ]. *Geochimica* 2006, 35(3): 257-264 [ 万国江, 郑向东, Lee H N 等. 瓦里关山与观风山近地面空气  $^7\text{Be}$  浓度季节性变化对比 [ J. ]. *地球化学*, 2006, 35(3): 257-264 ]
- [ 41 ] Wan Guojiang, Wang Shili, Wan Enyuan et al. The advance of environmental  $^{210}\text{Pb}$  [ J. ]. *Bulletin of Mineralogy Petrology and Geochemistry* 2006, 25( SUPPL.): 5-9 [ 万国江, 王仕禄, 万思源, 等. 环境  $^{210}\text{Pb}$  研究新进展 [ J. ]. *矿物岩石地球化学通报*, 2006, 25(增刊): 5-9 ]
- [ 42 ] Wan G J, Lee H N, Wan E Y et al. Analyses of  $^{210}\text{Pb}$  concentrations in surface air and in rain water at the central Guizhou China [ J. ]. *Tellus B* 2008, 60(1): 32-41
- [ 43 ] Zheng Xiangdong, Wan Guojiang, Chen Zunyu et al. Measurement and meteorological analysis of  $^7\text{Be}$  and  $^{210}\text{Pb}$  in aerosol at Waibaiwan Observatory [ J. ]. *Advances in Atmospheric Sciences* 2008, 25(3): 401-416
- [ 44 ] Wan Guojiang, Wan Enyuan, Wang Shili et al. Aerosol transporters during freezing weather—Based on the observation of  $^{210}\text{Pb}$  and  $^7\text{Be}$  concentrations in surface air at Mt. Guanfeng, Guiyang, China [ J. ]. *Bulletin of Mineralogy Petrology and Geochemistry* 2009, 28( SUPPL.): 500 [ 万国江, 万思源, 王仕禄, 等. 冰雪凝冻天气对气溶胶的传输影响——基于贵阳观风山大气  $^{210}\text{Pb}$  和  $^7\text{Be}$  观测 [ J. ]. *矿物岩石地球化学通报*, 2009, 28(增刊): 500. ]
- [ 45 ] Ding Yihui, Wang Zunya, Song Yafang et al. Causes of the unprecedented freezing disaster in January 2008 and its possible association with the global warming [ J. ]. *Acta Meteorologica Sinica* 2008, 66(5): 808-825. [ 丁一汇, 王遵娅, 宋亚芳, 等. 中国南方 2008 年 1 月罕见低温雨雪冰冻灾害发生的原因及其与气候变暖的关系 [ J. ]. *气象学报*, 2008, 66(5): 808-825. ]

## $^{210}\text{Pb}$ and $^7\text{Be}$ as Tracers for Aerosol Transfers at Center Guizhou, China. I. The Explanation by Weekly Interval

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

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

**Abstract** It's essential to measure air concentrations and depositional fluxes of environmental radionuclides in different regions for modeling global contamination transfer and validation, tracing deposition process and dating, referencing watershed erosion trace and assessing natural radiation of ecosystem. This study introduces the research background and methods and explains weekly variations of  $^{210}\text{Pb}$  and  $^7\text{Be}$  concentrations in surface air and precipitation at Mt. Guanfeng/Guizhou since 2001. The results indicate that  $^{210}\text{Pb}$  and  $^7\text{Be}$  concentrations in surface air fluctuate periodically at 2~6 week interval because of the meteorological condition changes. The annual trend in  $^{210}\text{Pb}$  air concentration is overall influenced by air temperature variation and periodic rainfall.  $^7\text{Be}$  air concentration varies up and down regularly. The synchronization of low concentrations for both  $^{210}\text{Pb}$  and  $^7\text{Be}$  in surface air and high ratio ( $^{210}\text{Pb}/^7\text{Be} \geq 0.8$ ) indicate oceanic poor  $^{210}\text{Pb}/^7\text{Be}$  air mass invasion. The synchronization of high concentrations of  $^{210}\text{Pb}$  and  $^7\text{Be}$  in surface air and low ratio ( $^{210}\text{Pb}/^7\text{Be} \leq 0.7$ ) implies rich  $^7\text{Be}$  air mass invasion from a tropical atmosphere. Weekly concentrations of  $^{210}\text{Pb}$  and  $^7\text{Be}$  in precipitation and the  $K_d$  coefficients are high in late Autumn to Spring and low in late Spring to Autumn. Although  $^{210}\text{Pb}$  and  $^7\text{Be}$  concentrations vary seasonally, their weekly concentrations in precipitation increase with that of air concentration. The  $^{210}\text{Pb}$  and  $^7\text{Be}$  weekly concentrations for seasonal division is about 0.2 Bq/L and 1 Bq/L, respectively. However, the  $K_d$  coefficient decreases when  $^{210}\text{Pb}$  and  $^7\text{Be}$  air concentrations increase. Deposition of  $^{210}\text{Pb}$  and  $^7\text{Be}$  with precipitation mainly take place in Spring and Summer. The weekly fallout of  $^{210}\text{Pb}$  and  $^7\text{Be}$  increases with increasing precipitation, the increase of  $^7\text{Be}$  is triple of that of  $^{210}\text{Pb}$  and 2.5 when precipitation nears to zero. The weekly-high fallout of  $^{210}\text{Pb}$  and  $^7\text{Be}$  with precipitation corresponds with the dramatic decrease of their air concentrations within or vicinal weeks. The ratio of  $^{210}\text{Pb}$  to  $^7\text{Be}$  in rainfall is overall  $\leq 0.5$  and varies synchronously with the ratio in surface air, indicating that the two radionuclides are cleaned by precipitation from air at close speed. In the extreme freezing disaster in 2008, both  $^{210}\text{Pb}$  and  $^7\text{Be}$  air concentrations were low and coupling with coexist of low concentration of aerosol and high nuclides activities. Weekly concentration of  $^7\text{Be}$  in surface air at Mt. Guanfeng demonstrates the anticipated concentration level in the low-latitude and high-elevation region, the short term fluctuations of  $^7\text{Be}$  concentration indicated the hysteresis was influenced by the strong air current submersion and the low elevation air mass rising differently at Mt. Guanfeng and Mt. Wajiguan.

**Key words:** Aerosol transfers;  $^{210}\text{Pb}$ ;  $^7\text{Be}$ ; Weekly interval; Mt. Guanfeng; Mt. Wajiguan