第 32 卷第 9 期	环境科学学报	Vol. 32 ,No. 9
2012年9月	Acta Scientiae Circumstantiae	Sep. ,2012

万恩源,郑向东,万国江,等.2012.2011 年春季日本福岛核泄漏污染输送:贵阳¹³¹ I 和¹³⁷ Cs 观测示踪分析[J].环境科学学报,32(9): 2182--2188

Wan E Y Zheng X D , Wan G J , *et al.* 2012. Transport of the radioactivity leakage from the Japan Fukushima Nuclear Power Plant in 2011 spring: ¹³¹ I and ¹³⁷ Cs as the tracers observed in Guiyang , China [J]. Acta Scientiae Circumstantiae 32(9): 2182–2188

2011 年春季日本福岛核泄漏污染输送:贵阳¹³¹ I和 ¹³⁷ Cs观测示踪分析

万恩源¹,郑向东²,万国江^{1,*},王长生¹

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 ,贵阳 550002

2. 中国气象科学研究院 ,中国气象局大气化学开放实验室 ,北京 100081

收稿日期:2011-11-20 修回日期:2012-01-04 录用日期:2012-01-05

摘要:2011 年 3 月 11 日,日本本州 9.0 级地震引发了福岛核电站核泄漏,以及由此引起的¹³¹ I 和¹³⁷ Cs 在全球大气环流传输已引起了重视.理 论上也对这种输送路径进行了研究.本文报道 2011 年 3 月 17 日—4 月 28 日在贵阳观风山对气溶胶中天然核素(²¹⁰ Pb、⁷ Be)和人为核素 (¹³¹ I、¹³⁷ Cs)近地面空气浓度逐周采样的系统对比观测,并结合该时段贵阳离地面 500 m 高度逐周 315 h 的气团后向轨迹分析.结果表明:福 岛核泄漏污染物通过两条显著的途径输送到贵阳地区.第一条是首波核污染通过全球大气环流传输,由西向东,几乎环绕地球一周,历经约 10 d 至两周,最终在 3 月 24 日—31 日从我国的西北地区入侵抵至贵阳;第二条途径则是福岛地区上空的核污染气团受东北天气系统的挤压南 移并在低纬度地区再次先后受到东北和东南气流的影响,于 4 月 7 日—14 日抵达贵阳.核污染的第一条输送路径是全球尺度,第二条是东亚 区域尺度.

关键词: 福岛; 核泄漏; ¹³¹ I-¹³⁷ Cs-²¹⁰ Pb-⁷ Be; 气溶胶传输; 贵阳

文章编号: 0253-2468(2012) 09-2182-07 中图分类号: X142 文献标识码: A

Transport of the radioactivity leakage from the Japan Fukushima Nuclear Power Plant in 2011 spring: ¹³¹I and ¹³⁷Cs as the tracers observed in Guiyang ,China

WAN Enyuan¹ ZHENG Xiangdong² ,WAN Guojiang^{1,*} ,WANG Changsheng¹

1. State Key Laboratory of Environmental Geochemistry , Institute of Geochemistry , Chinese Academy of Sciences , Guiyang 550002

Key Laboratory of Atmospheric Chemistry of China Meteorological Administration ,Chinese Academy of Meteorological Sciences , Beijing 100081
Received 20 November 2011; received in revised form 4 January 2012; accepted 5 January 2012

Abstract: The 9.0 Ritcher scale earthquake happened on March 11th , 2011 in the Honshu Island , Japan had caused the radioactivity leakage from the Fukushima Nuclear Power Plant. The leaked artificial nuclides ,¹³¹ I and ¹³⁷ Cs , and their transport processes in the global atmosphere had drawn great public attention. In this paper , the concentrations of radioactive isotopes ⁷Be , ²¹⁰Pb , ¹³¹ I and ¹³⁷ Cs at the surface level in weekly aerosol samples obtained at the Guanfenshan Moutain , Guiyang , China from March 17th to April 28th , 2011 were reported. The variations of the nuclide concentrations associated with their transport paths were analyzed with 315 h-backward trajectories initialized at 500m from the surface level at Guiyang. The results revealed that there were two evident transport paths for ¹³¹ I and ¹³⁷ Cs from Fukushima to Guiyang. The first path , along with which radioactive pollution tracers reached Guiyang faster , was from the north-western China. These tracers transported eastward and took 10 days to two weeks to arrive the north-western China before they were detected on March 24th—31st in Guiyang. The second path extended south-eastward by the north-east Asian synoptic system at the beginning , then transported south-westward and north-westward before their arrivals on April 7th –14th in Guiyang. The first transport path of radioactive pollution tracer from the Fukushima Nuclear Power Plant to Guiyang was in the global scale while the second was in the East Asian regional scale.

Keywords: fukushima; nuclear leakiness; 131 I-137 Cs-210 Pb-7 Be; aerosol transport; Guiyang

Supported by the National Natural Science Foundation of China(No. 40873086, 40773071, 40830102)

作者简介: 万恩源(1976—) ,男, E-mail: wanenyuan@ vip. skleg. cn; * 通讯作者(责任作者) ,E-mail: wanguojiang@ vip. skleg. cn Biography: WAN Enyuan(1976—) ,male, E-mail: wanenyuan@ vip. skleg. cn; * Corresponding author, E-mail: wanguojiang@ vip. skleg. cn

基金项目: 国家自然科学基金(No. 40873086 40773071, 40830102)

1 引言(Introduction)

⁷Be、²¹⁰Pb 和¹³⁷Cs 是环境中广泛存在的放射性 核素,对于区域及全球气溶胶传输具有重要示踪意 义.自20世纪90年代以来,全球大气中的人为核 素¹³⁷Cs 已经处于检测线以下,难于确定.仅天然核 素⁷Be 和²¹⁰Pb 的空气浓度可供观测记录,通过对它 们在近地面空气浓度的长期观测,对于检验大气污 染物的全球浓度分布和模拟沉降通量变化具有重 要价值(Wan & Appleby,1998;万国江,Appleby, 2000; Santschi,1983).

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级 形成云贵静止锋. 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.我们自2001年冬开始在贵阳观风山 山侧(106°43′22.1″E 26°34′19.3″N 1080 m)(图1) 开展了气溶胶逐周连续采样,通过对近地面空气和 降水中⁷Be 和²¹⁰Pb 浓度的长期观测,取得了系统的 研究进展,其部分观测结果已经相继发表(Lee et al. 2004; 万国江等 2005; Wan et al., 2008; 万国 江等 2010a 2010b). 另外,我们自 2002 年起还在 青海瓦里关山全球大气本底站进行类似的观测(郑 向东等 2005; 万国江等 2006; Zheng et al. 2008; 郑





向东等 2011). 但是 近 10 余年间从未检测到近地 面空气中人为核素¹³¹I 和¹³⁷Cs 的存在.

⁷Be(半衰期 53.3 d) 是宇宙线轰击大气¹⁴N、¹⁶O 靶核而生成的放射性核素.⁷Be 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 1 a. 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(Lal & Peters,1967; Feely, *et al.*,1989). 当⁷Be 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⁷Be 产生和富集的源地,通过全球尺 度的 Brewer-Dobson 环流可以将⁷Be 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 (Feely *et al.*, 1989; Holton *et al.*, 1995; Zanis *et al.*,1999). 因此,近地面⁷Be 浓度的变化常作为 垂直方向上的气团向下输送最给力的示踪剂.⁷Be

²¹⁰ Pb(半衰期 22.3 a) 是²³⁸ U 系列中²²⁶ Ra(半衰 期 1622 a) 衰变中间产物²²² Rn(半衰期 3.8 d) 的α衰 变子体.²²² 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 Rn 逸散与生 成的比率自小于 1% 到大于 30% (Krishnaswami & Seidemann ,1988; Dörr & Mūnnich ,1990). 低层大气 中的²²² Rn 因逸散比率和气流输送的地区差异而发 生变化.²²² Rn 自陆地表面向大气的平均逸散输送 通量约为 0.015 Bq•m⁻²•a⁻¹; 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(Turekian *et al.*,1977; Dörr & Mūnnich ,1990). 所以,大气中 的²¹⁰ Pb 主要来自陆地表面,并具有明显的区域性分 布差异(Lee *et al.*,2004; 万国江等,2010b).

按照近地面空气中⁷ Be 与²¹⁰ Pb 浓度的形成机 制,当⁷ Be 浓度上升(或下降)则寓意高空气团下沉 加强(或减弱);而当²¹⁰ Pb 空气浓度明显上升(或下 降)时则表明大陆性气团入侵的加强(或减弱);而 海洋性气团入侵的加强,则是⁷ Be 与²¹⁰ Pb 浓度均明 显下降(万国江等 2010_a).

¹³¹I 是核裂变反应中早期混合裂变的重要产物 之一(半衰期 8.02 d),正常情况下自然界不会存 在.在核爆炸或核反应堆事故时,如果环境中¹³¹I 含 量增高,即表明有早期混合裂变产物溢出.因此, ¹³¹I可以作为核爆炸或核反应堆泄漏事故的示踪核 素.1986 年 4 月前苏联切尔诺贝利核事故排放的¹³¹I 总量为 1.8 ×10¹⁸ Bq. ¹³⁷Cs 是核爆炸试验散落的裂 变产物(半衰期 30.17 a),随大气放射尘而散落于 地表环境.进入大气圈的¹³⁷Cs 总活度与核裂变产 物的量成比例.自 1945 年到 1980 年间,进入全球 大气层的¹³⁷Cs 总活度估计为 1400 × 10¹⁵ Bq. 切尔 诺贝利核反应堆泄漏事故导致约 70 PBq 的¹³⁷Cs 进 入大气圈,产生全球扩散影响.

2011 年3月11日,日本本州9.0级地震引发海 啸及核泄漏.福岛第一核电站(Fukushima Nuclear Power Plant,141.033°E 37.421°N)反应堆不同程度 被损坏,造成放射核素(¹³¹I和¹³⁷Cs)的释放.对于 这次福岛核事故,中国环境保护部(国家核安全局) 等相关部门已经实时、多次发布检测结果及其对我 国大陆的影响,表明这些放射性物质给公众带来的 附加辐射剂量很低,对我国环境和公众健康不会产 生明显影响.需要回答的科学问题是:福岛事故的 核扩散物质在大气中是通过何种传输路径进入我 国的?其传输是否具有全球或区域尺度的示踪意 义?虽然国内外一些组织和研究机构通过数值模 拟开展了核泄漏物质传输的预测(乔方利等, 2011),但仍有必要对此进行科学验证.

本文报道 2011 年 3 月 17 日至 4 月 28 日间,笔 者在贵阳观风山气溶胶逐周采样对¹³¹ I、¹³⁷ Cs、²¹⁰ Pb 和⁷ Be 近地面空气浓度的系统观测结果,并结合美 国全球再分析气象数据 NCEP(National Center of Environment Prediction) 计算抵达贵阳(106°43′22.1″ E 26°34′19.3″N) 每日离地面 500 m 高度、为期 315 h 气团的后向轨迹在 XY 平面上的分布(Draxler & Rolph 2003),以了解核事故期间,贵阳每周采样的 气溶胶样品中气团所经过的地理位置来验证核污 染的输送路径.由于观测到的⁷ Be 和²¹⁰ Pb 本身就是 很好的垂直方向上的示踪物,本文后向轨迹计算不 给出气团在垂直方向上的输送过程.

2 样品及实验方法(Samples and experiment methods)

采样设备是美国环境测量实验室(EML,即 Environmental Measurements Laboratory, USA)研发 用于测量低水平核素的表层大气采样系统(SASS, Model 500NE Aerosol Sampler).采样系统置于环境 地球化学国家重点实验室实验楼顶,距地面约 30 m.

采样器(Fuji型)配备有20.3 cm × 25.4 cm的 矩形过滤器 在两层100%聚脂保护棉之间夹3 层 100% 的聚丙烯网滤膜过滤材料(Dynaweb, DW7301L),有效过滤面积407 cm².采样流速为 0.4~1.6 m³•min⁻¹.每周采集1个样品,即每个样 品的采样时间约为168 h. 每个样品的空气量校正 到国际标准体积为0.9×10⁴~1.1×10⁴ m³.

¹³¹I、¹³⁷Cs、²¹⁰Pb 和⁷Be 放射性活度系采用美国 Canberra 公司生产的 S-100 系列 16384 道能谱仪进 行 γ-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 4.7× $10^4 ~ 6.3 \times 10^4$ s. ¹³¹I、¹³⁷Cs、²¹⁰Pb 和⁷Be 计数峰的位 置分别为 363.5 keV、660.2 keV、46.1 keV 和 476.5 keV;样品测量计数按 1 个标准差控制,实际测量平 均误差分别为:±7.1%(¹³¹I)、±11.9%(¹³⁷Cs)、 ±1.9%(²¹⁰Pb)、±1.6%(⁷Be).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,并以效率曲线进行不同核素的活度计算.

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 量刻度和效率标定,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,前期曾就部 分聚丙烯网滤膜气溶胶样品等份分割后,分别由中 国科学院地球化学研究所环境地球化学国家重点 实验室与美国环境测量实验室同步进行对比测量. 两个实验室测量数据散点之间具有很好的一致性 (Lee *et al.* 2004; 万国江等 2010a).

3 结果与讨论(Results and discussion)

3.1 观测结果

自 2011-03-17 起,在贵阳观风山近地面空气气 溶胶逐周采样并对天然(⁷Be、²¹⁰Pb)及人为(¹³¹I、 ¹³⁷Cs)核素浓度变化的观测结果(表 1)表明:第一周 (3.17—3.24),⁷Be 和²¹⁰Pb 核素浓度较低,显示出 弱海洋性暖湿气团的影响;同时表明在福岛核事故 后的十余天内,未检测出¹³¹I及¹³⁷Cs.第二周 (3.24—3.31),⁷Be 浓度达到11.7 mBq·m⁻³,指示 了高空气团下沉;²¹⁰Pb 浓度为3.4 mBq·m⁻³,指示 出受内陆气团影响;此间,¹³¹I 浓度达到17.9 mBq·m⁻³,接近于自由大气层中⁷Be 的浓度,¹³⁷Cs 浓 度达 0.03 mBq·m⁻³.第三周(3.31—4.7),⁷Be 和 ²¹⁰Pb浓度正常下降,¹³¹I及¹³⁷Cs 浓度也分别下降到 4.5 mBq•m⁻³和 0.02 mBq•m⁻³. 第四周(4.7— 4.14) ⁷Be 和²¹⁰Pb 浓度变化不大,¹³¹I及¹³⁷Cs 浓度 分别上升至 5.4 mBq•m⁻³和 0.07 mBq•m⁻³,出现 了¹³⁷Cs 浓度的明显增大. 第五周(4.14—4.21),虽 然⁷Be 和²¹⁰Pb 浓度仍然指示出高空气团的弱下沉和 内陆地域的影响;但是人为核素的空气浓度已经明 显下降,¹³¹I 浓度下降到 2.4 mBq•m⁻³,¹³⁷Cs 浓度低 于 0.02 mBq•m⁻³ 指示出¹³¹I 的明显衰减和¹³⁷Cs 的 扩散稀释. 第六周(4.21—4.28),⁷Be 和²¹⁰Pb 浓度 仍然分别指示了高空气团的下沉和内陆地域的影 响;但是人为核素的空气浓度明显低于检测线.

为进一步剖析本文所观测¹³¹ I 和¹³⁷ Cs 逐周浓度

变化与福岛核事故污染物大气传输的相互关系,根据 NCEP 气象数据资料和后向轨迹模式(Draxler & Rolph 2003) 计算并绘出了 2011 年 3 月 17 日—4 月 28 日之间,每周 7 日贵阳离地面 500 m 高度为期 315 h 的气团后向轨迹(图 2).用 315 h(近两周的时间)是因为福岛核电站位于贵阳的下风向,核污染物可能通过全球尺度、环绕地球一周输送到我国境内所需要的时间可能也在近两周左右.考虑到 3—4 月西南近地边界层混合高度至少在 500 m 以上,本文后向轨迹计算的气团起始高度选择离地面 500 m.

表1 贵阳观风山近地面空气天然(⁷Be、²¹⁰Pb)及人为(¹³¹I、¹³⁷Cs)核素浓度(2011-3-17--4-28)¹⁾

Table 1 Concentration of natural (⁷ Be ²¹⁰ Pb) and anthropogenic (¹³¹ I ¹³⁷ Cs) radionuclides in surface air at Guiyang					
采样日期	采样体积 ²⁾ /m ³	⁷ Be /(mBg•m ⁻³)	²¹⁰ Pb /(mBg•m ⁻³)	131 I /(mBq•m ⁻³)	137 Cs /(mBq•m ⁻³)
2011-03-17-2011-03-24	11076	3.1±0.1	1.5 ± 0.1	0	0
2011-03-24-2011-03-31	10314	11.7±0.1	3.4 ± 0.1	7.9 ± 0.8	0.03 ± 0.01
2011-03-31-2011-04-07	10587	5.1 ±0.1	2. 3 ± 0.1	4.5 \pm 0.4	0.02 ± 0.01
2011-04-07-2011-04-14	10921	4.5 ± 0.1	2.7 ± 0.1	5.4 ± 0.5	0.07 ± 0.01
2011-04-14-2011-04-21	9753	8.7 ± 0.1	3.4 ± 0.1	2.4 ± 0.3	0.02 ± 0.01
2011-04-21-2011-04-28	9080	10.9 \pm 0.1	3.6 ± 0.1	0	0

注:1) 测量误差按1 σ 计;2) 采样体积已校国际标准.

3.2 福岛核泄漏经全球大气环流对贵阳影响

第一周(3.17 — 3.24), ⁷Be 和²¹⁰Pb 核素浓度较低,显示出海洋性气团的影响;未检测出¹³¹I及¹³⁷Cs, 表明福岛核事故后的10 d内污染物未能到达贵阳. 由图 2a 可见:贵阳站点的后向轨迹包括我国西北地 区和南亚大陆印度半岛地区两个部分.该两个扇区 显然还未受到经过核泄漏点气团输送的影响;同 时,气团来自纬度较低的南亚地区,贵阳近地面空 气⁷Be 和²¹⁰Pb 浓度也必然较低.

第二周(3.24—3.31),在贵阳观测到⁷Be浓度 达11.7 mBq•m⁻³,指示了高空气团下沉;²¹⁰Pb浓度 为3.4 mBq•m⁻³,指示出兼受内陆气团的正常影响. 此间,人为核素¹³¹I及¹³⁷Cs浓度分别达到17.9 mBq•m⁻³和0.03 mBq•m⁻³ 表明在贵阳首先观测到 福岛核泄漏污染的气团具备高空下沉和内陆属性, 而污染物出现的时间距事故发生至少有13 d以上, 具备全球尺度的大气环流输送特点.

图 2b 可见,此时段贵阳地区的后向轨迹气团均 来自我国西北和中亚地区,跨越纬度在 40°~60°N 之间,属于典型高空低压槽过境天气特征.高空存 在明显的下沉气流,在贵阳观测⁷Be 的高浓度值同 样验证了这一事实.该周时段内观测到高浓度¹³¹ I 和一定浓度的¹³⁷C,显示了自2011年3月11日福岛 发生核泄漏以来,经过约10d至2周左右的时间, 已完成了首波的全球的扩散传输,再途经我国西北 进入贵阳.上述观测结果与已经报道的模拟和预测 结果在时序上具有可比性(乔方利等2011).

日本福岛地处冬、春季北半球高空急流所控制的纬度范围.当核泄漏发生后,高浓度¹³¹I进入大 气 在近地边界层经过充分混合、扩散或对流进入 自由大气高度,并在强劲的高空急流的输送下,快 速地由西向东沿其所在的纬度区域向全球传输.根 据观测浓度并对¹³¹I按照大约1个半衰期的衰变估 计 福岛第一次核泄漏进入大气环流扩散的¹³¹I和 ¹³⁷Cs浓度比约为1300.

3.3 东亚区域尺度下福岛核泄漏物的直接传输

由于后向轨迹的转变(图 2c) ,南亚低纬气团因 占据了主要部分 *A*. 1—4.7间在贵阳观测到的人为 核素浓度明显下降 ,而⁷Be 和²¹⁰Pb 等天然核素的浓 度也比较低.但这种状况在尔后的一周(4.7— 4.14)又发生改变:其间有 2 d 的气流轨迹经过福岛 上空(图 2d) 在贵阳观测到的¹³¹I 和¹³⁷Cs 浓度再明 显上升 特别是¹³⁷Cs 浓度的明显增大,上升至0.07 mBq•m⁻³;同时,来自东北亚高空的下沉气流显然 也增大了天然核素⁷Be 和²¹⁰Pb 的浓度.由图 2d 及 贵阳观测人为核素浓度的变化可以看出,尽管日本 在我国的下风向,但是在特定的天气系统下,福岛 的核泄漏物仍然可以直接输送到我国.郑向东等

(2004) 早年在临安臭氧探空观测数据后向轨迹的 诊断分析也曾注意到,来自韩国和日本的污染可以 影响到我国东部地区.本文的观测和分析进一步说 明这种污染直接传输影响到我国西南地区的可能 性.



图 2 贵阳(2011-3-17-4-28 期间) 315 h 后向轨迹的分布(五星点位为贵阳)(a: 3.17-24; b: 3.25-31; c: 4.1-7; d: 4.8-14; e: 4.15-21; f: 4.22-28)

Fig. 2 Distribution of back trajectories (2011-3-17-4-28) over 315 hours at Guiyang site in China

此现象还表明福岛第二次核泄漏(乏燃料水池 的部分放射性物质释放)中,较长半衰期核素¹³⁷Cs 可能更加明显.

第五周(4.14.—4.21.)及尔后的观测表明,虽 然⁷Be 和²¹⁰Pb 浓度仍然指示出高空气团的弱下沉和 内陆地域的影响;但随着气流的改变(图 2e 和图 2f)、¹³¹I 经过4个半衰期的衰减和稀释及¹³⁷Cs的扩散稀释变化,在贵阳观测到的人为核素空气浓度已 经明显下降.

4 结论(Conclusions)

2011年日本福岛核泄漏污染物在全球尺度的

大气环流下,通过两条输送途径进入到我国西南 地区.

1) 第一条输送路径是¹³¹ I 及¹³⁷ Cs 通过全球尺度 的扩散,于3月下旬自中亚和我国西北地区上空进 入贵阳.在环流区位上,这个季节福岛位于亚洲大 陆冬季风区控制下的中国下风方位,污染物需要经 过近于环球一周的扩散途径,滞后约10 d 至2 周左 右.这一事实表明进入大气的核污染物通过大气环 流传输,产生全球性的扩散影响.

2) 第二波污染物是在 4 月中旬,尽管福岛作为 我国下风向的地点,但因东北亚高空低压天气系统 的挤压南移,福岛核污染气团被输送到低纬度地区 并在东南暖湿气流的影响再次输送到我国的西南 地区.这一输送时间短,具有显著的东亚区域尺度 特征.

责任作者简介:万国江(1940—),男,研究员,核子地球化学 专业,主要从事区域环境演变、环境过程和核素示踪研究, Tel:0851-5891298, E-mail: wanguojiang@ vip. skleg. cn.

参考文献(References):

- Dörr H , Münnich K O. 1990. ²²²Rn flux and soil air concentration profiles in West-Germany. Soil ²²²Rn as a tracer for gas transport in the unsaturated soil zone [J]. Tellus B ,42: 20–28
- Draxler R R. 2003. Evaluation of an ensemble dispersion calculation [J]. Journal of Applied Meteorology ,42:308-317
- Feely H W , Larsen R J , Sanderson C G. 1989. Factors that cause seasonal variations in Beryllium-7 concentrations in surface air [J]. Journal of Environmental Radioactivity ,9(3):223–249
- Holton J R , Haynes P H , McIntyre E M , et al. 1995. Stratospheretroposphere exchange [J]. Reviews of Geophysics , 33: 403-439
- Krishnaswami S , Seidemann D E 1988. Comparative study of $^{222}\,Rn$, $^{40}\,Ar$, $^{39}\,Ar$ and $^{37}\,Ar$ leakage from rocks and minerals: Implications for the role of nanopores in gas transport through natural silicates [J]. Geochim Cosmochim Acta , 52: 655-658
- Lal D, Peters B. 1967. Cosmic Ray Produced Radioactivity on the Earth. In: Handbuch der Physik [J]. New York: Springer-Verlag. 46(2):551-612
- Lee H N , Wan G J , Zheng X D , et al. 2004. Measurements of ²¹⁰ Pb and ⁷Be in China and Their Analysis Accompanied with Global model calculations of ²¹⁰ Pb [J]. JGR ,109 , D22203 , doi: 10.1029/ 2004JD005061
- 乔方利,王关锁,赵伟,等.2011.2011年3月日本福岛核泄漏物质 输运扩散路径的情景模拟和预测[J].科学通报,56(12): 964-971
- Qiao F L , Wang G S , Zhao W , et al. 2011. Predicting the spread of nuclear radiation from the damaged Fukushima Nuclear Power Plant [J]. Chinese Sci Bull , 56(8):1890–1896

- Santschi P H. 1983. Radioisotopes in aquatic sciences [J]. EAWAG/ News, (14–15): 1–6
- Turekian K K, Nozaki Y & Benninger L K. 1977. Geochemistry of atmospheric radon and radon products [J]. Ann Rev Earth Planet Sci 5:227-255
- Wan G J , Appleby P G. 1999. Radionuclides in ecological systems. (A. Farina ed). 《Perspectives in Ecology , A glance from the VII International Congress of Ecology (INTECOL) , Florence , Italy , 19–25 July 1998》. [M]. Leiden: Backhuys Publishers. 369–379
- 万国江, Appleby P G. 2000. 环境生态系统散落核素示踪研究新进展[J]. 地球科学进展 15(2):172–177
- Wan G J , Appleby P G. 2000. Progress on Fallout Radionuclides as Tracers in Environ-Ecological Systems [J]. Advance in Earth Sciences , 15(2): 172–177 (in Chinese)
- 万国江,杨伟,王仕禄,等. 2005. 黔中地区近地面空气²¹⁰ Pb 的高 浓度 U 型分布特征[J]. 科学通报 50(14):1498-1502
- Wan G J ,Yang W ,Wang S L ,et al. 2005. Characteristics of U-pattern distribution of high-concentration ²¹⁰ Pb in surface air at central Guizhou , China [J]. Chinese Science Bulletin , 50 (16): 1750–1755
- 万国江 郑向东 Lee H N,等. 2006. 瓦里关山与观风山近地面空气 ⁷Be浓度季节性变化对比[J]. 地球化学 35(3):257-264
- Wan G J , Zheng X D , Lee H N *et al.* 2006. A comparison for seasonal variation of ⁷Be concentrations in surface air between Mt. Waliguan and Mt. Guanfeng [J]. Geochimica , 35 (3): 257–264 (in Chinese)
- Wan G J , Lee H N , Wan E Y , et al. 2008. Analyses of ²¹⁰ Pb concentrations in surface air and in rain water at the central Guizhou , China [J]. Tellus B ,60(1):32-41
- 万国江,万恩源,王仕禄,等. 2009. 冰雪凝冻天气对气溶胶的传输 影响一基于贵阳观风山大气²¹⁰ Pb 和⁷ Be 观测 [J]. 矿物岩石地 球化学通报 28(增刊):500-500
- Wan G J , Wan E Y ,Wang S L , et al. 2009. Aerosol transfers during freezing weather — Based on the observation of ²¹⁰ Pb and ⁷ Be concentrations in surface air at Mt. Guanfeng ,Guiyang ,China [J]. Bulletin of Mineralogy ,Petrology and Geochemistry 28(Supp) : 500– 500(in Chinese)
- 万国江,郑向东,Lee H N,等. 2010a. 黔中气溶胶传输的²¹⁰ Pb 和 ⁷Be示踪: I.周时间尺度的解释[J].地球科学进展 25(5): 492-504
- Wan G J , Zheng X D , Lee H N *et al.* 2010a. ²¹⁰Pb and⁷Be as tracers for aerosol transfers at center Guizhou ,China: []. The explanation by weekly interval[J]. Advances in Earth Science ,25(5): 492–504 (in Chinese)
- 万国江,郑向东,Lee H N,等. 2010b. 黔中气溶胶传输的²¹⁰ Pb 和 ⁷Be示踪: Ⅱ. 月及年时间尺度的剖析[J]. 地球科学进展 25 (5):505-514
- Wan G J , Zheng X D , Lee H N *et al.* 2010b. ²¹⁰Pb and⁷Be as tracers for aerosol transfers at center Guizhou ,China: []. The interpretation by monthly and yearly intervals [J]. Advances in Earth Science 25 (5):505–514 (in Chinese)
- Zanis P , Schuepbach E , Gäggeler H W , et al. 1999. Factors controlling

beryllium–7 at Jungfraujoch in Switzerland [J] , Tellus B , $51\,(\,4)$: 789–805

- 郑向东,陈尊裕,崔宏,等. 2004,长江三角洲地区春季低空大气臭 氧垂直分布特征[J].中国科学D辑,32(12):1184-1192
- Zheng X D , Chan C Y , Cui H. *et al.* 2004. Characteristics of vertical ozone distribution in the lower troposphere in the Yangtze River Delta at Lin´an in the spring of 2001 [J]. Sci in China Ser (D Earth Sci) ,48(9):1519–1528
- 郑向东,万国江,汤洁,等.2005. 瓦里关山近地面气溶胶中⁷Be 和²¹⁰Pb的观测及其对臭氧浓度变化的示踪[J].科学通报,50 (1):72-76
- Zheng X D , Wan G J , Tang J , et al. 2005. ⁷Be and ²¹⁰Pb radioactivity and implications on sources of surface ozone at Mt. Waliguan [J].

Chinese Science Bulletin , $50(\,2):167{-}171$

- Zheng X D , Wan G J , Chen Z Y , et al. 2008. Measurement and meteorological analysis of ⁷Be and ²¹⁰Pb in aerosol at Waliguan Observatory [J]. Advances in Atmospheric Sciences ,25 (3): 401-416
- 郑向东,万国江,汤洁.2011.⁷Be和²¹⁰Pb示踪研究瓦里关山近地 面 O₃和 CO₂浓度变化特征[J].中国科学 D 辑(地球科学) *A*1 (4):562-572
- Zheng X D , Wan G J , Tang J. 2011. Source characteristics of O₃ and CO₂ at Mt. Waliguan Observatory , Tibetan Plateau implied by using ⁷Be and ²¹⁰Pb [J]. Sci China Earth Sci , 54: 550–560 , doi: 10.1007/s11430-010-4121-x