

确定大气颗粒物平均滞留时间的新方法*

刘亚春[†]

(南华大学数理学院, 衡阳 421001)

(南华大学核科学技术学院, 衡阳 421001)

(2012年8月16日收到; 2012年12月12日收到修改稿)

从低层大气的基本属性出发, 利用大气颗粒物中放射性核素的衰变特性与转移速率等相关信息, 建立了单位体积大气颗粒物中被吸附的放射性粒子数、衰变粒子数和转移粒子数的数学模型, 获得了确定低层大气颗粒物平均滞留时间的新方法. 该方法解决了当前相关研究中出现的困惑, 说明了大气具有有限的自净功能, 给出了大气颗粒物中同一衰变链上各核素达到活度平衡的条件及降低平均滞留时间的途径, 为大气环境的监测与治理提供了科学依据.

关键词: 大气颗粒物, 平均滞留时间, 氡子体, 监测

PACS: 23.90.+w, 92.60.Mt, 92.60.Sz

DOI: 10.7498/aps.62.092301

1 引言

随着工业的发展、城市规模的扩大和一次性能源消耗的迅速增长, 大气环境质量日趋恶化^[1-3], 大气中高浓度的颗粒物和气体污染物通过散射和吸收消光作用造成大气能见度下降^[4-6], 某些有毒、致癌、致突变物通过大气中悬浮颗粒物的运载或加工, 经呼吸道或皮肤等进入人体而沉积到肺泡和血液中, 导致心肺功能障碍, 危害人体健康^[7-11].

大气颗粒物对环境和人类健康的危害, 除了与大气颗粒物的浓度、粒径分布和成分等有关外^[10-13], 还与不同粒径大气颗粒物在大气中的平均滞留时间有重要关系^[13-16]. 在污染源一定的情况下, 其滞留时间的长短会影响大气颗粒物在大气中的浓度、扩散范围和人体的吸入量. 滞留时间越长, 其可能吸附的重金属和有毒有害物质就越多, 输送的距离可能越远, 产生的化学反应可能越多, 形成的二次污染可能越严重. 因此, 要想深入研究大气颗粒物造成的污染, 就必须研究并掌握不同粒径的大气颗粒物在空中的滞留时间, 以便采取相应

的防治措施.

不同粒径的大气颗粒物在不同的气象条件下具有不同的稀释扩散能力, 风向、风速、湍流、降雨等气象条件会影响大气颗粒物的滞留时间. 单个的大气颗粒物的滞留时间受很多随机因素的影响, 不可能也没有必要对之进行观测或研究, 在实际研究和应用中只须考虑大量的某一粒径范围内的大气颗粒物的平均滞留时间 (Mean Residence Time or Residence Time of Atmospheric Aerosol, MRT or RTAA). 目前, 国内外学者对局部地域大气颗粒物的 MRT 进行了多方面的研究^[17-21], 其研究原理、方法和主要结论如下:

大气中存在着天然的和人工的两类放射性核素, 这些核素与极化空气、水或其他微粒结合成带阳离子的大气颗粒物, 粒径越小, 比表面积越大, 吸附、浓集放射性核素的能力越强. 大气中的氡以团簇形式进行漂移、扩散和衰变^[22-24], 释放出²¹⁰Pb,²¹⁰Bi 和²¹⁰Po 等游离态原子, 通过成核、凝结和吸附等途径形成亚微米颗粒物, 参与大气的运动过程.

记 N_p 和 N_d 为某一粒径范围内的单位体积的大气中放射性核素母体与子体的粒子数, λ_p 和 λ_d

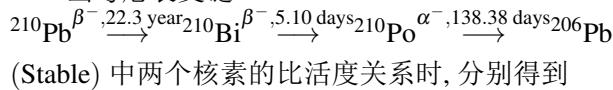
* 国家自然科学基金(批准号: 11075070) 和湖南省研究生创新基金(批准号: CX2009B187) 资助的课题.

† 通讯作者. E-mail: liuyachun65@usc.edu.cn

为它们的衰变常量, λ_R 为转移系数, 则有

$$\frac{dN_d}{dt} = \lambda_p N_p - (\lambda_d + \lambda_R) N_d. \quad (1)$$

当考虑衰变链



$$\frac{dN_{\text{Bi}}}{dt} = \lambda_{\text{pb}} N_{\text{pb}} - (\lambda_{\text{Bi}} + \lambda_R) N_{\text{Bi}} = 0, \quad (2)$$

$$\frac{dN_{\text{Po}}}{dt} = \lambda_{\text{Bi}} N_{\text{Bi}} - (\lambda_{\text{Po}} + \lambda_R) N_{\text{Po}} = 0. \quad (3)$$

由 (2) 式可得

$$\lambda_R = \frac{\lambda_{\text{Pb}} N_{\text{Pb}} - \lambda_{\text{Bi}} N_{\text{Bi}}}{N_{\text{Bi}}}, \quad (4)$$

从而

$$\text{RTAA} = \frac{1}{\lambda_R} = \frac{1}{\lambda_{\text{Bi}}} \cdot \frac{\lambda_{\text{Bi}} N_{\text{Bi}}}{1 - \frac{\lambda_{\text{Bi}} N_{\text{Bi}}}{\lambda_{\text{Pb}} N_{\text{Pb}}}}. \quad (5)$$

由 (2) 式得

$$N_{\text{Bi}} = \frac{\lambda_{\text{Pb}} N_{\text{Pb}}}{\lambda_{\text{Bi}} + \lambda_R}. \quad (6)$$

将 (6) 式代入 (3) 式得

$$\frac{\lambda_{\text{Po}} N_{\text{Po}}}{\lambda_{\text{Pb}} N_{\text{Pb}}} = \frac{(\text{RTAA})^2}{\left(\text{RTAA} + \frac{1}{\lambda_{\text{Bi}}} \right) \cdot \left(\text{RTAA} + \frac{1}{\lambda_{\text{Po}}} \right)}. \quad (7)$$

(5) 式表明: 只要测得 ^{210}Bi 和 ^{210}Pb 的活度比, 即可求出 MRT 或 RTAA. (7) 式表明: 只要获得了 ^{210}Po 和 ^{210}Pb 的活度比, 也可以求出 MRT 或 RTAA. 比活度越高, 平均滞留时间越长; 当活度比趋 1 时, RTAA 趋于无穷大. 所以, (5) 式或 (7) 式所表达的实质性意义是: 通过测量当前两子体的活度比, 可以估计出这两种子体在趋向活度平衡的过程中已经经历的平均时间. 可是, 同一粒径范围的大气颗粒物分别用 (5) 式和 (7) 式计算出来的 RTAA 结果差别很大 [21], 基于 ^{210}Bi 和 ^{210}Pb 的活度比得到的大气颗粒物的滞留时间可能为几天, 而利用 ^{210}Po 和 ^{210}Pb 的活度比得到的滞留时间可能长达一个月甚至更长.

文献 [21] 等将巴特曼公式 [25,26] 应用到衰变链



得到

$$N_{\text{Pb}}(t) = N_{\text{Pb}}(0) \cdot e^{-\lambda_{\text{Pb}} t}, \quad (8)$$

$$N_{\text{Bi}}(t) = N_{\text{Pb}}(0) \cdot (a_1 e^{-\lambda_{\text{Pb}} t} + a_2 e^{-\lambda_{\text{Bi}} t}), \quad (9)$$

$$N_{\text{Po}}(t) = N_{\text{Pb}}(0) \cdot (b_1 e^{-\lambda_{\text{Pb}} t} + b_2 e^{-\lambda_{\text{Bi}} t} + b_3 e^{-\lambda_{\text{Po}} t}), \quad (10)$$

其中

$$a_1 = \frac{\lambda_{\text{Pb}}}{\lambda_{\text{Bi}} - \lambda_{\text{Pb}}}, \quad a_2 = \frac{\lambda_{\text{Pb}}}{\lambda_{\text{Pb}} - \lambda_{\text{Bi}}},$$

$$b_1 = \frac{\lambda_{\text{Pb}} \lambda_{\text{Bi}}}{(\lambda_{\text{Bi}} - \lambda_{\text{Pb}})(\lambda_{\text{Po}} - \lambda_{\text{Pb}})},$$

$$b_2 = \frac{\lambda_{\text{Pb}} \lambda_{\text{Bi}}}{(\lambda_{\text{Pb}} - \lambda_{\text{Bi}})(\lambda_{\text{Po}} - \lambda_{\text{Bi}})},$$

$$b_3 = \frac{\lambda_{\text{Pb}} \lambda_{\text{Bi}}}{(\lambda_{\text{Pb}} - \lambda_{\text{Po}})(\lambda_{\text{Bi}} - \lambda_{\text{Po}})}.$$

(9) 式中有两个未知数, 即 $N_{\text{Pb}}(0)$ 和 t , 其中 $N_{\text{Pb}}(0)$ 表示等效初始时刻 $t = 0$ 时单位体积的大气中母体 ^{210}Pb 的原子核数. 设从第 1 次测量到第 2 次测量的时间间隔 Δt 已知, 如果将两次测量的数据代入 (9) 式, 解方程组即可求出

$$t = \frac{1}{\lambda_{\text{Bi}} - \lambda_{\text{Pb}}} \cdot \ln \frac{a_2 \left[N_{\text{Bi}}^{(2)} - N_{\text{Bi}}^{(1)} e^{-\lambda_{\text{Bi}} \Delta t} \right]}{a_1 \left[N_{\text{Bi}}^{(1)} e^{-\lambda_{\text{Pb}} \Delta t} - N_{\text{Bi}}^{(2)} \right]} \quad (11)$$

(该式对应文献 [21] 中不正确的 (4)–(7) 式) 其中, t 表示大气颗粒物中的放射性核素从只有母体存在的状态往平衡态演变所经历的时间, 也未必是 MRT 或 RTAA, 其中 $N_{\text{Bi}}^{(1)}$, $N_{\text{Bi}}^{(2)}$ 分别表示第 1, 2 次测量得到的单位体积的大气中子体 ^{210}Bi 的原子核数; (11) 式成立的前提条件是: 大气中各放射性子体处于活性平衡、与外界无物质及能量交换, 在等效初始时刻, 相对于放射性核素母体而言, 其子体的初始活度为零. 事实上, 对流层中的低层大气并不满足 (11) 式成立的前提条件, 实际测量得到的可能是不平衡的活度数据, 代入 (11) 式时可能出错.

综上所述, 确定大气颗粒物平均滞留时间的方法存在一些缺陷, 需要从低层大气的基本属性出发, 利用大气颗粒物中放射性核素的衰变特性与转移速率等相关信息, 建立给定粒径范围内单位体积的大气颗粒物中被吸附的放射性粒子数、衰变粒子数和转移粒子数的数学模型, 获得计算低层大气颗粒物平均滞留时间的新的正确方法.

2 大气颗粒物滞留时间的计算模型

2.1 低层大气的基本特性

大气是人类赖以生存的环境, 其主要成分是氮气、氧气、二氧化碳、臭氧、水汽和尘埃等固体

杂质。洁净的空气在自然状态下其组成成份变化很小,但由于人类活动的影响已使其中某些组成成份发生了变化。在垂直地面的方向上,大气的各种物理特性随高度的变化差异明显,其中,2 km 高度范围内的下对流层与人类的生存更是息息相关,充沛的水汽和尘埃以及气流对地面的摩擦与扰动,使得低层大气更加复杂多变。

在土壤和岩石中,分别存在约 1—5 ppm 和 2—12 ppm 的 ^{238}U 和 ^{232}Th ,土壤中两者的活性强度达到 7—60 Bq / kg。地壳中原生放射性核素 ^{238}U , ^{232}Th 和 ^{235}U 在其衰变过程中,分别产生 ^{222}Rn , ^{220}Rn 和 ^{219}Rn 。氡一旦形成,将通过岩石和土壤散发到大气中,大气中氡的平均浓度为 7 Bq / m³ (U.S.NCRP, 1989);氡的前身镭通过地下水溶解带到江河、湖泊和溪流中,为大气氡的形成提供了丰富的储备。 ^{220}Rn 和 ^{219}Rn 的半衰期很短,分别只有 55.6 s 和 3.96 s,与 ^{222}Rn 无相同的衰变子体,在采样若干分钟之后,样本中的 ^{220}Rn 和 ^{219}Rn 几乎被衰减掉。

^{222}Rn 经过总半衰期为 30 min 的短寿命同位素 ^{218}Po , ^{214}Pb , ^{214}Bi 和 ^{214}Po 衰变后,产生长寿核素 ^{210}Pb , ^{210}Bi 和 ^{210}Po ,新形成的核素子体会快速附着在气溶胶粒子上,由于 ^{210}Pb 和 ^{210}Po 同大气颗粒物的亲和力之间存在差异 [27],而且 ^{210}Po 的沉积通量只有 ^{210}Pb 的 10%—20% [28],使得大气颗粒物中母、子体的放射性活度达不到永久性平衡。一般情况下, ^{210}Po 与 ^{210}Pb 的活度比小于 1,如果大于 1,则表示存在过剩的 ^{210}Po 来源 [29—32]。

2.2 大气颗粒物中 ^{210}Pb , ^{210}Bi 和 ^{210}Po 的比活度

上一节分析表明: 大气颗粒物中,相对于放射

性核素母体而言,子体的初始活度未必为零,不同放射性核素的转移系数未必相同。设 B 是 A 的直接子体,C 是 B 的直接子体, N_A , N_B 和 N_C 分别为单位体积的大气中放射性核素 A, B, C 的粒子数, λ_A , λ_B 和 λ_C 为它们的衰变常量, μ_A , μ_B 和 μ_C 为它们的转移系数,转移系数为正,表示移出;转移系数为负,表示移进;转移系数为 0,表示无转移。则有

$$\frac{dN_A}{dt} = -\lambda_A(N_A - \mu_A N_A) - \mu_A N_A, \quad (12)$$

$$\begin{aligned} \frac{dN_B}{dt} &= \lambda_A(N_A - \mu_A N_A) - \mu_B N_B \\ &\quad - \lambda_B(N_B - \mu_B N_B), \end{aligned} \quad (13)$$

$$\begin{aligned} \frac{dN_C}{dt} &= \lambda_B(N_B - \mu_B N_B) - \mu_C N_C \\ &\quad - \lambda_C(N_C - \mu_C N_C). \end{aligned} \quad (14)$$

设放射性核素 A, B, C 在某个等效的初始时刻的粒子数分别为 $N_A(0)$, $N_B(0)$ 和 $N_C(0)$ 。由 (12) 得

$$N_A = N_A(0) \cdot e^{-(\lambda_A + \mu_A - \lambda_A \mu_A)t}. \quad (15)$$

将 (15) 式代入 (13) 式,解得

$$\begin{aligned} N_B &= N_A(0) \cdot \left[\frac{\lambda_A(1 - \mu_A)}{(\lambda_B + \mu_B - \lambda_B \mu_B) - (\lambda_A + \mu_A - \lambda_A \mu_A)} \right. \\ &\quad \times e^{-(\lambda_A + \mu_A - \lambda_A \mu_A)t} \\ &\quad + \frac{\lambda_A(1 - \mu_A)}{(\lambda_A + \mu_A - \lambda_A \mu_A) - (\lambda_B + \mu_B - \lambda_B \mu_B)} \\ &\quad \times e^{-(\lambda_B + \mu_B - \lambda_B \mu_B)t} \Big] \\ &\quad + N_B(0) \cdot e^{-(\lambda_B + \mu_B - \lambda_B \mu_B)t}. \end{aligned} \quad (16)$$

将 (16) 式代入 (14) 式,解得

$$\begin{aligned} N_C &= N_A(0) \cdot \left[\frac{\lambda_A \lambda_B (1 - \mu_A) (1 - \mu_B)}{((\lambda_B + \mu_B - \lambda_B \mu_B) - (\lambda_A + \mu_A - \lambda_A \mu_A)) \cdot ((\lambda_C + \mu_C - \lambda_C \mu_C) - (\lambda_A + \mu_A - \lambda_A \mu_A))} \right. \\ &\quad \times e^{-(\lambda_A + \mu_A - \lambda_A \mu_A)t} \\ &\quad + \frac{\lambda_A \lambda_B (1 - \mu_A) (1 - \mu_B)}{((\lambda_A + \mu_A - \lambda_A \mu_A) - (\lambda_B + \mu_B - \lambda_B \mu_B)) \cdot ((\lambda_C + \mu_C - \lambda_C \mu_C) - (\lambda_B + \mu_B - \lambda_B \mu_B))} \\ &\quad \times e^{-(\lambda_B + \mu_B - \lambda_B \mu_B)t} \\ &\quad + \frac{\lambda_A \lambda_B (1 - \mu_A) (1 - \mu_B)}{((\lambda_A + \mu_A - \lambda_A \mu_A) - (\lambda_C + \mu_C - \lambda_C \mu_C)) \cdot ((\lambda_B + \mu_B - \lambda_B \mu_B) - (\lambda_C + \mu_C - \lambda_C \mu_C))} \\ &\quad \times e^{-(\lambda_C + \mu_C - \lambda_C \mu_C)t} \Big] \\ &\quad + N_B(0) \cdot \left[\frac{\lambda_B (1 - \mu_B)}{(\lambda_C + \mu_C - \lambda_C \mu_C) - (\lambda_B + \mu_B - \lambda_B \mu_B)} e^{-(\lambda_B + \mu_B - \lambda_B \mu_B)t} \right. \end{aligned}$$

$$+ \frac{\lambda_B(1-\mu_B)}{(\lambda_B + \mu_B - \lambda_B\mu_B) - (\lambda_C + \mu_C - \lambda_C\mu_C)} e^{-(\lambda_C + \mu_C - \lambda_C\mu_C)t} \\ + N_C(0) \cdot e^{-(\lambda_C + \mu_C - \lambda_C\mu_C)t}. \quad (17)$$

如果在(15)–(17)式中令 $\mu_A = \mu_B = \mu_C = 0$, $N_B(0) = N_C(0) = 0$, 并将A, B, C分别替换成 ^{210}Pb , ^{210}Bi 和 ^{210}Po , 则得到(8)–(10)式, 即本文中(15)–(17)式是参考文献[21]中(4-2)式至(4-4)式和文献[26]中巴特曼公式的推广.

将(16)式除以(15)式, 得到B与A的活度比 $\frac{\lambda_B N_B(t)}{\lambda_A N_A(t)} \triangleq r(B/A, t)$ 与时间t、初始活度 $r(B/A, 0)$ 及转移系数 μ_A , μ_B 的关系式

$$r(B/A, t) = \frac{(1-\mu_A)\lambda_B}{(\lambda_B + \mu_B - \lambda_B\mu_B) - (\lambda_A + \mu_A - \lambda_A\mu_A)} \\ + \left[r(B/A, 0) - \frac{(1-\mu_A)\lambda_B}{(\lambda_B + \mu_B - \lambda_B\mu_B) - (\lambda_A + \mu_A - \lambda_A\mu_A)} \right] \\ \times e^{-[(\lambda_B + \mu_B - \lambda_B\mu_B) - (\lambda_A + \mu_A - \lambda_A\mu_A)]t}. \quad (18)$$

如果将(17)式除以(15)式, 可以得到C与A的活度比 $r(C/A, t)$ 的类似表达式.

2.3 大气颗粒物滞留时间的计算

2.3.1 通过同一衰变链上不同核素的绝对活度比计算大气颗粒物的滞留时间

假设在某时段气候条件基本一致, 即转移系数基本上不随时间变化, 首次测得大气颗粒物中 ^{210}Bi 与 ^{210}Pb 的活度比, 将之等效为 $r(^{210}\text{Bi}/^{210}\text{Pb}, 0)$, 经过时间 t_1 , t_2 后测得活度比 $r(^{210}\text{Bi}/^{210}\text{Pb}, t_1)$ 与 $r(^{210}\text{Bi}/^{210}\text{Pb}, t_2)$, 分别代入(18)式, 可求出待定参数 μ_{Pb} 和 μ_{Bi} , 从而得到在该时段 $r(^{210}\text{Bi}/^{210}\text{Pb}, t)$ 的表达式. 换言之, 当再次测得 $r(^{210}\text{Bi}/^{210}\text{Pb}, t)$ 的值时, 可确定相对首次测量的滞留时间t. 关于 ^{210}Po 与 ^{210}Pb 的活度比测量, 可作类似讨论.

2.3.2 通过核素的比活度计算大气颗粒物的滞留时间

记t时刻核素x的活度为 $A_x(t) = \lambda_x N_x$, 其中 $\lambda_x = \ln 2/T_x$, T_x 为核素x的半衰期(已知), $x \in \{^{210}\text{Pb}, ^{210}\text{Bi}, ^{210}\text{Po}\}$; 将之代入(15)至(17)式, 得到 ^{210}Pb , ^{210}Bi , ^{210}Po 在t时刻的活度与它们的初始活度、转移系数及时间t的关系式.

首先, 将第1次测量得到的 ^{210}Pb , ^{210}Bi , ^{210}Po 的比活度等效为初始值 $A_{\text{Pb}}(0)$, $A_{\text{Bi}}(0)$ 和 $A_{\text{Po}}(0)$, 经过 Δt 时间后, 再次测得 $A_{\text{Pb}}(\Delta t)$, $A_{\text{Bi}}(\Delta t)$ 和 $A_{\text{Po}}(\Delta t)$, 代入(15)式求 μ_{Pb} , 代入(16)式求出 μ_{Bi} , 代入(17)式求出 μ_{Po} , 从而通过2次测量 ^{210}Pb , ^{210}Bi 和 ^{210}Po 的比活度, 可以确定 ^{210}Pb , ^{210}Bi , ^{210}Po 的比活度随时间的变化规律; 换言之, 当测出 ^{210}Pb , ^{210}Bi 或 ^{210}Po 某个核素的比活度后, 即可确定相对首次测量的滞留时间t.

2.3.3 大气颗粒物平均滞留时间的计算

大气颗粒物在大气中因压缩、扩散、对流、沉积、再悬浮等作用而干沉降, 因降雨、降雪等湿沉降, 大气的这种“自净”功能, 使得大气颗粒物经过一定的时间后“退出”大气系统, 大气颗粒物从“形成”到“退出”的平均时间间隔叫做大气颗粒物的平均滞留时间(MRT).

记

$$\tau_x = \frac{\int_0^{+\infty} t N_x(t) dx}{\int_0^{+\infty} N_x(t) dt},$$

即 τ_x 表示以 $f(t) = \frac{N_x(t)}{\int_0^{+\infty} N_x(t) dt}$ 为概率分布密度的随机变量的数学期望, 其中 $x \in \{^{210}\text{Pb}, ^{210}\text{Bi}, ^{210}\text{Po}\}$.

计算得

$$\tau_{^{210}\text{Pb}} = \frac{1}{\lambda_{^{210}\text{Pb}} + \mu_{^{210}\text{Pb}} - \lambda_{^{210}\text{Pb}}\mu_{^{210}\text{Pb}}}, \\ \tau_{^{210}\text{Bi}} = \frac{1}{\lambda_{^{210}\text{Bi}} + \mu_{^{210}\text{Bi}} - \lambda_{^{210}\text{Bi}}\mu_{^{210}\text{Bi}}} + \frac{\lambda_{^{210}\text{Pb}}(1-\mu_{^{210}\text{Pb}})}{\lambda_{^{210}\text{Pb}} + \mu_{^{210}\text{Pb}} - \lambda_{^{210}\text{Pb}}\mu_{^{210}\text{Pb}}} \\ \times \frac{N_{^{210}\text{Pb}}(0)}{\lambda_{^{210}\text{Pb}}(1-\mu_{^{210}\text{Pb}})N_{^{210}\text{Pb}}(0) + (\lambda_{^{210}\text{Pb}} + \mu_{^{210}\text{Pb}} - \lambda_{^{210}\text{Pb}}\mu_{^{210}\text{Pb}})N_{^{210}\text{Bi}}(0)} \\ \approx \frac{1}{\lambda_{^{210}\text{Bi}} + \mu_{^{210}\text{Bi}} - \lambda_{^{210}\text{Bi}}\mu_{^{210}\text{Bi}}} \quad (\lambda_{^{210}\text{Pb}} \approx 0).$$

同理

$$\tau_{210\text{Po}} \approx \frac{1}{\lambda_{210\text{Po}} + \mu_{210\text{Po}} - \lambda_{210\text{Po}}\mu_{210\text{Po}}}.$$

以上结果说明: 大气的“自净”功能是通过放射性核素的衰变与转移实现的, 不同核素在大气中的滞留时间可能是不相同的, 主要由其衰变常数和

$$\text{MRT} \approx \max \left\{ \frac{1}{\lambda_{210\text{Pb}} + \mu_{210\text{Pb}} - \lambda_{210\text{Pb}}\mu_{210\text{Pb}}}, \frac{1}{\lambda_{210\text{Bi}} + \mu_{210\text{Bi}} - \lambda_{210\text{Bi}}\mu_{210\text{Bi}}}, \frac{1}{\lambda_{210\text{Po}} + \mu_{210\text{Po}} - \lambda_{210\text{Po}}\mu_{210\text{Po}}} \right\}. \quad (19)$$

如果 $\mu_{210\text{Pb}} = \mu_{210\text{Bi}} = \mu_{210\text{Po}} = \mu$, 由于 $\lambda_{210\text{Pb}} \ll \lambda_{210\text{Bi}}, \lambda_{210\text{Po}}$, 即 $T_{210\text{Pb}} \gg T_{210\text{Bi}}, T_{210\text{Po}}$, 由(15)和(16)式得

$$\begin{aligned} & \frac{\lambda_{210\text{Bi}} N_{210\text{Bi}}}{\lambda_{210\text{Pb}} N_{210\text{Pb}}} \\ &= \frac{\lambda_{210\text{Bi}}}{\lambda_{210\text{Bi}} - \lambda_{210\text{Pb}}} \\ &+ \frac{\lambda_{210\text{Bi}}}{\lambda_{210\text{Bi}} - \lambda_{210\text{Pb}}} \cdot e^{-(\lambda_{210\text{Bi}} - \lambda_{210\text{Pb}}) \cdot (1-\mu)t} \\ &+ \frac{\lambda_{210\text{Bi}} N_{210\text{Bi}}(0)}{\lambda_{210\text{Pb}} N_{210\text{Pb}}(0)} \cdot e^{-(\lambda_{210\text{Bi}} - \lambda_{210\text{Pb}}) \cdot (1-\mu)t}. \end{aligned}$$

从而, 当 $t \rightarrow \infty$ 时,

$$\frac{\lambda_{210\text{Bi}} N_{210\text{Bi}}}{\lambda_{210\text{Pb}} N_{210\text{Pb}}} \approx 1. \quad (20)$$

同理得

$$\frac{\lambda_{210\text{Po}} N_{210\text{Po}}}{\lambda_{210\text{Pb}} N_{210\text{Pb}}} \approx 1 \quad (t \rightarrow +\infty). \quad (21)$$

(20) 和 (21) 式说明: 当 $\mu_{210\text{Pb}} = \mu_{210\text{Bi}} = \mu_{210\text{Po}}$ 时, 只要 t 足够大, ^{210}Pb , ^{210}Bi 和 ^{210}Po 的放射性活度将趋向“平衡”, 且与初始浓度无关; 换言之, 如果在某一地域的大气中, $\mu_{210\text{Pb}}$, $\mu_{210\text{Bi}}$, $\mu_{210\text{Po}}$ 不全相等, 则大气中的 ^{210}Pb , ^{210}Bi 和 ^{210}Po 可能不会达到活性平衡; 低层大气的复杂性与多变性, 使得大气颗粒物中不同核素的比活度在平衡与不平衡之间迁移。

3 方法比较与结论

1. 文献 [17—20] 中所使用的确定大气颗粒物滞留时间的方法即本文引言中的(5)式或(7)式, 是在假定转移系数相同并且假定单位体积的大气中放射性核素母体与子体的粒子数不再变化或达到极值的前提下得出的, 由于假设与低层大气的基本特性不符, 导致计算结果不一致。

2. 文献 [21] 等所使用的确定大气颗粒物滞留时间的方法即本文引言中的(11)式, 是在环境相对

转移系数等决定; 如果 $\mu > 0$, 各种核素在大气中的平均滞留时间不仅小于其平均衰变寿命, 也小于其净转移周期, 即 $\tau \leq \frac{1}{\lambda}$, $\tau < \frac{1}{\mu}$; 当忽略其他短寿命放射性同位素的影响时, 指定粒径范围内的大气颗粒物的平均滞留时间 MRT 可按以下公式进行计算:

$$\text{MRT} \approx \max \left\{ \frac{1}{\lambda_{210\text{Pb}} + \mu_{210\text{Pb}} - \lambda_{210\text{Pb}}\mu_{210\text{Pb}}}, \frac{1}{\lambda_{210\text{Bi}} + \mu_{210\text{Bi}} - \lambda_{210\text{Bi}}\mu_{210\text{Bi}}}, \frac{1}{\lambda_{210\text{Po}} + \mu_{210\text{Po}} - \lambda_{210\text{Po}}\mu_{210\text{Po}}} \right\}. \quad (19)$$

封闭、初始时刻只有放射性母核的前提下, 由巴特曼公式(8)至(10)导出的, 与开放、多变的大气环境不符, 致使部分实验数据代入理论公式计算时出现错误信息。

3. 本文提出的确定大气颗粒物滞留时间的方法即(15)—(18)式, 是在充分总结、利用大气的基本特性的基础上, 合理假定 ^{210}Pb , ^{210}Bi , ^{210}Po 的初始比活度未必为 0、转移系数未必相同、衰变与转移同时发生等基础上, 通过建立模型(12)—(14)得出的, 是(5)—(10)式的改正与推广。缺点是它只适合于相对稳定的气候条件, 即在测量的时空段中, 转移系数基本不变。当气候条件变化显著时, 需要按气象参数聚类、分时段进行处理。

4. 通过 2 次或 3 次测量同一衰变链 $^{210}\text{Pb} \rightarrow ^{210}\text{Bi} \rightarrow ^{210}\text{Po}$ 中各子体的比活度或活度比, 即可得出不同核素的比活度或活度比的变化规律, 测量方式可根据设备情况和误差要求灵活选择, 测量次数较少。

5. 不同子体的平均滞留时间与该子体的衰变常数、转移系数有关; 不同子体在大气中的平均滞留时间可能不同, 决定了它们的沉降通量不同, 从而不同子体在大气中的分布可能不均匀, 在复杂的地域环境中, ^{210}Pb , ^{210}Bi 和 ^{210}Po 的放射性活度可能不会达到“平衡”, 某些放射性核素可能相对过剩。

6. 在理想地域环境中, 如果大气中不同子体的转移系数相同, 则 ^{210}Pb , ^{210}Bi 和 ^{210}Po 的放射性活度将随着时间的推移而趋于平衡, 与初始活度无关。

7. 大气颗粒物的平均滞留时间小于所含放射性核素的衰变率或转移率的倒数, 转移率越大, 平均滞留时间越短, 只要 ^{210}Pb 等核素的初始活度不足以破坏大气的环境容量, 或者气象条件足够好, 或生物系统能吸收部分放射性核素, 即转移系数大于 0, 则大气颗粒物在有限的时间内必将得到有效的沉降或消除; 大气的这种相对“自净”的功能, 使

得大气颗粒物或者由高平衡态向低平衡态过渡, 或者由不平衡态向平衡态转变.

近年来, 灰霾天气的危害及其出现频率的增加引起了人们的高度关注, 目前尚没有有效的监测方法. 本文提出的方法, 可以用于对灰霾天气的滞留时间进行预测, 以指导人们在特定的大气颗粒物污染期间的正常生活. 进一步研究大气颗粒物平均滞

留时间与粒径分布的关系, 以及气象条件和季节变化对转移系数的影响, 对指导人工污染源的排放具有重要意义.

感谢南华大学湖南省氡实验室的支持以及部分专家、教授的指导.

-
- [1] Obot C J 2002 *Toxicology and Applied Pharmacology* **184** 98
- [2] Auana K 2004 *Science of the Total Environment* **329** 3
- [3] Zhou X F 2010 *Environment and Life* **12** 15 (in Chinese) [周霞芳 2010 环境与生活 **12** 15]
- [4] Yu Y, Zhang Z J, Li Y P 2003 *Journal of Environment and Health* **20** 359 (in Chinese) [于燕, 张振军, 李义平 2003 环境与健康杂志 **20** 359]
- [5] Yang X X, Feng L H, Wei P 2012 *Frontier Science* **21** 22 (in Chinese) [杨新兴, 冯丽华, 尉鹏 2012 前沿科学 **21** 22]
- [6] Tan J H 2007 *Ph. D. Dissertation* (Guangzhou: Guangzhou Geochemical Research Institute of CAS) (in Chinese) [谭吉华 2007 博士学位论文 (广州: 中国科学院广州地球化学研究所)]
- [7] Pope C A 1995 *Am Respir Crit Care Med* **151** 669
- [8] Dockery 1993 *New England Journal of Medicine* **329** 1753
- [9] Li X 2003 *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research* **210** 412
- [10] Yue W S, Li X L, Liu J F 2006 *Science of the Total Environment* **368** 916
- [11] Jia Y Q, Zhao X H, Guo X B 2011 *J. Environ Health* **3** 206 (in Chinese) [贾玉巧, 赵晓红, 郭新彪 2011 环境与健康杂志 **3** 206]
- [12] Qian L, Yin Y, Tong Y Q, Wang W W, Wei Y X 2008 *China Environmental Science* **1** 18 (in Chinese) [钱凌, 银燕, 童尧青, 王巍巍, 魏玉香 2008 中国环境科学 **1** 18]
- [13] Kunzli N, Kaiser R, Medina S, Studnicka M 2000 *Lancet* **365** 795
- [14] Oboat C J, Morandib M T, Beebe T P 2002 *Toxicology and Applied Pharmacology* **184** 98
- [15] Baulig A, Sourdeval M, Meyer M, Marano F, Baeza Squiban A 2003 *Toxicology in Vitro* **17** 567
- [16] Kriston Aunan, Xiao Chuan. Pan 2004 *Science of the Total Environment* **329** 3
- [17] Baskaran M, Shaw G E 2001 *Aerosol Science* **32** 443
- [18] Ebaid Y Y, Khater A E M 2006 *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* **270** 609
- [19] Papastefanou C 2006 *Applied Radiation and Isotopes* **64** 93
- [20] Shan J, Xiao D T, Liu W, Lin J, Wang G H, Wei N N, Zhou Q Z 2010 *Acta Phys. Sin.* **59** 5358 (in Chinese) [单健, 肖德涛, 刘卫, 林俊, 王广华, 位楠楠, 周青芝 2010 物理学报 **59** 5358]
- [21] Shan J 2010 *Ph. D. Dissertation* (Hengyang: Nanhua University) (in Chinese) [单健 2010 博士学位论文 (衡阳: 南华大学)]
- [22] Le R C, Jia W Y, Wu Y P 2008 *Acta Phys. Sin.* **57** 2457 (in Chinese) [乐仁昌, 贾文懿, 吴允平 2008 物理学报 **57** 2457]
- [23] Tan Y L, Xia D T, Zhao G Z 2008 *Acta Phys. Sin.* **9** 5452 (in Chinese) [谭延亮, 肖德涛, 赵桂芝 2008 物理学报 **9** 5452]
- [24] Hong J Q, Le R C, He Z J, Ye Q Y, Chen J D, Zhou B Y 2009 *Acta Phys. Sin.* **58** 5452 (in Chinese) [洪锦泉, 乐仁昌, 何志杰, 叶全意, 陈健悌, 周宝庸 2008 物理学报 **58** 5350]
- [25] Lu X T 2002 *Nuclear physics* (Beijing: Atomic Energy Press) p22 (in Chinese) [卢希庭 2002 原子核物理 (北京: 原子能出版社) 第 22 页]
- [26] Cai C G 2005 *College Physics* **8** 81 (in Chinese) [蔡崇贵 2005 大学物理 **8** 81]
- [27] Nozaki Y, Tsunogai S 1976 *Earth and planetary Science letters* **32** 313
- [28] Lambert G, Polian G, Sanak J 1982 *Ann. Geophys* **38** 497
- [29] Guebuem Kim, Najid Hussain, Hhommas M. Church 2000 *Tellus* **52B** 74
- [30] Yang W F, Huang Y P, Chen M 2006 *Science in China (Series D: Earth Sciences)* **1** 81 (in Chinese) [杨伟锋, 黄奕普, 陈敏 2006 中国科学 (D辑, 地球科学) **1** 81]
- [31] Masqué P, Sanchez-Cabeza J A, Bruach J M 2002 *Continental Shelf Research* **22** 2127
- [32] Drugosz-Lisiecka M, Bem H 2012 *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* **293** 135

A new method for monitoring the average residence time of atmospheric particulate matter*

Liu Ya-Chun[†]

(School of Mathematical and Physical Science, University of South China, Hengyang 421001, China)

(School of Nuclear Science and Technology, University of South China, Hengyang 421001, China)

(Received 16 August 2012; revised manuscript received 12 December 2012)

Abstract

The long life decay products ^{210}Pb , ^{210}Bi and ^{210}Po of ^{222}Rn are adsorbed in atmospheric particulate matters, thus making it possible to estimate the average residence time by measuring the specific activity or activity ratio of radon daughters. However, the existing research results are rather bad in consistency and the contradictory phenomena cannot be reasonably explained, which makes it inapplicable to atmospheric environmental monitoring. For this reason, starting with the basic attributes of lower atmosphere, based on the decay characteristics, transfer rates and other related information of radioactive nuclides in atmospheric particulates, a mathematical model is built to reflect the relationship among the particle numbers of the absorbed, decayed and transferred. Then, a new method is presented to estimate the average residence time of atmospheric aerosol. The method can solve the confusion that have appeared in the current research, reveal that the atmosphere has limited self-purification function, and provide the condition for nuclides in the same decaying chain to decay to the activity balance and the way to reduce the average residence time. All these conclusions will provide a scientific basis for further study and exploitation in atmospheric environment monitoring.

Keywords: atmospheric aerosol, the average residence time, radon and its decay products, monitoring

PACS: 23.90.+w, 92.60.Mt, 92.60.Sz

DOI: 10.7498/aps.62.092301

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 11075070), and the Innovation Foundation for Graduate of Hunan Province of China (Grant No. CX2009B187).

† Corresponding author. E-mail: liuyachun65@usc.edu.cn