

# 利用单颗粒气溶胶质谱仪研究南黄海 气溶胶的变化特征

郭晓霜<sup>1</sup> 李小滢<sup>1</sup> 闫才青<sup>1</sup> 付怀于<sup>1,2</sup> 高会旺<sup>3</sup> 姚小红<sup>3</sup> 郭志刚<sup>2</sup> 郑玫<sup>1,†</sup>

1. 环境模拟与污染控制国家重点联合实验室, 北京大学环境科学与工程学院, 北京 100871; 2. 复旦大学环境科学与工程系, 上海 200433; 3. 海洋环境与生态教育部重点实验室, 中国海洋大学环境科学与工程学院, 青岛 266003;

† 通信作者, E-mail: mzheng@pku.edu.cn

**摘要** 2012年11月在南黄海首次使用单颗粒气溶胶质谱仪(SPAMS)采集和分析两个平行航测断面上的气溶胶, 以研究不同气团影响下海洋气溶胶的理化特征。断面1受从海到陆的海风及海洋气团影响, 断面2则受从陆到海的风及陆地气团影响。结果表明, 断面2的气溶胶颗粒数约为断面1的3.5倍, 主要由陆地气团传输导致, 其次是断面2的高风速影响。主要组分为 $\text{SO}_4^{2-}$ ,  $\text{NO}_3^-$ ,  $\text{NH}_4^+$ , OC和EC气溶胶的颗粒数在断面1和2(断面2除 $\text{NO}_3^-$ 外)上分别逐渐减少58%~74%和34%~53%, 在断面1的减少量高于断面2。断面1和2上含量最高的分别是海盐气溶胶(>30%)和二次气溶胶(42%)。二次气溶胶和其他人为源气溶胶(包括生物质燃烧、Soot-like气溶胶和含铅气溶胶)对两个断面的贡献显著, 因此人为源对南黄海气溶胶的贡献不容忽视。

**关键词** 海洋气溶胶; SPAMS; 化学特性; 来源; 南黄海

**中图分类号** X131

## Changes of Marine Aerosol Properties over the South Yellow Sea Using Single Particle Aerosol Mass Spectrometer

GUO Xiaoshuang<sup>1</sup>, LI Xiaoying<sup>1</sup>, YAN Caiqing<sup>1</sup>, FU Huaiyu<sup>1,2</sup>, GAO Huiwang<sup>3</sup>, YAO Xiaohong<sup>3</sup>,  
GUO Zhigang<sup>2</sup>, ZHENG Mei<sup>1,†</sup>

1. State Key Joint Laboratory of Environmental Simulation and Pollution Control, College of Environmental Sciences and Engineering, Peking University, Beijing 100871; 2. Department of Environmental Science and Engineering, Fudan University, Shanghai 200433; 3. Key Laboratory of Marine Environment and Ecology (MOE), College of Environmental Science and Engineering, Ocean University of China, Qingdao 266100; † Corresponding author, E-mail: mzheng@pku.edu.cn

**Abstract** To better understand the variation properties of marine aerosol during transport, single particle aerosol mass spectrometer (SPAMS) was applied for the first time during a comprehensive ocean experiment over the South Yellow Sea in November 2012. Two parallel sections influenced by marine air masses with constant wind direction from ocean to land (Section 1), and continental air masses with constant wind direction from land to ocean (Section 2), respectively, were selected to study the variation of chemical characteristics of marine aerosol. The results showed that the average particle count in Section 2 was around 3.5 times higher than that in Section 1, which might be ascribed to the influence of continental air masses, accompanied with high wind speed in Section 2. Particle counts of major components ( $\text{SO}_4^{2-}$ ,  $\text{NO}_3^-$ ,  $\text{NH}_4^+$ , OC and EC) containing particles in Section 1 and Section 2 (excluding  $\text{NO}_3^-$ ) gradually decreased by 58%–74% and 34%–53%, and the reductions in Section 1 were greater than that in Section 2. Secondary aerosol contributed to the highest fraction (42%) of the total particles in Section 2, while sea-salt aerosol contributed to the highest (>30%) in Section 1. The contribution of secondary and other anthropogenic aerosols (including biomass burning, Soot-like and Pb-containing aerosols) in both sections were

国家自然科学基金(41430646, 41571130033, 41121004)资助

收稿日期: 2016-05-19; 修回日期: 2017-03-09; 网络出版日期: 2017-07-03

significant. It indicated that the contribution of anthropogenic air pollutants to marine aerosol could not be ignored over the South Yellow Sea.

**Key words** marine aerosol; SPAMS; chemical characteristics; source; the South Yellow Sea

海洋气溶胶可以直接或间接地影响地球反照率和气候变化<sup>[1-5]</sup>。同时,海洋气溶胶的沉降是海洋生态系统营养物质的重要来源,影响海洋初级生产力的发展<sup>[6-7]</sup>。近年来,随着亚洲东部经济的快速发展,人为污染物的排放剧增,污染物随着气团的传输对近海大气产生重要影响<sup>[8-10]</sup>。

中国东部海域是海洋气溶胶研究的热点地区。研究发现,中国南海上空的气溶胶受到沙尘、生物质燃烧和中国大陆其他人为源的影响<sup>[11-14]</sup>。亚洲陆地气团的传输可导致东海气溶胶中微量元素和主要离子浓度增长<sup>[15]</sup>,引起南黄海气溶胶的金属组分(如 Cu, Zn 和 Pb)出现高富集现象<sup>[16]</sup>,也会造成黄海气溶胶中地壳元素的含量增加<sup>[17-18]</sup>。目前对海洋气溶胶的研究多是基于离线滤膜的采样分析,时间分辨率较低,不能揭示海洋气溶胶在传输过程中的快速变化特征。为了捕捉海洋气溶胶在传输过程中的变化,探讨不同海域气溶胶的理化特征,对海洋气溶胶的研究亟需高时间分辨率的气溶胶监测仪器和监测数据。

20世纪90年代,气溶胶飞行时间质谱仪(Aerosol Time-of-Flight Mass Spectrometer, ATOFMS)得以开发,并逐渐应用到海洋气溶胶的研究中,用于实时测量单个颗粒物的粒径和化学组成等<sup>[19-21]</sup>。Dall'Osto等<sup>[22]</sup>在北大西洋利用 ATOFMS 研究受不同起源的气团影响时,单个气溶胶颗粒化学组成的变化。Sierau等<sup>[10]</sup>使用 ATOFMS 分析北极气溶胶的老化程度和混合状态,结果表明,该地区气溶胶主要受到长距离传输气团的影响。Spencer等<sup>[23]</sup>使用 ATOFMS 研究印度洋上空的棕色云,发现印度地区生物质的燃烧是产生棕色云的主要原因。Fu等<sup>[24]</sup>首次应用中国制造的单颗粒气溶胶质谱仪(Single-Particle Aerosol Mass Spectrometer, SPAMS),研究中国东部海域气溶胶的来源,结果表明陆源传输对海洋气溶胶有重要贡献。但是,目前针对海洋气溶胶传输特征的研究,尤其是基于高时间分辨率监测仪器的研究较为有限。鉴于上述情况,本文使用 SPAMS 对南黄海气溶胶的特征(颗粒数、化学性质和来源)进行研究,探讨受不同来源的气团影响时,海洋气溶胶理化特性的差异及其在传输过程中的变化。

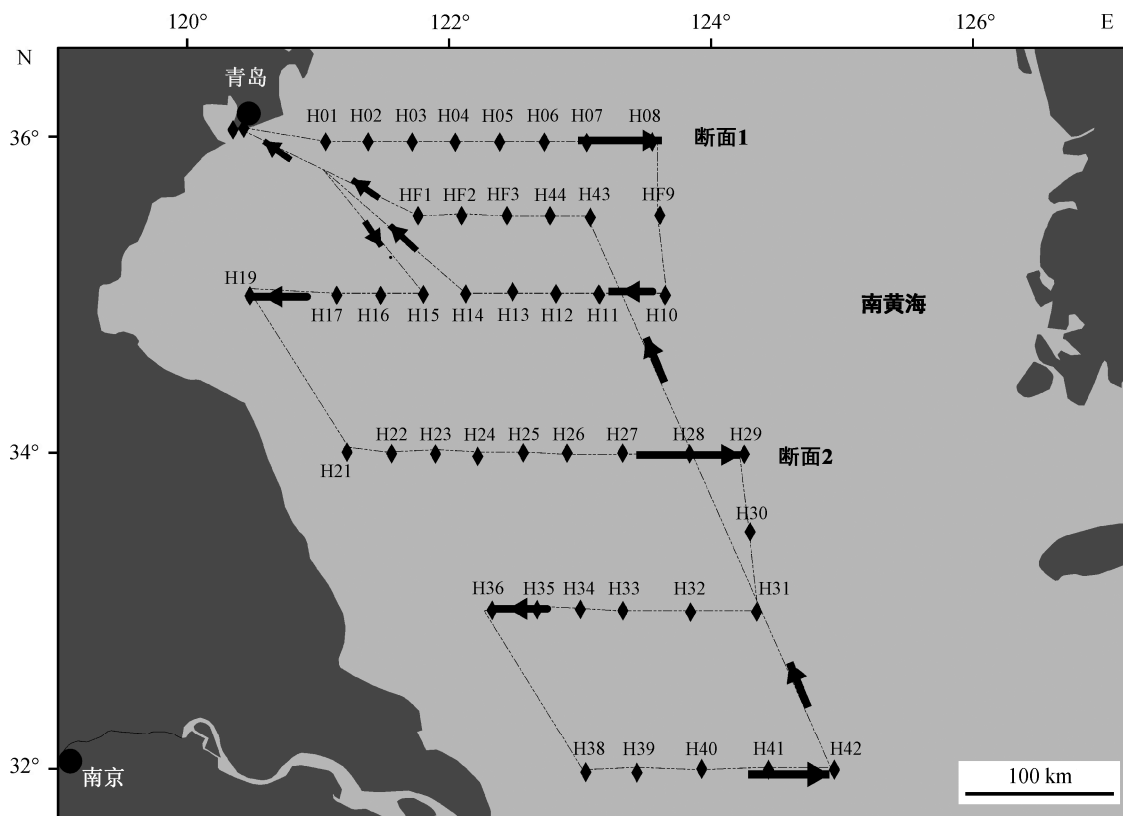
## 1 资料和方法

### 1.1 采样

2012年11月,搭乘中国海洋大学海洋综合考察船“东方红2号”,利用高时间分辨率在线仪 SPAMS (型号 0515, 广州禾信仪器股份有限公司)采集南黄海气溶胶的单颗粒信息。航行海域(31°58'48"—36°03'13"N, 120°23'03"—124°29'46"E)以及路线如图1所示,详细的航测信息见文献[24]。本研究选择航测期间受不同气团影响的两个平行断面,以便研究不同气团影响下海洋气溶胶理化特性的差异与变化。两个断面的航测方向均是从陆到海(从西到东),且同一断面的主导风向在航测期间基本上保持不变。两个断面的位置如图1所示。断面1临近山东半岛,全长约270 km,经纬度从(36°03'13"N, 120°23'03"E)到(35°57'52"N, 123°29'24"E);断面2临近江苏,全长约300 km,经纬度从(34°00'16"N, 120°59'49"E)到(33°59'34"N, 123°59'51"E)。断面1的航段采样时间从2日09:00至3日04:00,断面2的航段采样时间从6日04:30至7日00:30。

### 1.2 单颗粒气溶胶质谱仪

使用单颗粒气溶胶质谱仪 SPAMS,连续监测海洋气溶胶,仪器的工作原理参阅文献[25]。SPAMS 从环境中采集 0.2~2.0 μm 的颗粒物,同时分析单颗粒的粒径和质谱信息。采样过程中,颗粒物通过长约 30 cm 的硅胶干燥管,以 80 mL/min 的流量进入采样器。然后,颗粒物逐渐聚焦到空气动力透镜的轴线上,并逐个通过两个相距 6 cm 的测径激光束(532 nm),测定颗粒物的粒径。随后,颗粒物到达离子源中心,逐个被一束脉冲激光(266 nm)电离,产生正负离子,正负离子经检测器检测,可以获得颗粒的质谱信息。由于只有部分被测径的颗粒可以被进一步电离而获得质谱信息,因此引入颗粒物的打击率这一概念,用以表示同时获得粒径和质谱信息的颗粒数与所有含粒径信息的颗粒数的比值。电离激光器的能量约为 0.5~0.6 mJ,产生的能量密度约为  $1.06 \times 10^8 \text{ W/cm}^2$ 。采样前,须使用粒径为 0.2, 0.3, 0.5, 0.72, 1.0, 1.3 和 2.0 μm 的聚苯乙烯小球(polystyrene latex spheres, PSLs)对仪器进行粒径校正,粒径校准系数  $R^2 > 0.99$ 。采样期间,须每日进行



箭头指示船舶航行方向, 下同

图 1 航测路线和研究断面的位置

Fig. 1 Route of shipping cruise and location of the two selected sections

质谱偏移校准, 以保证质谱峰的准确性<sup>[26-29]</sup>。

### 1.3 数据分析

在 Matlab 平台上运行 SPAMS 获得的数据, 采用软件包 YAADA (版本 2.1, <http://www.yaada.org>) 进行分析。使用自适应共振理论神经网络 ART-2a (adaptive resonance theory based neural network) 对颗粒物进行分类。本研究中 ART-2a 使用的参数: 学习效率为 0.05, 相似度为 0.85, 20 次迭代<sup>[23,30-33]</sup>。航测期间, 断面 1 和 2 采集到的气溶胶颗粒数分别是 27431 和 91305, 同时含正负谱图信息的颗粒数分别是 3781 和 10211。断面 1 和 2 上 SPAMS 对颗粒数的打击率分别是  $14\% \pm 2\%$  和  $11\% \pm 2\%$ , 接近或略低于已有的研究结果<sup>[10,23,34-35]</sup>。同一断面上打击率的标准偏差较小, 打击率较稳定。根据 ART-2a 分类, 两个断面上采集的海洋气溶胶颗粒共分成 193 类, 代表 97% 的气溶胶颗粒。然后, 根据特征离子和质谱的相似性, 进一步将 193 类气溶胶颗粒分成六大类: 新鲜态海盐、老化态海盐、Soot-like 气溶胶、含铅气溶胶、生物质燃烧和二次气溶胶。

### 1.4 后向轨迹和气象数据

航测期间的风向和风速数据由船载自动气象站实时记录, 时间分辨率为 1s。气团后向轨迹信息由美国空气资源实验室(ARL)的气团后向轨迹模型 HYSPLIT\_4 (Hybrid Single-Particle Lagrangian Integrated Trajectory) 结合美国国家海洋和大气管理局(NOAA)气候诊断中心(CDC)提供的全球气象资料数据(<http://www.arl.noaa.gov/ready/hysplit4.html>)得到。

## 2 结果和讨论

本文讨论在不同气团影响下, 两个平行断面上的气溶胶颗粒数与化学组成, 以及不同来源的气溶胶沿着断面风向和随气团传输的变化特征。海洋气溶胶的单颗粒数据采用的时间分辨率是 30 min, 用于气溶胶化学组分和来源分析的数据均经过打击率校正。

### 2.1 气象条件和气团后向轨迹

航测期间, 两个断面的风速和风向如图 2 所示。可以看出, 航行期间两个断面的风向稳定, 但

主导风向相反。断面1的主导风向是从海到陆, 由南风 and 东南风主导, 风向频率大于 90%; 断面2的主导风向是从陆到海, 由西北风主导, 风向频率约为 80%。两个断面的风速相对稳定, 断面1的风速集中在 5~7 m/s 之间, 平均风速为 5.5 m/s; 断面2的风速相对较大, 风速集中在 8~11 m/s, 平均风速为 9.1 m/s。

如图 3 所示, 到达断面 1 和 2 的 48 小时气团后向轨迹完全不同。到达断面 1 的气团主要起源于

渤海附近, 气团传输主要经过渤海和南黄海海域上空, 是主要受海洋大气影响的海洋气团。到达断面 2 的气团主要来自采样点的西北方, 是起源于中国北部和东部沿海地区上空的陆地气团。气团在陆地上的传输时间较长, 可能会携带途经地区陆源排放的污染物<sup>[36]</sup>, 最终到达采样点<sup>[37-39]</sup>。

## 2.2 断面气溶胶的总颗粒数变化

断面 1 和 2 上气溶胶(粒径 0.2~2.0  $\mu\text{m}$ )的颗粒数沿行船方向的变化特征如图 4 所示。断面 1 的气

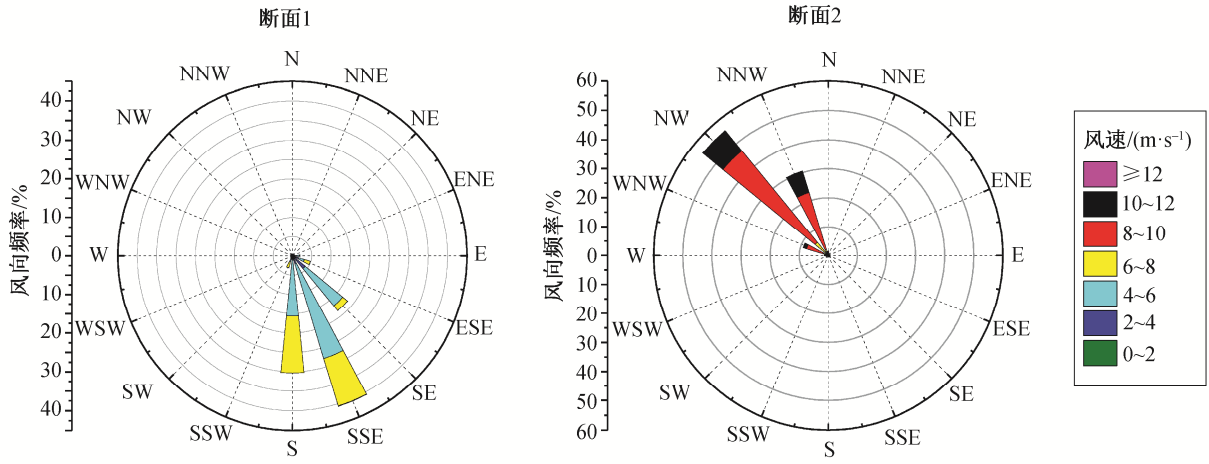


图 2 研究断面的风向风速玫瑰图

Fig. 2 Surface wind rose diagram at two selected sections

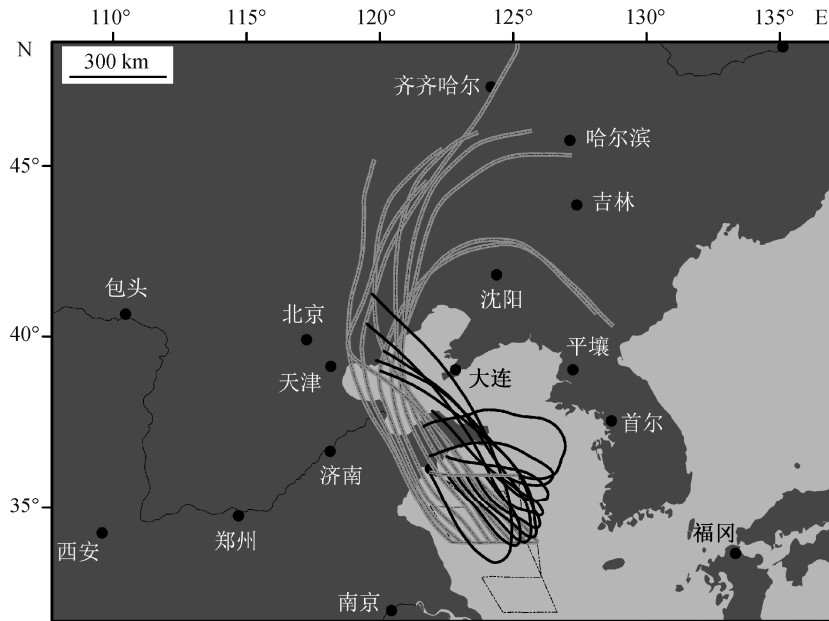


图 3 研究断面的气团 48 小时后向轨迹

Fig. 3 48-hr air mass back trajectories arrived at two selected sections

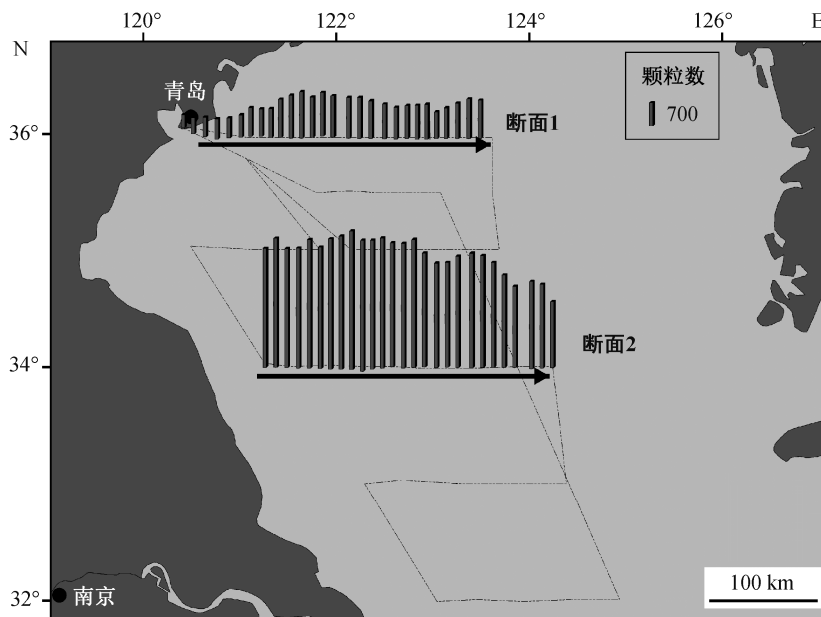


图 4 两个断面上 0.2~2.0 μm 气溶胶的颗粒数分布和变化(时间分辨率: 30 min)

Fig. 4 Distributions and variations of particle counts in the size range of 0.2–2.0 μm at each section (time resolution: 30 min)

溶胶平均颗粒数为 980±270, 由于主导风向的影响, 断面上的颗粒数从东向西(从海到陆)呈现逐渐减少的趋势, 最低值(397)出现在近岸。由于陆地气团的传输贡献和来自陆地的西北风影响, 断面 2 的气溶胶平均颗粒数高达 3382±543, 约为断面 1 的 3.5 倍。在断面 2 的近岸段, 气溶胶的颗粒数较多且基本上保持不变, 颗粒数范围为 3521~4106, 在远岸段, 颗粒数随离岸距离的增加而逐渐减少, 颗粒数在断面 2 的终点降至 1953, 但仍高于断面 1 的最大值(1399)。

除陆地气团的贡献外, 断面 2 的持续高风速也可能是导致气溶胶颗粒数高于断面 1 的原因之一。研究发现, 海盐气溶胶可以通过海面气泡的破裂或海水飞溅产生<sup>[40-41]</sup>, Pant 等<sup>[42]</sup>也发现, 当海面风速从 4 m/s 增至 11 m/s 时, 海洋大气中 0.5~20 μm 气溶胶的数浓度会显著增加。断面 2 在观测期间的风速主要为 8~11 m/s, 远高于断面 1 的风速 5~7 m/s, 有利于海盐气溶胶的生成, 导致总颗粒数增加。

### 2.3 含主要组分的气溶胶颗粒数变化

航测期间, 两个断面含主要组分 SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>, NO<sub>3</sub><sup>-</sup>, NH<sub>4</sub><sup>+</sup>, EC 和 OC 的气溶胶颗粒数的变化特征如图 5 所示, 颗粒物的提取方法详见文献[24,43]。总的来看, 含主要组分的气溶胶颗粒数沿着断面的主导风向(断面 1 从海到陆, 断面 2 从陆到海)逐渐减少。

在断面 2, 含主要组分 SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>, NO<sub>3</sub><sup>-</sup>, NH<sub>4</sub><sup>+</sup>, OC 和 EC 的气溶胶颗粒数分别是 3129±543, 1333±797, 2669±553, 3072±554 和 2256±301, 均分别高于断面 1 的 856±219, 590±169, 493±135, 824±194 和 526±138。

在断面 1, 含 SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>, NO<sub>3</sub><sup>-</sup>和 NH<sub>4</sub><sup>+</sup>的气溶胶颗粒数随着风向和海洋气团的传输, 沿着断面从海到陆分别减少 61%, 64%和 74%。在断面 2, 由于陆地气团的影响, 含 SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>和 NH<sub>4</sub><sup>+</sup>的气溶胶颗粒数的变化趋势与总颗粒数相似, 近岸段颗粒数变化小, 远岸段颗粒数逐渐减少(图 4 和 5)。但是, 含 NO<sub>3</sub><sup>-</sup>的气溶胶颗粒数在断面 2 的近岸迅速减少, 在断面 2 的远岸段, 颗粒数远低于含 SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>和 NH<sub>4</sub><sup>+</sup>的气溶胶。在断面 2, 含 SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>和 NH<sub>4</sub><sup>+</sup>的气溶胶颗粒数从陆到海(从西到东)分别减少 42%和 53%, 明显低于断面 1 的减少量, 但是含 NO<sub>3</sub><sup>-</sup>的气溶胶颗粒数减少的量最大(约 85%)。这 3 种气溶胶的颗粒数在断面 2 的变化特征可能与三者在大气的停留时间有关。已有研究发现, 硝酸盐易挥发, 传输影响的范围有限, 硫酸盐和铵盐则相对稳定<sup>[44]</sup>, 随着气团从陆地至海洋的传输距离更远, 同时, NO<sub>3</sub><sup>-</sup>的前体物 NO<sub>x</sub> 在大气中的寿命较短, 影响效应具有局地性<sup>[44]</sup>。

与含无机组分的颗粒变化趋势一致, 在断面 1

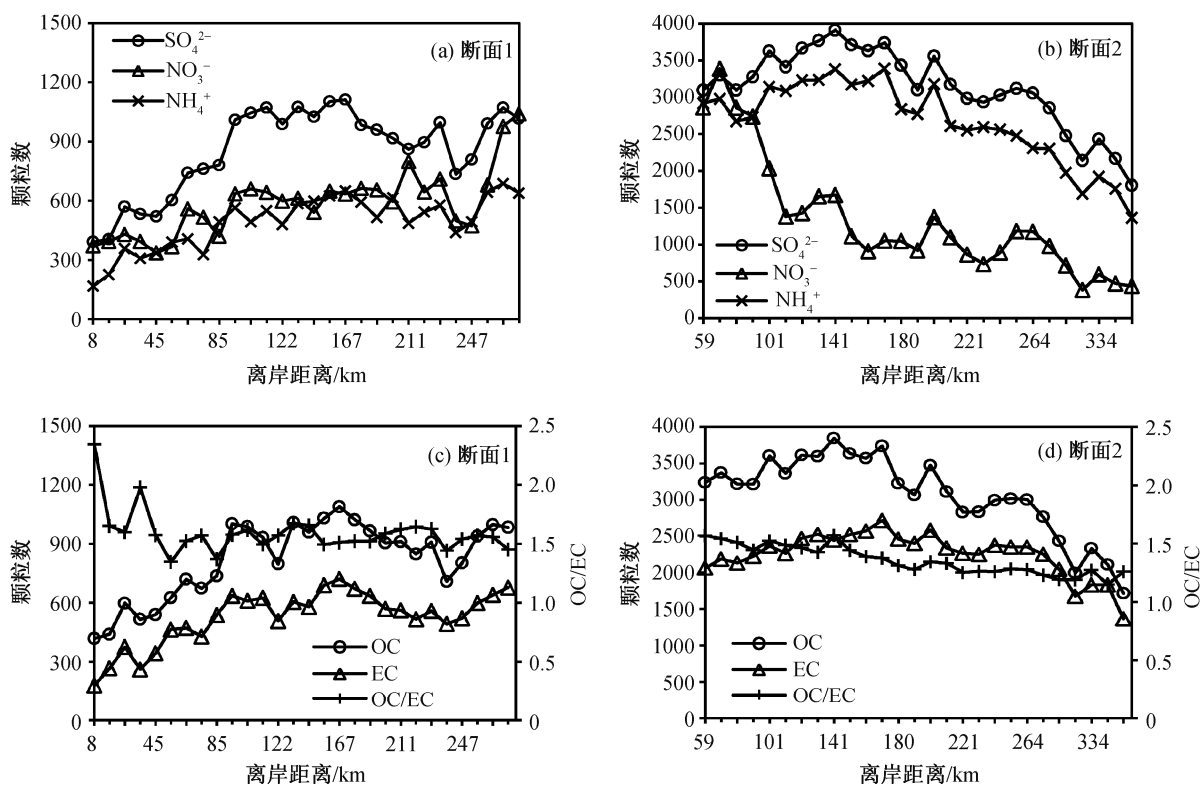


图5 研究断面含主要组分的气溶胶颗粒数变化

Fig. 5 Particle count variations of major component containing particles at each section

上, 含 OC 和 EC 的气溶胶颗粒数也呈从海到陆逐渐减少的趋势, 减少量分别为 58% 和 74% (图 5(c)). OC/EC 的比值近岸高、远岸低, 在远岸段保持相对稳定, 比值变化范围为 1.4~1.7, 近岸段 OC/EC 的比值增长明显, 从 1.4 逐渐增至 2.3。海洋气溶胶的组成相对稳定, 所以在主要受海洋气团影响的情况下, 断面 1 远岸段海洋上空气溶胶颗粒的 OC/EC 比值也较为稳定。在断面 1 的近岸段, 含 EC 的气溶胶颗粒数的减少速度大于含 OC 的气溶胶, 导致 OC/EC 比值逐渐增大。

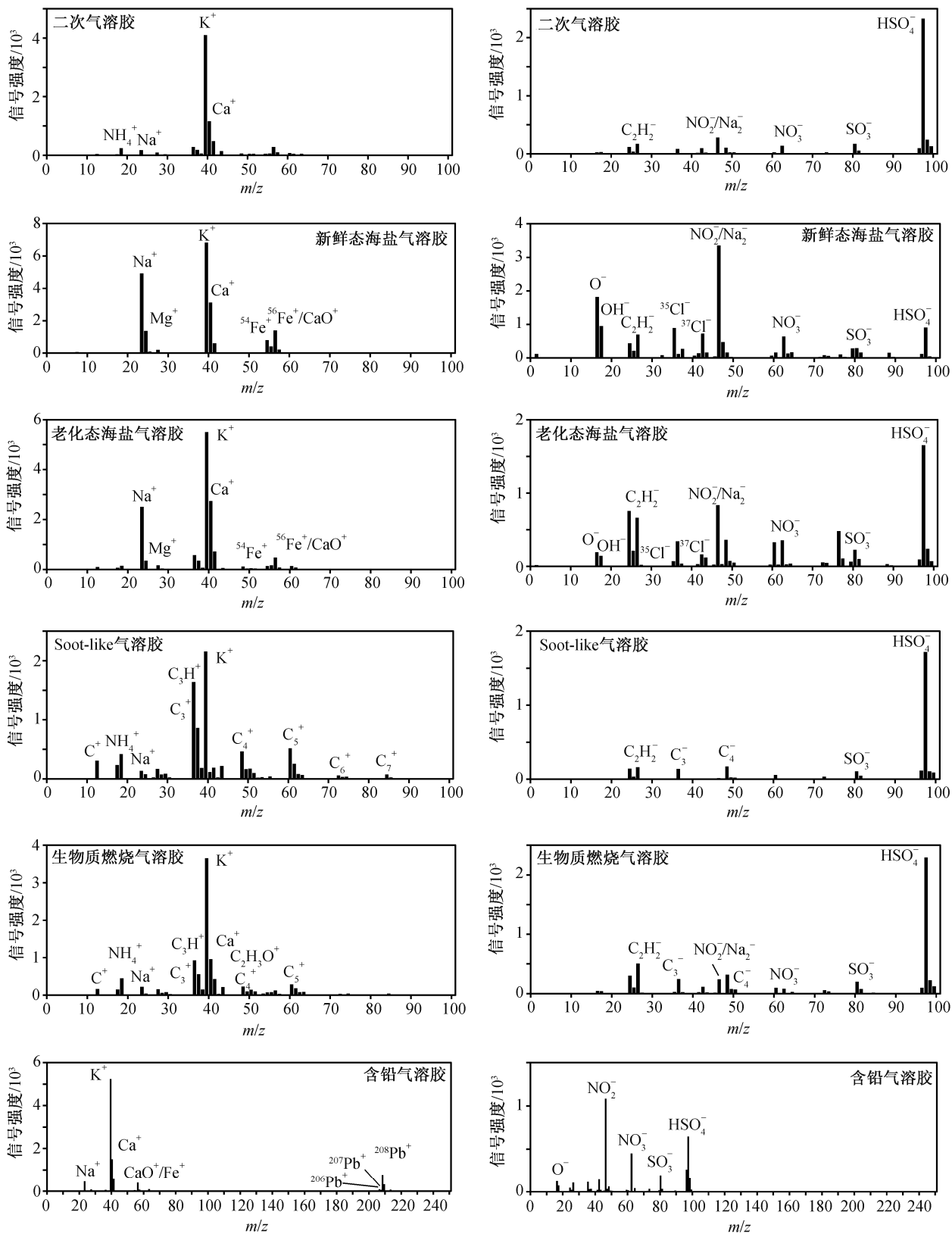
受陆地气团的影响, 含 OC 和 EC 的气溶胶颗粒数在断面 2 先略有增加, 然后从西到东逐渐减少, 最终的减少量分别为 47% 和 34% (图 5(d)), 同样低于断面 1 的减少量。OC 和 EC 是陆地气溶胶的重要组分<sup>[45]</sup>, 南黄海临近亚洲大陆, 陆地气溶胶的频繁传输会影响海洋气溶胶中 OC 和 EC 的含量<sup>[46]</sup>。Oeder 等<sup>[47]</sup>和 Moldanov  等<sup>[48]</sup>通过对船舶尾气的分析发现, 船舶排放的颗粒物中 OC 和 EC 含量较高。此外, 海洋源对 OC 的贡献不容忽视<sup>[49-50]</sup>。从图 3 可知, 到达两个断面的气团在传输过程中都经

过近岸海域和重要港口(如渤海湾和山东半岛附近), 因此, 两个断面上海洋气溶胶的 OC 和 EC 都受到陆源传输和船舶排放的影响。断面 2 的 OC/EC 比值变化范围为 1.2~1.6, 略低于断面 1, 相对富含 EC。同时, 海洋气团的影响导致断面 1 的 OC 有明显的海洋源输入, 因此断面 1 上含 OC 的气溶胶颗粒数相对较多, OC/EC 比值较高。值得注意的是, 这里使用的气溶胶颗粒数不能表征 OC 和 EC 的质量浓度。

## 2.4 不同类型气溶胶的颗粒数变化

本研究利用 ART-2a 聚类分析方法, 对两个断面的气溶胶颗粒进行分类, 结合特征离子判断谱图的相似性<sup>[24]</sup>, 将采集的气溶胶颗粒分为 6 类: 新鲜态海盐、老化态海盐、Soot-like 气溶胶、含铅气溶胶、生物质燃烧和二次气溶胶, 平均谱图见图 6。

图 7 给出两个断面上不同类型气溶胶的变化特征。图 7(a)和(c)显示不同类型气溶胶的颗粒数分布, 颗粒数经打击率校正; 图 7(b)和(d)是不同类型气溶胶在总颗粒中所占百分比, 即贡献率。在两个断面上, 不同类型气溶胶的颗粒数及对总颗粒的贡



左列为正离子谱图, 右列为负离子谱图;  $m/z$  表示质荷比

图 6 6 种不同类型气溶胶的平均谱图  
Fig. 6 Average spectra of six type aerosols

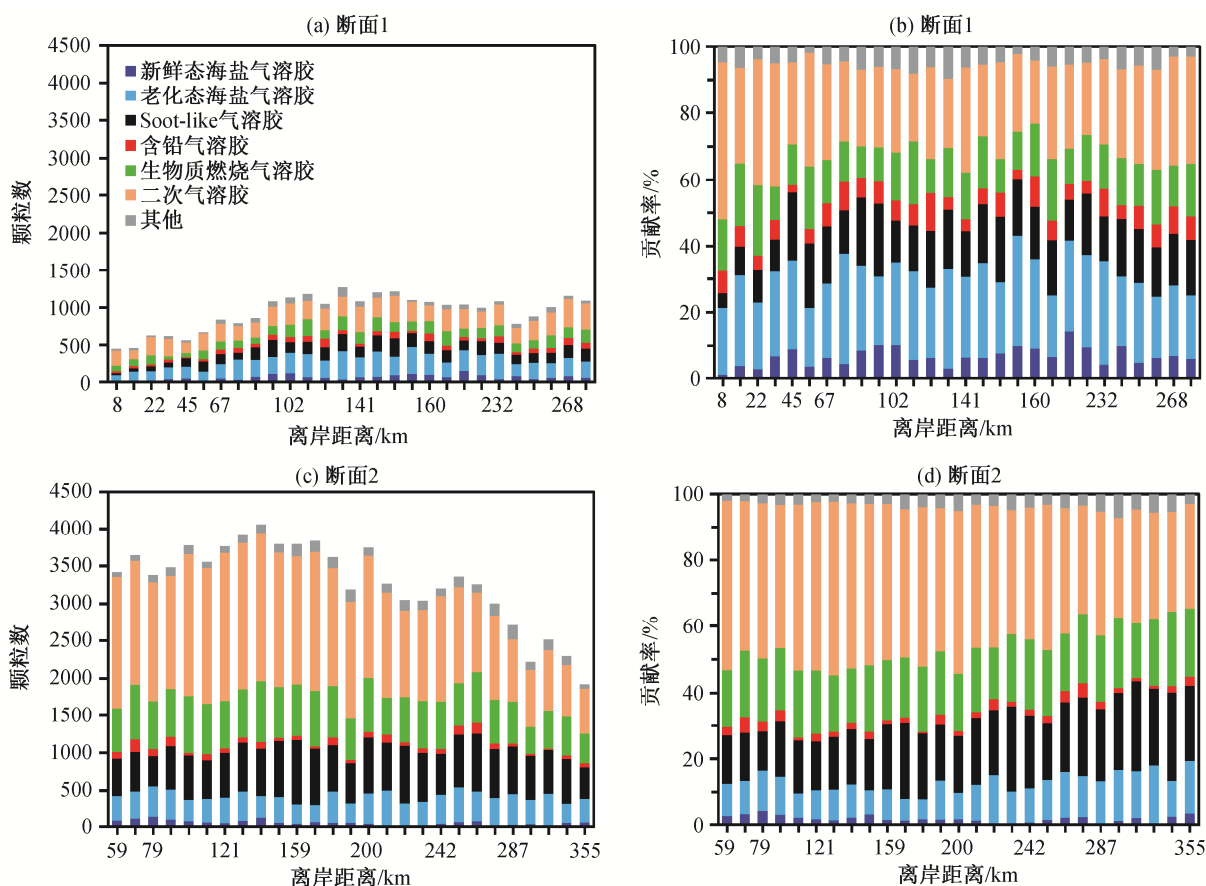


图7 研究断面不同类型气溶胶的贡献  
Fig. 7 Contributions of different particle types at each section

献均有较大差别。

在断面1, 海盐气溶胶(包括新鲜态海盐气溶胶和老化态海盐气溶胶)对总颗粒数的贡献最大, 超过30%, 其中新鲜态海盐气溶胶的贡献为7%, 占海盐气溶胶的23%。沿着风向从海到陆, 海盐气溶胶的颗粒数先增后减, 平均颗粒数为 $299 \pm 100$ 。即使受海洋气团的影响, 二次气溶胶对断面1上气溶胶总颗粒数的贡献仍然居第二位, 为 $28\% \pm 6\%$ 。生物质燃烧、Soot-like气溶胶和含铅气溶胶对总颗粒数的贡献分别是 $14\% \pm 3\%$ ,  $16\% \pm 4\%$ 和 $6\% \pm 2\%$ , 其他人为源气溶胶(包括生物质燃烧、Soot-like气溶胶和含铅气溶胶)的颗粒数沿着风向从海到陆逐渐降低, 但对总颗粒数的贡献率仍然高达 $36\% \pm 4\%$ 。因此, 即使受到海洋气团影响, 南黄海二次气溶胶和其他人为源气溶胶的含量也较高, 人为源对海洋气溶胶的贡献同样不容忽视。

在断面2, 二次气溶胶对总颗粒数的贡献最大,

为 $42\% \pm 7\%$ 。一方面是由于陆地大气中 $PM_{2.5}$ 普遍含有较高的二次无机离子 $SO_4^{2-}$ ,  $NO_3^-$ 和 $NH_4^+$  [51-53]; 另一方面, 陆地气团的长距离传输, 有利于气团内的气态污染物反应生成二次无机组分。同时, 断面2的生物质燃烧颗粒和Soot-like颗粒都远高于断面1, 二者分别贡献 $19\% \pm 2\%$ 和 $20\% \pm 4\%$ , 其他人为源气溶胶对断面2上颗粒数的贡献率高达 $41\% \pm 5\%$ , 贡献比例和颗粒数均明显高于断面1。因此, 陆地气团传输是断面2上气溶胶颗粒数高于断面1的主要原因。同时, 断面2上海盐气溶胶的平均颗粒数( $419 \pm 76$ )高于断面1( $299 \pm 100$ ), 这可能是由于断面2的高风速促进了海盐气溶胶的生成, 这也是断面2气溶胶总颗粒数较高的原因之一。但是, 断面2的海盐气溶胶对总颗粒数的贡献率仅为 $13\% \pm 3\%$ , 低于断面1, 其中新鲜态海盐气溶胶的贡献率仅为 $2\% \pm 1\%$ , 占海盐气溶胶的15%, 而老化态海盐气溶胶的贡献率占海盐气溶胶的85%, 因此断面2的海

盐气溶胶以老化态海盐气溶胶为主。

### 3 结论

本研究利用单颗粒气溶胶质谱仪 SPAMS, 分析了南黄海受相反风向和不同气团影响的两个平行航测断面的气溶胶信息, 并研究了断面上海洋气溶胶在传输过程中理化特性的变化。航测期间, 断面 1 主要受来自东南及南方的海风和同向海洋气团影响, 断面 2 主要受来自西北的陆风和同向陆地气团影响。研究表明, 两个断面的海洋气溶胶随着风向传输, 断面气溶胶的颗粒数均呈逐渐降低的趋势, 颗粒数与风向相关, 并且不总是近岸高于远岸。断面 2 的气溶胶平均颗粒数约为断面 1 的 3.5 倍, 陆地气团的传输可能是颗粒数增长的主要原因, 其次是断面 2 的高风速影响。随着传输的进行, 两个断面上主要组分为  $\text{SO}_4^{2-}$ ,  $\text{NO}_3^-$ ,  $\text{NH}_4^+$ , OC 和 EC 的气溶胶颗粒数逐渐减少。断面 2 的二次气溶胶含量最高, 而断面 1 的海盐气溶胶贡献最大, 二次气溶胶和其他人为源气溶胶对两个断面的贡献显著。据此, 无论受到海洋气团还是陆地气团的影响, 人为源对南黄海气溶胶的影响不容忽视。

致谢 感谢广州禾信分析仪器有限公司的支持, 感谢毕艳茹工程师在本次航测过程中仪器维护方面给予的技术支持与帮助。

### 参考文献

[1] Lohmann U, Feichter J. Global indirect aerosol effects: a review. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2005, 5(3): 715–737

[2] Lohmann U, Stier P, Hoose C, et al. Cloud microphysics and aerosol indirect effects in the global climate model ECHAM5HAM. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2007, 7(13): 3425–3446

[3] Muhlbauer A, Lohmann U. Sensitivity studies of aerosol-cloud interactions in mixed-phase orographic precipitation. *Journal of the Atmospheric Sciences*, 2009, 66(9): 1–18

[4] Sedwick P N, Sholkovitz E R, Church T M. Impact of anthropogenic combustion emissions on the fractional solubility of aerosol iron: evidence from the Sargasso Sea. *Geochemistry Geophysics Geosystems*, 1999, 1(11): 919–927

[5] Zhu A, Ramanathan V, Li F, et al. Dust plumes over

the Pacific, Indian, and Atlantic oceans: climatology and radiative impact. *Journal of Geophysical Research Atmospheres*, 2007, 112(112): 355–362

[6] Fung I Y, Meyn S K, Tegen I, et al. Iron supply and demand in the upper ocean. *Global Biogeochemical Cycles*, 1980, 5(14): 281–296

[7] Gledhill M, Buck K N. The organic complexation of iron in the marine environment: a review. *British Journal of Nutrition*, 2012, 3(6): S228–S239

[8] Huang X, Song Y, Li M M, et al. A high-resolution ammonia emission inventory in China. *Global Biogeochemical Cycles*, 2012, 26(1): 239–256

[9] Huebert B J, Bates T, Russell P B, et al. An overview of ACE-Asia: strategies for quantifying the relationships between Asian aerosols and their climatic impacts. *Journal of Geophysical Research Atmospheres*, 2003, 108(D23): ACE1-1–ACE1-20

[10] Sierau B, Chang Y W, Leck C, et al. Single-particle characterization of the high arctic summertime aerosol. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2014, 14: 7409–7430

[11] Lin I I, Chen J P, Wong G T F, et al. Aerosol input to the South China Sea: results from the MODerate resolution imaging spectro-radiometer, the quick scatterometer, and the measurements of pollution in the troposphere sensor. *Deep Sea Research Part II Topical Studies in Oceanography*, 2007, 54: 1589–1601

[12] Reid J S, Hyer E J, Prins E M, et al. Global monitoring and forecasting of biomass-burning smoke: description of and lessons from the Fire Locating and Modeling of Burning Emissions (FLAMBE) Program. *IEEE Journal of Selected Topics in Applied Earth Observations and Remote Sensing*, 2009, 2(3): 144–162

[13] Verma S, Worden J, Payra S, et al. Characterizing the long-range transport of black carbon aerosols during Transport and Chemical Evolution over the Pacific (TRACE-P) experiment. *Environmental Monitoring and Assessment*, 2009, 154: 85–92

[14] Wang S H, Tsay S C, Lin N H, et al. First detailed observations of long-range transported dust over the northern South China Sea. *Atmospheric Environment*, 2011, 45(27): 4804–4808

[15] Uematsu M, Hattori H, Nakamura T, et al. Atmospheric transport and deposition of anthropogenic substances from the Asia to the East China Sea. *Marine Chemistry*, 2010, 120(1): 108–115

- [16] Xu W H, Yan W, Zhang G, et al. Levels and distribution of heavy metals in atmospheric particulate matters over the northern South China Sea. *Environmental Science and Pollution Research*, 2014, 21(14): 8774–8781
- [17] Hak S K, Yong S C, Sun G L. Characteristics of aerosol types during large-scale transport of air pollution over the Yellow Sea region and at Cheongwon, Korea, in 2008. *Environmental Monitoring and Assessment*, 2012, 184(4): 1973–1984
- [18] Zhao R J, Han B, Lu B, et al. Element composition and source apportionment of atmospheric aerosols over the China Sea. *Atmospheric Pollution Research*, 2015, 6(2): 191–201
- [19] Gard E, Mayer J E, Morrical B D, et al. Real-time analysis of individual atmospheric aerosol particles: design and performance of a portable ATOFMS. *Analytical Chemistry*, 1997, 69(20): 4083–4091
- [20] Prather K A, Nordmeyer T, Salt K. Real-time characterization of individual aerosol particles using time-of-flight mass spectrometry. *Analytical Chemistry*, 1994, 66(9): 1403–1407
- [21] Silva P J, Prather K A. On-line characterization of individual particles from automobile emissions. *Environmental Science and Technology*, 1997, 31(11): 3074–3080
- [22] Dall'Osto M, Harrison R M. Chemical characterisation of single airborne particles in Athens (Greece) by ATOFMS. *Atmospheric Environment*, 2006, 40(39): 7614–7631
- [23] Spencer M T, Holecek J C, Corrigan C E, et al. Size-resolved chemical composition of aerosol particles during a monsoonal transition period over the Indian Ocean. *Journal of Geophysical Research Atmospheres*, 2008, 113(D16): 280–288
- [24] Fu H Y, Zheng M, Yan C Q, et al. Sources and characteristics of fine particles over the Yellow Sea and Bohai Sea using online single particle aerosol mass spectrometer. *Journal of Environmental Sciences*, 2015, 29(3): 62–70
- [25] Li L, Huang Z X, Dong J G, et al. Real time bipolar time-of-flight mass spectrometer for analyzing single aerosol particles. *International Journal of Mass Spectrometry*, 2011, 303(2/3): 118–124
- [26] 黄正旭, 高伟, 董俊国, 等. 实时在线单颗粒气溶胶飞行时间质谱仪的研制. *质谱学报*, 2010, 31(6): 331–336
- [27] Bi X H, Zhang G H, Li L, et al. Mixing state of biomass burning particles by single particle aerosol mass spectrometer in the urban area of PRD, China. *Atmospheric Environment*, 2011, 45(20): 3447–3453
- [28] Zhang G H, Bi X H, Li L, et al. Mixing state of individual submicron carbon-containing particles during spring and fall seasons in urban Guangzhou, China: a case study. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2013, 13(9): 4723–4735
- [29] 黄正旭, 李梅, 李磊, 等. 单颗粒气溶胶质谱仪研究进展. *上海大学学报(自然科学版)*, 2011, 17(4): 562–566
- [30] Dall'Osto M, Harrison R M, Highwood E J, et al. Variation of the mixing state of Saharan dust particles with atmospheric transport. *Atmospheric Environment*, 2010, 44(26): 3135–3146
- [31] Huang Y, Li L, Li J, et al. A case study of the highly time-resolved evolution of aerosol chemical and optical properties in urban Shanghai, China. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2013, 13(12): 3931–3944
- [32] Spencer M T. New approaches for the chemical and physical characterization of aerosols using a single particle mass spectrometry based technique [D]. San Diego: University of California, 2007
- [33] Tang Y, Huang Y L, Li L, et al. Characterization of aerosol optical properties, chemical composition and mixing states in the winter season in Shanghai, China. *Journal of Environmental Sciences*, 2014, 26(12): 2412–2422
- [34] Dall'Osto M, Beddows D C S, Kinnersley R P, et al. Characterisation of individual airborne particles by using aerosol time-of-flight mass spectrometry at Mace Head, Ireland. *Journal of Geophysical Research Atmospheres*, 2004, 109(D21): D21302
- [35] Dall'Osto M, Harrison R M, Beddows D C, et al. Single-particle detection efficiencies of aerosol time-of-flight mass spectrometry during the North Atlantic marine boundary layer experiment. *Environmental Science and Technology*, 2006, 40(16): 5029–5035
- [36] Van D A, Martin R V, Brauer M, et al. Global estimates of ambient fine particulate matter concentrations from satellite-based aerosol optical depth: development and application. *Environmental Health Perspectives*, 2010, 118(6): 847–855
- [37] Fomba K W, Müller K, Van Pinxteren D, et al. Long-

- term chemical characterization of tropical and marine aerosols at the Cape Verde Atmospheric Observatory (CVAO) from 2007 to 2011. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2014, 14(17): 8883–8904
- [38] Hsu S C, Liu S C, Kao S J, et al. Water-soluble species in the marine aerosol from the northern South China Sea: high chloride depletion related to air pollution. *Journal of Geophysical Research Atmospheres*, 2007, 112(D19): 216–229
- [39] O'Dowd C, Ceburnis D, Ovadnevaite J, et al. Do anthropogenic, continental or coastal aerosol sources impact on a marine aerosol signature at Mace Head?. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2014, 14(19): 10687–10704
- [40] Nair P R, Parameswaran K, Abraham A, et al. Wind-dependence of sea-salt and non-sea-salt aerosols over the oceanic environment. *Journal of Atmospheric and Solar-Terrestrial Physics*, 2005, 67(10): 884–898
- [41] O'Dowd C D, Smith M H, Consterdine I E, et al. Marine aerosol, sea-salt, and the marine sulphur cycle: a short review. *Atmospheric Environment*, 1997, 31(1): 73–80
- [42] Pant V, Deshpande C G, Kamra A K. On the aerosol number concentration-wind speed relationship during a severe cyclonic storm over south Indian Ocean. *Journal of Geophysical Research Atmospheres*, 2008, 113: 194–204
- [43] 付怀于, 闫才青, 郑玫, 等. 在线单颗粒气溶胶质谱 SPAMS 对细颗粒物中主要组分提取方法的研究. *环境科学*, 2014, 35(11): 4070–4077
- [44] 唐孝炎, 张远航, 邵敏. *大气环境化学*. 2 版. 北京: 高等教育出版社, 2010
- [45] Duan J, Tan J, Wang S, et al. Roadside, urban, and rural comparison of size distribution characteristics of PAHs and carbonaceous components of Beijing, China. *Journal of Atmospheric Chemistry*, 2012, 69(4): 337–349
- [46] Kim H S, Chung Y S, Lee S G. Analysis of spatial and seasonal distributions of MODIS aerosol optical properties and ground-based measurements of mass concentrations in the Yellow Sea region in 2009. *Environmental Monitoring and Assessment*, 2013, 185(1): 369–382
- [47] Oeder S, Kanashova T, Sippula O, et al. Particulate matter from both heavy fuel oil and diesel fuel shipping emissions show strong biological effects on human lung cells at realistic and comparable, *in vitro*, exposure conditions. *PLoS One*, 2015, 10(6): e0126536
- [48] Moldanová J, Fridell E, Popovicheva O, et al. Characterisation of particulate matter and gaseous emissions from a large ship diesel engine. *Atmospheric Environment*, 2009, 43(16): 2632–2641
- [49] Miyazaki Y, Kawamura K, Sawano M. Size distributions and chemical characterization of water-soluble organic aerosols over the western North Pacific in summer. *Journal of Geophysical Research Atmospheres*, 2010, 115(D23): 6696–6705
- [50] O'Dowd C D, Facchini M C, Cavalli F, et al. Biogenically driven organic contribution to marine aerosol. *Nature*, 2004, 431: 676–680
- [51] 王晓浩, 赵倩彪, 崔虎雄. 基于在线监测的上海郊区冬 PM<sub>2.5</sub> 来源解析. *南京大学学报(自然科学版)*, 2015, 51(3): 517–523
- [52] 李伟芳, 白志鹏, 魏静东, 等. 天津冬季大气中 PM<sub>2.5</sub> 及其主要组分的污染特征. *中国环境科学*, 2008, 28(6): 481–486
- [53] Gao J, Peng X, Chen G, et al. Insights into the chemical characterization and sources of PM<sub>2.5</sub> in Beijing at a 1-h time resolution. *Science of the Total Environment*, 2016, 542(Pt A): 162–171