

闫涵, 高会旺, 姚小红, 等. 2012. 沙尘传输路径上气溶胶浓度与干沉降通量的粒径分布特征 [J]. 气候与环境研究, 17 (2): 205–214, doi:10.3878/j.issn.1006-9585.2011.10076. Yan Han, Gao Huiwang, Yao Xiaohong, et al. 2012. Size-dependent mass and dry deposition fluxes of atmospheric aerosols along dust transport routes [J]. Climatic and Environmental Research (in Chinese), 17 (2): 205–214.

沙尘传输路径上气溶胶浓度与干沉降通量的粒径分布特征

闫涵¹ 高会旺¹ 姚小红¹ 石金辉¹ 于超²

¹ 中国海洋大学海洋环境与生态教育部重点实验室, 青岛 266100

² 国家气象中心, 北京 100081

摘要 利用2002年春季中国北京、青岛和日本福冈3个地区的分级气溶胶浓度资料, 结合改进的Williams模型, 分析了沙尘传输路径上空气动力学直径 $\leq 11\ \mu\text{m}$ 气溶胶(PM₁₁)浓度和干沉降通量的粒径分布特征, 并估算了黄海海域春季PM₁₁的干沉降通量及不同粒径气溶胶的贡献。结果表明: 3个地区PM₁₁浓度粒径分布在非沙尘时期呈双峰分布, 两个峰值分别出现在细颗粒($< 2.1\ \mu\text{m}$)部分和粗颗粒($2.1\sim 11\ \mu\text{m}$)部分; 沙尘时期, 3个地区PM₁₁浓度粒径分布均趋于单峰分布, 峰值位于粗颗粒部分, 并且越靠近沙尘源地, 这种趋势越明显。较强沙尘天气时期, 粗颗粒部分的浓度峰值粒径从沙尘源地附近到黄海西岸、东岸呈降低趋势, 但在一般沙尘天气时期, 这种现象并不明显。沙尘时期和非沙尘时期, 3个地区粗颗粒的干沉降通量均随粒径增加而增大, 细颗粒的干沉降通量随粒径的变化不明显。虽然沙尘时期粗颗粒沉降通量较非沙尘时期有明显增加, 但粗颗粒对PM₁₁干沉降通量的贡献与非沙尘时期相比, 并没有明显的变化。较强沙尘天气时期, 3个地区粗颗粒的干沉降通量明显高于一般沙尘天气时期; 细颗粒的干沉降通量较一般沙尘天气时期略有增加。黄海海域春季沙尘时期PM₁₁的干沉降通量约为 $31.70\sim 58.59\ \text{mg}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{d}^{-1}$, 非沙尘时期约为 $8.33\sim 15.94\ \text{mg}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{d}^{-1}$ 。粗颗粒是黄海海域春季PM₁₁干沉降通量的主要贡献者, 约占PM₁₁干沉降通量的94.2%以上。

关键词 气溶胶 沙尘天气 传输路径 粒径分布 干沉降通量

文章编号 1006-9585 (2012) 02-0205-10 **中图分类号** P402 **文献标识码** A

doi:10.3878/j.issn.1006-9585.2011.10076

Size-Dependent Mass and Dry Deposition Fluxes of Atmospheric Aerosols along Dust Transport Routes

YAN Han¹, GAO Huiwang¹, YAO Xiaohong¹, SHI Jinhui¹, and YU Chao²

¹ Key Laboratory of Marine Environment and Ecology of Education Ministry, Ocean University of China, Qingdao 266100

² National Meteorological Center, Beijing 100081

Abstract Using the size-segregated measurements of atmospheric aerosols collected in Beijing and Qingdao in

收稿日期 2010-05-31 收到, 2011-01-10 收到修定稿

资助项目 国家自然科学基金资助项目 40976063

作者简介 闫涵, 男, 1984年出生, 博士研究生, 主要从事大气污染物输送与沉降方面的研究。E-mail: 1984man@sina.com

通讯作者 高会旺, E-mail: hwgao@ouc.edu.cn

China and Fukuoka in Japan during the spring of 2002, the size distributions of the mass of atmospheric aerosols with aerodynamic diameter (D_p) $\leq 11 \mu\text{m}$ (PM11) along dust transport routes are investigated. The size distribution of these aerosols in mass concentration during non-dust periods exhibits a bimodal pattern, i. e., a fine modes with $D_p < 2.1 \mu\text{m}$ and a coarse mode between $2.1 \mu\text{m}$ and $11 \mu\text{m}$. On the other hand, the size distribution of these aerosols in mass concentration during dust periods attempts to exhibit a uni-modal pattern in the coarse particle size range. The coarse mode diameter decreases with the distance from the dust source zone to the west and east coast of the Yellow Sea during the heavy dust periods. It is not case in regular dust periods. The size-dependent dry deposition fluxes of the aerosols over the Yellow Sea in springtime are estimated using an improved Williams' model. The dry deposition fluxes increase with the increasing size in the coarse particle size range during the non-dust and dust periods. It appears that no evident variations occurred in the fine mode. The estimated PM11 fluxes over the Yellow Sea during the dust and non-dust periods range from 31.70 to $58.59 \text{ mg m}^{-2} \text{ d}^{-1}$ and ranged from 8.33 to $15.94 \text{ mg} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{d}^{-1}$, respectively. Although the dry deposition fluxes of the coarse particles increase evidently during dust periods, the relative contributions of the coarse particles to that of PM11 do not change significantly regardless of the occurrence of and absence of dust events. The authors find that coarse particles are the main contributor to the PM11 dry deposition in springtime over the Yellow Sea, the percentage reaches over 94.2% .

Key words aerosol, dust weather, transport route, size distribution, dry deposition flux

1 引言

在我国, 每年春季频繁暴发的沙尘天气可将沙尘气溶胶自源地输送至我国东部海域, 甚至广大太平洋地区。传输过程中的沉降作用、气溶胶碰并 (Warren and Seinfeld, 1985)、吸湿增长 (Shi et al., 2008) 以及化学转化 (Tang et al., 2004) 等过程能够影响气溶胶的粒径分布特征。同时, 沙尘对大气中酸性气体的吸附作用以及在其表面发生的化学反应, 也能够改变气溶胶的化学组成 (Usher et al., 2003; Sullivan et al., 2007), 进而影响这些化学组成的粒径分布 (刘明哲等, 2003; Zhang et al., 2003)。Nakamura et al. (2006) 通过对中国东海海域气溶胶的观测, 发现沙尘时期可溶性有机氮在空气动力学直径 (D_p) $> 1 \mu\text{m}$ 气溶胶中的比例较非沙尘时期有显著增加。Mori et al. (2003) 在 1 次典型沙尘事件的传输路径上对沙尘气溶胶进行了采样分析, 结果显示, 源地附近的北京地区沙尘中 NO_3^- 和 NH_4^+ 均呈现出双峰分布特征, 而处于下风向的日本山口地区 NO_3^- 和 NH_4^+ 均为单峰分布。

已有研究表明, 气溶胶的沉降通量与其粒径分布具有密切的联系。Holsen et al. (1993) 在对密歇根湖大气干沉降通量的研究中发现, 该地区 $D_p > 2.5 \mu\text{m}$ 气溶胶中铅的干沉降通量远远高于

$D_p < 2.5 \mu\text{m}$ 气溶胶中铅的沉降通量。祁建华等 (2006) 根据青岛地区气溶胶的观测结果和模式模拟估算出 $D_p < 10 \mu\text{m}$ 气溶胶的干沉降通量仅占总悬浮颗粒物 (TSP) 的 6.6% 。由此可以推测, 沙尘传输过程中气溶胶及其组分粒径分布的变化能够影响大气物质 (营养物质和污染物质) 向海洋的沉降通量, 并进一步对海洋生态系统产生影响 (Jickell et al., 2005; 高会旺等, 2009)。然而, 有关气溶胶粒径分布特征的已有研究主要是讨论了沙尘事件影响下某个地区气溶胶粒径谱的变化, 针对沙尘传输路径上不同地区气溶胶谱分布的对比研究尚不多见, 特别是关于沙尘天气影响下气溶胶干沉降通量粒径分布的研究还鲜有报道。

2002 年是近十年来沙尘天气暴发较为频繁的一年 (Zhang and Gao, 2007), 3~4 月发生的多次沙尘天气过程影响到了我国东部海区 (张凯等, 2005), 在日本福冈地区的同期观测也显示了这些沙尘天气的影响 (Kanai et al., 2005)。本文利用中日合作项目——“Aeolian Dust Experiment on Climate Impact” (ADEC) 2002 年春季在北京、青岛和福冈地区强化观测获得的地面分级气溶胶浓度资料 (Kanai et al., 2005), 并依据改进的 Williams 模式 (Qi et al., 2005) 计算了不同粒径气溶胶的干沉降通量, 探讨了春季沙尘传输路径上这些地区在不同天气时期 (非沙尘、一般沙尘及较强沙尘) 近地面层气溶胶浓度与干沉降通量

的粒径分布特征, 并基于粒径分布初步估计了黄海海区气溶胶的干沉降通量。

2 材料与方法

2.1 气溶胶样品采集

2002 年春季, 利用 AN-200 型安德森采样器(日本柴田株式会社)分别在中国地区和日本地区通过强化密集观测获得了较为系统的分级气溶胶浓度资料(Kanai et al., 2005)。按照空气动力学直径(D_p) $\leq 11 \mu\text{m}$ 的气溶胶(PM11)样品共分为 8 级($< 0.43 \mu\text{m}$ 、 $0.43 \sim 0.65 \mu\text{m}$ 、 $0.65 \sim 1.1 \mu\text{m}$ 、 $1.1 \sim 2.1 \mu\text{m}$ 、 $2.1 \sim 3.3 \mu\text{m}$ 、 $3.3 \sim 4.7 \mu\text{m}$ 、 $4.7 \sim 7.0 \mu\text{m}$ 、 $7.0 \sim 11.0 \mu\text{m}$)。本文选取中国北京、青岛与日本福冈的同期采样资料, 重点关注沙尘传输路径上的沙尘源地附近、黄海西岸与黄海东岸近地面层气溶胶浓度的粒径分布, 进而对比和探讨沙尘传输路径上这些地区气溶胶干沉降通量的粒径分布特征。采样点位置及样品信息见表 1。由于每套气溶胶样品采样时间较长(表 1), 可能跨越了不同的天气过程, 因此无法准确获得沙尘天气条件下的样品。但是, 从跨越整个春季的强化观测资料中, 也基本能够将不同天气条件的观测结果区分开来, 以研究沙尘天气影响下气溶胶浓度和干沉降通量的粒径分布特征。

本文选取的采样时段见表 2, 并根据国家气象中心提供的北京、青岛和福冈地区气象站监测资料, 将春季频繁出现沙尘天气的时段作为沙尘时期, 其他时段为非沙尘时期, 对应时期的样品分别称为沙尘时期的样品和非沙尘时期的样品。本文进一步将沙尘时期分为较强沙尘天气时期和一般沙尘天气时期。2002 年 3 月 18~23 日和 4 月 5~9 日, 中国北方发生了两次较为严重的沙尘天气过程。两次过程中, 达到沙尘暴标准的台站分别达到了 83 个和 35 个, 其中分别有 7 个和 11 个

台站的记录达到了强沙尘暴的标准(周自江和章国材, 2003)。这两次较强沙尘天气过程不但使北京地区的 PM11 浓度有显著升高, 我国近海两岸也受到了不同程度的影响(盛立芳等, 2003; Sugimoto et al., 2003; 孙业乐等, 2004)。本文将这两个时段的样品作为较强沙尘天气时期的样品, 其他沙尘时期的样品则为一般沙尘时期的样品。北京采集了上述两次沙尘样品, 而青岛和福冈分别采集了其中的一次。其中, 青岛采集了 3 月 21~23 日的沙尘样品, 而福冈采集了 4 月 6~11 日的沙尘样品。

表 2 采样时段及沙尘频繁出现时段

Table 2 Periods of sampling and dust weather frequent occurring during spring in 2002

采样地区	采样时段	沙尘频繁出现时段
北京	2 月 27 日~5 月 23 日	3 月 15 日~3 月 23 日 4 月 6 日~4 月 16 日
青岛	3 月 8 日~5 月 26 日	3 月 16 日~3 月 23 日 4 月 3 日~4 月 10 日
福冈	3 月 1 日~5 月 31 日	3 月 15 日~3 月 21 日 3 月 31 日~4 月 10 日

2.2 大气气溶胶干沉降通量的计算

不同粒径大气气溶胶的干沉降通量可以通过如下公式计算:

$$F_i = C_i \cdot V_{di}, \quad (1)$$

其中, F_i 为第 i 级气溶胶的干沉降通量, 单位为 $\text{mg} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{d}^{-1}$; C_i 为第 i 级气溶胶的浓度, 单位为 $\mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$; V_{di} 为第 i 级气溶胶的干沉降速率, 单位为 $\text{m} \cdot \text{s}^{-1}$ 。

本文利用 Qi et al. (2005) 改进的 Williams 干沉降模型计算不同粒径气溶胶的干沉降速率 V_{di} , 进而估算气溶胶的干沉降通量。本研究的主要目的是探讨天气条件(沙尘与非沙尘、较强沙尘与一般沙尘)引起的气溶胶浓度变化对其干沉降通量的影响, 因此忽略了天气条件引起的动力过程

表 1 采样位置及样品信息

Table 1 Sampling locations and informations

采样地区	采样地点	经度	纬度	采样点高度 /m	每套样品采样 时间 /d	样品套数	
						沙尘时期	非沙尘时期
北京	中国科学院大气物理研究所	116.35°E	39.93°N	100	1~5	5	6
青岛	中国海洋大学	120.33°E	36.07°N	80	3~6	3	3
福冈	福冈大学	130.37°E	33.55°N	57	4~21	3	4

变化以及采样点下垫面类型的差异造成的气溶胶干沉降速率的变化。

3 结果与讨论

3.1 气溶胶浓度粒径分布特征

3.1.1 沙尘时期和非沙尘时期的比较

沙尘时期和非沙尘时期气溶胶浓度粒径分布如图 1 所示。非沙尘时期, 3 个地区 PM₁₁ 质量浓度均为双峰分布, 其峰值分别出现在细颗粒 (< 2.1 μm) 部分和粗颗粒 (2.1~11 μm) 部分。北京地区粗颗粒部分的峰值明显要高于细颗粒部分, 并且粗颗粒浓度在 PM₁₁ 中的比例大于细颗粒; 而在青岛地区和福冈地区, 细颗粒在 PM₁₁ 中所占的比例较北京地区均有所升高 (表 3)。这可能是因为青岛和福冈地处沿海, 相对湿度较高, 有利于二次气溶胶的形成, 但不利于粗颗粒在大气中的停留 (Wang et al., 2007)。

表 3 春季沙尘时期与非沙尘时期粗细颗粒平均浓度
Table 3 Mean concentrations of coarse and fine aerosols during the non-dust periods and dust periods in spring

		非沙尘时期		沙尘时期	
		浓度 / $\text{mg} \cdot \text{m}^{-3}$	百分比	浓度 / $\text{mg} \cdot \text{m}^{-3}$	百分比
北京	粗颗粒	114.56	57.4%	567.45	84.5%
	细颗粒	85.17	42.6%	103.92	15.5%
青岛	粗颗粒	41.19	51.8%	174.34	74.2%
	细颗粒	38.28	48.2%	60.68	25.8%
福冈	粗颗粒	13.87	40.9%	62.10	71.8%
	细颗粒	20.05	59.1%	24.37	28.2%

注: 百分比指粗颗粒或细颗粒在 PM₁₁ 中所占的浓度百分比, 下同。

沙尘时期, 3 个地区粗颗粒浓度显著增加 (表 3), 约为非沙尘时期的 4.2~5.0 倍, 并且粗颗粒在 PM₁₁ 中所占的比例均明显大于细颗粒, 这使得粗颗粒部分的峰值更加明显 (图 1)。北京地区粗颗粒部分的峰值出现在 7.0~11 μm 范围内, 青岛地区和福冈地区粗颗粒部分的峰值则出现在 3.3~4.7 μm 范围内。而细颗粒部分的峰值消失 (北京地区) 或不再明显 (青岛地区和福冈地区)。这说明沙尘天气时期, 气溶胶浓度分布有从非沙尘时期的双峰分布向单峰分布变化的趋势,

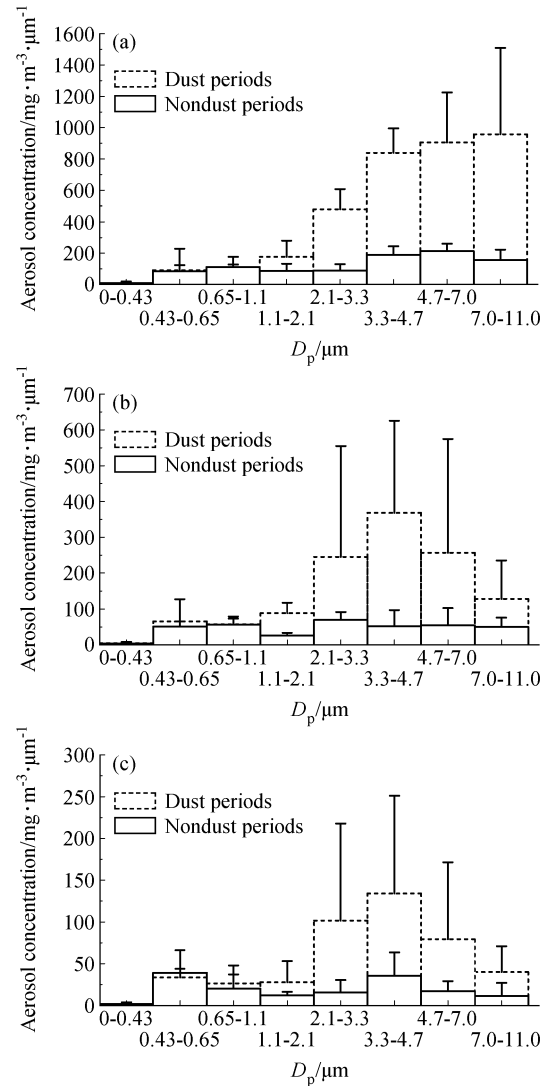


图 1 春季非沙尘时期和沙尘时期气溶胶浓度粒径分布 (平均值±标准偏差): (a) 北京; (b) 青岛; (c) 福冈

Fig. 1 Size distributions of aerosol concentrations during the non-dust periods and dust periods in spring (mean±standard deviation): (a) Beijing; (b) Qingdao; (c) Fukuoka

且越靠近沙尘源地, 这种变化趋势越明显。Park et al. (2004) 在韩国的沙尘天气观测结果中也体现出这种气溶胶质量浓度在沙尘时期趋于单峰分布的现象。

3.1.2 较强沙尘天气时期和一般沙尘天气时期的比较

一般沙尘天气时期, 3 个地区 PM₁₁ 浓度峰值粒径比较一致 (图 2, 其中青岛地区和福冈地区在较强沙尘天气时期只采集一套样品)。这说明一般沙尘天气时期, PM₁₁ 浓度峰值粒径随沙尘传输

距离的变化并不明显。较强沙尘天气时期,北京地区 PM11 的浓度峰值粒径在 7.0~11 μm ,而在青岛和福冈地区下降到 3.3~4.7 μm (图 2)。说明粗颗粒部分浓度峰值粒径从沙尘源地到中国近海两岸呈降低趋势。同样的现象在 2001 年的 1 次较强沙尘天气的观测中也有所体现 (Mori et al., 2003)。此外,对比同一地区不同强度沙尘天气时期气溶胶浓度峰值粒径可以发现,越靠近沙尘源地,两种强度沙尘天气条件下气溶胶浓度峰值粒径的差别越大。

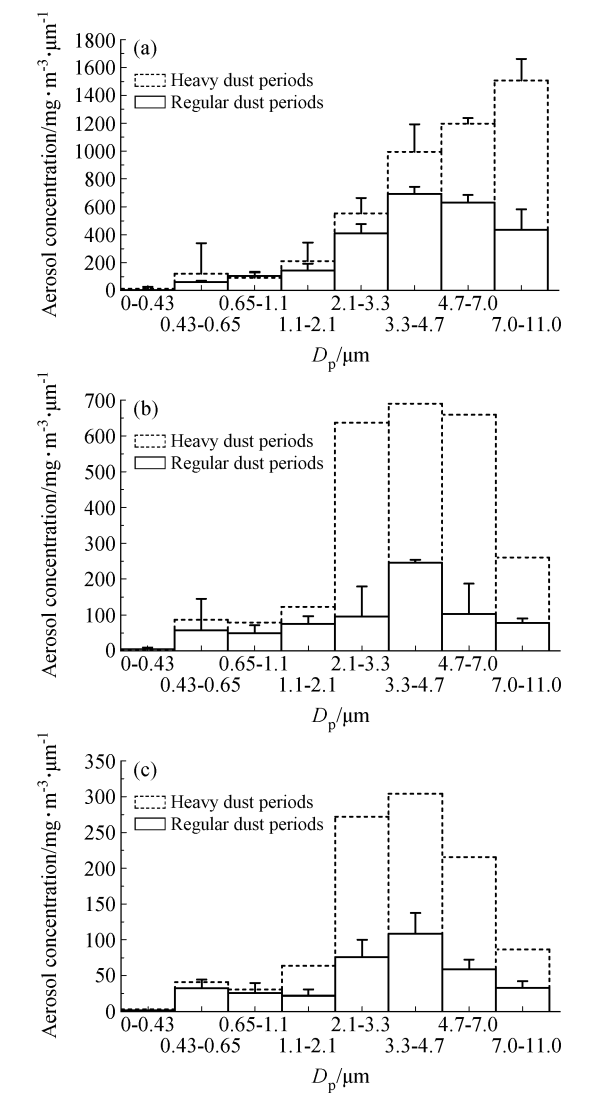


图 2 春季较强沙尘天气时期与一般沙尘天气时期气溶胶浓度粒径分布 (平均值±标准偏差)
Fig. 2 Size distributions of aerosol concentrations during the heavy dust periods and regular dust periods in spring (mean ± standard deviation)

较强沙尘天气时期,3 个地区粗颗粒在 PM11 中所占的比例高于一般沙尘天气时期 (表 4)。特别是在青岛地区和福冈地区,粗颗粒所占比例在一般沙尘时期分别为 62.2%和 68.6%,而在较强沙尘天气时期分别为 83.8%和 79.5%。Choi et al. (2001) 发现,韩国首尔地区在强沙尘天气时期气溶胶中地壳元素的含量较非沙尘时期有明显升高,但一般沙尘时期气溶胶中地壳元素含量较非沙尘时期升高并不明显。这说明较强沙尘天气时期,更多沙尘从源地输送至下风向地区,使得这些地区粗颗粒的浓度明显升高。

表 4 春季较强沙尘天气时期和一般沙尘天气时期粗细颗粒平均浓度
Table 4 Mean concentrations of coarse and fine aerosols during the heavy dust periods and regular dust periods in spring

		较强沙尘天气		一般沙尘天气	
		浓度 /mg·m ⁻³	百分比	浓度 /mg·m ⁻³	百分比
北京	粗颗粒	764.11	85.8%	381.71	82.2%
	细颗粒	126.64	14.2%	82.47	17.8%
青岛	粗颗粒	396.10	83.8%	89.83	62.2%
	细颗粒	76.54	16.2%	54.64	37.8%
福冈	粗颗粒	154.40	79.5%	48.24	68.6%
	细颗粒	39.72	20.5%	22.06	31.4%

3.2 气溶胶干沉降通量粒径分布特征

3.2.1 沙尘时期和非沙尘时期的比较

无论在沙尘时期还是非沙尘时期,3 个地区粗颗粒的干沉降通量均随粒径增加而明显增大,但细颗粒干沉降通量的变化并不大 (图 3)。这主要是因为粗颗粒的干沉降速率随着粒径的增加而迅速增大,而细颗粒的干沉降速率随粒径的变化并不显著 (Qi et al., 2005)。如表 5 所示,粗颗粒的干沉降通量均远大于细颗粒,这主要是由于粗颗粒的干沉降速率远大于细颗粒,使得粗颗粒成为 PM11 干沉降通量的主要贡献者。

从表 5 中还可以看出,粗颗粒在沙尘时期的干沉降通量明显高于非沙尘时期。北京地区沙尘时期粗颗粒干沉降通量约为非沙尘时期的 5.2 倍,增加 232.62 $\text{mg} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{d}^{-1}$ 。而在青岛地区和福冈地区,沙尘时期粗颗粒干沉降通量分别约为非沙尘时期的 3.7 倍和 4.0 倍,分别增加 45.36、15.08 $\text{mg} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{d}^{-1}$ 。这说明越靠近沙尘源地的

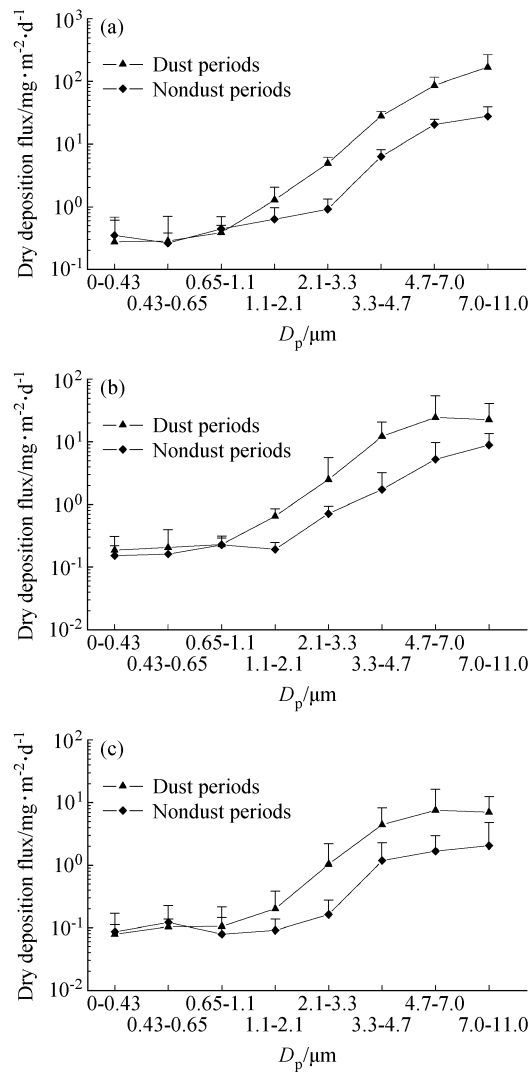


图3 春季非沙尘时期和沙尘时期气溶胶干沉降通量粒径分布 (平均值±标准偏差)

Fig. 3 Size distributions of aerosol dry deposition fluxes during the non-dust periods and dust periods in spring (mean±standard deviation)

地区, 沙尘时期粗颗粒干沉降通量较非沙尘时期增加越多。这是因为距离沙尘源地越远, 越多的粗颗粒在输送过程中由于沉降作用而被清除, 当沙尘输送至下风一定距离处, 气团所携带的粗颗粒明显减少。尽管沙尘经过海洋上空时能够与海盐结合, 增大颗粒的粒径, 但是当颗粒增大后, 又会因为沉降作用的增强而很快被清除 (Zhang et al., 2003)。然而, 尽管 3 个地区粗颗粒干沉降通量较非沙尘时期有明显增加, 但粗颗粒在 PM11 干沉降通量中所占的比例较非沙尘时期均

没有明显的变化。

表 5 春季沙尘时期与非沙尘时期粗细颗粒的平均干沉降通量

Table 5 Mean dry deposition fluxes of coarse and fine aerosols during non-dust periods and dust periods in spring

		非沙尘天气		沙尘天气	
		干沉降通量		干沉降通量	
		/mg·m ⁻² ·d ⁻¹	百分比	/mg·m ⁻² ·d ⁻¹	百分比
北京	粗颗粒	55.35	97.1%	287.97	99.2%
	细颗粒	1.68	2.9%	2.22	0.8%
青岛	粗颗粒	16.60	95.8%	61.96	98.0%
	细颗粒	0.72	4.2%	1.26	2.0%
福冈	粗颗粒	5.05	93.1%	20.14	97.6%
	细颗粒	0.38	6.9%	0.49	2.4%

3.2.2 较强沙尘天气时期和一般沙尘天气时期的比较

两种强度沙尘天气时期, 3 个地区 PM11 干沉降通量均呈现出随粒径增加而增大的趋势 (图 4, 其中青岛地区和福冈地区在较强沙尘天气时期只采集一套样品), 并且粗颗粒在较强沙尘天气时期的干沉降通量明显高于一般沙尘天气时期 (表 6)。在较强沙尘天气时期, 北京、青岛和福冈地区粗颗粒干沉降通量分别约为 418.74、138.33 和 48.76 mg·m⁻²·d⁻¹, 约为一般沙尘天气时期的 2.5 倍、4.2 倍和 3.1 倍。3 个地区粗颗粒在 PM11 干沉降通量所占的比例在较强沙尘天气时期分别为 99.4% (北京)、98.8% (青岛) 和 98.3% (福冈), 略高于一般沙尘天气时期的 98.9% (北京)、96.7% (青岛) 和 97.3% (福冈)。

表 6 春季较强沙尘天气时期和一般沙尘天气时期粗细颗粒的平均干沉降通量

Table 6 Mean dry deposition fluxes of coarse and fine aerosols during heavy dust periods and regular dust periods in spring

		较强沙尘天气		一般沙尘天气	
		干沉降通量		干沉降通量	
		/mg·m ⁻² ·d ⁻¹	百分比	/mg·m ⁻² ·d ⁻¹	百分比
北京	粗颗粒	418.74	99.4%	164.46	98.9%
	细颗粒	2.70	0.6%	1.77	1.1%
青岛	粗颗粒	138.33	98.8%	32.86	96.7%
	细颗粒	1.62	1.2%	1.13	3.3%
福冈	粗颗粒	48.76	98.3%	15.84	97.3%
	细颗粒	0.84	1.7%	0.44	2.7%

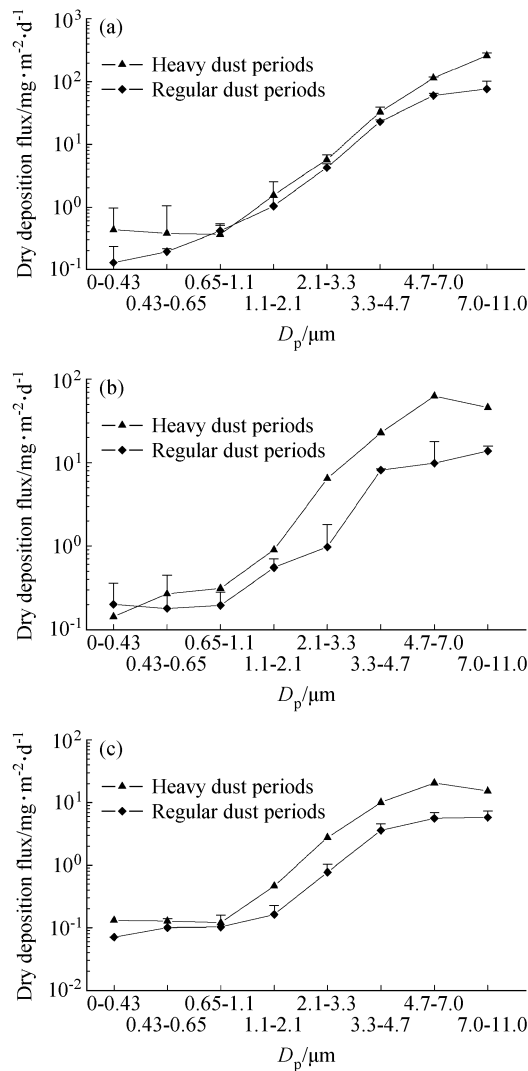


图4 春季较强沙尘天气时期和一般沙尘天气时期气溶胶干沉降通量粒径分布(平均值±标准偏差)

Fig. 4 Size distributions of aerosol dry deposition fluxes during heavy dust periods and regular dust periods in spring (mean $\pm$ standard deviation)

说明较强沙尘天气时期虽然能够使得粗颗粒干沉降通量较一般沙尘天气时期有明显上升,但粗颗粒对PM₁₁干沉降通量的贡献的变化并不明显。此外,较强沙尘天气时期细颗粒干沉降通量较一般沙尘天气时期也略有增加,约为一般沙尘天气时期的1.5倍(北京)、1.4倍(青岛)和1.9(福冈)倍。

3.3 黄海海域春季大气气溶胶干沉降通量的估算

若忽略湍流扩散作用而仅考虑大气水平输送及干湿沉降作用,气溶胶浓度随下风距离呈指数

衰减(Gao et al., 1992)。Han et al. (2008)的研究也指出春季北太平洋上空气溶胶浓度随传输距离的衰减可表示为:

$$C = be^{-ax}, \quad (2)$$

其中, C 为气溶胶浓度,单位为 $\mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$; x 为传输路径上任意两点的水平距离,单位为经度($^{\circ}$); a 为指数衰减系数,与气溶胶干沉降速率、传输高度及风速有关;而参数 b 的大小决定于传输路径上两点的气溶胶浓度差。若能够获得位于传输路径上任意两点的气溶胶浓度及两点之间的水平距离(经度差),则可通过公式(2)求解衰减系数 a 和参数 b ,进而推算出该传输路径上其它地点(经度)的气溶胶浓度,并求得干沉降通量。此前,一些研究已经利用这种指数衰减关系,结合沿海观测资料,估算中国近海及西北太平洋地区气溶胶及其负载元素的浓度(Tsunogai et al., 1985; Gao et al., 1992; Kang et al., 2009)。De Leeuw et al. (2003)也利用该方法估算了欧洲北海大气中氨氮和硝氮的浓度,并与观测资料对比,发现估算结果与实测结果具有较好的一致性,其相对误差低于6%。本文尝试利用该方法初步估算黄海海域大气气溶胶浓度。春季黄海海域盛行西北气流,福冈地区位于青岛地区的下风向,因此本文直接结合公式(2)估算气溶胶浓度在这两点之间的衰减。

利用2002年春季青岛和福冈地区沙尘时期和非沙尘时期不同粒径气溶胶的平均浓度和公式(2),可得到各级气溶胶的衰减系数 a 和参数 b (见表7),进而依据公式(2)可估算不同经度上气溶胶的浓度,再结合公式(1),计算了不同粒径气溶胶在黄海不同经度($121.0^{\circ}\text{E} \sim 126.5^{\circ}\text{E}$)上的干沉降通量,见图5。非沙尘时期,PM₁₁干沉降通量范围约为 $8.33 \sim 15.94 \text{ mg} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{d}^{-1}$;沙尘时期约为 $31.70 \sim 58.59 \text{ mg} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{d}^{-1}$ 。粗颗粒是黄海海域春季PM₁₁干沉降通量的主要贡献者,约占PM₁₁干沉降通量的94.2%以上。其中,非沙尘时期 $7.0 \sim 11 \mu\text{m}$ 的气溶胶对PM₁₁干沉降通量贡献最大,约占43.1%~50.4%;在沙尘时期, $7.0 \sim 11 \mu\text{m}$ 的气溶胶所占的比例下降至34.9%~35.8%,而 $4.7 \sim 7.0 \mu\text{m}$ 的气溶胶在PM₁₁干沉降通量中所占的比例较非沙尘时期有明显上升,约为37.5%~38.7%,成为PM₁₁干

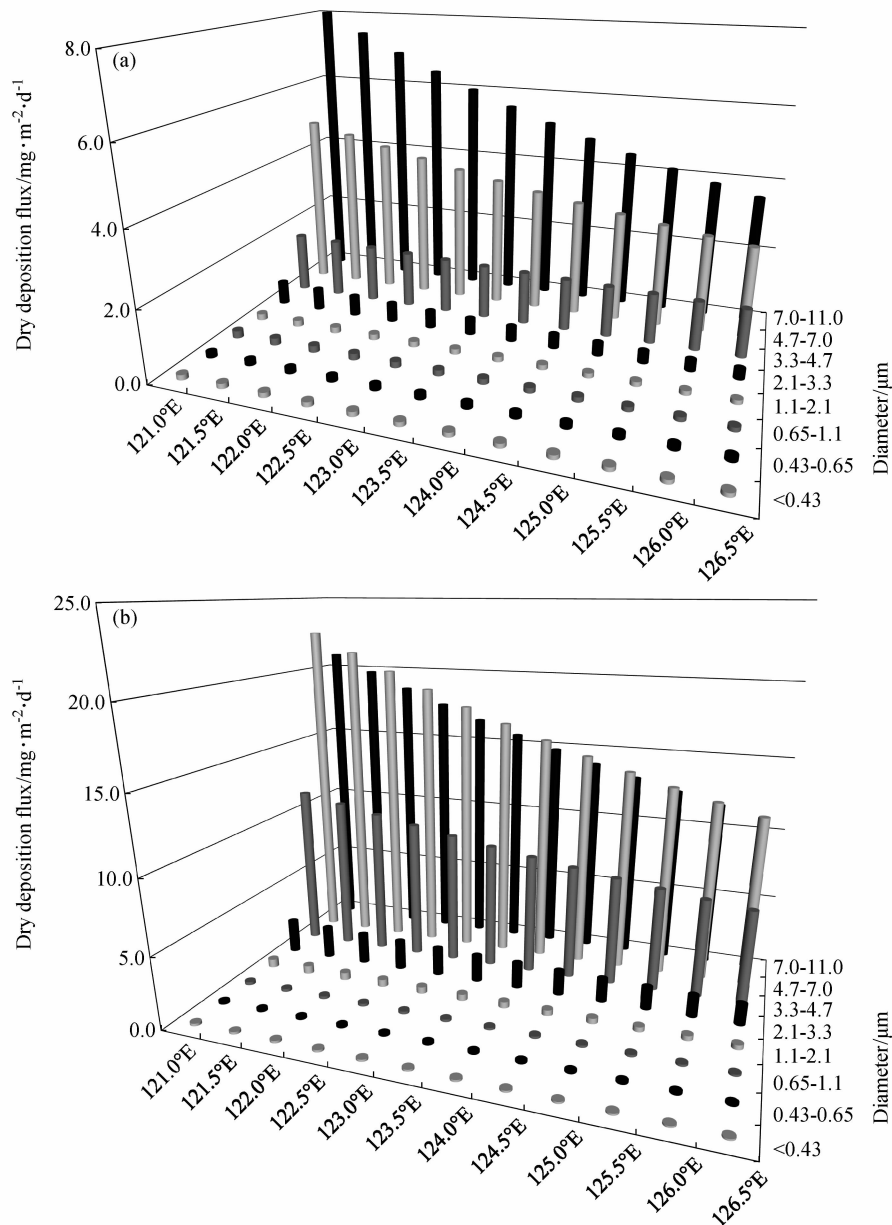


图 5 2002 年春季黄海海域不同经度上 PM11 的干沉降通量

Fig. 5 Dry deposition fluxes of aerosols ($D_p \leq 11 \mu\text{m}$) at various longitudes over the Yellow Sea in spring 2002

沉降通量的最主要贡献者。

Park et al. (2010) 利用 ADAM2 数值模式估算的黄海海域 2007 年 3、4、5 月 PM10 ($D_p \leq 10 \mu\text{m}$) 的干沉降通量分别为 74.0、20.1、14.6 $\text{mg} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{d}^{-1}$ ，与本文的结果相似。然而，目前多数文献报道的中国近海气溶胶干沉降通量是指 TSP 的通量。Zhang and Gao (2007) 于 2001 年 5 月在青岛地区通过观测得到的 TSP 干沉降通量约为 200 $\text{mg} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{d}^{-1}$ 。若 PM11 在 TSP 干沉降

通量中的比例为 6.6% (祁建华等, 2006)，那么 PM11 干沉降通量则约为 13.2 $\text{mg} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{d}^{-1}$ ，在本文估算的范围之内。但是，Gao et al. (1997) 研究发现，1992 年春季青岛地区矿物气溶胶干沉降通量约为 63.3 $\text{mg} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{d}^{-1}$ ，由此可以估算出 PM11 的干沉降通量约为 4.2 $\text{mg} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{d}^{-1}$ ，明显低于本文的结果，其差异甚至达到了一个量级。造成这些结果差异的可能原因包括了前人研究中的采样时期以及干沉降通量估算方法与本文有

表 7 公式 (2) 中衰减系数 a 和参数 b 的值
Table 7 Values of the attenuation coefficient a and parameter b in formula (2)

粒径范围	非沙尘时期		沙尘时期	
	a	b	a	b
7.0~11.0 μm	0.1463	4.36×10^8	0.1161	2.94×10^7
4.7~7.0 μm	0.1147	9.42×10^6	0.1171	5.83×10^7
3.3~4.7 μm	0.0383	8.02×10^2	0.1006	1.03×10^7
2.1~3.3 μm	0.1475	7.04×10^8	0.0878	1.87×10^6
1.1~2.1 μm	0.0738	5.31×10^4	0.1164	3.04×10^7
0.65~1.1 μm	0.1045	3.78×10^6	0.0776	1.50×10^5
0.43~0.65 μm	0.0272	2.44×10^2	0.0674	3.92×10^4
<0.43 μm	0.0554	6.86×10^3	0.0851	3.00×10^5

所不同。由此也可以看出, 目前关于中国近海气溶胶干沉降通量的估算还存在较大的不确定性, 特别是考虑了气溶胶的粒径分布之后, 这种估算的不确定性更大。但是, Dulac et al. (1989) 的研究结果表明, 若要较为准确地估算气溶胶的干沉降通量, 必须考虑气溶胶浓度及干沉降通量的粒径分布特征。因此, 进一步积累气溶胶粒径分布的观测资料以及发展精度较高的直接观测方法是准确估算气溶胶干沉降通量的有效途径。

4 结论

本文利用 2002 年春季中国北京、青岛和日本福岡 3 个地区的分级气溶胶浓度资料, 分析了沙尘传输路径上 PM11 浓度和干沉降通量的粒径分布特征, 并估算了黄海海域春季 PM11 的干沉降通量及不同粒径气溶胶的贡献。研究发现:

(1) 受沙尘天气影响, 3 个地区 PM11 浓度粒径分布由非沙尘时期的双峰分布趋于单峰分布, 并且越靠近沙尘源地, 这种趋势越明显。较强沙尘天气时期, 粗颗粒部分的浓度峰值粒径从沙尘源地附近到中国近海呈降低趋势, 但在一般沙尘天气时期, 这种现象并不明显。

(2) 沙尘时期和非沙尘时期, 3 个地区粗颗粒干沉降通量均随粒径增加而增大, 但是细颗粒干沉降通量随粒径的变化并不明显。越靠近沙尘源地, 粗颗粒在沙尘时期的干沉降通量较非沙尘时期增加越多, 但 3 个地区粗颗粒在 PM11 干沉降通量中所占的比例较非沙尘时期变化并不明显。较强沙尘天气时期, 3 个地区粗颗粒干沉降通量

均明显高于一般沙尘天气时期, 但粗颗粒对 PM11 干沉降通量的贡献较一般沙尘时期没有明显的变化; 细颗粒干沉降通量较一般沙尘天气时期虽然有所增加, 但不如粗颗粒明显。

(3) 黄海海域春季沙尘时期 PM11 干沉降通量约为 $31.70 \sim 58.59 \text{ mg} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{d}^{-1}$, 非沙尘时期约为 $8.33 \sim 15.94 \text{ mg} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{d}^{-1}$ 。粗颗粒是黄海海域春季 PM11 干沉降通量的主要贡献者, 约占 PM11 干沉降通量的 94.2% 以上。其中, 非沙尘时期 7.0~11 μm 的气溶胶对 PM11 的干沉降通量贡献最大; 而在沙尘时期, 4.7~7.0 μm 的气溶胶在 PM11 的干沉降通量中所占的比例最大。

参考文献 (References)

- Choi J C, Lee M, Chun Y, et al. 2001. Chemical composition and source signature of spring aerosol in Seoul, Korea [J]. J. Geophys. Res., 106 (D16): 18067–18074.
- De Leeuw G, Skj  th C A, Hertel O, et al. 2003. Deposition of nitrogen into the North Sea [J]. Atmos. Environ., 37 (Suppl. 1): 145–165.
- Dulac F, Buat-M  nard P, Ezat U, et al. 1989. Atmospheric input of trace metals to the western Mediterranean: uncertainties in modelling dry deposition from cascade impactor data [J]. Tellus, 41B: 362–378.
- 高会旺, 祁建华, 石金辉, 等. 2009. 亚洲沙尘的远距离输送及对海洋生态系统的影响 [J]. 地球科学进展, 24 (1): 1–10.
- Gao Huiwang, Qi Jianhua, Shi Jinhui, et al. 2009. Long-range transport of Asian Dust and its effects on ocean ecosystem [J]. Advances in Earth Science (in Chinese), 24 (1): 1–10.
- Gao Y, Arimoto R, Duce R A, et al. 1992. Input of Atmospheric Trace elements and mineral matter to the Yellow Sea during the spring of a low-dust year [J]. J. Geophys. Res., 97 (D4): 3767–3777.
- Gao Y, Arimoto R, Duce R A, et al. 1997. Temporal and spatial distributions of dust and its deposition to the China Sea [J]. Tellus, 49B (2): 172–189.
- Han Y X, Fang X M, Zhao T L, et al. 2008. Long range trans-Pacific transport and deposition of Asian dust aerosols [J]. Journal of Environmental Sciences, 20 (4): 424–428.
- Holsen T M, Noll K E, Fang G C, et al. 1993. Dry deposition and particle size distributions measured during the Lake Michigan urban air toxics study [J]. Environ. Sci. Technol., 27 (7): 1327–1333.
- Jickells T D, An Z S, Andersen K K, et al. 2005. Global iron connections between desert dust, ocean biogeochemistry, and climate [J]. Science, 308 (5718): 67–71.

- Kanai Y, Ohta A, Kamioka H, et al. 2005. Characterization of aeolian dust in east China and Japan from 2001 to 2003 [J]. *J. Meteor. Soc. Japan*, 83A: 73–106.
- Kang J, Choi M S, Lee C B. 2009. Atmospheric metal and phosphorus concentrations, inputs, and their biogeochemical significances in the Japan/East Sea [J]. *Sciences of the Total Environment*, 407 (7): 2270–2284.
- 刘明哲, 魏文寿, 周宏飞, 等. 2003. 中国西北沙尘源区与日本沉降区大气气溶胶粒子理化特征及对比 [J]. *中国沙漠*, 23 (4): 408–414. Liu Mingzhe, Wei Wenshou, Zhou Hongfei, et al. 2003. Physiochemical properties of atmospheric aerosol particles over sand-dust source areas and sedimentary areas in Asia [J]. *Journal of Desert Research (in Chinese)*, 23 (4): 408–414.
- Mori I, Nishikawa M, Tanimura T, et al. 2003. Change in size distribution and chemical composition of kosa (Asian dust) aerosol during long-range transport [J]. *Atmos. Environ.*, 37 (30): 4253–4263.
- Nakamura T, Ogawa H, Maripí D K, et al. 2006. Contribution of water soluble organic nitrogen to total nitrogen in marine aerosols over the East China Sea and western North Pacific [J]. *Atmos. Environ.*, 40 (37): 7259–7264.
- Park S H, Song C B, Kim M C, et al. 2004. Study on size distribution of total aerosol and water-soluble ions during an Asian dust storm event at Jeju Island, Korea [J]. *Environmental Monitoring and Assessment*, 93 (1–3): 157–183.
- Park S U, Choe A, Park M S. 2010. Estimates of Asian dust deposition over the Asian region by using ADAM2 in 2007 [J]. *Science of the Total Environment*, 408 (11): 2347–2356.
- Qi Jianhua, Li Peiliang, Li Xianguo, et al. 2005. Estimation of dry deposition fluxes of particulate species to the water surface in the Qingdao area, using a model and surrogate surfaces [J]. *Atmos. Environ.*, 39 (11): 2081–2088.
- 祁建华, 李培良, 李先国, 等. 2006. 青岛近海海域气溶胶干沉降通量模拟 II——几种微量金属的干沉降通量研究 [J]. *中国海洋大学学报*, 36 (3): 461–467. Qi Jianhua, Li Peiliang, Li Xianguo, et al. 2006. Estimation of dry deposition fluxes of aerosol particles in the Qingdao area II: Dry deposition fluxes of six metal elements [J]. *Periodical of Ocean University of China (in Chinese)*, 36 (3): 461–467.
- 盛立芳, 耿敏, 王园香, 等. 2003. 2002 年春季沙尘暴对青岛大气气溶胶的影响 [J]. *环境科学研究*, 16 (5): 11–17. Sheng Lifang, Geng Min, Wang Yuanxiang, et al. 2003. Effects of dust storms on atmospheric aerosols in Qingdao in spring 2002 [J]. *Research of Environmental Sciences (in Chinese)*, 16 (5): 11–17.
- Shi Z B, Zhang D Z, Hayashi M, et al. 2008. Influences of sulfate and nitrate on the hygroscopic behaviour of coarse dust particles [J]. *Atmos. Environ.*, 42 (4): 822–827.
- Sugimoto N, Uno I, Nishikawa M, et al. 2003. Record heavy Asian dust in Beijing in 2002: Observations and model analysis of recent events [J]. *Geophys. Res. Lett.*, 30 (12): doi: 10.1029/2002GL016349.
- Sullivana R C, Guazzotti S A, Sodemana D A, et al. 2007. Mineral dust is a sink for chlorine in the marine boundary layer [J]. *Atmos. Environ.*, 41 (34): 7166–7179.
- 孙业乐, 庄国顺, 袁蕙, 等. 2004. 2002 年北京特大沙尘暴的理化特性及其组分来源分析 [J]. *科学通报*, 49 (4): 340–346. Sun Yele, Zhuang Guoshun, Yuan Hui, et al. 2004. Characteristics and sources of 2002 super dust storm in Beijing [J]. *Chinese Science Bulletin (in Chinese)*, 49 (4): 340–346.
- Tang Y, Carmichael G R, Seinfeld J H, et al. 2004. Three-dimensional simulations of inorganic aerosol distributions in east Asia during spring 2001 [J]. *J. Geophys. Res.*, 109 (D19): doi: 10.1029/2003JD004201.
- Tsunogai S, Suzuki T, Kurata T, et al. 1985. Seasonal and areal variation of continental aerosol in the surface air over the western North Pacific region [J]. *Journal of Oceanography*, 41 (6): 423–434.
- Usher C R, Michel A E, Grassian V H. 2003. Reactions on mineral dust [J]. *Chemical Reviews*, 103 (12): 4883–4940.
- Wang Y, Zhuang G S, Tang A H, et al. 2007. The evolution of chemical components of aerosols at five monitoring sites of China during dust storms [J]. *Atmos. Environ.*, 41 (5): 1091–1106.
- Warren D R, Seinfeld J H. 1985. Simulation of aerosol size distribution evolution in systems with simultaneous nucleation, condensation, and coagulation [J]. *Aerosol Science and Technology*, 4 (1): 31–43.
- Zhang D Z, Iwasaka Y, Shi G Y, et al. 2003. Mixture state and size of Asian dust particles collected at southwestern Japan in spring 2000 [J]. *J. Geophys. Res.*, 108 (D24): doi: 10.1029/2003JD003869.
- Zhang Kai, Gao Huiwang. 2007. The characteristics of Asian-dust storms during 2000–2002: From the source to the sea [J]. *Atmos. Environ.*, 41 (39): 9136–9145.
- 张凯, 高会旺, 张仁健, 等. 2005. 我国沙尘的来源、移动路径及对东部海域的影响 [J]. *地球科学进展*, 20 (6): 627–636. Zhang Kai, Gao Huiwang, Zhang Renjian, et al. 2005. Sources and movement routes of sand-dust aerosols and their impact probabilities on China Seas in 2000–2002 [J]. *Advances in Earth Science (in Chinese)*, 20 (6): 627–636.
- 周自江, 章国材. 2003. 中国北方的典型强沙尘暴事件 (1954–2002 年) [J]. *科学通报*, 48 (11): 1224–1228. Zhou Zijiang, Zhang Guocai. 2003. Typical severe dust storm in Northern China during 1954–2002 [J]. *Chinese Science Bulletin (in Chinese)*, 48 (11): 1224–1228.