浑善达克沙地沙尘气溶胶的物理化学特性

成天涛[①②] 吕达仁[②] 陈洪滨[②] 王庚辰[②]

(① 复旦大学环境科学与工程系, 上海 200433; ② 中国科学院大气物理研究所中层大气与遥感理论和技术研究部, 北京 100029. E-mail: onlyinheart@sohu.com)

摘要 基于春季内蒙古浑善达克沙地, 针对大气气溶胶进行外场采样和元素分析的资料, 对沙尘气溶胶的物理化学性质进行了分析研究. 结果表明, 观测期间气溶胶平均个数和质量浓度分别为 274.8 cm^{-3} 和 0.54 mg/m^3, 晴天分别为 31.4 cm^{-3} 和 0.07 mg/m^3. PM_{10} 对沙尘质量浓度起着主导作用. 小粒子占沙尘绝大多数, 沙尘天气半径小于等于 4.0 μm 的粒子数浓度占到总浓度的 93.7%. 沙尘数浓度较大时, 粒子谱分布为双峰, 而较小时却为单峰. Al 和 Fe 等地壳元素主要来自局地土壤源, Pb 和 S 等污染元素主要来自外部污染源, Mo, V 和 Co 来自外部沙尘源. 局地土壤源、远距污染源和外部沙尘源是沙尘气溶胶的主要来源.

关键词 浑善达克沙地 沙尘气溶胶 物理化学特性

沙尘是大气气溶胶的主要种类之一, 对区域甚至全球的生态环境和气候变化具有重大影响. 大量沙尘被强风吹卷进入大气, 并随高空气流向下游陆地及海洋地区远程传输[1]. 中国北方沙漠及荒漠化土地是亚洲沙尘的主要来源之一, 西北地区每年输入大气的沙尘达 800 Mt, 约占全球总量的 1/3[2]. 来自中国和亚洲其他沙漠的沙尘, 约有一半输送到中国海区及北太平洋[3]. 大气沉降是海洋生物获得营养物质的重要途径, 沙尘气溶胶的远距输送为海洋浮游生物提供了丰富的营养元素Fe, 导致某些海区初级生产力的大幅上升, 最终对温室效应和全球变暖产生深远影响[4,5]. 目前对沙尘气溶胶气候影响的评估仍存在很大不确定性, 原因在于对沙尘源汇、大气载荷及其与气候系统反馈机制的认识不足, 以及对沙尘物理、化学和光学特性及控制这些特性演变的诸多大气过程认识欠缺[6~8]. 需要强调的是, 各沙尘源地具有并不相同的沙尘理化特性与起尘条件, 因而彼此很难替代, 需要对重要沙尘源地进行直接测量.

建国以来中国沙尘暴和强沙尘暴事件总体呈减少趋势, 但自 20 世纪 90 年代末发生次数明显上升, 出现频次高、持续时间长、强度大及影响范围广等特点[10,11]. 近 50 年来北京沙尘天气中浮尘和沙尘暴分别占到 20%和 9%, 其来源主要是内蒙古中部农牧交错带地区[12]. 浑善达克沙地是中国北方主要沙尘暴源地之一, 其与周边农牧交错带是北路沙尘暴侵入北京的必经之地[13]. 近 40 年来, 浑善达克沙地东部沙尘暴日数趋减, 西部却波动增加[14]. 在气候变化和人为活动共同作用下, 浑善达克沙地近年来植被退化非常严重, 沙化发展区是沙尘主要来源, 退化草原和耕地沙尘释放能力较强[15]. 到目前为止, 就中国内蒙古中部沙漠及黑河流域等沙尘源区, 以及北京、青岛等沙尘传输下游地区的沙尘气溶胶, 对其物理化学特性的研究已有不少工作[16~20], 且多偏重于质量和化学元素浓度及其随粒径分布的测量, 以及沙尘来源的定性分析. 然而, 有关浑善达克沙地沙尘气溶胶物理化学特性的外场观测和采样分析还未有过报道.

在基金重大项目“内蒙古半干旱草原-土壤-植被-大气相互作用”支持下, 2001 年春季我们在浑善达克沙地进行了沙尘气溶胶综合观测, 其中我们收集并分析了 2001 年春季沙尘天气期间浑善达克沙地的气溶胶, 包括总颗粒物(TSP)和粒径分级样品, 就其粒径分布和主要化学组分含量进行讨论.

1 实验方法

观测时间为 2001 年 4 月 28 日到 5 月 10 日, 观测地点为内蒙古桑根达莱, 观测期间共捕捉到 1 次较强的沙尘暴过程, 以及 3 次较轻的沙尘天气过程.

使用 PMS Fssp-100 型激光粒谱仪观测粒子的分级数浓度, 直接测量粒子速度为 20~125 m/s, 最小探测直径为 0.5 μm. 直径小于 8.0 μm 粒子以 0.5 μm 间隔分档计数, 8.0~16.0 μm 粒子以 1.0 μm 间隔分档, 16.0~32.0 μm 粒子以 2.0 μm 间隔分档, 大于 32.0 μm 粒子以 3.0 μm 间隔分档. 采样高度为 3~4 m, 使用前

已用聚苯乙烯标准气溶胶进行标定. 观测时段为北京时间 6:00~19:00, 每 3 h 观测 1 次, 每次持续 6 min, 仪器每 45 s 采样 1 次, 沙尘天气采样频率增多.

使用安德森撞击式采样仪(Anderson Impactor)进行 TSP, $PM_{2.5}$ 及 PM_{10} 采样, 仪器架设高度为 8.0 m. 使用日产聚四氟乙烯膜, 直径 80 mm, 流量为 28.3L/min. 所有膜采用 ICP-1100 型电感藕合等离子发射光谱仪(ICP)分析, 原理是先将滤膜用混合酸消解定容, 然后再用 ICP 进行定量分析.

2 结果与讨论

2.1 粒子浓度

观测期间, 气溶胶平均数浓度和质量浓度分别为 274.8 cm^{-3} 和 0.54 mg/m^3, 日均数浓度和质量浓度最高为 1078.9 cm^{-3} 和 4.14 mg/m^3, 瞬时最大数浓度为 5776.2 cm^{-3}. 晴天气溶胶日均数浓度和质量浓度分别为 31.4 cm^{-3} 和 0.07mg/m^3, 可以看作该地区大气气溶胶的日均本底状况; 沙尘天气分别为 518.2 cm^{-3} 和 1.06 mg/m^3. 若依粒子数浓度区分所有样本的瞬时晴天(<60 cm^{-3})、扬沙(60~360 cm^{-3})、沙尘暴(360~1000 cm^{-3})和强沙尘暴(>1000 cm^{-3})状态, 则其平均浓度分别为 27.8, 198.2, 662.8 及 3044.6 cm^{-3}, 其中 27.8 cm^{-3} 可作为瞬时大气气溶胶的背景浓度值. 整个观测期间, 平均 TSP 浓度分别是 $PM_{2.5}$, PM_{10} 的 1.598 和 1.044 倍, 晴天分别是 2.607 和 1.182 倍, 一般沙尘天气为 1.892 和 1.138, 而强沙尘天气分别是 1.472 和 1.004 倍. 由此可见, 沙尘天气期间, 虽然大粒子绝对数量增多, 但 PM_{10} 对沙尘浓度仍起着主导作用.

2.2 粒谱分布

小粒子占沙尘的绝大多数, 半径小于等于 4.0 μm 粒子的数浓度晴天占到总浓度的 94.2%, 沙尘天为 93.7%. 半径小于等于 1.0 μm 粒子的数浓度相对含量随沙尘总浓度增大而减小, 最后稳定在 0.6, 而大于 1.0 μm 粒子正好相反, 最终保持在 0.4 左右. 随风速增大, 沙尘粒子的增加具有一定选择性, 且与粒子谱分布密切相关. 对数正态函数对沙尘粒子谱分布具有较好的描述能力[21], 其数学表达为:

$$\frac{\mathrm{d}N}{\mathrm{d}(\log r)}=\sum_{i=1}^{n}\frac{c_i N_0}{(2\pi)^{1/2}\log\sigma_i}\exp-\frac{(\log r-\log R_{ni})^2}{2\log^2\sigma_i}, \quad (1)$$

式中r为粒子半径, R_n为峰值半径, σ为标准差, c为常数, N为粒子数浓度. 浑善达克沙地, 当沙尘数浓度较大时, 粒子谱分布表现为双峰, 并可用两个对数正态函数之和很好地描述, 而浓度较小时, 谱分布为单峰, 尺度、面积和体积谱分布拟合函数的特征参数列于表 1. 类似的采样分析结果表明, 甘肃平川晴天气溶胶的尺度、面积和体积谱均表现为双峰对数正态分布[18]. 贺兰山地区气溶胶的数目和质量浓度谱在晴天、扬沙、浮尘和沙尘暴天气均表现为单峰对数正态分布[17], 而北京地区沙尘天气的气溶胶质量浓度谱分布多为双峰特征[16].

2.3 化学元素含量

观测期间气溶胶总颗粒物及其部分元素含量的算术平均值列于表 2. 由表 2 可见, 强沙尘天气中总颗粒物含量高达 4144.0 $\mu g/m^3$, 较晴天高出近 60 倍, 主要元素 Al 和 Fe 的含量分别为 124.67 和 129.21 $\mu g/m^3$, 较之晴天分别高出近 8 和 11 倍, Pb, S 和 Zn 污染元素含量较晴天略高出 1~2 倍. 这一现象与风速增大时, 大气中污染组分含量相对减少, 而以 Al, Ca 及 Fe 等元素主要组成的地表土壤颗粒和沙粒含量急剧增多有关. 典型元素 Al, Ca, Fe, Pb, S 及 Zn, 随着沙尘浓度增大, 虽然其绝对含量增加, 但在总颗粒物中的相对含量降低, TSP 中晴天各元素相对含量是强沙尘天气的 1~30 倍, PM_{10} 中为 7~46, 而 $PM_{2.5}$ 中为 2~103 倍, 由此可见污染元素主要集中在尺度较小粒子中.

2.4 化学元素富集系数

为判断气溶胶组分的来源, 观测期间气溶胶中有关元素的富集系数列于表 3. 富集系数 EF 定义为:

$$\mathrm{EF}=[\mathrm{X/Ref}]_{样品}/[\mathrm{X/Ref}]_{来源}, \quad (2)$$

表 1 粒子对数正态谱分布函数的峰值半径(μm)及标准方差 a)

数浓度/cm^{-3}	R_n	R_s	R_v	c	σ
>1000	0.8 16.0	1.4 24.0	2.0 26.0	0.96 0.0008; 1.18 0.13; 0.65 0.6	1.85 1.5; 1.75 1.8; 1.9 1.7
360~1000	0.5 16.0	1.0 24.0	1.9 28.0	1.22 0.0032; 1.25 0.55; 55 3.3	2.3 1.5; 2.45 1.9; 2.0 1.9
<360	0.45	4.0	33.0	1.4 3.1 7.9	3.1 8.8 4.8

a) R_n, R_s, R_v 分别为个数、面积和体积浓度谱分布的峰值半径

表 2 总颗粒物含量以及有关元素在气溶胶中的含量

	晴天含量 /μg·m^{-3}	气溶胶含量 /%	一般沙尘天气含量 /μg·m^{-3}	气溶胶含量 /%	强沙尘天气含量 /μg·m^{-3}	气溶胶含量 /%	观测期间平均 /μg·m^{-3}	气溶胶含量 /%
TSP	73.0		259.17		4144.0		544.64	
Al	16.37	22.42	43.86	16.92	124.67	3.0	41.21	7.57
Ca	14.35	19.66	30.48	11.76	65.65	1.58	27.81	5.11
Fe	12.25	16.78	33.53	12.94	129.21	3.12	34.49	6.33
Pb	0.2	0.27	0.39	0.15	0.36	0.009	0.32	0.06
S	3.77	5.16	5.91	2.28	7.0	0.17	5.23	0.96
Zn	1.19	1.63	1.47	0.57	1.55	0.04	1.37	0.25

其中，$[X/Ref]_{样品}$表示某元素与参考元素在样品中的含量比，$[X/Ref]_{来源}$表示某元素与参考元素在来源中的含量比. 常用Al, Fe或Ca作为参考元素[22]，由于浑善达克土壤多为栗钙土和风沙土[23,24]，文中以栗钙土和风沙土中的Al作为参考元素. 从表 3 可见, Al, Fe, Mn, Na, Ba, Ca, K, Mg及Ti元素的富集系数，无论在晴天和沙尘天气的气溶胶中都在 1~3 左右，说明这些元素的主要来源是局地土壤源. 浑善达克沙地及其周边农牧交错带的退化沙化土地所产生的风沙，以及其形成的大量沙尘显然是这些元素的源头. 对比上述元素参考栗钙土和风沙土的富集系数发现，Na, Ba和K的富集系数前者大于后者，说明栗钙土对此 3 种元素贡献相对较大，而Al, Fe, Mn, Ca, Mg及Ti正好相反，风沙土对其贡献相对较大. Na通常作为海洋源的参考元素，观测期间气溶胶中Na含量平均为 1.80%，接近其在栗钙土和风沙土中的丰度 1.48% 和 1.73%，表明其主要来自局地土壤源.

Cu, Pb, Cd, Zn 及 B 在气溶胶中的富集系数晴天高达 40~360，而强沙尘天气降低为 7~30. 这些数据形象地说明这五种元素主要来自污染源，浑善达克微量的局地污染源，以及更为重要的远距城市污染源是其主要贡献者. S 在气溶胶中的富集系数和含量，晴天高达 50%和 5.16%，强沙尘天气分别降低为 8% 和 0.17%，但其绝对含量已达到 7.0 μg/m^3. 气溶胶中的 S 主要来自化石燃料燃烧排放的 SO_2，其进一步被氧化成硫酸盐气溶胶，或者作为气溶胶的凝结核，导致大量细颗粒物产生，并随大气运动输送到周边甚至更远的地区. 浑善达克沙尘中的 S,除了少量局地污染源外，主要来自远距污染源，并在大气输送过程中完成由气体到颗粒物的转化. 结合天气图分析，陕西和山西北部及内蒙古中部的煤炭和钢铁产区，以及二连浩特及锡林浩特等周边城市，是浑善达克沙

表 3 气溶胶中有关元素的富集系数 a)

化学元素	晴天		一般沙尘天气		强沙尘天气		观测期间平均	
	EF(栗钙土)	EF(风沙土)	EF(栗钙土)	EF(风沙土)	EF(栗钙土)	EF(风沙土)	EF(栗钙土)	EF(风沙土)
B	62.85	164.46	22.21	58.13	7.36	19.27	35.64	93.26
Ba	1.54	1.26	1.34	1.10	1.41	1.16	1.42	1.16
V	4.85	7.20	3.99	5.92	3.21	4.76	4.23	6.28
Ca	2.17	2.88	1.15	1.53	0.88	1.17	1.49	1.99
Cd	361.80	362.33	104.68	104.83	22.43	22.46	190.7	190.98
Cu	70.31	139.28	31.95	63.30	15.38	30.47	44.39	87.95
Co	10.68	13.86	8.37	10.86	3.71	4.81	8.79	11.40
Fe	2.27	3.55	1.70	2.65	2.27	3.55	1.96	3.06
K	3.34	2.82	1.37	1.16	1.37	1.15	2.09	1.76
Mg	1.80	3.09	1.46	2.51	1.45	2.48	1.59	2.72
Mn	2.19	3.42	1.79	2.81	2.10	3.29	1.96	3.07
Mo	190.23	165.83	137.15	119.56	158.47	138.14	158.39	138.07
Na	2.23	1.73	0.85	0.66	0.67	0.52	1.34	1.04
Pb	44.29	58.56	26.29	34.76	8.20	10.84	31.19	41.24
S	53.20	48.35	21.28	19.33	8.95	8.13	31.77	28.87
Ti	1.49	2.24	1.18	1.77	1.33	1.99	1.31	1.96
Zn	93.41	211.61	31.25	70.80	11.59	26.26	52.07	117.96

a) EF(栗钙土): 以栗钙土中 Al 元素为参考元素; EF(风沙土): 以风沙土中 Al 元素为参考元素

地气溶胶中 S 的重要来源.

Mo在气溶胶中的富集系数, 无论在晴天和沙尘天都保持在 120~190, 而且沙尘天气略有降低, 这说明此元素是浑善达克的主要污染元素. V和Co也存在类似现象, 富集系数为 3~13, 说明这两种元素为次要污染元素. 其来源是外部沙尘源, 悬浮大气中的部分气溶胶由外部沙尘源输送而来, 也可能是前次沙尘天气过后残留在大气中的外源颗粒物. 中国毗邻蒙古国东部荒漠最有可能成为这些元素的来源. 另外蒙古国南部荒漠, 以及中国浑善达克的内蒙古中西部的沙漠和戈壁, 也可能是部分来源, 其准确源地还需进一步分析确定. 上述分析结果, 相近于贺兰山和北京地区沙尘天气中气溶胶样品的化学元素分析结论[16,25], 但浑善达克沙地沙尘气溶胶中的V, Co及Mo元素来自外部沙尘源.

3 结论

通过对内蒙古浑善达克沙地 2001 年春季大气气溶胶的观测研究, 得到如下结论:

(ⅰ) 观测期间气溶胶平均数浓度和质量浓度分别为 274.8 cm^{-3}和 0.54 mg/m^3, 晴天背景日均数浓度和质量浓度分别为31.4 cm^{-3}和0.07 mg/m^3, PM_{10}对沙尘浓度起着主导作用.

(ⅱ) 小粒子占沙尘绝大多数, 半径小于等于 4.0 μm 粒子的数浓度晴天占到总浓度的 94.2%, 沙尘天为 93.7%. 沙尘数浓度较大时, 粒子谱分布表现为双峰, 并可用两个对数正态函数之和很好地描述, 而浓度较小时, 谱分布为单峰.

(ⅲ) 强沙尘天气中主要元素 Al 和 Fe 的含量, 分别为 124.67 和 129.21 $\mu g/m^3$, 较之晴天分别高出近 8 和 11 倍, 污染元素主要集中在较小粒子中, Pb, S 和 Zn 含量, 较晴天略高出 1~2 倍.

(ⅳ) 局地土壤源、远距污染源及外部沙尘源是浑善达克沙尘气溶胶的主要来源. Al 和 Fe 等地壳元素主要来自局地土壤源, 栗钙土对 Na, Ba 和 K 贡献相对较大, 而风沙土对 Al, Fe, Mn, Ca, Mg 及 Ti 贡献相对较大; Pb 和 S 等污染元素主要来自外部污染源, Mo, V 和 Co 则来自外部沙尘源.

致谢 本工作受国家自然科学基金重大项目(批准号: 49790020)资助.

参 考 文 献

1 Duce R A, Arimoto R, Ray B J, et al. Atmospheric trace elements at Enewetak Atoll. 1. Concentrations, sources and temporal variability. J Geophys Res, 1983, 88(C9): 5321~5342

2 Zhang X Y, Arimoto R, An Z S. Dust emission from Chinese desert sources linked to variations in atmospheric circulation. J Geophy Res, 1997, 102(D23): 28041~28047[DOI]

3 Arimoto R, Duce R A, Savoie D L, et al. Relationships among aerosol constituents from Asia and the North Pacific during PEM-West. J Geophy Res, 1996, 101(D1): 2011~2023[DOI]

4 Martin J H, Fitzwater S E. Iron deficiency limits phytoplankton growth in the north-east Pacific subarctic. Nature, 1988, 331: 341~343[DOI]

5 Zhuang G, Yi Z, Duce R A, et al. Link between iron and sulfur cycles suggested by detection of iron(II) in remote marine aerosols. Nature, 1992, 355(36): 537~539[DOI]

6 Sokolik I N, Toon O B. Direct radiative forcing by anthropogenic airborne mineral aerosols. Nature, 1996, 381(20): 681~683[DOI]

7 Tegen I, Fung I. Modeling of mineral dust in the atmosphere: sources, transport and optical thickness. J Geophy Res, 1994, 99(D101): 22897~22914[DOI]

8 IPCC. Climate Chang 2001: The Science of Climate Change. London: Cambridge University press, 2002. 291~336

9 周自江, 章国材. 中国北方的典型强沙尘暴事件(1954~2002年). 科学通报, 2003, 48(11): 1224~1228

10 周自江, 王锡稳, 牛若芸. 近 47 年中国沙尘暴气候特征研究. 应用气象学报, 2002, 13(2): 193~200

11 陈广庭. 近 50 年北京的沙尘天气及治理对策. 中国沙漠, 2001, 21(4): 402~407

12 叶笃正, 丑纪范, 刘纪远, 等. 关于中国华北地区沙尘天气的成因与治理对策. 地理学报, 2000, 55(5): 513~521

13 王革丽, 吕达仁, 尤莉. 浑善达克沙地沙尘暴气候特征分析. 气候与环境研究, 2002, 7(4): 433~439

14 刘鸿雁, 田育红, 丁登. 内蒙古浑善达克沙地和河北坝上地区不同地表覆盖类型对北京沙尘天气物源的贡献. 科学通报, 2003, 48(11): 1229~1232[摘要] [PDF]

15 庄国顺, 郭敬华, 袁蕙, 等. 2000 年我国沙尘暴的组成、来源、粒径分布及其对全球环境的影响. 科学通报, 2001, 46(3): 191~197[摘要] [PDF]

16 牛生杰, 章澄昌, 孙继明. 贺兰山地区沙尘气溶胶粒子谱分布的观测研究. 大气科学, 2001, 25(2): 243~252

17 雷文方, 任丽新, 吕位秀, 等. 黑河地区沙漠气溶胶浓度和谱分布特征. 高原气象, 1993, 12(2): 170~179

18 Zhang R J, Wang M X, Zhang X Y, et al. Analysis on the chemical and physical properties of particles in a dust storm in spring in Beijing. Powder Technology, 2003, 137: 77~82[DOI]

19 Zhang X Y, Gong S L, Arimoto R, et al. Characterization and temporal variation of Asian dust aerosol from a site in the Northern Chinese deserts. Journal of Atmospheric Chemistry, 2003, 44: 241~257[DOI]

20 Patterson E M, Gillette D A. Commonalities in measured size distributions for aerosols having a soil-derived component. J Geophy Res, 1997, 82(D15): 2074~2082

21 Winchester J W, Lu W X, Ren L X, et al. Fine and coarse aerosol composition from a rural area in northern China. Atmospheric Environment, 1981, 15: 933~937[DOI]

22 魏复盛. 中国土壤元素背景值. 北京: 中国环境科学出版社, 1990. 87~490

23 王国光. 内蒙古土壤. 北京: 科学出版社, 1994. 12~70

24 牛生杰, 章澄昌. 贺兰山地区春季沙尘气溶胶的化学组分和富集因子分析. 中国沙漠, 2000, 20(3): 264~268

(2004-04-16 收稿, 2004-11-29 收修改稿)