

DOI: 10.3724/j.1007-6336.2025-0041

西北太平洋边缘海大气气溶胶水溶性离子化学组分特征及来源解析

于聪聪¹, 翟科², 颜金培³, 赵淑惠⁴

(1.青岛华夏职业学校, 山东 青岛 266032; 2.中国海洋大学 信息科学与工程学部, 山东 青岛 266404; 3.自然资源部第三海洋研究所 海洋大气化学与全球变化重点实验室, 福建 厦门 361005; 4.泰山学院 旅游学院, 山东 泰安 271000)

摘 要:2018 年 7 月 20 日—29 日, 依托中国第九次北极科学考察, 利用船载走航气溶胶及气体组分在线离子色谱监测系统对西北太平洋边缘海大气总悬浮颗粒物 (TSP) 进行了高时间分辨率观测, 分析了其中水溶性离子 (WSI), 包括 SO_4^{2-} 、 Na^+ 、 Cl^- 、 F^- 、 Br^- 、 NO_3^- 、 NH_4^+ 、 K^+ 、 Ca^{2+} 、 Mg^{2+} 、 NO_2^- 和甲基硫酸盐 (MSA) 等的空间分布特征及影响因素, 并进行了来源解析。结果显示, 东亚海域和太平洋北部边缘海域总 WSI 浓度相当, 分别为 $(11.35 \pm 9.95) \mu\text{g}/\text{m}^3$ 和 $(10.28 \pm 8.88) \mu\text{g}/\text{m}^3$ 。东亚海域和太平洋北部边缘海域 MSA 浓度分别为 $(0.06 \pm 0.04) \mu\text{g}/\text{m}^3$ 和 $(0.17 \pm 0.16) \mu\text{g}/\text{m}^3$, 非海盐硫酸盐 (nss-SO_4^{2-}) 浓度分别为 $(5.83 \pm 8.44) \mu\text{g}/\text{m}^3$ 和 $(0.71 \pm 0.70) \mu\text{g}/\text{m}^3$, 表明东亚海域受到了较为严重的陆源输入影响。正矩阵因子分解法 (PMF) 分析显示, 东亚海域 WSI 主要受老化海盐源 (48%)、二次生成源 (36%) 和生物释放源 (16%) 影响, 太平洋北部边缘海域受老化海盐源 (58%)、陆地输入源 (24%) 和生物释放源 (18%) 影响。此外, 无机氮干沉降通量在东亚海域 $[(1.74 \pm 1.22) \text{mg}/(\text{m}^2 \cdot \text{d})]$ 明显高于太平洋北部边缘海域 $[(0.86 \pm 0.30) \text{mg}/(\text{m}^2 \cdot \text{d})]$ 。此研究对于更好地解析海洋气溶胶的来源与组成、更加全面地认识海洋气溶胶在海洋生态系统中的循环以及科学地评估海洋气溶胶对全球气候变化的作用具有重要意义。

关键词:西北太平洋; 水溶性离子; 来源; 氮沉降

中图分类号:X142 文献标识码:A 文章编号:1007-6336(2026)01-0145-11

Chemical characteristics and source of water-soluble ion in atmospheric aerosol over the marginal seas of the western North Pacific

Yu Congcong¹, Zhai Ke², Yan Jinpei³, Zhao Shuhui⁴

(1.Qingdao Huaxia Vocational School, Qingdao 266032, China; 2.Faculty of Information Science and Engineering, Ocean University of China, Qingdao 266404, China; 3.Key Laboratory of Global Change and Marine-Atmospheric Chemistry, Ministry of Natural Resources, Third Institute of Oceanography, MNR, Xiamen 361005, China; 4.School of Tourism, Taishan University, Taian 271000, China)

Abstract: High-resolution observations of total suspended particulates (TSP) were carried out during the 9th Chinese National Arctic Research Expedition (CHINARE) using the online ion chromatography monitoring system for aerosol and gas components over the marginal seas of the western North Pacific in July, 2018. Concentrations of water soluble inorganic ions (WSI), including SO_4^{2-} , Na^+ , Cl^- , F^- , Br^- , NO_3^- , NH_4^+ , K^+ , Ca^{2+} , Mg^{2+} , NO_2^- and CH_3SO_3^- (MSA) were analyzed, and the main sources of these ions were discussed by a series

收稿日期: 2025-03-10, 修订日期: 2025-07-21

作者简介: 于聪聪 (1996—), 女, 山东青岛人, 硕士研究生, 主要研究方向为海洋气溶胶, E-mail: yucongcongouc@foxmail.com

通信作者: 翟科, E-mail: zhaike_2002@163.com

of methods. The mean concentration of main WSI in aerosols over the East Asian Sea Area and the northern marginal sea of the Pacific Ocean was $(11.35 \pm 9.95) \mu\text{g}/\text{m}^3$ and $(10.28 \pm 8.88) \mu\text{g}/\text{m}^3$, respectively. The mean concentration of MSA over the East Asian Sea Area and the northern marginal sea of the Pacific Ocean was $(0.06 \pm 0.04) \mu\text{g}/\text{m}^3$ and $(0.17 \pm 0.16) \mu\text{g}/\text{m}^3$, respectively, and the mean concentration of nss-SO_4^{2-} was $(5.83 \pm 8.44) \mu\text{g}/\text{m}^3$ and $(0.71 \pm 0.70) \mu\text{g}/\text{m}^3$, respectively, which indicates that the East Asian Sea Area was severely influenced by the anthropogenic sources. The PMF results showed that the WSI in the East Asian Sea Area was mainly affected by sea salt sources (48%), secondary sources (36%) and biological sources (16%), and the WSI in the northern marginal sea of the Pacific Ocean was mainly influenced by sea salt sources (58%), terrestrial inputs (24%) and biological sources (18%). The dry deposition fluxes of NO_3^- and NH_4^+ in the East Asian Sea Area $[(1.74 \pm 1.22) \text{mg}/(\text{m}^2 \cdot \text{d})]$ were obviously higher than the northern marginal sea of the Pacific Ocean $[(0.86 \pm 0.30) \text{mg}/(\text{m}^2 \cdot \text{d})]$. The research is of great significance for better understanding the sources and composition of marine aerosols comprehensively recognizing the circulation of marine aerosols in marine ecosystems, and scientifically evaluating the role of marine aerosols in global climate change.

Key words: western North Pacific; water-soluble ions; source; nitrogen deposition

大气气溶胶是指由大气与悬浮在其中的固体或液体颗粒物所组成的混合体系,总悬浮颗粒物(TSP)是粒径为 $0.001 \sim 100 \mu\text{m}$ 的气溶胶粒子的总称。依据地区特征,气溶胶通常被分为极地型、陆地型、沙漠型和海洋型等4种类型。海洋总面积覆盖了地球总表面积的70%以上,海洋气溶胶是最大的自然源气溶胶。海洋气溶胶在大气循环中扮演重要角色,其在影响人体健康、改变生态环境乃至调节全球气候等方面都发挥着重要作用^[1-4]。

海洋气溶胶的来源包括自然源(如海盐源和矿物等)和二次生成源^[5]。其中,海盐源是海洋气溶胶最主要的自然源,全球每年大约有3300 Tg的海盐颗粒物在风和波浪作用下进入大气^[6]。矿物颗粒物主要来源是陆地传输,东亚地区是沙尘气溶胶颗粒物最大的来源区域之一,每年大约向大气释放800 Tg的沙尘颗粒物,其中有大约50%传输至太平洋海域甚至更远地区^[7]。二次气溶胶是指由一次源释放的气体经化学反应后所生成的气溶胶颗粒物,其可作为区域污染程度的重要指标之一^[8]。海洋气溶胶中主要的二次气溶胶颗粒物包括 SO_4^{2-} 、 NO_3^- 和 NH_4^+ ,这3种离子一方面可由一次源直接释放,另一方面可由其前体物质 SO_2 、 NH_3 和 NO_x 等气体经气-粒转化生成,转化过程较为复杂,会受温度、湿度等气象条件的影响^[9-10]。陆地和人为活动释放到大气中的物质通过大气输送至近海及开阔大洋大气中,并能通过干沉降或者湿沉降到达上层海

洋^[11],无机氮(NH_4^+ 、 NO_3^-)沉降到上层海洋后直接改变表层海水中N和P的比值,进而影响海洋初级生产力和全球氮循环^[12-14]。

近年来关于海洋气溶胶颗粒物的时空分布及影响分布的因素多有报道^[15-20],大多采用传统采集方式、离线观测手段对海洋气溶胶进行分析,但这些手段无法获取到某些特殊大气事件的原始信息,更难以对粒子在海洋气溶胶中的转变机理进行判别及解析。因此,本论文依托2018年中国第九次北极科学考察(CHINARE),以航线经过的西北太平洋边缘海为研究区域,利用高时间分辨率(1 h)的气溶胶及气体组分在线离子色谱监测系统(URG-AIM)观测了东亚海域、太平洋北部边缘海域TSP中主要水溶性离子(WSI),包括甲基磺酸盐(MSA)、 SO_4^{2-} 、 Na^+ 、 NO_2^- 、 F^- 、 Br^- 、 NO_3^- 、 NH_4^+ 、 K^+ 、 Ca^{2+} 、 Mg^{2+} 和 Cl^- 的时空分布特征,探讨了各离子的潜在来源,并估算了无机氮干沉降通量,可为进一步阐明各类化学物质的生物地球化学循环过程、精准制定大气污染防治措施提供科学依据。

1 材料与方法

1.1 样品采集

本研究依托中国第九次北极科学考察(CHINARE)和“雪龙号”极地考察船(the Xuelong research vehicle, R/V Xuelong)展开,观测航迹如图1所示。观测时间为2018年7月

20 日—29 日,“雪龙号”从中国上海出发,途经中国东海、日本海、鄂霍次克海和白令海。根据地理位置、远距离传输、气候特点和温度湿度等因素,将研究区域划分成两个海域来进行讨论,即东亚海域和太平洋北部边缘海域。东亚海域主要包括东亚的中国东海和日本海,太平洋北部边缘海域主要包括位于太平洋北部的鄂霍次克海和白令海等海域。



图 1 东亚海域和太平洋北部边缘海域走航观测路线

Fig. 1 Cruise tracks of the observation over the East Asian Sea Area and the northern marginal sea of the Pacific Ocean

利用船载走航 URG-AIM^[21-22](赛默飞世尔科技公司, 型号为 URG-9000D)对大气中水溶性离子进行在线观测。采样口位于顶层甲板前部, 离海平面高度约为 20 m, 通过导电硅胶管与室内的仪器相连接, 避免受到船舶污染排放的影响。URG-AIM 主要由气体采集装置、气溶胶采集装置和离子色谱分析系统 3 部分组成, 其时间

分辨率为 1 h。

1.2 样品分析

气体和气溶胶颗粒物以 3 LPM 的流速经采样管进入湿式平行板扩散溶蚀器(parallel-plate wet denuder, PPWD), 在 PPWD 内气体通过选择性透过膜进入去离子水吸收液通道, 气体经吸收后进入气体样品收集室, 而气溶胶颗粒物则继续进入气溶胶过饱和蒸汽发生器; 冷凝后的颗粒物收集液经颗粒物内部分离装置分离后进入颗粒物样品收集室, 而水蒸气及部分惰性气体则经管路进入冷凝管和真空泵被排出; 最后, 气体样品收集室和颗粒物样品收集室中的气体与颗粒物样品依据离子色谱测量端的信号触发, 顺序进入离子色谱系统中分析, 获得气体及气溶胶组分的测定结果。本研究聚焦气溶胶颗粒物的化学组成解析, 因此仅保留并分析颗粒态组分数据。阳离子 Na^+ 、 NH_4^+ 、 Mg^{2+} 、 Ca^{2+} 、 K^+ 的检出限分别为 2.1 ng/L、2.5 ng/L、1.1 ng/L、1.9 ng/L、4.2 ng/L; 阴离子 MSA^- 、 Cl^- 、 SO_4^{2-} 、 NO_3^- 、 NO_2^- 、 Br^- 、 F^- 的检出限分别为 3.6 ng/L、1.1 ng/L、1.0 ng/L、2.0 ng/L、1.5 ng/L、2.9 ng/L 和 1.2 ng/L。

1.3 质量保证与控制

(1) 阴阳离子的分离色谱图

阴离子 (MSA^- 、 Cl^- 、 SO_4^{2-} 、 NO_3^- 、 NO_2^- 、 Br^- 、 F^-) 与阳离子 (Na^+ 、 NH_4^+ 、 Mg^{2+} 、 Ca^{2+} 、 K^+) 的分离色谱图如图 2 所示。

(2) URG-AIM 在线监测与传统滤膜采样分析结果对比

URG-AIM 在线监测结果与传统滤膜采样分

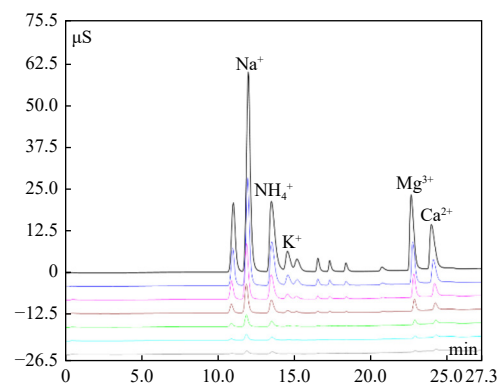
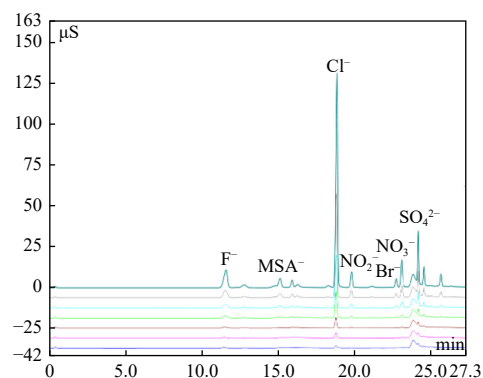


图 2 阴离子与阳离子的分离色谱图

Fig. 2 Separation chromatogram of anion and cation

析结果相关性分析表明,URG-AIM 在线监测分析方法与传统滤膜采样方法无较大差异。URG-AIM 在线监测结果与传统滤膜采样结果的相关性如图3所示。

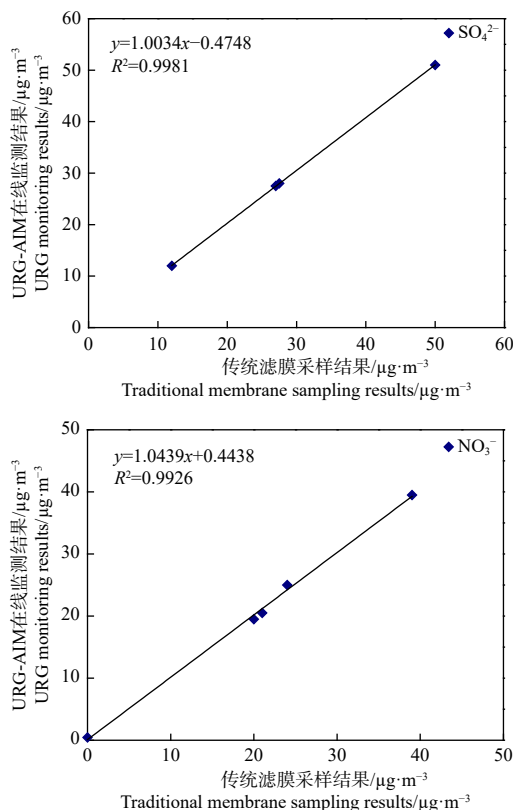


图3 URG-AIM 在线监测结果与传统滤膜采样结果相关性:以 SO_4^{2-} 和 NO_3^- 为例

Fig. 3 Correlation between URG-AIM monitoring results and traditional membrane sampling results: Take SO_4^{2-} and NO_3^- as examples

(3) 运用 PPWD 实现对气体的采集, 利用气体选择透过性膜技术, 气体穿过膜被去离子水吸收液吸收; 同时薄膜具备阻隔颗粒物进入吸收液通道的特点, 这保障了气溶胶颗粒物分析检测的回收率。

(4) 运用水蒸气喷射采样方法实现对气溶胶颗粒物的采集, 其捕集效率大于 99%。

(5) 离子色谱采用梯度淋洗, 可将保留时间相近的色谱峰区别开来, 避免造成误判。

(6) 将电抑制技术运用于离子色谱, 不需配置再生液, 减少了再生液带来的误差。

1.4 数据分析

根据来源不同, 海洋气溶胶中的 SO_4^{2-} 可分为

两类, 即海盐源硫酸盐(ss-SO_4^{2-})和非海盐源硫酸盐(nss-SO_4^{2-})。 nss-SO_4^{2-} 浓度以 Na^+ 为参比离子来计算, 按照 Na^+ 和 SO_4^{2-} 在海水中的比值来计算 ss-SO_4^{2-} 浓度, 从总硫酸根浓度中扣除海盐硫酸根浓度, 进而得到非海盐硫酸根浓度, 具体计算公式如下:

$$[\text{nss-SO}_4^{2-}] = [\text{SO}_4^{2-}] - [\text{Na}^+] \times 0.252 \quad (1)$$

式中: 0.252 为海水中 SO_4^{2-} 与 Na^+ 的质量浓度比值^[23]。

无机氮干沉降通量的计算公式如下:

$$F = C_i \times V_i \quad (2)$$

式中: C_i 是气溶胶中某组分的浓度; V_i 为该组分的干沉降速率。温度、风速、相对湿度和海盐粗糙度等都会影响氮沉降速率, 根据前人的研究, NO_3^- 的沉降速率为 1.2 cm/s, NH_4^+ 的沉降速率为 0.6 cm/s^[24-26]。

运用美国国家环境保护局(U.S. Environmental Protection Agency, USEPA) 开发的 EPA PMF 5.0 模型对大气气溶胶颗粒物进行源解析。PMF 解析模型运用最小二乘法进行运算来处理因子分析问题, 与传统分析手段相比, 具有无须测量源成分谱、解析因子非负、可利用标准偏差优化等优点。PMF 模型原理如下:

$$X = G \cdot F + E \quad (3)$$

$$Q = \sum_{i=1}^m \sum_{j=1}^n (E_{ij}/\sigma_{ij})^2 \quad (4)$$

式中: m 为化学组分个数; n 为样品数; X 是 $m \times n$ 的浓度矩阵; E 为 $m \times n$ 的残差矩阵; G 是 $n \times p$ (p 是污染源的数目) 的源贡献矩阵, 即源的载荷; F 为 $p \times m$ 的源廓线矩阵; E_{ij} 是矩阵 X 中第 j 个样品中化学成分 i 的残差; σ_{ij} 是矩阵 X 中第 j 个样品中化学成分 i 的标准偏差; Q 则为残差与标准偏差比值的平方和。

PMF 模型运行的目标是在约束条件的限制下, 使目标函数 Q 达到最小值, 以获得最优因子解析结果。

1.5 大气气团后向轨迹及叶绿素 a 数据

为确定气溶胶的可能来源, 本研究运用由美国国家海洋和大气局(U.S. National Oceanic and Atmospheric Administration, NOAA) 空气资源实验室(Air Resources Laboratory) 开发的 Hybrid

Single Particle Lagrangian Integrated Trajectory (HY-SPLIT)模型对 72 h 大气气团后向轨迹 (air mass backward trajectories, AMBTs) 进行分析 (https://ready.arl.noaa.gov/HYSPLIT_traj.php)^[27]。在 3 个不同高度 (20 m、500 m、1000 m) 每 6 h 计算一次 AMBTs, 以追踪观测期间影响研究区域的气团源。20 m 为实际观测高度, 1000 m 为海洋大气边界层高度。

本论文所使用的叶绿素 *a* 浓度数据来自美国国家航空航天局 (National Aeronautics and Space Administration, NASA) (<https://oceanscolor.gsfc.nasa.gov/l3/>)。

2 结果与讨论

2.1 水溶性离子的区域分布特征

观测期间东亚海域、太平洋北部边缘海域水溶性离子浓度列于表 1, 所观测的离子在不同时空有较大变化, 反映出大气化学成分及来源的时空差异性。东亚海域和太平洋北部边缘海域总 WSI 浓度相当, 分别为 $(11.35 \pm 9.95) \mu\text{g}/\text{m}^3$ 和 $(10.28 \pm 8.88) \mu\text{g}/\text{m}^3$ 。东亚海域 SO_4^{2-} 浓度最高, 平均值为 $(6.15 \pm 8.40) \mu\text{g}/\text{m}^3$, 占总离子质量浓度

的 54.2%; 其次为 NH_4^+ , 浓度为 $(2.63 \pm 1.81) \mu\text{g}/\text{m}^3$, NH_4^+ 浓度与黄海西部^[28] 相差不大但高于东海^[29] 和马来西亚半岛东海岸^[30], 这种空间差异可能与本研究的采样区域更靠近东亚陆地密切相关; 东亚海域的 SO_4^{2-} 浓度明显高于太平洋北部边缘、西太平洋菲律宾南部^[26] 及北极^[31] 等区域, 尤其是在起点码头位置浓度较高, 这表明东亚海域受到的陆源输入影响较大。

在太平洋北部边缘海域, Na^+ 和 Cl^- 浓度分别为 $(2.88 \pm 2.69) \mu\text{g}/\text{m}^3$ 和 $(3.52 \pm 4.84) \mu\text{g}/\text{m}^3$, 分别占总 WSI 浓度的 28.0% 和 34.2%, 说明海盐气溶胶对太平洋北部边缘海域气溶胶贡献较大。从表 1 的数据可以看出, 太平洋北部边缘海域 Na^+ 和 Cl^- 浓度均高于东亚海域, 在该航次观测期间, 太平洋北部边缘海域平均风速 (平均值为 6.7 m/s) 高于东亚海域平均风速 (平均值为 4.8 m/s), 这可能是该航次中太平洋北部边缘海域 Na^+ 和 Cl^- 浓度高于东亚海域的重要原因。太平洋北部边缘海域 Na^+ 和 Cl^- 的浓度与 Chichijima 岛^[32] 相当, 但低于西太平洋海域。

表 1 不同海域气溶胶中主要水溶性离子浓度水平对比 ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)
Tab.1 Comparison of main WSI in aerosols in different sea areas ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)

项目	东亚海域	太平洋北部边缘	黄海西部 ^[28]	东海 ^[29]	马来西亚半岛东海岸 ^[30]	西太平洋菲律宾南部 ^[26]	北极 ^[31]	Chichijima 岛 ^[32]
MSA	0.06±0.04	0.17±0.16	0.014	0.06±0.02	0.08	0.019±0.02	0.02±0.03	0.02±0.00
SO_4^{2-}	6.15±8.40	1.44±1.15	—	—	10.7	3.56±4.00	0.18±0.32	—
Na^+	1.27±0.29	2.88±2.69	1.55	1.10±0.82	1.13	4.54±5.31	0.93±0.48	2.52±0.71
Cl^-	0.46±0.39	3.52±4.84	3.62	0.68±1.18	0.67	5.48±6.50	0.47±0.92	4.94±1.54
NO_3^-	0.37±0.27	0.17±0.12	8.28	0.81±0.63	0.61	1.32±2.10	0.04±0.04	0.24±0.09
NH_4^+	2.63±1.81	1.32±0.34	2.40	1.27±1.15	1.69	0.60±1.12	0.67±0.32	0.11±0.13
NO_2^-	0.08±0.02	0.21±0.47	—	—	—	—	0.07±0.03	—
K^+	0.18±0.05	0.21±0.09	—	—	—	—	0.10±0.03	—
Ca^{2+}	0.08±0.05	0.08±0.06	—	—	—	—	0.02±0.01	—
Mg^{2+}	0.06±0.03	0.25±0.22	—	—	—	—	0.02±0.05	—
$\text{F}^- (\times 10^{-2})$	0.63±0.26	0.37±0.17	—	—	—	—	0.16±0.07	—
$\text{Br}^- (\times 10^{-2})$	0.31±0.12	1.19±1.66	—	—	—	—	0.35±0.35	—

2.2 含硫气溶胶的空间分布特征及影响因素

观测期间 MSA 和 nss-SO_4^{2-} 浓度分布如图 4 所示, 东亚海域 MSA 浓度为 $(0.06 \pm 0.04) \mu\text{g}/\text{m}^3$,

这与 Mukai 等在日本海的调查结果 ($5 \sim 130 \text{ ng}/\text{m}^3$) 相当^[33], 但略高于 Nakamura 等^[34] 在中国东海的调查结果 [$(27 \pm 20) \text{ ng}/\text{m}^3$]。太平洋北部边缘海

域 MSA 浓度为 $(0.17 \pm 0.16) \mu\text{g}/\text{m}^3$, 远高于东亚海域 MSA 浓度, 在 57°N 观测到 MSA 的浓度最高, 这与 Chen 等在第三次北极科学考察中观测到的结果相一致^[35]。MSA 的唯一来源是二甲基硫(dimethylsulfide, DMS)的氧化, 而海洋生物释放的 DMS 大约占大气 DMS 总量的 98%, 因此, MSA 通常被视作海洋生物源的标志物^[36-37]。MSA 浓度出现了 H1 ($46.66^\circ\text{N} - 47.45^\circ\text{N}$, $145.52^\circ\text{E} - 147.54^\circ\text{E}$) 和 H2 ($53.02^\circ\text{N} - 56.24^\circ\text{N}$, $165.45^\circ\text{E} - 173.00^\circ\text{E}$) 两个高值区, MSA 的平均浓度分别为 $(0.33 \pm 0.11) \mu\text{g}/\text{m}^3$ 和 $(0.31 \pm 0.16) \mu\text{g}/\text{m}^3$ 。区域

H1 距离千岛群岛较近, 千岛寒流(又名亲潮)与日本暖流(又名黑潮)交会于千岛群岛附近的海域, 导致浮游植物生长较为旺盛; 区域 H2 位于阿留申群岛附近, 极地海洋气团与阿拉斯加暖流共同作用于阿留申群岛, 因而阿留申群岛也属于浮游植物生长旺盛区域。通常情况下, 叶绿素 *a* 浓度被视为海洋浮游植物的指示物, 分析发现千岛群岛和阿留申群岛都属于叶绿素 *a* 浓度较高区域(图 5), 说明海洋初级生产力较高, 生物活动较为旺盛, 因此 DMS 的释放量增多, 进而导致 MSA 浓度较高。

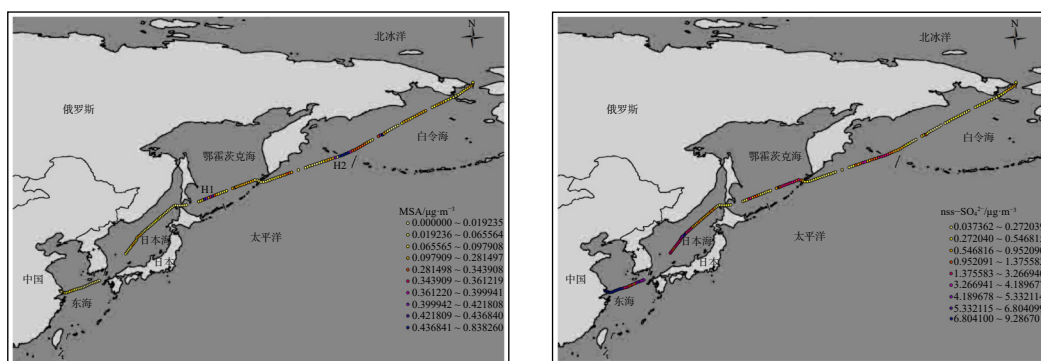


图4 MSA 和 nss-SO_4^{2-} 浓度分布

Fig. 4 Spatial distributions of MSA and nss-SO_4^{2-}

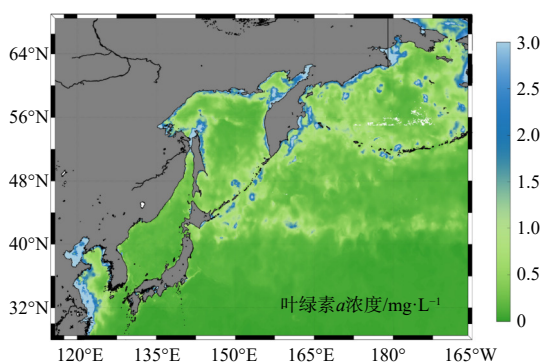


图5 2018年7月研究海域叶绿素 *a* 浓度的空间分布

Fig. 5 Spatial distribution of Chlorophyll-*a* concentration in the study areas during July 2018

nss-SO_4^{2-} 的来源主要包括陆源输入和生源释放。 nss-SO_4^{2-} 在东亚海域和太平洋北部边缘海域的浓度分别为 $(5.83 \pm 8.44) \mu\text{g}/\text{m}^3$ 和 $(0.71 \pm 0.70) \mu\text{g}/\text{m}^3$ (表 1)。东亚海域 nss-SO_4^{2-} 浓度较高, 比太平洋北部边缘海域 nss-SO_4^{2-} 浓度高出一个数量级, 根据此区域 72 h 大气气团后向轨迹

(图 6) 分析发现, 该区域气团经过韩国、朝鲜以及日本南部等陆地区域, 受到一定的陆源输入影响, 人为活动产生的硫酸根及其前体物质经过气团输送到达区域上空。此外, 由于距离东亚区域较近, 必定会受到东亚大陆径流输入的影响, 丰富的营养盐输入可以为生物提供营养, 从而提高海洋初级生产力, 最终促进 DMS 的释放和 SO_4^{2-} 的生成。太平洋北部边缘海域 nss-SO_4^{2-} 的分布与 MSA 的分布较为一致, 太平洋北部边缘海域地处开阔洁净海域, 根据 72 h 大气气团后向轨迹, 大气气团主要来自洁净大洋(图 7)。此外, 来自陆地的气团经过远距离输送到达太平洋北部边缘海域上空时, 传输稀释和沉降作用会使气溶胶中粒子的浓度有所降低, 最终导致太平洋北部边缘海域 nss-SO_4^{2-} 的浓度相对较低。

2.3 气溶胶中水溶性离子的来源解析

为进一步辨别 WSI 来源, 本文运用 PMF 模型对 WSI 进行了来源解析。经过 PMF 模型的

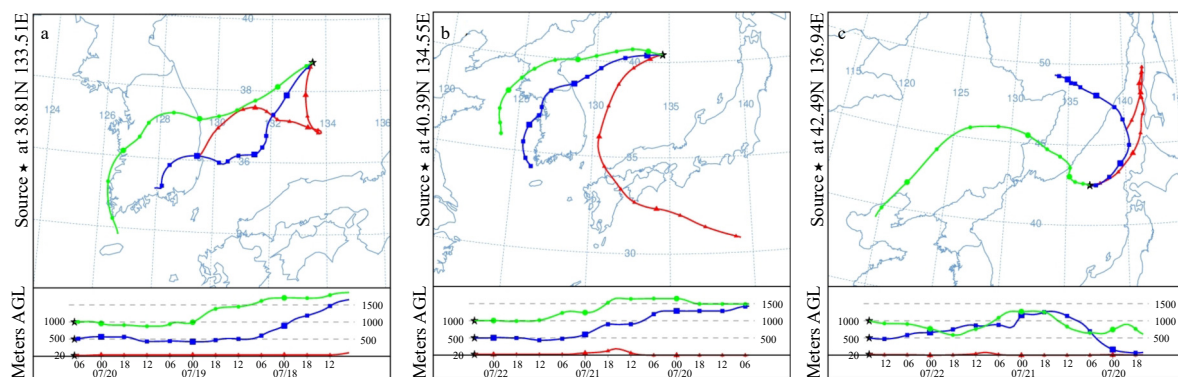


图6 东亚海域 72 h 大气气团后向轨迹

Fig. 6 The backward air-mass trajectory analysis before 72 hours of the East Asian Sea Area

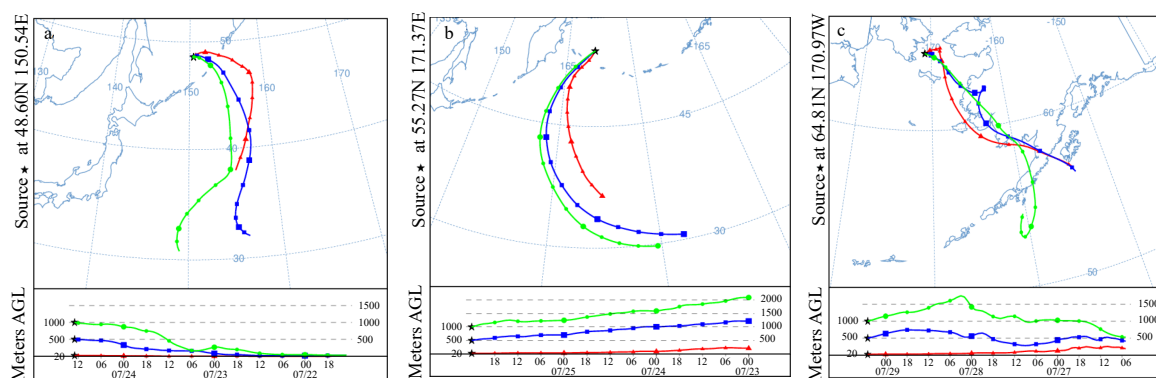


图7 太平洋北部边缘海域 72 h 大气气团后向轨迹

Fig. 7 The backward air-mass trajectory analysis before 72 hours of the northern marginal sea of the Pacific Ocean

多次运行,最终确定了3个影响因子。源成分谱的每个因子中各组分所占的百分比如图8所示。在东亚海域,PMF共鉴别出3类源(图8a),因子1中载荷较高的离子主要有 Na^+ 、 Cl^- 、 Br^- 、 Ca^{2+} 、 Mg^{2+} 和 K^+ , Cl/Na 的值(0.33 ± 0.27)低于海水中的值,这可能是由于气态 HNO_3 、 SO_2 和 H_2SO_4 溶入海盐粒子中发生置换反应,置换出海盐中的 Cl 元素,产生 HCl 气体,使得海盐中 Cl/Na 的值低于海水中的值,造成氯亏损^[29],因此该因子所代表的源为老化海盐源。该因子能够解释 Na^+ 、 Cl^- 、 Mg^{2+} 、 Br^- 、 Ca^{2+} 和 K^+ 总质量浓度的百分数分别为72%、71%、58%、58%、42%和40%。因子2中载荷较高的离子是 MSA 、 K^+ 和 nss-SO_4^{2-} ,代表的源为生物释放源,该因子能够解释75%的 MSA 质量浓度、33%的 nss-SO_4^{2-} 质量浓度以及48%的 K^+ 质量浓度。因子3中载荷较高的离子为 nss-SO_4^{2-} 、 NO_3^- 和 NH_4^+ ,

代表的源为二次生成源,该因子能够解释 nss-SO_4^{2-} 、 NO_3^- 和 NH_4^+ 总质量浓度的百分数分别为55%、45%和41%;人类活动产生的 SO_2 、 NH_3 和 NO_x 等经转化生成 nss-SO_4^{2-} 、 NH_4^+ 和 NO_3^- 等二次气溶胶离子^[38],该因子表明东亚海域受到了较为严重的陆源输入影响。老化海盐源,二次生成源和生物释放源分别可以解释东亚海域总 WSI 质量浓度变化的48%、36%和16%。

在太平洋北部边缘海域,PMF共鉴别出3类源(图8b),因子1中载荷较高的离子有 NH_4^+ 、 NO_3^- 、 K^+ 、 Ca^{2+} 和 nss-SO_4^{2-} ,将其鉴别为陆地输入源。 NH_4^+ 、 NO_3^- 和 nss-SO_4^{2-} 是典型的二次生成气溶胶离子,该因子可以解释 NH_4^+ 、 NO_3^- 和 nss-SO_4^{2-} 总质量浓度的百分数分别为69%、51%和37%,这说明人类活动对此海域产生了一定影响。该因子可以解释 K^+ 质量浓度的百分数为44%,说明太平洋北部边缘海域受到了一定程度

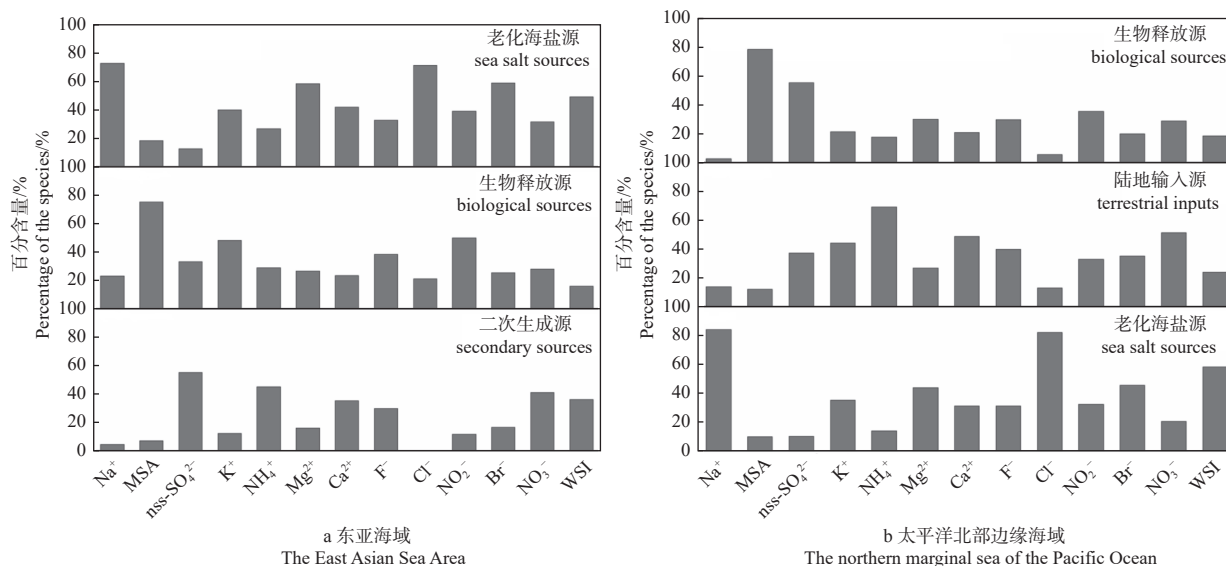


图 8 气溶胶离子 PMF 运行得到的源成分谱

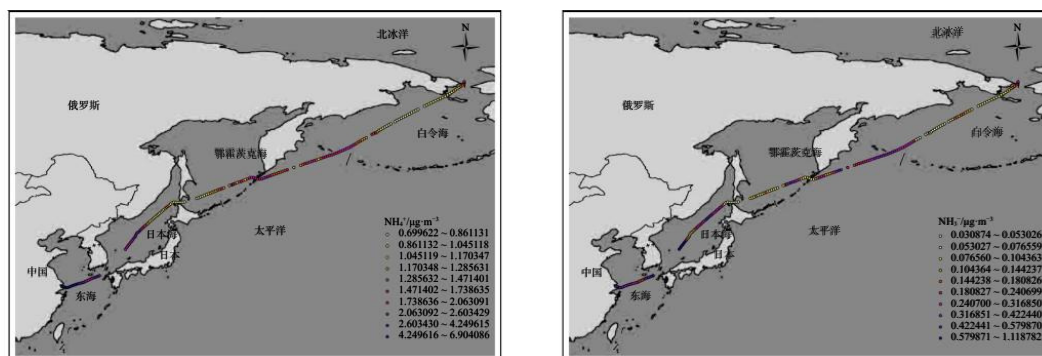
Fig. 8 Source composition spectra obtained from aerosol ion PMF operation

的生物质燃烧的影响。该因子可以解释 Ca^{2+} 质量浓度的百分数为 49%, 这表明陆地污染源产生的 Ca^{2+} 经传输进入了太平洋北部边缘海域。因子 2 中载荷较高的离子是 MSA 和 nss-SO_4^{2-} , 因此将其鉴别为生物释放源。该因子可以解释 78% 的 MSA 质量浓度和 55% 的 nss-SO_4^{2-} 质量浓度。与陆源输入相比, nss-SO_4^{2-} 在太平洋北部边缘海域受到生物释放源的影响更大。因子 3 中载荷较高的离子有 Na^+ 、 Cl^- 、 Br^- 和 Mg^{2+} , 代表的源为老化海盐源。该因子能够解释 Na^+ 、 Cl^- 、 Br^- 和 Mg^{2+} 总质量浓度的百分数分别为 84%、82%、45% 和 44%。老化海盐源、陆地输入源和生物释放源分别可以解释此区域总 WSI 质量浓度变化的 58%、24% 和 18%。老化海盐

源和生物释放源在太平洋北部边缘海域对总 WSI 的贡献均大于东亚海域。

2.4 氮干沉降通量

NH_4^+ 在东亚海域和太平洋北部边缘海域浓度分别为 $(2.63 \pm 1.81) \mu\text{g}/\text{m}^3$ 和 $(1.32 \pm 0.34) \mu\text{g}/\text{m}^3$ 。观测期间 NH_4^+ 和 NO_3^- 浓度分布如图 9 所示。 NH_4^+ 浓度呈现出随着离陆地距离的增加, 逐渐降低的分布趋势, 这也表明东亚海域 NH_4^+ 的分布受到了较为严重的东亚陆源输入影响。 NO_3^- 在东亚海域和太平洋北部边缘海域浓度分别为 $(0.37 \pm 0.27) \mu\text{g}/\text{m}^3$ 和 $(0.17 \pm 0.12) \mu\text{g}/\text{m}^3$, NO_3^- 除在东亚海域浓度较高外, 在阿留申群岛附近区域浓度也较高, 可能与此区域海洋初级生产力较高有一定关系。

图 9 NH_4^+ 和 NO_3^- 浓度分布Fig. 9 Spatial distributions of NH_4^+ and NO_3^-

陆地上的氮元素释放到大气中, 最终进入海洋^[39]。大气氮沉降在向海洋提供外部营养物质方面发挥着不可忽视的作用^[8]。为了评估大气中 NH_4^+ 和 NO_3^- 的供应对海洋表层生物生产力的影响, 本研究计算了颗粒态 NH_4^+ 和 NO_3^- 的干沉降通量。如前所述, 本研究采用 NO_3^- 的沉降速率为 1.2 cm/s , NH_4^+ 的沉降速率为 0.6 cm/s 。根据WSI中的 NO_3^- 和 NH_4^+ 的浓度, 由公式(2)计算得到本航次的氮沉降通量。东亚海域 NO_3^- -N的沉降通量为 $[(0.38 \pm 0.28) \text{ mg}/(\text{m}^2 \cdot \text{d})]$, NH_4^+ -N的沉降通量为 $[(1.36 \pm 0.94) \text{ mg}/(\text{m}^2 \cdot \text{d})]$ 。太平洋北部边缘海域 NO_3^- -N的沉降通量为 $[(0.18 \pm 0.12) \text{ mg}/(\text{m}^2 \cdot \text{d})]$, NH_4^+ -N的沉降通量为 $[(0.68 \pm 0.18) \text{ mg}/(\text{m}^2 \cdot \text{d})]$ 。东亚海域的无机氮干沉降通量 $[(1.74 \pm 1.22) \text{ mg}/(\text{m}^2 \cdot \text{d})]$ 远大于太平洋北部边缘海域 $[(0.86 \pm 0.30) \text{ mg}/(\text{m}^2 \cdot \text{d})]$, 可见中国近海至西太平洋氮沉降通量存在显著的空间差异。本研究与吴天^[40]对中国东海近海气溶胶的观测数值 $[(4.75 \pm 3.67) \text{ mg}/(\text{m}^2 \cdot \text{d})]$ 相比偏小, 但与太平洋西边界航线 $[(1.29 \pm 2.97) \text{ mg}/(\text{m}^2 \cdot \text{d})]$ ^[26]及冲绳岛 $[(1.84 \pm 0.85) \text{ mg}/(\text{m}^2 \cdot \text{d})]$ ^[41]的浓度相当。

假设由大气无机氮沉降输入的营养盐可以全部被真光层的浮游植物吸收, 根据Redfield比值可大致估算出太平洋北部边缘海域由大气无机氮沉降增加的初级生产力为 $[(1.18 \pm 0.35) \text{ g}/(\text{m}^2 \cdot \text{a})]$, 东亚海域为 $[(2.37 \pm 1.65) \text{ g}/(\text{m}^2 \cdot \text{a})]$, 可见无机氮沉降对海洋初级生产力的影响存在较大空间差异。但由于海水表层营养盐结构也对浮游植物的吸收产生影响^[42], 因此以上数据为大气无机氮沉降增加初级生产力的理论最大值。

3 结论

(1) 东亚海域和太平洋北部边缘海域总WSI浓度相当, 太平洋北部边缘海域MSA浓度 $[(0.17 \pm 0.16) \mu\text{g}/\text{m}^3]$ 远高于东亚海域MSA浓度 $[(0.06 \pm 0.04) \mu\text{g}/\text{m}^3]$, 而东亚海域 nss-SO_4^{2-} 浓度 $[(5.83 \pm 8.44) \mu\text{g}/\text{m}^3]$ 比太平洋北部边缘海域 nss-SO_4^{2-} 浓度 $[(0.71 \pm 0.07) \mu\text{g}/\text{m}^3]$ 高出一个数量级, 表明东亚海域受到了较为严重的陆源输入影响。

(2) PMF分析表明, 东亚海域WSI主要受老

化海盐源(48%)、二次生成源(36%)和生物释放源(16%)影响, 太平洋北部边缘海域受老化海盐源(58%)、陆地输入源(24%)和生物释放源(18%)影响。老化海盐源和生物释放源在太平洋北部边缘海域对总WSI的贡献均大于东亚海域。

(3) 东亚海域的无机氮干沉降通量 $[(1.74 \pm 1.22) \text{ mg}/(\text{m}^2 \cdot \text{d})]$ 远大于太平洋北部边缘海域 $[(0.86 \pm 0.30) \text{ mg}/(\text{m}^2 \cdot \text{d})]$, 氮沉降通量从中国近海至西太平洋存在显著的空间差异。

参考文献:

- [1] Bhuyan P, Barman N, Bora J, et al. Attributes of aerosol bound water soluble ions and carbon, and their relationships with AOD over the Brahmaputra Valley[J]. *Atmospheric Environment*, 2016, 142: 194-209.
- [2] 邢建伟, 宋金明. 中国近海大气颗粒物来源解析研究进展[J]. *环境化学*, 2023, 42(3): 942-962.
- [3] O'dowd C D, Facchini M C, Cavalli F, et al. Biogenically driven organic contribution to marine aerosol[J]. *Nature*, 2004, 431(7009): 676-680.
- [4] O'deyer J, Isaksson E, Vinje T, et al. Methanesulfonic acid in a Svalbard Ice Core as an indicator of ocean climate[J]. *Geophysical Research Letters*, 2000, 27(8): 1159-1162.
- [5] Armour K C, Marshall J, Scott J R, et al. Southern Ocean warming delayed by circumpolar upwelling and equatorward transport[J]. *Nature Geoscience*, 2016, 9(7): 549-554.
- [6] Roth B, Okada K. On the modification of sea-salt particles in the coastal atmosphere[J]. *Atmospheric Environment*, 1998, 32(9): 1555-1569.
- [7] Lamare M L, Lee-Taylor J, King M D. The impact of atmospheric mineral aerosol deposition on the albedo of snow & sea ice: are snow and sea ice optical properties more important than mineral aerosol optical properties[J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2016, 16(2): 843-860.
- [8] Zhang Q, Streets D G, Carmichael G R, et al. Asian emissions in 2006 for the NASA INTEX-B mission[J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2009, 9(14): 5131-5153.
- [9] Lin Y C, Cheng M T, Ting W Y, et al. Characteristics of gaseous HNO_2 , HNO_3 , NH_3 and particulate ammonium nitrate in an urban city of Central Taiwan[J]. *Atmospheric Environment*, 2006, 40(25): 4725-4733.
- [10] Hu M, Wu Z J, Slanina J, et al. Acidic gases, ammonia and water-soluble ions in $\text{PM}_{2.5}$ at a coastal site in the Pearl River

- Delta, China[J]. *Atmospheric Environment*, 2008, 42(25): 6310-6320.
- [11] Rignot E, Jacobs S, Mouginot J, et al. Ice-shelf melting around Antarctica[J]. *Science*, 2013, 341(6143): 266-270.
- [12] Kim T W, Lee K, Najjar R G, et al. Increasing N abundance in the northwestern Pacific Ocean due to atmospheric nitrogen deposition[J]. *Science*, 2011, 334(6055): 505-509.
- [13] Bikkina P, Sarma V V S S, Kawamura K, et al. Dry-deposition of inorganic and organic nitrogen aerosols to the Arabian Sea: sources, transport and biogeochemical significance in surface waters[J]. *Marine Chemistry*, 2021, 231: 103938.
- [14] Okin G S, Baker A R, Tegen I, et al. Impacts of atmospheric nutrient deposition on marine productivity: Roles of nitrogen, phosphorus, and iron[J]. *Global Biogeochemical Cycles*, 2011, 25(2): GB2022.
- [15] 王启扉, 倪远喆, 娄全胜, 等. 冬季西太平洋 TSP 水溶性离子空间分布特征、来源和氮沉降 [J]. *环境化学*, 2025, 44(2): 582-591.
- [16] Park G H, Lee S E, Kim Y I, et al. Atmospheric deposition of anthropogenic inorganic nitrogen in airborne particles and precipitation in the East Sea in the northwestern Pacific Ocean[J]. *Science of the Total Environment*, 2019, 681: 400-412.
- [17] 石金辉, 张云, 高会旺, 等. 东海大气气溶胶的化学特征及来源 [J]. *环境科学学报*, 2011, 31(8): 1750-1757.
- [18] Hsu S C, Wong G T F, Gong G C, et al. Sources, solubility, and dry deposition of aerosol trace elements over the East China Sea[J]. *Marine Chemistry*, 2010, 120(1): 116-127.
- [19] 丁晓君, 代威力, 龙爱民, 等. 南海气溶胶中溶解性无机磷的空间和季节分布特征 [J]. *环境化学*, 2022, 41(7): 2347-2355.
- [20] Cui X D, Peng L Y, Guo Y, et al. Distribution, source identification and ecological effects of aerosol dissolved nutrients in the Bohai Bay[J]. *Environmental Pollution*, 2023, 320: 12106.
- [21] Wu W S, Wang T. On the performance of a semi-continuous PM_{2.5} sulphate and nitrate instrument under high loadings of particulate and Sulphur dioxide[J]. *Atmospheric Environment*, 2007, 41(26): 5442-5451.
- [22] Yu C C, Yan J P, Zhang H H, et al. Chemical characteristics of sulfur-containing aerosol particles across the western North Pacific and the Arctic Ocean[J]. *Atmospheric Research*, 2021, 253: 105480.
- [23] Hall J, Wolff E W. Causes of seasonal and daily variations in aerosol sea-salt concentrations at a coastal Antarctic station[J]. *Atmospheric Environment*, 1998, 32(21): 3669-3677.
- [24] Prospero J M, Barrett K, Church T, et al. Atmospheric deposition of nutrients to the North Atlantic Basin[J]. *Biogeochemistry*, 1996, 35(1): 27-73.
- [25] Herut B, Collier R, Krom M D. The role of dust in supplying nitrogen and phosphorus to the Southeast Mediterranean[J]. *Limnology and Oceanography*, 2002, 47(3): 870-878.
- [26] Wang Q D, Song J M, Li X G, et al. Geochemical characteristics and potential biogeochemical effect of water-soluble ions in atmospheric aerosols over the western boundary regions of Pacific Ocean[J]. *Atmospheric Research*, 2019, 227: 101-111.
- [27] Stein A F, Draxler R R, Rolph G D, et al. NOAA's HYSPLIT atmospheric transport and dispersion modeling system[J]. *Bulletin of the American Meteorological Society*, 2015, 96(12): 2059-2077.
- [28] 王辉, 李建龙, 张洪海, 等. 冬季黄海西部海域气溶胶中主要水溶性离子的化学组成与特性研究 [J]. *海洋环境科学*, 2018, 37(3): 349-355.
- [29] 方言, 曹芳, 范美益, 等. 中国东海近海岛屿冬季与夏季气溶胶中水溶性离子化学组分特征及来源解析 [J]. *环境科学*, 2020, 41(3): 1025-1035.
- [30] Farren N J, Dunmore R E, Mead M I, et al. Chemical characterisation of water-soluble ions in atmospheric particulate matter on the east coast of Peninsular Malaysia[J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2019, 19(3): 1537-1553.
- [31] Yu C C, Yan J P, Zhang H H, et al. Characteristics of aerosol WSI with high-time-resolution observation over Arctic Ocean[J]. *Earth and Space Science*, 2020, 7(9): e2020EA001227.
- [32] Boreddy S K R, Kawamura K. A12-year observation of water-soluble ions in TSP aerosols collected at a remote marine location in the western North Pacific: An outflow region of Asian dust[J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2015, 15(11): 6437-6453.
- [33] Mukai H, Yokouchi Y, Suzuki M. Seasonal variation of methanesulfonic acid in the atmosphere over the Oki islands in the Sea of Japan[J]. *Atmospheric Environment*, 1995, 29(14): 1637-1648.
- [34] Nakamura T, Matsumoto K, Uematsu M. Chemical characteristics of aerosols transported from Asia to the East China Sea: an evaluation of anthropogenic combined nitrogen deposition in autumn[J]. *Atmospheric Environment*, 2005, 39(9): 1749-1758.
- [35] Chen L Q, Wang J J, Gao Y, et al. Latitudinal distributions of atmospheric MSA and MSA/nss-SO₄²⁻ ratios in summer over the high latitude regions of the Southern and Northern Hemi-

- spheres[J]. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 2012, 117(D10): D10306.
- [36] Davison B, Hewitt C N. Natural sulphur species from the North Atlantic and their contribution to the United Kingdom sulphur budget[J]. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 1992, 97(D2): 2475-2488.
- [37] Bates T S, Calhoun J A, Quinn P K. Variations in the methane-sulfonate to sulfate molar ratio in submicrometer marine aerosol particles over the south Pacific Ocean[J]. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 1992, 97(D9): 9859-9865.
- [38] Chan C K, Yao X H. Air pollution in mega cities in China[J]. *Atmospheric Environment*, 2008, 42(1): 1-42.
- [39] Duce R A, Laroche J, Altieri K, et al. Impacts of atmospheric anthropogenic nitrogen on the open ocean[J]. *Science*, 2008, 320(5878): 893-897.
- [40] 吴 天. 中国东海近海大气气溶胶的陆源特征、污染混合机理及干沉降量的估算 [D]. 上海: 复旦大学, 2010.
- [41] Kunwar B, Kawamura K. One-year observations of carbonaceous and nitrogenous components and major ions in the aerosols from subtropical Okinawa Island, an outflow region of Asian dusts[J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2014, 14(4): 1819-1836.
- [42] 邢建伟, 宋金明, 袁华茂, 等. 胶州湾生源要素的大气沉降及其生态效应研究进展 [J]. *应用生态学报*, 2017, 28(1): 353-366.
- (本文编辑: 胡莹莹)

~~~~~

( 上接第 144 页 )

- [11] 潘锡山, 李春辉, 王 彬. 基于 HYCOM 的西南黄海沿岸上升流分析 [J]. *海洋通报*, 2024, 43(1): 86-96.
- [12] Good S, Fiedler E, Mao C, et al. Global Ocean OSTIA Sea Surface Temperature and Sea Ice Analysis[DB/OL]. (2023-03-30)[2025-06-18]. [https://data.marine.copernicus.eu/product/SST\\_GLO\\_SST\\_L4\\_NRT\\_OBSERVATIONS\\_010\\_001/](https://data.marine.copernicus.eu/product/SST_GLO_SST_L4_NRT_OBSERVATIONS_010_001/).
- [13] Hersbach H, Bell B, Berrisford P, et al. ERA5 monthly averaged data on single levels from 1940 to present[DB/OL]. (2025-06-06)[2025-06-18]. <https://cds.climate.copernicus.eu/datasets/reanalysis-era5-single-levels-monthly-means>.
- [14] Copernicus Marine Environment Monitoring Service (CMEMS). Global Ocean Physics Reanalysis[DB/OL]. (2023-03-30)[2025-06-18]. [https://data.marine.copernicus.eu/product/GLOBAL\\_MULTIYEAR\\_PHY\\_001\\_030/](https://data.marine.copernicus.eu/product/GLOBAL_MULTIYEAR_PHY_001_030/).
- [15] Cheng L J, Abraham J, Trenberth K E, et al. Record high temperatures in the ocean in 2024[J]. *Advances in Atmospheric Sciences*, 2025, 42(6): 1092-1109.
- [16] 宋春阳, 姜 华, 张守文, 等. 2017 年中国近海海表温度特征 [J]. *海洋预报*, 2019, 36(1): 1-9.
- [17] Dieng H B, Cazenave A, Meyssignac B, et al. Effect of La Niña on the global mean sea level and north Pacific ocean mass over 2005-2011[J]. *Journal of Geodetic Science*, 2014, 4(1): 19-27.
- [18] 张绪东, 张菀伦, 李云波. 北黄海海温分布变化的数值模拟分析 [J]. *海洋预报*, 2015, 32(5): 89-97.
- [19] Kawai Y, Kawamura H. Evaluation of the diurnal warming of sea surface temperature using satellite-derived marine meteorological data[J]. *Journal of Oceanography*, 2002, 58(6): 805-814.
- [20] 张群星, 徐 昱, 刘 娟, 等. 跃层厚度对内孤立波能量耗散的影响 [J]. *海洋科学*, 2024, 48(2): 1-14.
- [21] 郭其蕴, 蔡静宁, 邵雪梅, 等. 东亚夏季风的年代际变率对中国气候的影响 [J]. *地理学报*, 2003, 58(4): 569-576.
- [22] 王晓青, 刘 健, 王志远, 等. 过去 1500 年典型暖期东亚夏季风年代际变化特征对比及其可能成因 [J]. *气象学报*, 2020, 78(2): 237-249.
- [23] Huang D J, Zhang T, Zhou F. Sea-surface temperature fronts in the Yellow and East China Seas from TRMM microwave imager data[J]. *Deep Sea Research Part II: Topical Studies in Oceanography*, 2010, 57(11/12): 1017-1024.
- ( 本文编辑: 曲丽梅 )