

DOI:10.7524/j.issn.0254-6108.2022030503

马艳, 肖红伟, 黄莉磊, 等. 2021年春季中国西北沙尘暴期间 PM_{2.5} 水溶性离子特征及来源解析[J]. 环境化学, 2022, 41(10): 3299-3309.
MA Yan, XIAO Hongwei, HUANG Lilei, et al. Characteristics and sources of PM_{2.5} water-soluble ions during the spring sandstorm in Northwest China in 2021[J]. Environmental Chemistry, 2022, 41(10): 3299-3309.

2021年春季中国西北沙尘暴期间 PM_{2.5} 水溶性离子特征及来源解析*

马艳^{1,3} 肖红伟^{1,2} ** 黄莉磊^{1,4} 艾文强^{1,4} 陈振平^{1,4}
肖扬宁^{1,4} 李智滔^{1,4} 陶继华³

(1. 东华理工大学江西省大气污染成因与控制重点实验室, 南昌, 330013; 2. 上海交通大学环境科学与工程学院, 上海, 200240; 3. 东华理工大学地球科学学院, 南昌, 330013; 4. 东华理工大学水资源与环境工程学院, 南昌, 330013)

摘要 亚洲沙尘是全球沙尘的重要组成部分, 中国西北部的戈壁沙漠和黄土高原是亚洲主要的沙尘源区之一, 通过远距离传输至我国沿海城市及海洋, 可能影响着城市空气质量、海洋初级生产力及全球气候系统. 2021年3月, 中国西北地区共发生3次沙尘暴事件. 后向轨迹表明沙尘期气团主要起源于萨雷耶西克阿特劳沙漠、塔克拉玛干沙漠(古海洋性沙漠)等. 为了解中国西北沙尘暴期间 PM_{2.5} 水溶性离子(WSI)特征及来源分析, 本研究于3月在宁夏中卫市某乡镇采集了 PM_{2.5} 样品, 并测定了其水溶性离子. 结果显示, 沙尘期和非沙尘期离子浓度存在较大的差异, 沙尘期总 WSI 浓度为 (45.8±18.1) μg·m⁻³, 远高于非沙尘期的总 WSI 浓度 (29.7±12.8) μg·m⁻³, 约为非沙尘期的2倍. 其中 SO₄²⁻、Ca²⁺、Na⁺、NH₄⁺ 是沙尘期和非沙尘期 PM_{2.5} 中主要的4种离子, 占比分别为81.8%和77.9%. 通过相关性分析及化学计量关系分析得出, 沙尘期 PM_{2.5} 中 WSI 来源主要以自然来源(地壳土壤风化以及海盐)为主; 非沙尘期除自然来源外, 还可能受煤燃烧及机动车尾气等人为二次来源的影响. 运用潜在源贡献因子分析法(PSCF)和浓度权重轨迹分析法(CWT), 分析了沙尘期与非沙尘期中卫市 PM_{2.5} 总水溶性离子浓度潜在源区及其对研究区 WSI 的贡献. 结果表明, 沙尘期潜在源区主要分布在中卫市的西北一带, 权重浓度超过30 μg·m⁻³. 非沙尘期主要受中卫市周边地区及西北一带的叠加影响, 中卫市周边地区权重浓度超过30 μg·m⁻³.

关键词 沙尘暴, PM_{2.5}, 水溶性离子, 组成特征, 来源解析, 宁夏.

Characteristics and sources of PM_{2.5} water-soluble ions during the spring sandstorm in Northwest China in 2021

MA Yan^{1,3} XIAO Hongwei^{1,2} ** HUANG Lilei^{1,4} AI Wenqiang^{1,4} CHEN Zhenping^{1,4}
XIAO Yangning^{1,4} LI Zhitao^{1,4} TAO Jihua³

(1. Jiangxi Province Key Laboratory of the Causes and Control of Atmospheric Pollution, East China University of Technology, Nanchang, 330013, China; 2. School of Environmental Science and Engineering, Shanghai Jiaotong University, Shanghai, 200240, China; 3. School of Geosciences, East China University of Technology, Nanchang, 330013, China; 4. School of Water Resources and Environmental Engineering, East China University of Technology, Nanchang, 330013, China)

Abstract Asian dust is an important component of global dust, and the Gobi Desert and loess

2022年3月5日收稿(Received: March 5, 2022).

* 国家自然科学基金(42063001, 41663003), 江西省科技计划项目(2017BCD40010)和江西省大气污染成因与控制重点实验室开放基金(AE2108)资助.

Supported by the National Natural Science Foundation of China (42063001, 41663003), Jiangxi Province Science and Technology Plan (2017BCD40010) and Jiangxi Province Key Laboratory of the Causes and Control of Atmospheric Pollution Open Fund (AE2108).

** 通信联系人 **Corresponding author**, E-mail: xiaohw@sjtu.edu.cn

Plateau in northwest China are the main sources of dust in Asia, which can be exported to coastal cities and oceans by long-distance transport and affect urban air quality, marine primary productivity and global climate system. In March 2021, three sandstorm events occurred in northwest China. The backward track indicated that the air mass originated from the Sarexik Atrau desert and the Taklimakan desert (ancient maritime desert). To understand the characteristics and sources of water-soluble ions (WSIs) in PM_{2.5} during sandstorms in northwest China. PM_{2.5} samples were collected in a township in Zhongwei, and the water-soluble ion concentrations were measured. The results showed that there is a great difference in ion concentration between dust and non-dust periods, and the WSIs concentration in dust period was (45.8±18.1) μg·m⁻³, much higher than the WSIs in non-dust period (29.7±12.8) μg·m⁻³, the concentration in dust period was about twice of that in non-dust period. SO₄²⁻, Ca²⁺, Na⁺, NH₄⁺ are the four main ions in PM_{2.5} in dust period and non-dust period, accounting for 81.8% and 77.9%, respectively. Through correlation and stoichiometric analysis, the main WSIs sources of PM_{2.5} in dust period are natural sources (crust soil weathering and sea salt). In addition to natural sources, non-dust period may also be affected by secondary sources, such as coal combustion and motor vehicle exhaust. Potential source contribution factor analysis (PSCF) and concentration weight trajectory analysis (CWT) were used to analyze the potential source areas of WSIs their contribution to WSIs in the study area during dust and non-dust periods. The results show that the potential source area of dust period is mainly distributed in the northwest of Zhongwei, and the weight concentration is more than 30 μg·m⁻³. The non-dust period is mainly influenced by the superposition of the surrounding area of Zhongwei and the northwest area, and the weighted concentration of the surrounding area of Zhongwei is more than 30 μg·m⁻³.

Keywords Sandstorm, PM_{2.5}, Water-soluble ions, Composition characteristics, Source apportionment, Ningxia.

大气气溶胶是悬浮在大气中固体和液体颗粒的总称,影响环境能见度、公众健康和气候^[1]. 沙尘气溶胶即矿物沙尘,是大气气溶胶的一种存在形式. 沙尘天气多发于干旱半干旱地区,沙尘暴粉尘可被传输数千公里,进而影响全球气候过程^[2]、大气化学^[3]和生物地球化学循环^[4]. 我国有关沙尘气溶胶的研究多集中在光学特性研究上,而在理化特征方向上的研究较少.

Chu等^[5]总结了2010年3月21日发生在中国台湾北部的一次特大沙尘事件,研究显示沙尘输送的距离取决于风暴出现的气象条件. 在对3类不同污染过程下的大气气溶胶水溶性无机离子特征的研究发现,沙尘会带来大量粗颗粒^[6];通过对毛乌素沙漠^[7]、塔克拉玛干沙漠^[8]、科尔沁沙漠^[9]的研究,均显示沙尘气溶胶中主要离子是SO₄²⁻、Na⁺、Ca²⁺,并表明Ca²⁺主要来自矿物源如沙尘,高浓度SO₄²⁻、Na⁺多是因为塔克拉玛干沙漠的古海洋环境以及哈萨克斯坦及新疆北部盐碱地的影响,但是也可能受到人为源的影响. Arimoto等^[7]采集并分析镇北台(属沙尘源地)沙尘气溶胶水溶性组分发现,虽然镇北台地区是沙尘源地,但仍受到人为污染等的影响.

目前国内对PM_{2.5}的潜在源解析大多集中在华北、华东及沿海地区,而对于西北半干旱地区报道相对较少^[10]. 2021年3月,我国北方遭遇近十年最强沙尘天气,其影响范围超380万平方公里^[11]. 为更好的了解沙尘期PM_{2.5}中的水溶性离子特征及来源解析,本研究于2021年3月在宁夏中卫市某乡镇采集了PM_{2.5}样品,并分析了其水溶性离子浓度,通过对比沙尘期与非沙尘期水溶性离子浓度变化特征,有助于更好地了解西北沙尘期与非沙尘期的气溶胶化学组成和潜在来源. 经过沙尘期和非沙尘期PM_{2.5}水溶性离子的对比,为西北地区大气沙尘研究提供一定科学数据基础.

1 材料与方法 (Materials and methods)

1.1 研究区概况

采样点 (37.41°N, 105.55°E) 位于宁夏中卫市某乡镇,该采样点在宁夏与内蒙古、甘肃交界地带,地

处宁夏平原向黄土高原的过渡带,南部陇中山地与黄土丘陵面积占全市土地面积的 83.6%。属典型的温带大陆性季风气候,受沙漠影响昼夜温差大,平均气温在 7.3—9.5 °C 之间,降水少。采样期间无降水事件发生,日平均风速在 1.1 m·s⁻¹ 至 3.8 m·s⁻¹ 之间,日平均温度在 -0.7 °C 至 15.4 °C 之间,湿度在 18%—85% 之间。

依据中央气象台统计对沙尘天气的具体时间进行划分,沙尘天气按照水平能见度划分为浮尘、扬沙、沙尘暴、强沙尘暴及特强沙尘暴,本研究沙尘期包含扬沙 (10 km > 能见度 > 1 km) 及强沙尘暴 (能见度 < 500 m) 天气。根据中央气象台统计,2021 年 3 月期间,我国共有 3 次大范围沙尘天气,14—17 日为强沙尘暴,是近十年来强度最大、影响范围最广的一次;19—21 日主要为扬沙天气,27—29 日为强沙尘暴^[11]。3 次沙尘过程影响了我国西北、华北地区及东北、长三角部分地区^[11]。

1.2 样品采集与分析

本研究于 2021 年 3 月 2 日—3 月 31 日在宁夏中卫市中宁县某乡镇一居民楼楼顶进行采样,采样位置距地面约 8 m,该镇车流量较少,无重大工业活动,且无高大建筑物阻碍及无明显污染源。采样装置为大流量 (1050 L·min⁻¹)TSP 采样器 (KC—1000) 并配备了 PM_{2.5} 切割器,采样开始时间为 09:00,连续采集 2 d (48 h)。采样前将石英纤维滤膜用锡箔纸包好置于 425 °C 马弗炉内高温烘烤 4 h 以去除滤膜中的有机质等杂质的干扰,冷却后装入自封袋密封置于干燥器内。采样后将滤膜封存装入自封袋,置于 -20 °C 冰箱内保存。采样期间共采集有效大气气溶胶样品 14 个,其中沙尘样品 5 个,非沙尘样品 9 个,采样时间及样品编号详见表 1。

表 1 样品采集信息表

Table 1 Sample collection information

采样时间 Sampling date	样品编号 Sample number	天气 Weather
2021.03.13—14	S1	非沙尘+强沙尘暴
2021.03.15—16	S2	强沙尘暴
2021.03.17—18	S3	非沙尘+强沙尘暴
2021.03.19—20	S4	扬沙
2021.03.27—28	S5	强沙尘暴
2021.03.02—03	FS1	非沙尘
2021.03.04—05	FS2	非沙尘
2021.03.06—07	FS3	非沙尘
2021.03.09—10	FS4	非沙尘
2021.03.11—12	FS5	非沙尘
2021.03.21—22	FS6	非沙尘
2021.03.23—24	FS7	非沙尘
2021.03.25—26	FS8	非沙尘
2021.03.30—31	FS9	非沙尘

样品在超净室内裁剪 1/8 滤膜置于 50 mL 聚四氟乙烯离心管中,加入去离子水定容至 50 mL,过程中始终保持滤膜处于水面以下。经超声震荡提取 30 min 后,再于 4200 r·min⁻¹ 离心处理 10 min,最后用 0.22 μm 微孔滤膜过滤上清液置于 50 mL 干净的离心管中,准备进行水溶性离子含量的测定。本研究采用 Dionex—AQUION 型离子色谱对 PM_{2.5} 中主要水溶性离子 (K⁺、Na⁺、Ca²⁺、Mg²⁺、NH₄⁺、SO₄²⁻、NO₃⁻、Cl⁻) 进行测定分析。

1.3 数据分析

为了对 PM_{2.5} 样品进行水溶性离子化学计量学关系分析,通过 (1) 式将水溶性离子的质量浓度 C (μg·m⁻³) 转换为电荷浓度 C_e (μeq·m⁻³):

$$C_e = C/M \times n \quad (1)$$

式中, C_e 为某离子的电荷浓度, $\mu\text{eq}\cdot\text{m}^{-3}$; C 为某离子的空气质量浓度, $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$; M 为某离子的分子量; n 为某离子的电荷.

基于中卫市 $\text{PM}_{2.5}$ 总水溶性离子浓度, 采用潜在源贡献因子分析 (PSCF) 与浓度权重轨迹分析 (CWT) 进行潜在源分析. PSCF 函数是基于空间网格进行计算, 定义为通过研究区内某一网格 ij 的污染气流轨迹 (当要素值超过设定的污染阈值时的轨迹) 端点数 m_{ij} 与经过该网格的所有气流轨迹端点数 n_{ij} 的比值, 即

$$\text{PSCF}_{ij} = m_{ij}/n_{ij} \quad (2)$$

为了消除 n_{ij} 较小的像元中的不确定性, 引入权重函数 $W(n_{ij})$ 对其进行区间化赋权和降误差处理^[12], 权重函数 $W(n_{ij})$ 如下:

$$W(n_{ij}) = \begin{cases} 1.00 (n_{ij} \geq 80) \\ 0.70 (25 \leq n_{ij} < 80) \\ 0.42 (15 \leq n_{ij} < 25) \\ 0.17 (n_{ij} \leq 15) \end{cases} \quad (3)$$

进而, 可以对 PSCF 进行加权计算:

$$\text{WPSCF}_{ij} = (m_{ij}/n_{ij}) \times W(n_{ij}) \quad (4)$$

WPSCF 分析反映网格单元中污染轨迹的比例, 对于具有相同 WPSCF 值的区域, 无法区分对其污染水平的影响. 采用 CWT 方法能突破上述限制并计算不同源区域的相对贡献, 通过将每个污染物浓度与网格相关的轨迹求平均, 将停留时间加权浓度分配给每个网格单元^[13]. 计算如式 (5) 所示.

$$C_{ij} = \frac{\sum_{l=1}^m C_l \tau_{ijl}}{\sum_{l=1}^m \tau_{ijl}} \quad (5)$$

式中, C_{ij} 为第 (i, j) 网格单元的加权平均浓度, i 为轨迹的指数, m 为轨迹的总数, C_l 为轨迹 l 经过网格单元 (i, j) 时对应的污染物浓度, τ_{ijl} 为轨迹 l 在网格单元 (i, j) 停留的时间. CWT 方法也存在不确定性, 本文采用与 PSCF 相同的权重因子 W_{ij} 消除其不确定的存在.

1.4 后向轨迹模拟分析

为了解释区域源的影响和污染物在整个采样活动中的长距离传输过程, 本研究基于 Trajstat 软件和美国空气资源实验室 (NOAA ARL) 提供的 GDAS 数据对采样点 3 月的气团进行后向轨迹模拟计算 (<http://ready.arl.noaa.gov/HYSPLIT.php>). 该轨迹模型起始高度为 1000 m, 起始时间为 9:00, 并向后推 72 h (3 d). 采样期间沙尘期和非沙尘期气团后向轨迹及区域内沙漠、盐碱地见图 1.

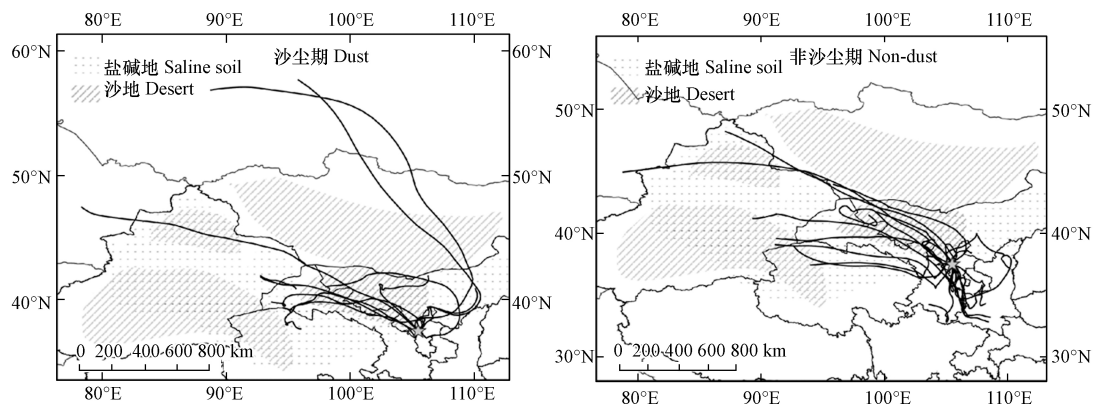


图 1 采样点沙尘期、非沙尘期气团后向轨迹

Fig.1 Backward trajectory of air mass during dust and non-dust periods in march at the sampling site

受蒙古气旋影响, 沙尘期气团主要来自北向和西北向的远距离传输, 北向气团起源于俄罗斯境内, 途经蒙古国及内蒙河套平原; 西北向气团既有起源于哈萨克斯坦的萨雷耶西克阿特劳沙漠, 途径新疆准格尔盆地、巴丹吉林沙漠及腾格里沙漠, 又有起源于塔克拉玛干沙漠, 途径柴达木盆地及河西走廊. 非沙尘期气团主要为西北向和南向, 西北向气团与沙尘期基本一致; 南向气团主要源于甘南及陕西等

周边城市。

2 结果与讨论 (Results and discussion)

2.1 PM_{2.5} 中水溶性无机离子组成

研究期间中卫市某乡镇沙尘期 PM_{2.5} 浓度范围为 43—685 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ (图 2), 平均浓度为 231 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, 是非沙尘期 (45 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$) 的 5 倍。根据我国 PM_{2.5} 浓度划分的污染等级 (GB3095—2012), 沙尘期达到重度污染。如表 2 所示, 沙尘期的总 WSIs 浓度介于 24.1—72.8 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 之间, 平均浓度为 (45.8±18.1) $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, 离子浓度顺序为: $\text{SO}_4^{2-} > \text{Na}^+ > \text{Ca}^{2+} > \text{NH}_4^+ > \text{Cl}^- > \text{K}^+ > \text{Mg}^{2+} > \text{NO}_3^-$, 其中 SO_4^{2-} 、 Na^+ 、 Ca^{2+} 、 NH_4^+ 的质量浓度占总 WSIs 浓度的 81.8%, 为沙尘期 PM_{2.5} 中主要的水溶性无机离子, 这与我国沙漠地区研究一致^[7-9]; 非沙尘期的总 WSIs 浓度在 12.6—54.7 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 之间, 平均浓度为 (29.7±12.8) $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, 离子浓度顺序为: $\text{SO}_4^{2-} > \text{Ca}^{2+} > \text{NH}_4^+ > \text{Na}^+ > \text{NO}_3^- > \text{Cl}^- > \text{K}^+ > \text{Mg}^{2+}$, 非沙尘期主要离子 SO_4^{2-} 、 Ca^{2+} 、 NH_4^+ 、 Na^+ 占比为 77.9%。对比沙尘期和非沙尘期, 沙尘期总 WSIs 明显高于非沙尘期, 约为 2 倍。

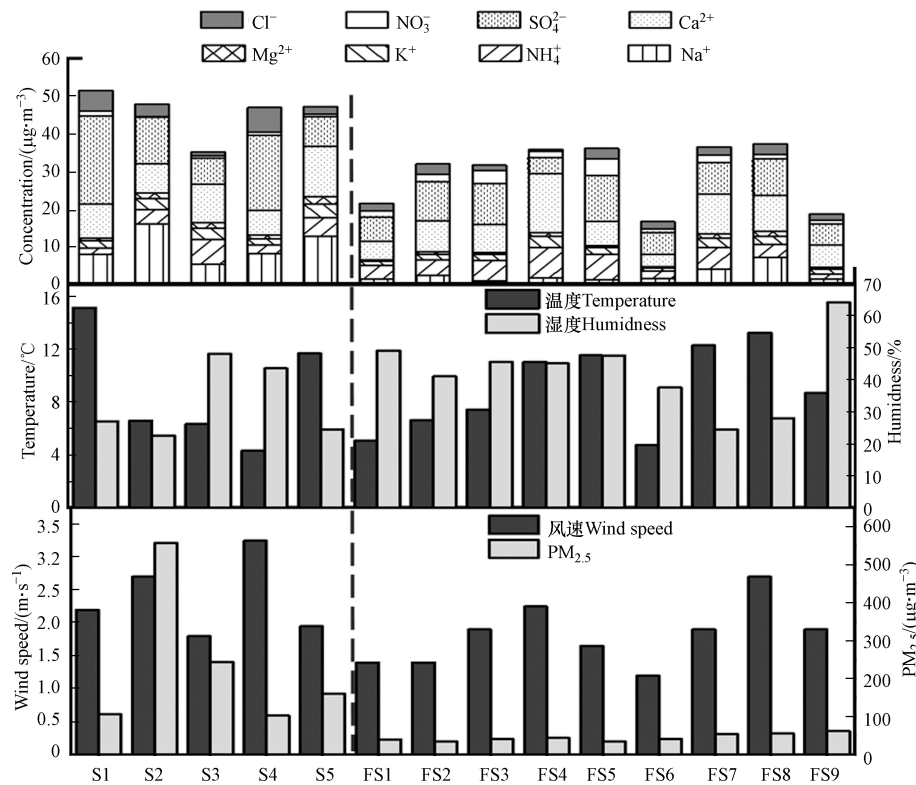


图 2 水溶性离子 (WSIs) 与 PM_{2.5}、气象因子的时间变化

注: 气象数据资料来源于 <http://www.tianqihoubao.com/>

Fig.2 Temporal variation of water-soluble ions (WSIs) with PM_{2.5} and meteorological factors

Note: Meteorological data are obtained from <http://www.tianqihoubao.com/>

表 2 PM_{2.5} 中水溶性离子浓度 ($\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$)

Table 2 Concentrations of water-soluble ions in PM_{2.5} ($\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$)

	Na ⁺	NH ₄ ⁺	K ⁺	Mg ²⁺	Ca ²⁺	SO ₄ ²⁻	NO ₃ ⁻	Cl ⁻	总离子(WSIs)
平均值	10.1	3.9	2.6	1.3	9.4	14.0	0.8	3.7	45.8
最大值	16.1	6.5	3.7	2.0	13.4	23.4	1.3	6.5	72.8
沙尘期	最小值	5.4	1.8	1.5	0.7	6.7	0.3	1.0	24.1
百分比/%	22.1	8.5	5.7	2.8	20.6	30.6	1.7	8.0	100.0
STD	3.9	1.7	0.8	0.4	2.3	6.6	0.3	2.1	18.1

续表 2

		Na ⁺	NH ₄ ⁺	K ⁺	Mg ²⁺	Ca ²⁺	SO ₄ ²⁻	NO ₃ ⁻	Cl ⁻	总离子(WSIs)
非沙尘期	平均值	2.5	4.5	1.8	0.7	8.0	8.1	2.0	2.0	29.7
	最大值	7.7	8.1	2.9	1.3	15.7	12.2	4.4	2.9	54.7
	最小值	1.0	1.3	0.9	0.3	3.3	4.3	1.0	0.5	12.6
	百分比/%	8.5	15.1	6.1	2.4	26.9	27.4	6.8	6.8	100.0
	STD	1.9	2.1	0.6	0.3	3.5	2.6	1.1	0.7	12.8
沙尘期	北向	5.39	6.54	3.06	1.43	10.31	6.78	0.75	1.00	35.26
	西北向	11.30	3.22	2.51	1.28	9.22	15.79	0.77	4.32	48.41
非沙尘期	西北向	1.61	3.28	1.33	0.48	5.92	7.77	1.80	1.98	24.17
	南向	2.09	6.48	2.25	0.77	10.00	8.90	2.85	1.73	35.06

注: 沙尘期与非沙尘期各方向离子浓度均为平均值。

Note: The ion concentrations in all directions in dust and non-dust periods are average values.

通常来说, 气象条件(例如风速、湿度、温度)对气溶胶中 WSIs 的浓度具有重要影响^[14]。研究期间风速与总 WSIs 浓度变化基本一致(图 2), 最大风速(3.8 m·s⁻¹) 在沙尘期, 离子浓度达到 47.0 μg·m⁻³, 最小风速(1.1 m·s⁻¹) 在非沙尘期, 离子浓度为 16.8 μg·m⁻³。沙尘期风速平均高于非沙尘期, 表明高离子浓度与风速和沙尘暴频发有关, 这与我国西北工业城市非沙尘期存在差异^[15]。通过对比扬沙期与强沙尘暴期, 扬沙期 WSIs 浓度(47.0 μg·m⁻³) 略高于强沙尘暴期(45.5 μg·m⁻³)。Ca²⁺作为土壤源的指示性离子, 通过风速与 Ca²⁺的化学计量关系(图 3)表明, 沙尘期与非沙尘期相关性明显不同。沙尘期风速与 Ca²⁺浓度呈负相关, 可能是因为在经过远距离传输过程中, Ca²⁺经过重力分选或者在传输过程中的湿沉降, 可溶性 Ca²⁺浓度逐渐降低。湿度与离子浓度的变化相关性较弱, 说明湿度没有加速二次气溶胶的生成^[15]。根据中卫市 PM_{2.5} 主要水溶性无机离子浓度组成特征, 中卫市 PM_{2.5} 水溶性离子以自然来源为主, 这与前人对北京春季沙尘期的研究结果相同^[16]。

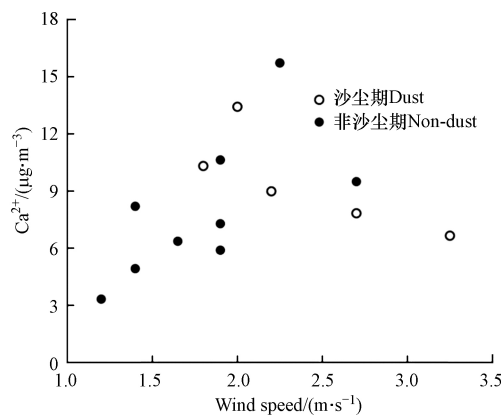


图 3 风速对 Ca²⁺浓度的影响

Fig.3 Influence of wind speed on Ca²⁺

前人研究表明, 塔克拉玛干沙漠沙尘气溶胶主要来源于海盐^[8]。Na⁺和 Cl⁻是典型的海源性离子^[17], 沙尘期 Na⁺浓度为 10.1 μg·m⁻³, 约为非沙尘期(2.5 μg·m⁻³) 的 4 倍, Cl⁻浓度约为非沙尘期 2 倍, 结合后向轨迹表明除塔克拉玛干沙漠传输外, 还可能受到从青海湖携带的盐湖颗粒以及哈萨克斯坦和新疆北部盐碱地的影响^[8]。沙尘期 SO₄²⁻平均浓度为 14.0 μg·m⁻³, 约为非沙尘期(8.1 μg·m⁻³) 的 1.7 倍, 沙尘期 SO₄²⁻浓度高可能是受西向来自塔克拉玛干沙漠传输的影响, 塔克拉玛干沙漠的硫酸盐具有明显的古海洋源的特性, 与海水中的硫酸盐极其相似^[8]。一般来说, 我国内陆城市 SO₄²⁻主要来源于化石燃料、煤炭燃烧以及生物质燃烧^[18-19], 沙尘期 SO₄²⁻也可能受到其它来源的影响。

Ca²⁺和 Mg²⁺主要来源于地壳矿物风化及建筑扬尘^[20]等, 高的 Ca²⁺浓度大多发生在沙尘暴期间^[21], 沙尘期 Ca²⁺和 Mg²⁺浓度分别为 9.4 μg·m⁻³ 和 1.3 μg·m⁻³, 且均高于非沙尘期, 可能是因为在沙尘期风速大, 中卫又地处黄土高原与腾格尔沙漠交界处, 沙尘期有北向蒙古国及西北向腾格尔沙漠携带大量碳酸盐

的沙尘输入导致 Ca²⁺和 Mg²⁺浓度高^[20].

NH₄⁺主要来源于土壤、农业活动等其它来源^[22-23], 中卫市为黄土高原及农业活动地区, NH₄⁺占比高可能与土壤或当地农业活动有关. K⁺来源主要有生物质燃烧、煤燃烧、地壳矿物等^[24-25]. 沙尘期 K⁺为非沙尘期的 1.5 倍, 这可能与 Ca²⁺一致, 因为沙尘的输入导致沙尘期 K⁺较高. NO₃⁻通常来源于机动车尾气及其它燃烧过程排放的氮氧化物的转化^[26], 沙尘期 NO₃⁻占比最少, 而非沙尘期 NO₃⁻为沙尘期的 2.6 倍, 表明在非沙尘期可能会有机动车尾气等二次来源的影响.

通过对不同方向轨迹进行对比(表 2), 总水溶性离子浓度大小排列为: 沙尘期西北向>沙尘期北向>非沙尘期南向>非沙尘期西北向. 沙尘期两个方向轨迹气团主要离子为 SO₄²⁻、Na⁺和 Ca²⁺, 非沙尘期南向与西北向主要离子为 SO₄²⁻、Ca²⁺和 NH₄⁺. 沙尘期来自远距离西北向气团的 SO₄²⁻、Na⁺和 Cl⁻浓度远高于北向, 说明西北的盐碱地及沙漠戈壁对中卫市海盐性离子影响较高. 非沙尘期中中卫市南部气团 NH₄⁺、SO₄²⁻、NO₃⁻与 Ca²⁺浓度高于来自西北向气团浓度, 表明在非沙尘期人为二次来源主要来自于中卫市南部地区, Ca²⁺在非沙尘期也受南部影响较大. 同样来自西北向气团, 沙尘期 SO₄²⁻、Na⁺、Cl⁻和 Ca²⁺浓度高于非沙尘期, 可能是由于非沙尘期多受中卫市局地及南部人为源影响较大, 来自西北向气团的土壤源及海盐贡献减小.

通过对比不同地区水溶性离子浓度发现(表 3), 中卫市沙尘期 Na⁺远高于我国其它城市, 略小于塔克拉玛干沙漠地区, 表明沙尘期 Na⁺可能与塔克拉玛干沙漠污染特征基本一致. 沙尘期 Ca²⁺和 Mg²⁺典型的地壳源远高于我国其它城市, 而二次离子 NO₃⁻、NH₄⁺都远低于城市地区, 且 NO₃⁻浓度低于我国背景城市, 表明中卫市沙尘期二次来源较少, 主要受一次来源影响. 沙尘期除 NH₄⁺、K⁺之外, 其它离子与塔克拉玛干沙漠地区相差不大, 表明中卫市与塔克拉玛干沙漠大部分离子具有相似的来源. 通过与我国北方其它地区沙尘期与非沙尘期的比较, 发现几个研究区域沙尘期总离子浓度均高于非沙尘期, 且 SO₄²⁻和 Ca²⁺为沙尘期主要的阴阳离子, 与本研究结果一致.

表 3 PM_{2.5} 水溶性离子平均质量浓度对比其他研究 (μg·m⁻³)

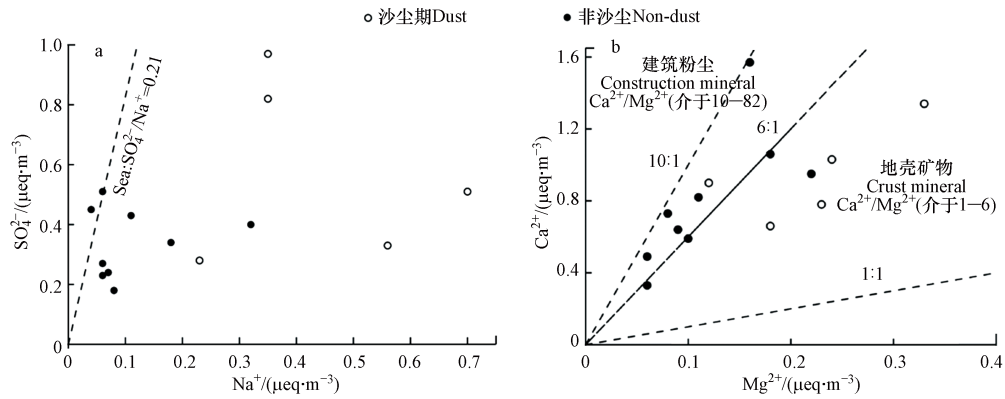
Table 3 Comparison of water-soluble ions concentration of PM_{2.5} with other research (μg·m⁻³)

地点 Site	类型 Type	时间 Time	Na ⁺	NH ₄ ⁺	K ⁺	Mg ²⁺	Ca ²⁺	SO ₄ ²⁻	NO ₃ ⁻	Cl ⁻
贵阳 ^[27]	背景区	2017	0.07	2.56	0.37	0.11	1.98	8.53	2.21	0.16
石家庄 ^[28]	城市	2010	0.69	9.33	3.4	0.25	2.62	35.63	30.38	8.69
塔克拉玛干沙漠 ^[8]	沙漠腹地	2007.03—04	13.4	0.5	0.9	1.0	13.7	21.2	1.2	14.4
通榆 ^[9]	沙尘期	2006.04—06	4.5	1.2	1.7	1.0	12.5	11.8	4.6	1.5
	非沙尘期		3.3	0.6	0.8	0.3	4.5	5.7	3	1.1
兰州 ^[29]	沙尘期	2015.04—07	0.89	2.91	0.48	0.31	2.01	6.2	4.48	0.69
	非沙尘期		0.8	1.94	0.38	0.22	0.99	5.45	2.17	0.47
和田 ^[30]	沙尘期	2020.05—07	9.43	0.28	0.92	0.45	12.78	23.81	2.57	7.83
	非沙尘期		5.41	0.38	0.7	0.17	6.24	11.25	1.9	3.47
北京 ^[31]	沙尘期	2006.03—04	0.68	6.30	2.08	0.36	3.94	19.59	6.37	—
	非沙尘期		0.6	7.21	2.28	0.35	2.36	21.57	14.9	—
中卫(本研究)	沙尘期	2021.03	10.12	3.89	2.62	1.31	9.44	13.99	0.77	3.65
	非沙尘期		2.52	4.47	1.79	0.71	7.98	8.14	2.02	2.02

2.2 PM_{2.5} 来源分析

2.2.1 水溶性离子化学计量学关系

SO₄²⁻/Na⁺的比值(图 4a)小于海水(0.121:1)^[32], 说明沙尘期 PM_{2.5} 中 SO₄²⁻主要来源于海盐. 地壳矿物中 Ca²⁺/Mg²⁺的比值介于 1—6 之间^[33-36], 建筑粉尘中 Ca²⁺/Mg²⁺的比值介于 10—82^[33-35], 本研究中沙尘期与非沙尘期 PM_{2.5} 中 Ca²⁺/Mg²⁺的比值大都落在 1—10 之间(图 4b), 说明 Ca²⁺、Mg²⁺主要来自地壳矿物风化.

图4 PM_{2.5}中水溶性离子化学计量学关系Fig.4 Stoichiometric relationship of water-soluble ions in PM_{2.5}

2.2.2 主要离子来源相关性分析

气溶胶中水溶性离子之间的相关性可以用于指示其相似的来源或化学过程^[37]. 本研究对气溶胶样品进行了水溶性离子间的相关性分析(表4和表5). 分析结果显示, Cl⁻与SO₄²⁻的相关系数在沙尘期与非沙尘期分别为0.94和0.67, 说明Cl⁻与SO₄²⁻有相似的来源, 可能来自于海盐的影响^[8]. Na⁺和Cl⁻相关性较弱, 可能在随气团传输的过程中, Cl⁻存在亏损^[22]. 沙尘期SO₄²⁻与NH₄⁺、K⁺、Mg²⁺之间, Cl⁻与NH₄⁺、K⁺之间都存在较好的负相关, 这可能与气溶胶中粗细颗粒物的分配有关^[38]. 非沙尘期SO₄²⁻与Ca²⁺、Mg²⁺并没有体现出较好的相关性, 这与我国内陆城市^[26]存在差别. Na⁺与Mg²⁺的相关性(R=0.85)说明非沙尘期Na⁺与Mg²⁺有相似的来源. 沙尘期与非沙尘期中的Ca²⁺与Mg²⁺相关系数均较高, 均为0.73, 说明可能有相同的来源, 沙尘和土壤风化对其贡献较大. K⁺与Ca²⁺、Mg²⁺、NH₄⁺之间均存在相关性, 表明K⁺来源可能比较复杂.

表4 沙尘期PM_{2.5}中各离子间的相关性分析Table 4 Correlation analysis of various ions in PM_{2.5} during dust period

离子(Ion)	Na ⁺	NH ₄ ⁺	K ⁺	Mg ²⁺	Ca ²⁺	SO ₄ ²⁻	NO ₃ ⁻	Cl ⁻
Na ⁺	1	-0.08	0.44	0.43	0.08	-0.20	-0.74	-0.10
NH ₄ ⁺		1	0.79	0.73	0.57	-0.95*	-0.51	-0.94*
K ⁺			1	0.89*	0.78	-0.90*	-0.68	-0.91*
Mg ²⁺				1	0.73	-0.88*	-0.68	-0.75
Ca ²⁺					1	-0.63	-0.11	-0.70
SO ₄ ²⁻						1	0.69	0.94*
NO ₃ ⁻							1	0.55
Cl ⁻								1

注: *表示在0.05水平上显著相关, **表示在0.01水平上显著相关.

Note: * correlation is significant at the 0.05 level, **correlation is significant at the 0.01 level.

表5 非沙尘期PM_{2.5}中各离子间的相关性分析Table 5 Correlation analysis of various ions in PM_{2.5} during non-dust period

离子(Ion)	Na ⁺	NH ₄ ⁺	K ⁺	Mg ²⁺	Ca ²⁺	SO ₄ ²⁻	NO ₃ ⁻	Cl ⁻
Na ⁺	1	-0.09	0.42	0.85**	0.32	0.17	-0.33	0.48
NH ₄ ⁺		1	0.77*	0.28	0.71*	0.24	0.58	-0.32
K ⁺			1	0.80**	0.94**	0.02	0.13	-0.28
Mg ²⁺				1	0.73*	0.05	-0.23	0.11
Ca ²⁺					1	-0.16	-0.05	-0.44
SO ₄ ²⁻						1	0.77*	0.67*
NO ₃ ⁻							1	0.20
Cl ⁻								1

注: *表示在0.05水平上显著相关, **表示在0.01水平上显著相关.

Note: * correlation is significant at the 0.05 level, **correlation is significant at the 0.01 level.

2.3 PSCF 与 CWT 分析

利用 TrajStat 软件对采样期间沙尘期与非沙尘期 PM_{2.5} 总水溶性离子浓度进行潜在贡献因子分析 (PSCF) 与浓度权重轨迹分析 (CWT). 由图 5 可知, 沙尘期与非沙尘期的 PSCF 与 CWT 分布特征不同, 相比较沙尘期, 非沙尘期的潜在源区分布更为广泛. 沙尘期 PSCF 高值区主要分布在中卫市的西北方, 主要来自于内蒙、河西走廊至新疆一带偏西北气流的输送, 此外还有一部分来自南部及西部青海一带, 可以发现沙尘期为典型的外来源. 而在非沙尘期高值区主要分布在本地及甘南一带, 为典型的局地源, 此外还有一部分来自河西走廊, 内蒙至新疆一带偏西北气流的输送, 但是 PSCF 值显著低于本地上空.

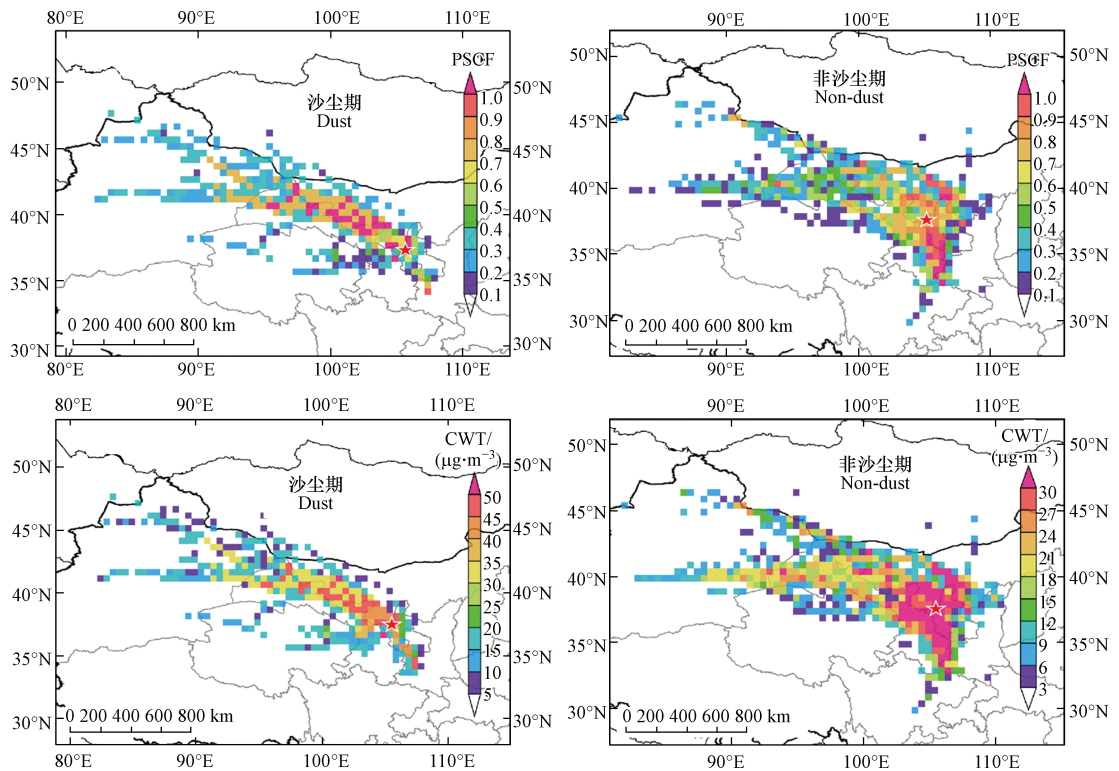


图 5 WSIs 潜在源区分析与浓度权重轨迹分析

Fig.5 Source region of WSIs identified by PSCF and CWT analysis

由于 PSCF 只能反映潜在源区对研究区域贡献率的大小, 无法体现污染的具体贡献浓度. 因此, 采用 CWT 法对中卫市沙尘期与非沙尘期 PM_{2.5} 总水溶性离子进行潜在源区浓度权重轨迹分析, 以反映潜在污染源区的污染程度. 沙尘期 CWT 高值区主要分布在中卫市局地及西北一带, 权重浓度超过 30 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, 其次是偏西南一带, 权重浓度在 20—35 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 之间. 非沙尘期 CWT 高值区主要分布在中卫市及周边地区, 权重浓度超过 30 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, 其次为较远的西部河西走廊及内蒙一带, 权重浓度在 15—30 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 之间. 相对于沙尘期来说非沙尘期的 CWT 高值区更加集中, 说明沙尘期外来源贡献较大, 而非沙尘期局地源的贡献更大.

3 结论 (Conclusions)

(1) 采样期间沙尘期 WSIs 浓度顺序为: $\text{SO}_4^{2-} > \text{Na}^+ > \text{Ca}^{2+} > \text{NH}_4^+ > \text{Cl}^- > \text{K}^+ > \text{Mg}^{2+} > \text{NO}_3^-$, 沙尘期 WSIs 浓度 (45.8 ± 18.1) $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 明显高于非沙尘期 (29.7 ± 12.8) $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, 约为非沙尘期的 2 倍. 4 种主要离子 (SO_4^{2-} 、 Ca^{2+} 、 Na^+ 、 NH_4^+) 浓度在沙尘期与非沙尘期占比分别为 81.8% 和 77.9%, 其中 SO_4^{2-} 、 Na^+ 主要受塔克拉玛干沙漠的古海洋特性的影响来自海盐, Ca^{2+} 和 Mg^{2+} 多来自地壳矿物风化.

(2) 相关性分析及化学计量关系结果显示, 中卫市 3 月沙尘期 PM_{2.5} 中 WSIs 主要以自然来源 (地壳土壤风化以及海盐) 为主, 非沙尘期除自然来源外还可能受煤燃烧及机动车尾气等人为二次来源的影响.

(3) 沙尘期与非沙尘期的 $PM_{2.5}$ 总水溶性离子 PSCF 与 CWT 分布特征不同. 沙尘期 PSCF 高值区主要分布在中卫市的西北方, CWT 权重浓度超过 $30 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$. 非沙尘期主要分布在中卫市周边地区及西北一带的叠加影响, CWT 高值区在中卫市周边地区, 权重浓度超过 $30 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$.

参考文献 (References)

- [1] ZANG L, ZHANG Y, ZHU B, et al. Characteristics of water-soluble inorganic aerosol pollution and its meteorological response in Wuhan, Central China [J]. *Atmospheric Pollution Research*, 2021, 12(3): 362-369.
- [2] SHAO Y P, WYRWOLL K H, CHAPPELL A, et al. Dust cycle: An emerging core theme in Earth system science [J]. *Aeolian Research*, 2011, 2(4): 181-204.
- [3] MIDDLETON N J. Desert dust hazards: A global review [J]. *Aeolian Research*, 2017, 24: 53-63.
- [4] FALKOWSKI P G, BARBER R T, SMETACEK V. Biogeochemical controls and feedbacks on ocean primary production [J]. *Science*, 1998, 281(5374): 200-206.
- [5] CHU H J, YU H L, KUO Y M. Identifying spatial mixture distributions of $PM_{2.5}$ and PM_{10} in Taiwan during and after a dust storm [J]. *Atmospheric Environment*, 2012, 54: 728-737.
- [6] 张秋晨, 朱彬, 苏继峰, 等. 南京3类不同大气污染过程下气溶胶水溶性无机离子的特征研究 [J]. *环境科学*, 2012, 33(6): 1944-1951.
ZHANG Q C, ZHU B, SU J F, et al. Characteristics of aerosol water-soluble inorganic ions in three types air-pollution incidents of Nanjing City [J]. *Environmental Science*, 2012, 33(6): 1944-1951(in Chinese).
- [7] ARIMOTO R, ZHANG X Y, HUEBERT B J, et al. Chemical composition of atmospheric aerosols from Zhenbeitai, China, and Gosan, South Korea, during ACE-Asia [J]. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 2004, 109(D19): D19S04.
- [8] 李娟. 中亚地区沙尘气溶胶的理化特性、来源、长途传输及其对全球变化的可能影响 [D]. 上海: 复旦大学, 2009.
LI J. Characteristics, source, long-range transport of dust aerosol over the central Asia and its potential effect on global change [D]. Shanghai: Fudan University, 2009(in Chinese).
- [9] SHEN Z X, WANG X, ZHANG R J, et al. Chemical composition of water-soluble ions and carbonate estimation in spring aerosol at a semi-arid site of Tongyu, China [J]. *Aerosol and Air Quality Research*, 2011, 11(4): 360-368.
- [10] 余创, 陈伟, 张玉秀. 西北干旱区乌海市 $PM_{2.5}$ 的输送路径及潜在源解析 [J]. *中国科学院大学学报*, 2022, 39(1): 43-54.
YU C, CHEN W, ZHANG Y X. The transport pathways and potential source regions of $PM_{2.5}$ in the semi-arid area of northwest China [J]. *Journal of University of Chinese Academy of Sciences*, 2022, 39(1): 43-54(in Chinese).
- [11] 中国新闻网. 今年入春以来我国沙尘暴日数和强度为近9年之最 [EB/OL]. [2021-4-18]. <https://baijiahao.baidu.com/s?id=1697369611488298941&wfr=spider&for=pc>.
China News. The number and intensity of sandstorms in China is the highest in nine years since the beginning of spring this year [EB/OL]. [2021-4-18]. <https://baijiahao.baidu.com/s?id=1697369611488298941&wfr=spider&for=pc>.
- [12] WANG Y Q, ZHANG X Y, DRAXLER R R. TrajStat: GIS-based software that uses various trajectory statistical analysis methods to identify potential sources from long-term air pollution measurement data [J]. *Environmental Modelling & Software*, 2009, 24(8): 938-939.
- [13] 李星, 赵文吉, 熊秋林, 等. 北京采暖季 $PM_{2.5}$ 水溶性无机离子污染特征及其影响因素 [J]. *生态环境学报*, 2018, 27(1): 93-100.
LI X, ZHAO W J, XIONG Q L, et al. The pollution characteristics and influencing factors of $PM_{2.5}$ inorganic water-soluble ions in Beijing during heating season [J]. *Ecology and Environmental Sciences*, 2018, 27(1): 93-100(in Chinese).
- [14] XU L L, DUAN F K, HE K B, et al. Characteristics of the secondary water-soluble ions in a typical autumn haze in Beijing [J]. *Environmental Pollution*, 2017, 227: 296-305.
- [15] JIANG H M, LI Z Q, WANG F T, et al. Water-Soluble Ions in Atmospheric Aerosol Measured in a Semi-Arid and Chemical-Industrialized City, Northwest China [J]. *Atmosphere*, 2021, 12(4): 456.
- [16] 杨阳, 李杏茹, 陈曦, 等. 春季沙尘过程北京市不同粒径大气气溶胶污染特征及来源分析 [J]. *环境科学*, 2018, 39(12): 5315-5322.
YANG Y, LI X R, CHEN X, et al. Analysis of different particle sizes, pollution characteristics, and sources of atmospheric aerosols during the spring dust period in Beijing [J]. *Environmental Science*, 2018, 39(12): 5315-5322(in Chinese).
- [17] 唐喜斌. 秸秆燃烧对灰霾天气的影响分析及其排放因子与颗粒物成分谱 [D]. 上海: 华东理工大学, 2014.
TANG X B. Biomass burning impacts on the haze weather and its emission factors and PM chemical composition [D]. Shanghai: East China University of Science and Technology, 2014(in Chinese).
- [18] ZHAO S, LIU S L, HOU X Y, et al. Temporal dynamics of SO_2 and NO_x pollution and contributions of driving forces in urban areas in China [J]. *Environmental Pollution*, 2018, 242(Pt A): 239-248.

- [19] KUNIYAL J C, SHARMA M, CHAND K, et al. Water soluble ionic components in particulate matter (PM₁₀) during high pollution episode days at mohal and kothi in the north-western Himalaya, India [J]. *Aerosol and Air Quality Research*, 2015, 15(2): 529-543.
- [20] HONG Y, LI C, LI X, et al. Analysis of compositional variation and source characteristics of water-soluble ions in PM_{2.5} during several winter-haze pollution episodes in Shenyang, China [J]. *Atmosphere*, 2018, 9(7): 280.
- [21] SHEN Z X, CAO J J, ARIMOTO R, et al. Ionic composition of TSP and PM_{2.5} during dust storms and air pollution episodes at Xi'an, China [J]. *Atmospheric Environment*, 2009, 43(18): 2911-2918.
- [22] 肖红伟, 肖化云, 王燕丽. 贵阳大气降水化学特征及来源分析 [J]. *中国环境科学*, 2010, 30(12): 1590-1596.
XIAO H W, XIAO H Y, WANG Y L. Chemical characteristics and source apportionment of precipitation in Guiyang [J]. *China Environmental Science*, 2010, 30(12): 1590-1596 (in Chinese).
- [23] SIMONEIT B R T, SCHAUER J J, NOLTE C G, et al. Levoglucosan, a tracer for cellulose in biomass burning and atmospheric particles [J]. *Atmospheric Environment*, 1999, 33(2): 173-182.
- [24] HSU S C, LIU S C, HUANG Y T, et al. Long-range southeastward transport of Asian biomass pollution: Signature detected by aerosol potassium in Northern Taiwan [J]. *Journal of Geophysical Research Atmospheres*, 2009, 114(D14): D14301.
- [25] RYU S Y, KWON B G, KIM Y J, et al. Characteristics of biomass burning aerosol and its impact on regional air quality in the summer of 2003 at Gwangju, Korea [J]. *Atmospheric Research*, 2007, 84: 362-373.
- [26] 刘小真, 任羽峰, 刘忠马, 等. 南昌市大气颗粒物污染特征及PM_{2.5}来源解析 [J]. *环境科学研究*, 2019, 32(9): 1546-1555.
LIU X Z, REN Y F, LIU Z M, et al. Pollution characteristics of atmospheric particles and source apportionment of PM_{2.5} in Nanchang City [J]. *Research of Environmental Sciences*, 2019, 32(9): 1546-1555 (in Chinese).
- [27] 肖浩, 肖化云, 吴攀, 等. 贵阳秋季PM_{2.5}水溶性离子组成特征及来源解析 [J]. *环境化学*, 2019, 38(3): 548-555.
XIAO H, XIAO H Y, WU P, et al. Composition and source analysis of water-soluble ions in PM_{2.5} during autumn in Guiyang [J]. *Environmental Chemistry*, 2019, 38(3): 548-555 (in Chinese).
- [28] ZHAO P S, DONG F, HE D, et al. Characteristics of concentrations and chemical compositions for PM_{2.5} in the region of Beijing, Tianjin, and Hebei, China [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2013, 13(9): 4631-4644.
- [29] 刘志明. 兰州市PM_{2.5}污染特征及其来源解析 [D]. 兰州: 兰州大学, 2016.
LIU Z M. Pollution characteristics and source apportionment of PM_{2.5} in Lanzhou [D]. Lanzhou University, 2016 (in Chinese).
- [30] 涂丹雅, 谢海燕, 董亚明. 和田市沙尘与非沙尘天PM_{2.5}和PM₁₀中水溶性离子特征分析 [J]. *广东化工*, 2021, 48(18): 122-123, 155.
TU D Y, XIE H Y, DONG Y M. Characteristics of water soluble ions in PM_{2.5} and PM₁₀ in dust and non dust days in Hotan City [J]. *Guangdong Chemical Industry*, 2021, 48(18): 122-123, 155 (in Chinese).
- [31] 孙珍全, 邵龙义, 李慧. 沙尘期间大气颗粒PM₁₀与PM_{2.5}化学组分的浓度变化及来源研究 [J]. *中国粉体技术*, 2010, 16(1): 35-40.
SUN Z Q, SHAO L Y, LI H. Concentration variation of airborne particles PM₁₀ and PM_{2.5} chemical composition and their sources during dust events [J]. *China Powder Science and Technology*, 2010, 16(1): 35-40 (in Chinese).
- [32] LUO L, YAO X H, GAO H W, et al. Nitrogen speciation in various types of aerosols in spring over the northwestern Pacific Ocean [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2016, 16(1): 325-341.
- [33] 黄世鸿, 李如祥, 沈恒华, 等. 常州市大气气溶胶颗粒来源解析 [J]. *气象科学*, 1995, 15(2): 92-100.
HUANG S H, LI R X, SHEN H H, et al. Sources of aerosol particles in Changzhou City [J]. *Scientia Meteorologica Sinica*, 1995, 15(2): 92-100 (in Chinese).
- [34] 黄辉军, 刘红年, 蒋维楣, 等. 南京市PM_{2.5}物理化学特性及来源解析 [J]. *气候与环境研究*, 2006, 11(6): 713-722.
HUANG H J, LIU H N, JIANG W M, et al. Physical and chemical characteristics and source apportionment of PM_{2.5} in Nanjing [J]. *Climatic and Environmental Research*, 2006, 11(6): 713-722 (in Chinese).
- [35] 余南娇, 黄渤, 李梅, 等. 大气细颗粒物扬尘源单颗粒质谱特征 [J]. *中国环境科学*, 2017, 37(4): 1262-1268.
YU N J, HUANG B, LI M, et al. Single particle characteristics of fine particulate matter in dust [J]. *China Environmental Science*, 2017, 37(4): 1262-1268 (in Chinese).
- [36] TAYLOR S R, MCLENNAN S M. The geochemical evolution of the continental crust [J]. *Reviews of Geophysics*, 1995, 33(2): 241.
- [37] KOCAK M, KUBILAY N, MIHALOPOULOS N. Ionic composition of lower tropospheric aerosols at a Northeastern Mediterranean site: Implications regarding sources and long-range transport [J]. *Atmospheric Environment*, 2004, 38(14): 2067-2077.
- [38] KULKARNI P, BARON P A, WILLEKE K. *Aerosol Measurement* [M]. Hoboken, NJ, USA: John Wiley & Sons, Inc, 2011.