

# 泰山顶夏季大气气溶胶中水溶性离子的浓度及其粒径分布研究

徐宏辉<sup>1,2</sup>, 王跃思<sup>1\*</sup>, 杨勇杰<sup>1</sup>, 赵亚南<sup>1</sup>, 温天雪<sup>1</sup>, 吴方堃<sup>1</sup>

(1. 中国科学院大气物理研究所, 北京 100029; 2. 浙江省气象科学研究所, 杭州 310017)

**摘要:**为研究我国华北地区大气污染区域传输过程, 2006-06 在泰山日观峰上的泰山气象站, 利用 Andersen 分级采样器同步进行了大气气溶胶采样, 样品用离子色谱(IC)进行了分析。结果表明,  $\text{SO}_4^{2-}$ 、 $\text{NH}_4^+$ 、 $\text{K}^+$  的浓度在  $0.43 \sim 0.65 \mu\text{m}$  出现峰值;  $\text{Ca}^{2+}$ 、 $\text{Mg}^{2+}$  的浓度在  $4.7 \sim 5.8 \mu\text{m}$  出现峰值;  $\text{NO}_3^-$ 、 $\text{Na}^+$ 、 $\text{Cl}^-$  的浓度在  $0.43 \sim 0.65 \mu\text{m}$  和  $4.7 \sim 5.8 \mu\text{m}$  出现峰值。观测期间, 高浓度的硫酸盐的质量中位直径在  $0.5 \sim 0.8 \mu\text{m}$ , 属于“液滴模态”。二次离子( $\text{SO}_4^{2-}$ 、 $\text{NH}_4^+$ 、 $\text{NO}_3^-$ )和  $\text{K}^+$  浓度变化很剧烈, 其它离子浓度变化不大。其中  $\text{SO}_4^{2-}$  的变化幅度最大, 最低浓度为  $4.0 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ , 最高浓度达到  $42.3 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ 。来自泰山南方潮湿的气团是形成二次离子高值的原因。

**关键词:**气溶胶; 离子; 粒径分布

中图分类号: X513 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2008)02-0305-05

## Concentrations and Size Distributions of Water Soluble Ions of Atmospheric Aerosol at the Summit of Mount Tai

XU Hong-hui<sup>1,2</sup>, WANG Yue-si<sup>1</sup>, YANG Yong-jie<sup>1</sup>, ZHAO Ya-nan<sup>1</sup>, WEN Tian-xue<sup>1</sup>, WU Fang-kun<sup>1</sup>

(1. Institute of Atmospheric Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100029, China; 2. Zhejiang Institute of Meteorological Sciences, Hangzhou 310017, China)

**Abstract:** In order to research on the air pollutants' long-range transportation in North China, aerosol samples were collected with Andersen cascade sampler at the summit of mount Tai during June 2006, in Shandong Province. The water soluble ionic concentrations were analyzed by IC. It shows that there are three types of size distribution: ① ions whose mass resided mainly within the accumulation mode with the peak at  $0.43 \sim 0.65 \mu\text{m}$  ( $\text{SO}_4^{2-}$ ,  $\text{NH}_4^+$ ,  $\text{K}^+$ ); ② Ions whose mass resided mainly within coarse particles with the peak at  $4.7 \sim 5.8 \mu\text{m}$  ( $\text{Ca}^{2+}$ ,  $\text{Mg}^{2+}$ ); ③ Ions which were two modes with the peak at  $0.43 \sim 0.65 \mu\text{m}$  and  $4.7 \sim 5.8 \mu\text{m}$  ( $\text{NO}_3^-$ ,  $\text{NO}_3^-$ ,  $\text{Cl}^-$ ). The mass median diameter of  $\text{SO}_4^{2-}$  with high concentration is between  $0.5 \mu\text{m}$  and  $0.8 \mu\text{m}$ , and belongs to the "drop mode". The concentration of ions such as  $\text{SO}_4^{2-}$ ,  $\text{NO}_3^-$ ,  $\text{NH}_4^+$  and  $\text{K}^+$  has a huge variety and the sulfate has the most great variety with the lowest concentration which is  $4.0 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$  and the highest concentration which is  $42.3 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ . The ions ( $\text{SO}_4^{2-}$ ,  $\text{NO}_3^-$ ,  $\text{NH}_4^+$ ) reach the high value when the humid air mass comes from the south.

**Key words:** aerosol; ions; size distribution

大气气溶胶的粒径范围从几个 nm 到  $100 \mu\text{m}$ , 通常把空气动力学直径  $2.5 \mu\text{m}$  作为粗、细粒子的分界。细粒子在大气中停留时间长, 因此有可能通过长距离传输影响区域大气质量。而且, 气溶胶中不同组分可以直接或间接影响区域和全球的气候变化<sup>[1~3]</sup>。水溶性无机离子是气溶胶的重要组成部分<sup>[4~10]</sup>。水溶性离子直接影响大气降水的酸度<sup>[11~14]</sup>, 此外, 因其吸湿性而影响云凝结核(CCN)的浓度, 从而引起间接的辐射强迫作用<sup>[15]</sup>。

泰山位于山东省中部, 突起于周围丘陵之上, 与地面相对高差达  $1300 \text{ m}$ , 与周围平原、丘陵形成强烈对比, 泰山顶的大气环境受周围地面污染源的影响较小<sup>[16]</sup>。因此在泰山顶采集的样品更有区域代表性, 有利于研究华北平原污染物的输送, 以及污染物

在大气边界层和自由大气的交换过程<sup>[17]</sup>。为了研究华北区域的污染特征, 2006-06 中日科学家合作, 在泰山顶进行了大气气溶胶采样分析。本研究分析了气溶胶中水溶性离子的浓度及其粒径分布特征, 从而探讨了大气气溶胶的来源、形成机制以及输送规律。

### 1 材料与方法

采样点设在泰山日观峰上的泰山气象站, 北纬

收稿日期: 2007-03-31; 修订日期: 2007-07-24

基金项目: 国家杰出青年科学基金项目(40525016); 国家重点基础研究发展规划(973)项目(2007CB407303); 国家高技术研究发展计划(863)项目(2006AA06A301)

作者简介: 徐宏辉(1978~), 男, 博士研究生, 主要研究方向为大气化学, E-mail: forsnow@126.com

\* 通讯联系人, E-mail: wys@dq.cern.ac.cn

36°16',东经117°6',海拔1 536 m.利用气溶胶撞击式分级采样器(Andersen, Series 20-800)采集大气气溶胶粒子,流速为 $28.3 \text{ L} \cdot \text{min}^{-1}$ .粒子的50%切割等效空气学粒径(EAD)为9.0、5.8、4.7、3.3、2.1、1.1、0.65和0.43  $\mu\text{m}$ .采样使用纤维素聚酯膜(美国热电公司),从2006-06-01~2006-06-20,分昼夜采样,白天从08:00~18:00,晚上从当日18:30~次日07:30,每次更换采样膜的时间约为30 min,共获得23组,207个样品,其中2006-06-13晚上由于雷雨天气,没有采样.采样后,膜样品置于冰箱中避光保存至分析.使用ICS-90离子色谱(美国戴安公司)分析了样品中阳离子 $\text{NH}_4^+$ 、 $\text{Ca}^{2+}$ 、 $\text{Na}^+$ 、 $\text{Mg}^{2+}$ 、 $\text{K}^+$ 和阴离子 $\text{SO}_4^{2-}$ 、 $\text{NO}_3^-$ 、 $\text{Cl}^-$ 的含量.阴离子检测用Dionex AS14A分离柱,AMMS III抑制器,淋洗液为 $3.5 \text{ mmol} \cdot \text{L}^{-1}$  $\text{Na}_2\text{CO}_3$ , $1 \text{ mmol} \cdot \text{L}^{-1}$  $\text{NaHCO}_3$ ,流速 $1 \text{ mL} \cdot \text{min}^{-1}$ .阳离子检测用CS12A色谱柱,CSRS II抑制器,淋洗液为 $22 \text{ mmol} \cdot \text{L}^{-1}$ 的MSA,流速为 $1 \text{ mL} \cdot \text{min}^{-1}$ . $\text{NH}_4^+$ 、 $\text{Ca}^{2+}$ 、 $\text{Na}^+$ 、 $\text{Mg}^{2+}$ 、 $\text{K}^+$ 、 $\text{SO}_4^{2-}$ 、 $\text{NO}_3^-$ 、 $\text{Cl}^-$ 的最低检测限分别为:0.002、0.004、0.001、0.001、0.001、0.032、0.021、0.010  $\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$ .

## 2 结果与讨论

### 2.1 水溶性离子的浓度水平

表1 各地大气气溶胶中水溶性离子浓度的平均值/ $\mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$

Table 1 Concentrations of water soluble ions of atmospheric aerosol/ $\mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$

采样地点	采样时间	$\text{SO}_4^{2-}$	$\text{NO}_3^-$	$\text{Cl}^-$	$\text{NH}_4^+$	$\text{Ca}^{2+}$	$\text{Na}^+$	$\text{Mg}^{2+}$	$\text{K}^+$
瓦里关山(TSP) <sup>[20]</sup> ,海拔3 816 m	1994-10, 1995-01	0.20	0.12	0.28	0.29				
龙凤山(TSP) <sup>[20]</sup> ,海拔331 m		0.88	0.69	0.45	0.87				
临安(TSP) <sup>[20]</sup> ,海拔131 m		1.51	0.70	0.66	1.00				
贡嘎山( $\text{PM}_{10}$ ) <sup>[1]</sup> ,海拔3 000 m	2006-06	4.42	0.79	0.23	1.47	0.07	0.13	0.45	0.21
华北地区航测(TSP) <sup>[21]</sup> ,平均高度1 500 m	1994-01	41.46	4.95	5.72	6.49	6.15	2.46	0.81	3.46
上海( $\text{PM}_{2.5}$ ) <sup>[4]</sup>	1999-03~2000-06	15.55	6.65	1.75	6.4	0.45	0.65	0.30	1.95
北京( $\text{PM}_{2.5}$ ) <sup>[4]</sup>		17.65	10.10	1.70	6.35	0.75	0.70	0.35	2.20
北京( $\text{PM}_{10}$ ) <sup>[22]</sup>	2002-06~2002-07	25.03	19.30	2.63	11.6				1.73
泰山顶(TSP),海拔1 536 m	2006-06	18.47	13.07	2.97	8.76	4.42	1.11	0.35	4.28

1)贡嘎山数据的采样点在贡嘎山高山生态系统观测试验站的亚高山观测站( $29^{\circ}35' \text{N}, 102^{\circ}00' \text{E}$ ),使用大流量采样器(ASI/GMW HVPM<sub>10</sub>,美国热电公司),在2006-06-07、2006-06-14、2006-06-21、2006-06-28分别进行24 h连续采样

了泰山顶的观测结果能反映华北的区域污染特征.

### 2.2 水溶性离子的粒径分布

由于Andersen采样器没有 $2.5 \mu\text{m}$ 的切割粒径,本研究把空气动力学直径 $2.1 \mu\text{m}$ 作为粗、细粒子的分界.如图1,泰山顶的观测结果按照各种离子粒径分布的相似性可以分为3类:①在 $0.43 \sim 0.65 \mu\text{m}$ 出现峰值的细模态离子( $\text{SO}_4^{2-}$ 、 $\text{NH}_4^+$ 、 $\text{K}^+$ );②在 $4.7 \sim 5.8 \mu\text{m}$ 出现峰值的粗模态离子( $\text{Ca}^{2+}$ 、 $\text{Mg}^{2+}$ );③

由表1,泰山顶为TSP中水溶性离子的浓度,而贡嘎山、北京、上海为 $\text{PM}_{10}$ 和 $\text{PM}_{2.5}$ 中水溶性离子的浓度.如图1,泰山顶气溶胶中水溶性离子主要分布在 $\text{PM}_{10}$ 中,其中二次离子( $\text{SO}_4^{2-}$ 、 $\text{NH}_4^+$ 、 $\text{NO}_3^-$ )和 $\text{K}^+$ 主要分布在 $\text{PM}_{2.5}$ 中,因此,虽然4个采样点所采集的气溶胶粒径不一样,仍然可以比较,特别是二次离子和 $\text{K}^+$ 的浓度.可以看出泰山顶的水溶性离子浓度远高于大气本底站的浓度,其中泰山顶的二次离子浓度是瓦里关大陆本底站、龙凤山、临安区域本底站的9~109倍,是贡嘎山高山生态站的4~17倍;而与北京、上海等城市的浓度比较接近.可见泰山顶的大气质量受华北区域污染影响很大.泰山顶的水溶性离子浓度与1994-01的华北地区航测数据相比,其中硫酸盐浓度较低,航测数据是泰山顶浓度的2.2倍.从1994~2006,硫酸盐的前体物 $\text{SO}_2$ 的排放并没有减少<sup>[18]</sup>.航测中硫酸盐浓度较高可能因为航测在采暖季进行,而泰山采样在非采暖季,华北地区采暖燃煤排放大量 $\text{SO}_2$ ,转化生成大量硫酸盐,而非采暖季排放的 $\text{SO}_2$ 较少.泰山顶硝酸盐浓度较高,是航测数据的2.6倍,这与华北区域氮氧化物浓度逐年上升的结果相符合<sup>[19]</sup>.泰山顶铵盐和金属离子的浓度和航测数据很接近,而且泰山顶采样点海拔1 536 m,与航测平均高度1 500 m基本一致.这都说明

在 $0.43 \sim 0.65 \mu\text{m}$ 和 $4.7 \sim 5.8 \mu\text{m}$ 出现峰值的双模态离子( $\text{NO}_3^-$ 、 $\text{Na}^+$ 、 $\text{Cl}^-$ ).

平均有87%的硫酸盐、75%的硝酸盐在细粒子中.观测期间,硫酸盐的粒径分布变化较小,质量中位直径在 $0.2 \sim 0.8 \mu\text{m}$ 的粒径范围,可见硫酸盐主要以“凝结模态”和“液滴模态”存在.从图2可以看出,硫酸盐浓度 $< 10 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ ,随着硫酸盐浓度的增大,硫酸盐的质量中位直径有变大的趋势.硫酸盐浓

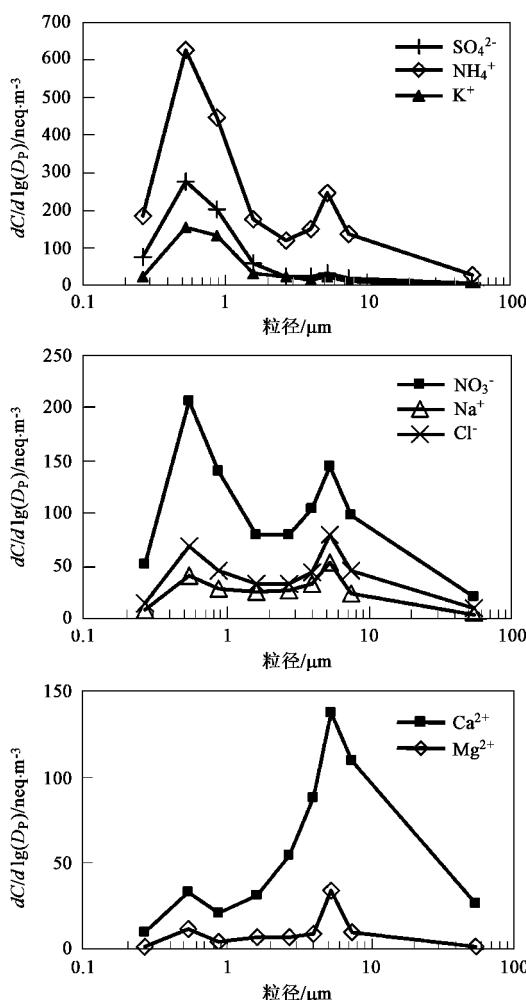


图 1 水溶性离子的粒径分布

Fig. 1 Size distribution of water soluble ions

度达到  $10 \sim 37 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$  之间, 其质量中位直径在  $0.5 \sim 0.8 \mu\text{m}$ , 属于“液滴模态”. 可见, 高浓度时, 硫酸盐主要以液滴模态的形态存在, 这是因为气粒转化产生的硫酸盐与非降水的云滴或者雾滴反应, 在大气中累积, 造成高浓度. 这和北京夏、秋季<sup>[6, 13, 23]</sup>的硫酸盐的粒径分布具有一致性, 进一步说明了华北的区域污染对泰山顶空气质量的影响. 铵盐除了在  $0.43 \sim 0.65 \mu\text{m}$  出现峰值, 在  $4.7 \sim 5.8 \mu\text{m}$  的粒径段也出现 1 个小峰. 而硝酸盐在  $0.43 \sim 0.65 \mu\text{m}$  和  $4.7 \sim 5.8 \mu\text{m}$  的粒径段也出现明显的双峰. 这可能是细模态粒子中的硝酸铵在远距离输送的过程中, 由于光照的作用, 分解生成氨气和硝酸气体, 然后在粗粒子表面被吸附、反应生成硝酸铵. 此外, 钙离子、镁离子的峰值也是出现在  $4.7 \sim 5.8 \mu\text{m}$  的粒径范围. 而这可能是氮氧化物和气态的硝酸与粗粒子的表面发生反应, 形成硝酸钙、硝酸镁.

平均有 83% 钾离子分布在细粒子中, 峰值出现在  $0.43 \sim 1.1 \mu\text{m}$  的粒径段. 6 月份是华北地区农作物收割的时间, 大量麦秸被燃烧, 燃烧产生的钾离子主要分布在  $1 \mu\text{m}$  以下的细粒子中. 这与钾离子主要来自于生物质(麦秸、树叶等)燃烧的结论相符合<sup>[24, 25]</sup>. 钠离子与氯离子有几乎一致的粒径分布, 说明这 2 种离子有比较好的同源性, 可能都来自海盐. 氯离子与钠离子的摩尔比是 1.5. 可见这 2 种离子除了来自海盐, 部分氯离子可能来自于燃煤排放等来源.

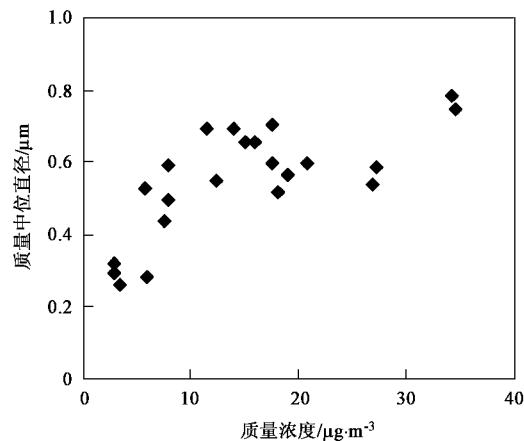


图 2 硫酸盐的质量浓度和质量中位直径分布

Fig. 2 Mass concentration and mass median diameter of  $\text{SO}_4^{2-}$ 

### 2.3 水溶性离子的浓度变化

如图 3, 二次离子和  $\text{K}^+$  钾离子浓度变化很剧烈, 其它离子浓度变化不大. 二次粒子和  $\text{K}^+$  在浓度较高时, 昼夜的浓度差值很大, 以 2006-06-11 为例,  $\text{SO}_4^{2-}$  白天的浓度是晚上的 4 倍. 除  $\text{K}^+$  之外, 所有离子的平均浓度为白天高于晚上, 特别是  $\text{SO}_4^{2-}$ , 白天浓度高出晚上 41%.  $\text{K}^+$  的平均浓度晚上高出白天 44%. 观测期间, 白天和晚上的平均风速分别为  $5.4 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$  和  $8.3 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ , 晚上风速比较大, 有利于污染物的扩散, 这是  $\text{SO}_4^{2-}$  等离子晚上浓度较低的重要原因. 生物质燃烧排放的气溶胶含有较高浓度的  $\text{K}^+$ <sup>[22~24]</sup>,  $\text{K}^+$  的浓度受近距离生物质燃烧源的影响很大.  $\text{K}^+$  晚上浓度较高可能与华北地区生物质燃烧的时间和输送有关.

$\text{SO}_4^{2-}$  的变化幅度最大, 最低浓度为  $4.0 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ , 最高浓度达到  $42.3 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ . 从图 3 可以看出, 06-01 ~ 06-07, 是一个  $\text{SO}_4^{2-}$  浓度逐渐增大的过程. 06-08 ~ 06-10,  $\text{SO}_4^{2-}$  浓度从最高值  $42.3 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$  下降到平均  $9.9 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ . 在这 2 个过程, 风向和湿度有明显的区别. 06-01 ~ 06-07, 持续南风, 平均风速

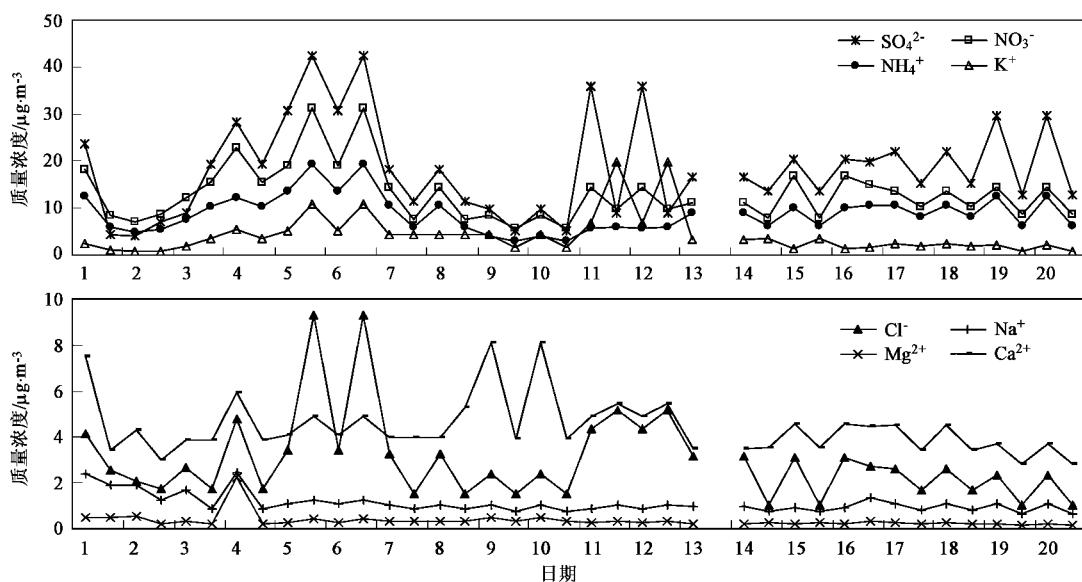
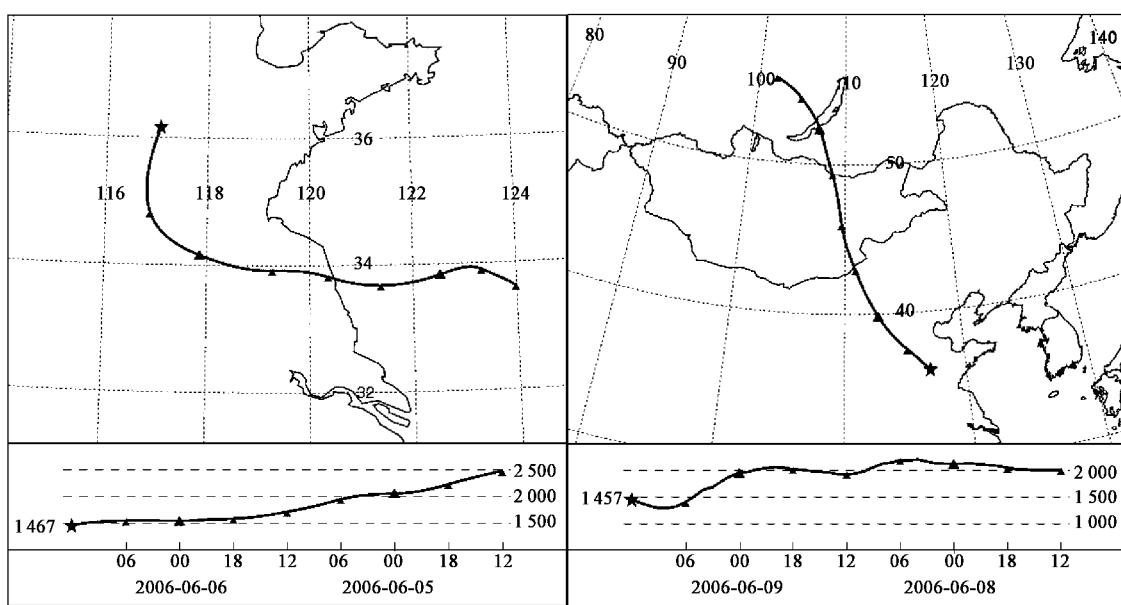


图 3 2006-06 离子浓度的变化

Fig. 3 Concentrations of ions in June, 2006

$5.0 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ , 平均相对湿度 69%。06-08 ~ 06-10, 北风为主, 平均风速  $7.3 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ , 平均相对湿度 45%。利用气团的后向轨迹模型可以帮助找到影响当地气团的来源。使用 HYSPLIT 4 模型得到 06-01 ~ 06-20 的后向轨迹图。气象数据选用 FNL 数据库中的相关资料, 每隔 12 h 计算 1 次轨迹, 每次的后向延伸时间为 24 h, 起始高度为 1 500 m。综合分析所有的后向轨迹图, 主要可以分为 2 类气团: 来自于泰山南部,

包括安徽、江苏和山东南部的气团和来自于泰山北部, 包括京、津环渤海地区、河北、内蒙古和山东北部的气团。典型的后向轨迹如图 4。从图 3 可以看出, 06-05 ~ 06-06、06-11 ~ 06-12 和 06-19 ~ 06-20  $\text{SO}_4^{2-}$  浓度达到高值, 这 3 个时间段观测点主要受到泰山南方气团的影响。由此可以推测, 来自南方的气团含有较多的  $\text{SO}_4^{2-}$ , 气团比较湿润, 容易形成高浓度的“液滴模态”的  $\text{SO}_4^{2-}$ 。此外, 泰安市在泰山南部, 与泰山



2006-06-06 T 12:00 到达泰山的48h后向轨迹

2006-06-09 T 12:00 到达泰山的48h后向轨迹

图 4 泰山气团的后向轨迹

Fig. 4 Backward trajectories of air mass arrived at Mount Tai

紧临,局地的影响可能较大。06-09~06-10  $\text{SO}_4^{2-}$  浓度较低,这段时间观测点主要受到泰山北方气团的影响,可以看出来自北方的气团含有的  $\text{SO}_4^{2-}$  浓度较低。

$\text{NO}_3^-$ 、 $\text{NH}_4^+$  和  $\text{SO}_4^{2-}$  的浓度变化很类似,说明这3种离子有相似的来源。 $\text{NO}_3^-$ 、 $\text{NH}_4^+$  的变化幅度比  $\text{SO}_4^{2-}$  小,这可能是因为硝酸盐、铵盐比硫酸盐容易分解,不易在环境空气中形成高浓度。 $\text{K}^+$  在06-13之前与二次离子有一致的变化,在06-13之后浓度较低,变化很小,与二次离子的浓度变化完全不同。这可能是因为华北地区生物质燃烧主要集中在6月份上旬,生物质燃烧排放出高浓度的  $\text{K}^+$ ,这些  $\text{K}^+$  受风向、湿度等气象条件的影响,与二次离子的浓度形成比较相似的浓度变化。而06-13之后, $\text{K}^+$  主要来自地壳元素,浓度变化幅度较小。

### 3 结论

(1) 泰山的水溶性离子浓度远高于大气本底站的浓度,观测结果反映了华北的区域污染特征。

(2) 泰山夏季气溶胶中二次离子( $\text{SO}_4^{2-}$ 、 $\text{NH}_4^+$ 、 $\text{NO}_3^-$ )和  $\text{K}^+$  主要分布在细粒子中,  $\text{Ca}^{2+}$ 、 $\text{Mg}^{2+}$  主要分布在粗粒子中。

(3) 泰山夏季高浓度的硫酸盐主要以“液滴模态”存在,主要来源于气粒转化生成的  $\text{SO}_4^{2-}$  与非降水的云滴或者雾滴反应的产物。

(4) 泰山夏季二次离子( $\text{SO}_4^{2-}$ 、 $\text{NH}_4^+$ 、 $\text{NO}_3^-$ )和  $\text{K}^+$  的浓度变化幅度比较大,除了受源汇的影响,风向和湿度是重要的影响因子。

致谢:感谢中国科学院大气物理研究所王自发教授和日本FRCGC的Hajime Akimoto教授对观测项目的组织及泰山气象站工作人员对本研究观测的技术支持。

### 参考文献:

- [1] IPCC(Intergovernmental Panel on Climate Change). Climate Change 2001: The Scientific Basis [M]. London: Cambridge University Press, 2001.
- [2] Shine K P, Forster P M F. The effect of human activity on radiative forcing of climate change: a review of recent developments [J]. Global and Planetary Change, 1999, 20(4): 205-225.
- [3] Myhre G, Myhre A, Stordal F. Historical evolution of radiative forcing of climate [J]. Atmospheric Environment, 2001, 35(13): 2361-2373.
- [4] Yao X H, Chan C K, Fang M, et al. The water-soluble ionic composition of  $\text{PM}_{2.5}$  in Shanghai and Beijing, China [J]. Atmospheric Environment, 2002, 36(26): 4223-4234.
- [5] Takeuchi M, Okochi H, Igawa M. Characteristics of water-soluble components of atmospheric aerosols in Yokohama and Mt. Oyama, Japan from 1990 to 2001 [J]. Atmospheric Environment, 2004, 38(28): 4701-4708.
- [6] 胡敏,赵云良,何凌燕,等.北京冬、夏季颗粒物及其离子成分质量浓度谱分布[J].环境科学,2005,26(4):1-6.
- [7] 王玮,汤大钢,刘红杰,等.中国  $\text{PM}_{2.5}$  污染状况和污染特征的研究[J].环境科学学报,2000,13(1):1-5.
- [8] 温天雪,张士昱,王跃思,等.大气颗粒物中可溶性离子在线分析方法的建立与应用[J].环境化学,2005,24(1):104-105.
- [9] 颜鹏,张养梅,杨东贞,等.2003年夏季临安地区大气气溶胶离子成分的尺度分布特征[J].气象学报,2005,63(6): 980-987.
- [10] 赵鹏,朱彤,梁宝生,等.北京郊区农田夏季大气颗粒物质量和离子成分谱分布特征[J].环境科学,2006,27(2): 193-199.
- [11] Acker K, Mertes S, Möller D, et al. Case study of cloud physical and chemical processes in low clouds at Mt. Brocken [J]. Atmospheric Research, 2002, 64: 41-51.
- [12] Kerminen V M, Hillamo R, Teinilä K, et al. Ion balances of size-resolved tropospheric aerosol samples: implications for the acidity and atmospheric processing of aerosols [J]. Atmospheric Environment, 2001, 35(31): 5255-5265.
- [13] Yao X H, Lau A P S, Fang M, et al. Size distribution and formation of ionic species in atmospheric particulate pollutants in Beijing, China: I—inorganic ions [J]. Atmospheric Environment, 2003, 37: 2991-3000.
- [14] 王艳,葛福玲,刘晓环,等.泰山降水化学及大气传输的研究[J].环境科学学报,2006,26(7): 1187-1194.
- [15] Verma S, Boucher O, Upadhyaya H C, et al. Sulfate aerosols forcing: An estimate using a three-dimensional interactive chemistry scheme[J]. Atmospheric Environment, 2006, 40(40): 7953-7962.
- [16] 殷永泉,单文坡,王韬,等.泰山顶臭氧及其前体物一氧化碳浓度变化规律[J].环境科学,2006,27(1): 9-13.
- [17] Gao J, Wang T, Ding A J, et al. Observational study of ozone and carbon monoxide at the summit of Mount Tai (1 534 m a.s.l.) in the central-eastern China [J]. Atmospheric Environment, 2005, 39: 4779-4791.
- [18] Streets D G, Waldhoff S T. Present and future emissions of air pollutants in China:  $\text{SO}_2$ ,  $\text{NO}_x$  and CO [J]. Atmospheric Environment, 2000, 34: 363-374.
- [19] Andreas R, John P B, Hendrik N, et al. Increase in tropospheric nitrogen dioxide over China observed from space [J]. Nature, 2005, 437: 129-132.
- [20] 杨东贞,于晓岚,房秀梅,等.区域站和基准站气溶胶的分析[J].应用气象学报,1996,7(4):396-405.
- [21] 王玮,汤大钢,刘红杰,等.中国华北地区冬季大气污染物航空测量(II)——空中大气气溶胶污染特征研究[J].环境科学研究,2000,13(1): 10-13.
- [22] Sun Y L, Zhuang G S, Wang Y, et al. The air-borne particulate pollution in Beijing—concentration, composition, distribution and sources [J]. Atmospheric Environment, 2004, 38: 5991-6004.
- [23] 徐宏辉,王跃思,温天雪,等.北京大气气溶胶中水溶性离子的粒径分布和垂直分布[J].环境科学,2007,28(1): 14-19.
- [24] 宋宇,唐孝炎,方晨,等.北京市大气细粒子的来源分析[J].环境科学,2002,23(6): 11-16.
- [25] Wang Y, Zhuang G S, Tang A H, et al. The ion chemistry and the source of  $\text{PM}_{2.5}$  aerosol in Beijing [J]. Atmospheric Environment, 2005, 39: 3771-3784.