

海洋气团对沿海城市大气环境影响与识别研究

石红旗¹, 王霄瞳², 张昊阳², 石博欣³, 张睿²

(1. 自然资源部 第一海洋研究所, 山东 青岛 266061; 2. 山东省青岛第二中学, 山东 青岛 266061; 3. 山东省青岛第三十九中学, 山东 青岛 266106)

摘要: 本研究通过识别海洋气团特征及沿海城市大气受到海洋气团的影响方式与程度, 为评价沿海城市空气环境质量提供科学依据。以青岛市为例, 收集大气气溶胶样品中放射性核素 ^{210}Pb 、 ^{40}K 数据及采集时段当地大气颗粒物数据; 分析 ^{210}Pb 活度浓度与气溶胶颗粒物浓度变化; 对当地当时大气气团进行溯源分析。研究表明: (1)研究期间青岛沿岸地区 2015 年 4 月至 2016 年 6 月与 2016 年 6 月至 2017 年 6 月大气污染特征显著不同, 前者 ^{210}Pb 活度浓度与污染颗粒物浓度显著相关, 而后者 ^{210}Pb 活度浓度与污染颗粒物无相关关系; (2)穿越海洋的陆地气团呈现出高活度浓度、低颗粒物浓度的特征; 来自海洋气团的气溶胶呈现出低活度浓度、低颗粒物浓度的特征; (3)海洋气团气溶胶中 ^{210}Pb 活度浓度较低。临近大陆的海洋(黄海、东海)上层大气受到大陆气团的影响, 其海洋气团的特征有所减弱。 ^{210}Pb 活度浓度、颗粒物浓度(PM2.5)可作为判断海洋气团的指标, 识别“来自海洋的气团”与“经过海洋的气团”。

关键词: 海洋气团; 气溶胶; 铅-210(^{210}Pb); PM10; PM2.5; 后轨迹分析

中图分类号: P441.1 文献标识码: A

文章编号: 1000-3096(2018)12-0100-09

DOI: 10.11759/hyxx20181011001

城市空气环境质量日益受到人们的重视。青岛是位于黄海之滨的沿海城市, 由于地理位置的临海特点, 其大气环境受到本地气团、内陆气团、海洋气团的影响。气团的来源及混合程度明显影响到沿海城市大气环境质量^[1-2]。大气气溶胶中的 ^{210}Pb 主要来源于 ^{222}Rn 的衰变。 ^{222}Rn 主要源于地壳中镭-226(^{226}Ra)的衰变, ^{222}Rn 可从土壤和水体中释放出来。铅-210(^{210}Pb)是陆地气团的理想示踪剂, 陆地气团中的 ^{210}Pb 活度浓度较高, ^{210}Pb 主要附着在亚微米颗粒物上^[3]。陆地气团中的 ^{222}Rn 活度浓度比海洋气团高, 海洋水体对 ^{222}Rn 的释放起迟滞作用。近海海洋大气受到陆地气团的影响, 大气中 ^{210}Pb 活度浓度分布不均匀。

^{210}Pb 对人体的剂量贡献主要来源于子体钋-210(^{210}Po)的 α 射线。 ^{210}Pb 可以通过空气、水、食物进入人体。 ^{210}Pb 主要分布于骨骼中, 铅在骨骼中生物滞留时间长, 不容易排出体外。通过气溶胶吸入的放射性核素造成的辐射剂量占人体总剂量的 70%以上^[4]。气溶胶中放射性核素 ^{210}Pb 对人体的剂量贡献不可忽视。由此, ^{210}Pb 既是大气气团的示踪剂, 也是大气污染的重要因素, 基于 ^{210}Pb 产生与存在方式的特殊性, 选择气溶胶中 ^{210}Pb 与常规大气颗粒物指标对比分析有其特别意义。

本文以青岛沿岸大气气溶胶为研究对象, 监测大气气溶胶样品中放射性核素 ^{210}Pb 和 ^{40}K 活度浓度, 收集样品采集时段当地大气颗粒物数据(PM2.5、PM10), 并同时收集西北太平洋大气气溶胶放射性核素 ^{210}Pb 、 ^{40}K 活度浓度数据用作参照对采集期采集地大气气团进行后轨迹分析。分析识别海洋气团特征、海洋气团的来源、与陆地气团的混合过程及其影响。

1 数据来源与数据分析

1.1 大气气溶胶中 ^{210}Pb 、 ^{40}K 取样与检测

青岛沿岸气溶胶样品来自 2015 年 4 至 2017 年 6 月青岛崂山登瀛(36.12°N, 120.58°E), 西太平洋气溶胶采自西太平洋海域(采样参数见表 1)。采用大流量大气气溶胶采样器(EC-1000, 青岛崂山电子仪器总

收稿日期: 2018-02-08; 修回日期: 2018-04-19

基金项目: 海洋公益性行业科研专项(201505005-2); 中央级公益性科研院所基本科研业务费专项资金资助项目(2012T06)

[Foundation: Marine Research Special Funds for Public Welfare Projects, No.201505005-2; Basic Scientific Fund for National Public Research Institute of China, No.2012T206]

作者简介: 石红旗(1970-), 男, 博士, 高级工程师, 研究方向: 海洋环境监测, E-mail: shihongqi@fio.org.cn, 电话: 13176886592; 王霄瞳(2001-), 通信作者, 男, E-mail: wbxl2001@163.com

厂), Whatman 玻璃纤维滤膜(GF)和醋酸纤维滤膜(CF)采集气溶胶样品, 采样滤膜置于采样器中连续采样 2 200 m³, 并记录样品采集参数。

采用高纯锗(HPGe) γ 谱仪(GCW6023 堪培拉公

司)检测气溶胶中 ²¹⁰Pb、⁴⁰K 活度浓度。将吸附了气溶胶颗粒的滤膜, 剪成宽 2.5 cm, 长 20.0 cm 的细条, 卷成筒状, 置于塑料管中, 制成待测样。试样置于高纯锗 γ 谱仪井型探测器中部的井内, 测量试样 γ 能谱。

表 1 西太平洋大气气溶胶采样参数

Tab. 1 Sampling parameters of atmospheric aerosols in the Western Pacific

编号	放取膜时间	位置
18-20171002A006	放膜: 20171002, 18:15	22.94°N, 137.72°E
	取膜: 20171004, 07:00	26.81°N, 137.50°E
18-20171004A007	放膜: 20171004, 07:09	26.81°N, 137.50°E
	取膜: 20171005, 07:15	29.50°N, 136.00°E

样品分析参照国家标准《高纯锗 γ 能谱分析通用方法》(GB 11713-2015)^[5]。测量系统能量、效率刻度参照张京等^[6]所采用的方法。标准源由中国原子能研究院生产, 核素为 ¹³⁷Cs、²⁴¹Am、¹⁵²Eu、⁶⁰Co、⁴⁰K, 参考标准源为 ²¹⁰Pb 平衡溶液(环保部辐射环境监测中心)。剪取采样所用的滤材作为效率刻度源的基础材料, 使用参考标准源溶液制备效率刻度标准。通过样品 γ 能谱中核素特征峰的净计数, 对应的探测效率、采样体积、计算因子等计算大气气溶胶中 ²¹⁰Pb、⁴⁰K 的活度浓度。本研究中 ²¹⁰Pb 活度浓度已经校正到采样时刻。

1.2 大气气溶胶中颗粒物浓度数据

收集采样期间青岛市沿岸地区空气颗粒物浓度数据。山东省环保厅网站: <http://www.sdein.gov.cn>; 山东省城市环境空气质量信息发布网站: <http://58.56.98.78:8801/AirDeploy.Web/AirQuality/MapMain.aspx>;

天气后报网站: <http://www.tianqihoubao.com>。获取采样临近区域空气颗粒物浓度数据(PM2.5、PM10 数据计算邻近站位 2 d 的算术平均值)。

1.3 气团后轨迹分析程序来源与计算

采用美国国家海洋和大气管理局(NOAA)的轨迹模式 HYSPLIT 模型^[7-8][HYbrid Single Particle Lagrangian Integrated Trajectory (HYSPLIT) model], 使用 READY 系统(Real-time Environmental Applications and Display System), (<http://ready.arl.noaa.gov/HYSPLIT.php>), 气象数据选择 GDAS(0.5 度, 全球, 200709-)。设定 HYSPLIT 模式每次的后向延伸时间为 72 h, 设定起始高度为 10 m, 每 6 h 开始新的后轨迹, 最多 3 条轨迹合成。后轨迹分析起始位置 36.12°N, 120.58°E 为气溶胶采样点的位置。模拟的起始时刻采用世界时间(UTC)。气团来源后轨迹分析时间与相应时段的气溶胶特征见表 2。

表 2 气团来源后轨迹分析数据

Tab. 2 Trajectory analysis data of the air mass source

编号	取样时段	后轨迹分析起始时间(UTC)	气溶胶特征		
			²¹⁰ Pb/(mBq/m ³)	PM2.5/(μ g/m ³)	PM10/(μ g/m ³)
1	20151222~23	20151223 2:00	1.431(高)	174.5(高)	233.0(高)
2	20160114~15	20160115 3:00	1.609(高)	171.0(高)	235.0(高)
3	20160421~22	20160421 2:00	0.765(中)	103.0(高)	179.3(高)
4	20160711~12	20160712 3:00	0.790(中)	14.0(低)	27.5(低)
5	20160809~10	20160809 2:00	0.239(低)	10.0(低)	37.5(低)
6	20160909~10	20160909 14:00	0.915(中)	42.3(低)	70.5(中)
7	20161011~13	20161013 6:00	1.216(高)	30.0(低)	64.5(中)
8	20161102~03	20161103 13:00	1.005(高)	60.3(中)	106.8(高)
9	20161211~12	201611212 4:00	1.262(高)	17.5(低)	32.3(低)
10	20170105~06	20170105 3:00	0.679(中)	65.0(中)	118.5(高)
11	20170205~06	20170206 2:00	0.704(中)	34.3(低)	56.5(中)
12	20170601~02	20170601-2:00	0.153(低)	14.5(低)	35.5(中)

注: ²¹⁰Pb 活度浓度(mBq/m³)高中低分级依据: 高(大于 1.0), 中(1.0~0.5), 低(小于 0.5); PM2.5、PM10(μ g/m³)分级依据: 高(大于 100), 中(100~50), 低(小于 50)

2 结果与讨论

2.1 结果

2.1.1 气溶胶中 ^{210}Pb 、 ^{40}K 活度浓度

2015年4月至2017年6月青岛近岸大气气溶胶,按照1.1方法取样和检测的 ^{210}Pb 、 ^{40}K 活度浓度结果见表3。

2.1.2 气溶胶中 $\text{PM}_{2.5}$ 、 PM_{10} 颗粒物浓度

2015年4月至2017年6月与气溶胶取样时间一致,地点接近的青岛大气颗粒物浓度数据按照1.2方法收集,结果见表4。

2.1.3 西北太平洋海洋大气气溶胶中放射性核素 ^{210}Pb 、 ^{40}K

按照1.1方法采集海洋大气气溶胶样品,检测气

溶胶中 ^{210}Pb 、 ^{40}K 活度浓度测定结果见表5。

2.1.4 青岛海岸区域大气气团来源后轨迹分析

2.1.4.1 气溶胶特征(高 ^{210}Pb ,高 $\text{PM}_{2.5}$)对应的气团后轨迹图

对表2中编号1、编号2时段(高 ^{210}Pb ,高 $\text{PM}_{2.5}$)绘制气团后轨迹图,气溶胶样品对应的气团前72h路径见图1。编号1时段(图1a)为2015年12月(冬季),气团3天前(72h)来自西部内陆的中低空(高度500~1000m),经过渤海、黄海,进入采样点。编号2(图1b)时段为2016年1月(冬季),气团3天前(72h)来自西部内陆的低空(高度500m),直接进入采样点。

2.1.4.2 气溶胶特征(高 ^{210}Pb ,低 $\text{PM}_{2.5}$)对应的气团后轨迹图

对表2中编号7、编号9时段(高 ^{210}Pb ,低 $\text{PM}_{2.5}$)

表3 气溶胶中 ^{210}Pb 、 ^{40}K 活度浓度

Tab. 3 ^{210}Pb and ^{40}K activities and concentrations in aerosols

取样日期	膜材料	测量日期	测量时间/s	$^{210}\text{Pb}/(\text{mBq}/\text{m}^3)$	$^{40}\text{K}/(\text{mBq}/\text{m}^3)$
20150408~09	G	20160602	42 047	0.465	-
20150513~14	G	20160603	81 713	0.627	-
20150609~10	G	20160526	85 373	0.294	-
20150702~03	G	20160525	85 804	0.615	-
20150803~04	G	20160611	256 745	0.462	-
20150901~02	G	20160531	86 737	0.612	-
20151007~08	G	20160530	164 953	0.058	-
20151102~03	C	20160524	86 861	0.091	0.064
20151222~23	C	20160527	85 971	1.431	0.168
20160114~15	C	20160506	228 596	1.609	0.229
20160202~04	C	20160509	88 644	1.252	0.137
20160307~08	C	20160510	88 118	0.879	0.154
20160421~22	G	20160606	84 900	0.765	-
20160516~17	G	20160607	91 858	0.354	-
20160601~02	C	20160605	80 552	0.433	0.146
20160711~12	G	20160912	73 888	0.790	-
20160809~10	C	20160913	107 168	0.239	0.127
20160909~10	G	20160914	105 977	0.915	-
20161011~13	C	20161214	78 920	1.216	0.123
20161102~03	G	20161215	84 210	1.005	-
20161211~12	C	20161216	94 913	1.262	0.155
20170105~06	C	20170317	80 000	0.679	0.238
20170205~06	C	20170316	84 476	0.704	0.145
20170301~02	C	20170315	84 058	0.485	0.068
20170405~06	C	20170705	80 000	0.191	0.107
20170502~03	C	20170706	80 000	0.264	0.102
20170601~02	C	20170707	80 000	0.153	0.108

注: G 为玻璃纤维膜; C 为醋酸纤维膜

表 4 气溶胶中颗粒物浓度

Tab. 4 Collected particulate data of aerosols

取样日期	PM2.5/($\mu\text{g}/\text{m}^3$)	PM10/($\mu\text{g}/\text{m}^3$)
20150408~09	24.0	53.0
20150513~14	50.0	170.0
20150609~10	21.0	43.5
20150702~03	59.5	115.0
20150803~04	43.0	91.0
20150901~02	22.7	52.0
20151007~08	25.5	65.0
20151102~03	70.0	116.5
20151222~23	174.0	233.0
20160114~15	171.0	235.0
20160202~04	106.7	157.3
20160307~08	43.5	133.5
20160421~22	103.0	179.3
20160516~17	42.3	76.5
20160601~02	25.0	50.0
20160711~12	14.0	27.5
20160809~10	10.0	37.5
20160909~10	42.3	70.5
20161011~13	30.0	64.5
20161102~03	60.3	106.8
20161211~12	17.5	32.3
20170105~06	65.0	118.5
20170205~06	34.3	56.5
20170301~02	44.5	86.0
20170405~06	32.0	56.5
20170502~03	26.0	51.8
20170601~02	14.5	35.5

绘制气团后轨迹图, 见图 2。编号 7 时段(图 2a)为 2016 年 10 月(秋季), 气团 3 天前(72 h)来自西北部内陆的中高空(高度 2 500 m), 长距离经过黄海, 进入

采样点。编号 9(图 2b)时段为 2016 年 12 月(冬季), 气团 3 天前(72 h)来自东北内陆的中低空(高度 500~1 500 m), 经过黄海进入采样点。

2.3.2.5 气溶胶特征(低 ^{210}Pb , 低 PM2.5)对应的气团后轨迹图

对表 2 中编号 5、编号 12 时段(低 ^{210}Pb , 低 PM2.5)绘制气团后轨迹图, 见图 3。编号 5 时段(图 3a)为 2016 年 8 月(夏季), 气团 3 天前(72 h)来自黄海中低空(500~1 000 m), 长距离进入采样点。编号 12(图 3b)时段为 2017 年 6 月(春季), 气团由 3 支不同来源分支混合组成, 东支(蓝色)来自太平洋(高度 2 500~3 000 m), 南支(红色)来自东海和黄海(高度 1 000~1 500 m), 西支(绿色)来自内陆(高度 1 500~2 000 m)。

2.2 讨论

2.2.1 气溶胶中 ^{210}Pb 、PM2.5、PM10 随时间变化

^{210}Pb 活度浓度与 PM2.5、PM10 数据按取样时间月份作图, 见图 4a~c。

从图 4 可见, 2015 年冬春季(12 月至 2 月)、2016 年的秋冬季(10~12 月), ^{210}Pb 活度浓度明显处于高值。其他月份呈不规则波动。随季节性变化的海洋气团影响降低了大气中 ^{210}Pb 活度浓度。对比图 4a, b, c 可以看出, 在 2016 年 7 月, 2016 年 10 月, 2016 年 12 月监测时段出现了高 ^{210}Pb , 低 PM2.5、PM10 现象, 可能是海洋气团的入侵引起的。高 ^{210}Pb 活度浓度, 对应低 PM2.5 颗粒物浓度, 与颗粒物浓度不相关, 说明另有原因。从监测结果来看, PM2.5, PM10 不能完全反映空气污染状况, 从 ^{210}Pb 活度浓度变化来看, 虽然 PM2.5、PM10 较低, 很可能超细颗粒物并没有降低。

表 5 海洋大气气溶胶中放射性核素 ^{210}Pb 、 ^{40}K 活度浓度测定结果

Tab. 5 ^{210}Pb and ^{40}K activities and concentrations in marine atmospheric aerosols

编号	采样日期	测量日期	测量时间/s	$^{210}\text{Pb}/(\text{mBq}/\text{m}^3)$	$^{40}\text{K}/(\text{mBq}/\text{m}^3)$
A006	2017.10.02~04	2017.10.28	81 446	0.131 \pm 0.030	0.199 \pm 0.011
A007	2017.10.04~05	2017.10.30	85 675	0.328 \pm 0.028	0.061 \pm 0.004

2.2.2 大气气溶胶中 ^{210}Pb 和 PM2.5、PM10 浓度变化关系

^{210}Pb 活度浓度和 PM2.5 颗粒物浓度关系(图 5)表明, 2015 年 4 月至 2016 年 6 月 ^{210}Pb 活度浓度与颗粒物浓度(PM2.5)呈现显著的正相关关系($R^2=0.705$), 2016 年 6 月至 2017 年 6 月 ^{210}Pb 活度浓度与颗粒物浓度(PM2.5)

没有相关关系($R^2=0.069$)。 ^{210}Pb 活度浓度和 PM10 颗粒物浓度关系(图 6)表明, 2015 年 4 月至 2016 年 6 月 ^{210}Pb 活度浓度与颗粒物浓度(PM10)呈现显著的正相关关系($R^2=0.667$), 2016 年 6 月至 2017 年 6 月 ^{210}Pb 活度浓度与颗粒物浓度(PM10)没有相关关系($R^2=0.040$)。 2015~2016 年与 2016~2017 年度间颗粒物性质(形态、组成)、

来源差异较大,原因很可能在超细颗粒物含量差异上。细颗粒物主要源于燃烧排放,大颗粒物来源于土壤再悬浮。2016年冬季监测期气溶胶颗粒物浓度减少,

并没有反映在 ^{210}Pb 活度浓度上,说明亚微米颗粒物减少不明显。 ^{210}Pb 可以反映亚微米颗粒物变化,但不足以示踪气团具有海洋性和大陆性特征。

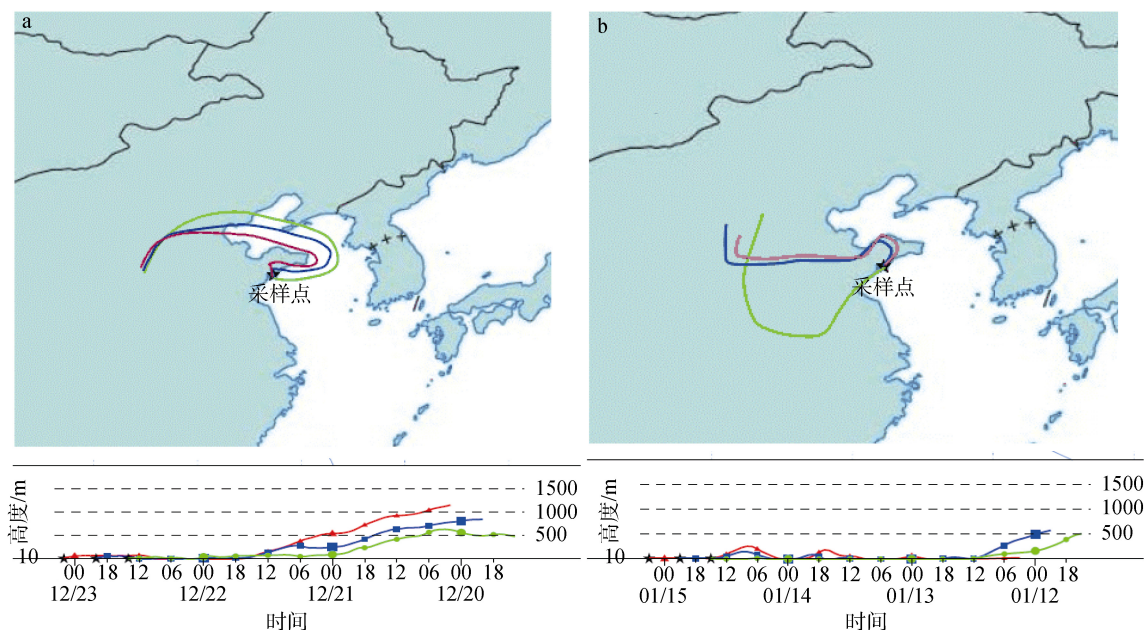


图1 气溶胶特征(高 ^{210}Pb , 高 $\text{PM}_{2.5}$)对应的气团后轨迹图[审图号 GS(2016)1666 号]
Fig. 1 Aerosol trajectories corresponding to the aerosol characteristics (high ^{210}Pb , high $\text{PM}_{2.5}$)

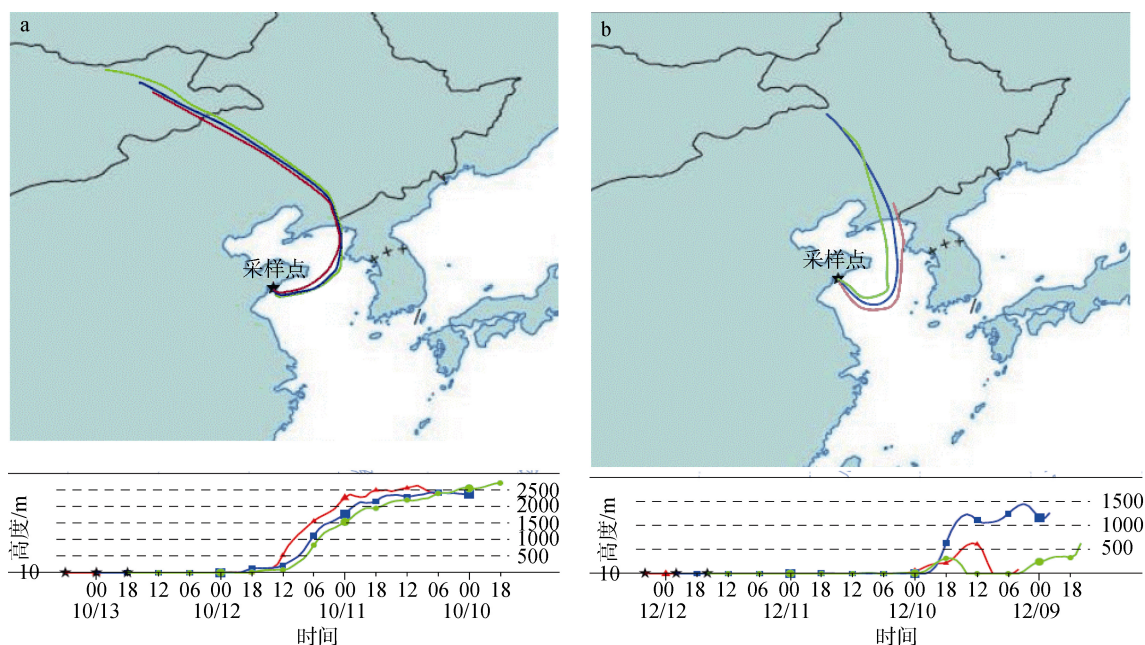


图2 气溶胶特征(高 ^{210}Pb , 低 $\text{PM}_{2.5}$ 和 PM_{10})对应的气团后轨迹图[审图号 GS(2016)1666 号]
Fig. 2 Aerosol mass trajectories corresponding to the aerosol characteristics (high ^{210}Pb , low $\text{PM}_{2.5}$ and PM_{10})

2.2.3 2015年冬季与2016年冬季气溶胶中 ^{40}K 与 ^{210}Pb 变化关系

^{40}K 与 ^{210}Pb 活度浓度变化(图7)表明,2015年冬

季 ^{40}K 与 ^{210}Pb 活度浓度呈现显著的正相关关系($R^2=0.847$)。2016年冬季 ^{40}K - ^{210}Pb 没有相关关系($R^2=0.147$)。陈多宏等^[1]通过研究单颗粒气溶胶理化特征时,将

含钾颗粒物来源分为两类：海盐颗粒(Na-K 颗粒)、富钾颗粒(K-rich 颗粒)。Na-K 颗粒来自于海盐碎末，K-rich 颗粒主要来自于生物质燃烧有关的过程，钾可

作为生物质燃烧的示踪物^[9]。青岛近岸大气气溶胶中⁴⁰K既有生物值燃烧产物的成分，也有海盐颗粒成分。青岛濒临黄海，其气溶胶中的海盐颗粒成分稳定。

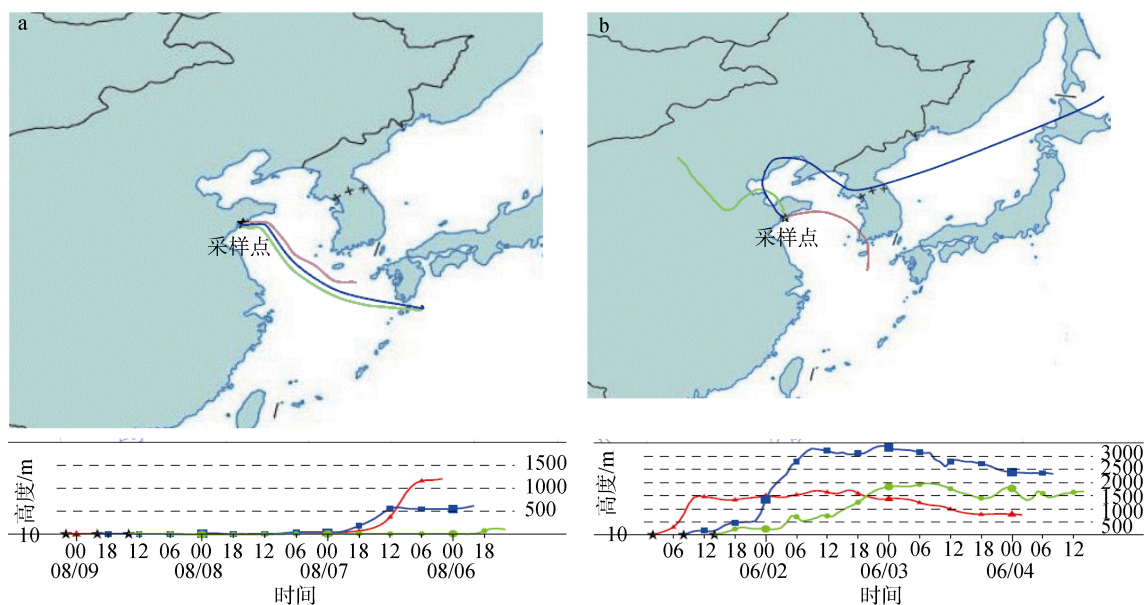


图 3 气溶胶特征(低 ²¹⁰Pb, 低 PM2.5)对应的气团后轨迹图[审图号 GS(2016)1666 号]

Fig. 3 Aerosol mass trajectories corresponding to the aerosol characteristics (low ²¹⁰Pb, low PM2.5 and PM10)

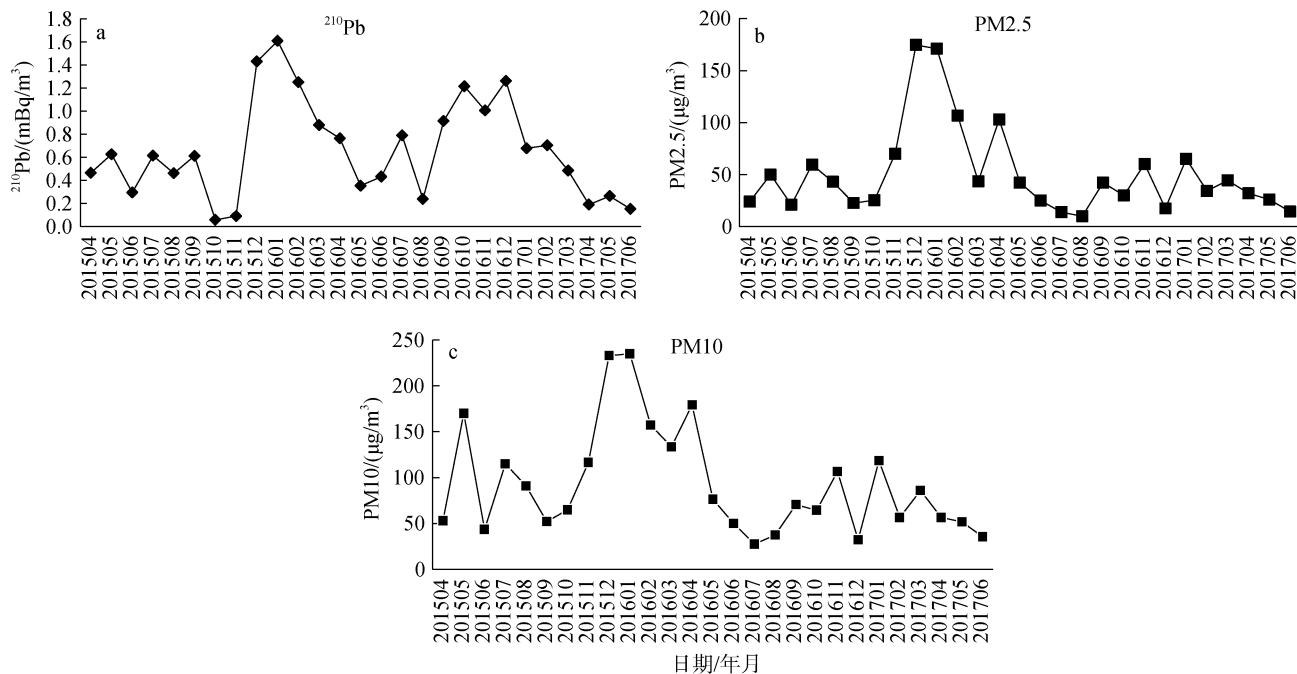


图 4 2015 年 4 月至 2017 年 6 月大气气溶胶中 ²¹⁰Pb 活度浓度、PM2.5、PM10 颗粒物浓度随时间变化

Fig. 4 Changes of ²¹⁰Pb activity and PM2.5 and PM10 concentrations in atmospheric aerosol over time in April 2015~June 2017

注: a: ²¹⁰Pb 活度浓度; b: PM2.5; c: PM10

a: ²¹⁰Pb activity and concentration; b: PM2.5; c: PM10

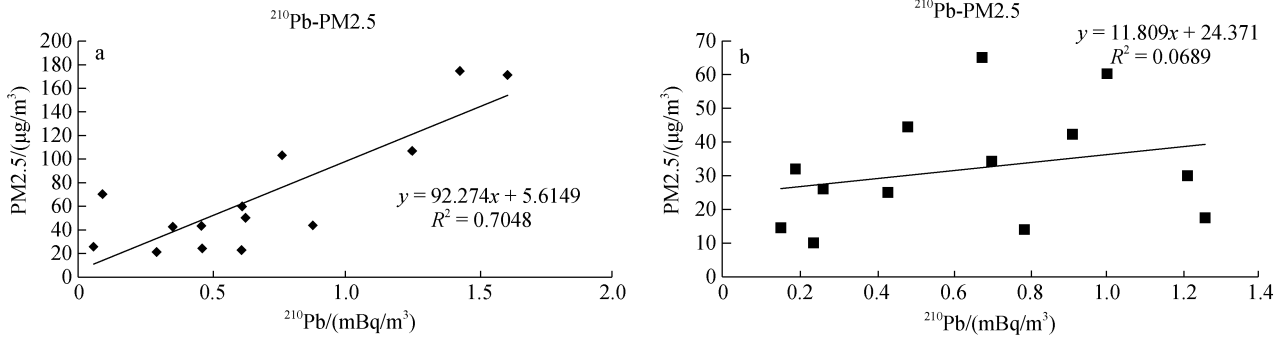


图 5 大气气溶胶中 ^{210}Pb 活度浓度和 $\text{PM}_{2.5}$ 颗粒物浓度变化关系
 Fig. 5 Relations between ^{210}Pb activity and $\text{PM}_{2.5}$ concentration in atmospheric aerosols
 注: a: 2015 年 4 月至 2016 年 6 月; b: 2016 年 6 月至 2017 年 6 月
 a: April 2015~June 2016; b: June 2016~June 2017

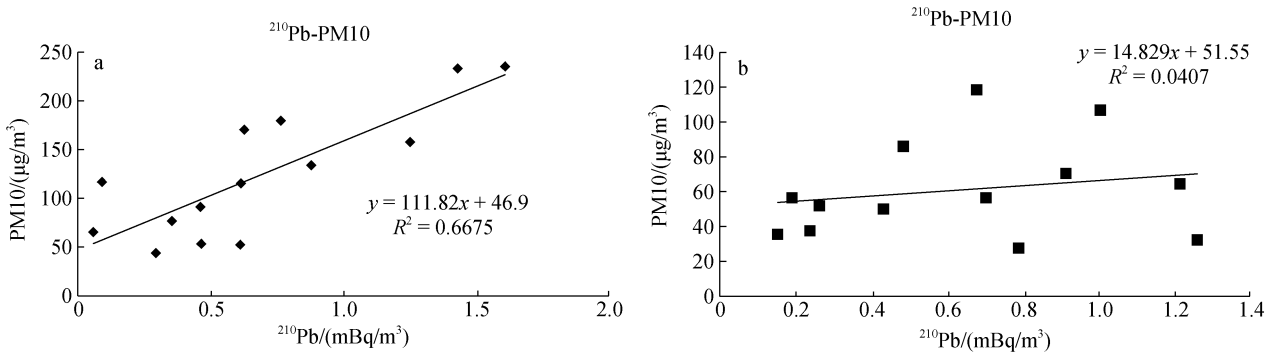


图 6 大气气溶胶中 ^{210}Pb 活度浓度和 PM_{10} 颗粒物浓度变化关系
 Fig. 6 Relations between ^{210}Pb activity and PM_{10} concentration in atmospheric aerosols
 注: a: 2015 年 4 月至 2016 年 6 月; b: 2016 年 6 月至 2017 年 6 月
 a: April 2015~June 2016; b: June 2016~June 2017

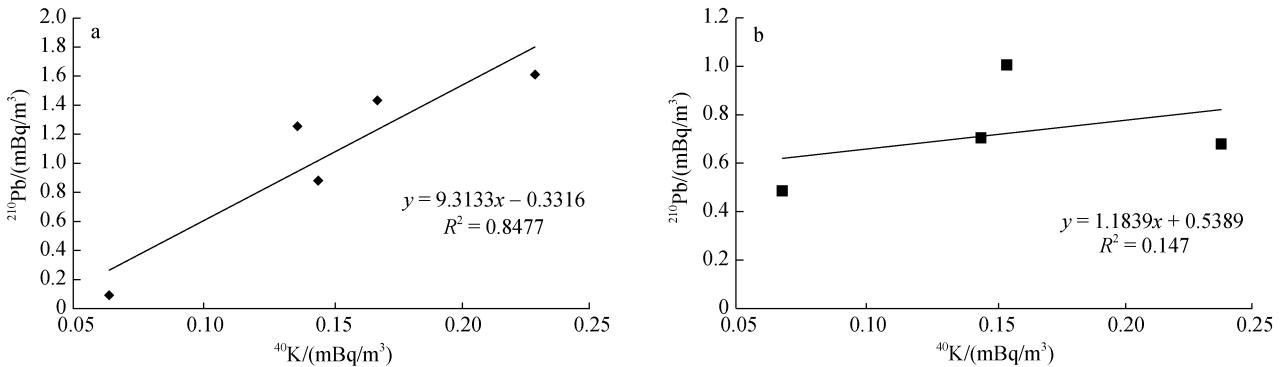


图 7 大气气溶胶中 ^{40}K 与 ^{210}Pb 活度浓度变化关系
 Fig. 7 Relations between ^{40}K and ^{210}Pb activities and concentrations in atmospheric aerosols
 注: a: 2015 年 11 月至 2016 年 3 月; b: 2016 年 11 月至 2017 年 3 月
 a: November 2015~March 2016; b: November 2016~March 2017

2.2.4 西北太平洋海洋大气气溶胶中放射性核素 ^{210}Pb 、 ^{40}K 活度浓度

通过分析西太平洋区域海洋大气气溶胶中放射性核素(由于条件限制, 采样次数少), ^{210}Pb 活度浓度为 $0.131\sim 0.328\text{ mBq/m}^3$, 处于较低水平, ^{40}K 活度浓

度在 $0.061\sim 0.199\text{ mBq/m}^3$ 。这两组数据可以作为近岸大气气溶胶指标示踪核素活度浓度的对比参照。与青岛沿岸大气气溶胶中夏秋季出现的 ^{210}Pb 活度浓度低值范围($0.058\sim 0.354\text{ mBq/m}^3$)具有可比性。与文献值^[10]北太平洋 $0.110\sim 0.280\text{ mBq/m}^3$, 南太平洋

0.070 mBq/m³, 以及印度洋 0.062 mBq/m³, 具有可比性。

2.2.5 青岛海岸区域大气气团来源后轨迹分析

将青岛海岸区域大气气团来源后轨迹分析(图

1~图 3)显示的气团路径特征, 按照气溶胶特征进行归类, 分别将月份、季节、来源、距离、高度等信息列于表 6。

表 6 ²¹⁰Pb 活度浓度和 PM2.5 特征与气团来源的关系

Tab. 6 Relations between ²¹⁰Pb and PM2.5 characteristics and air mass sources

气溶胶特征	年月	季节	陆地	海洋	气团距离	气团高度
高 ²¹⁰ Pb	201512	冬	始	经过	短	中~低(500~1 000 m)
高 PM2.5	201601	冬	始	-	短	低(500 m)
高 ²¹⁰ Pb	201610	秋	始	经过	长	高(2 500 m)
低 PM2.5	201612	冬	始	经过	长	中~低(500~1 500 m)
低 ²¹⁰ Pb	201608	夏	-	始	长	中~低(500~1 000 m)
低 PM2.5	201706	春	始	始(主)	长	中~高(1 000~3 000 m)

从表 6 可见, 气团源头来自陆地的冬季的大气中, 气溶胶具有高 ²¹⁰Pb 活度浓度和高 PM2.5 特征。气团源头来自陆地又经过海洋的秋冬季大气中, 气溶胶具有高 ²¹⁰Pb 活度浓度和低 PM2.5 特征。春夏季起始于海洋的气团经长距离达到青岛海岸区域, 具有低 ²¹⁰Pb 活度浓度和低 PM2.5 特征。

陆地来源的气团具有高的 ²¹⁰Pb 活度浓度, 与人类活动及季节有关。陆地来源的高 PM2.5 气团主要与人类活动有关, 经过长距离输运后会随着沉降而减少。来自海洋的气团由于海洋向大气中释放的氡气明显少于陆地, 其中的 ²¹⁰Pb 活度浓度低, 并且受到人类活动影响的颗粒物浓度(PM2.5)也很低。因此, 使用气溶胶中低的 ²¹⁰Pb 活度浓度与低的颗粒物浓度(PM2.5, 超细颗粒物等)判断海岸区域气团来源具有指标意义。陆地气团特征是高 ²¹⁰Pb 活度浓度和高颗粒物浓度(PM2.5, PM10), 海洋气团的特征是低 ²¹⁰Pb 活度浓度和低颗粒物浓度(PM2.5, PM10)。

临近大陆的海洋(黄海、东海)上层大气受到大陆气流的影响, 其海洋气团的特征有所减弱。陆地气团与海洋气团相互影响具有跨区域、跨国界特点。由于颗粒物的沉降作用, 高空长距离气团携带的细颗粒物(亚微米颗粒物)成为影响沿海城市区域空气质量的重要因素。

3 结论

监测和收集青岛海岸区域大气气溶胶中 ²¹⁰Pb、PM2.5、PM10 数据, 进行比较, 分析气团后轨迹。研究发现:

(1) 研究期间青岛沿岸地区 2015 年 4 月至 2016 年 6 月与 2016 年 6 月至 2017 年 6 月大气污染特征

显著不同, 前者冬季 ²¹⁰Pb 活度浓度与污染颗粒物(PM2.5、PM10)有相关性, 而后者冬季 ²¹⁰Pb 活度浓度与污染颗粒物(PM2.5、PM10)无相关关系;

(2) 穿越海洋的陆地气团呈现高 ²¹⁰Pb 活度浓度, 低颗粒物(PM2.5)的特征; 来自海洋气团的气溶胶呈现低 ²¹⁰Pb 活度浓度, 低颗粒物(PM2.5)的特征。由于颗粒物的沉降作用, 高空长距离气团携带的细颗粒物(亚微米颗粒物)成为主要污染物类型。

(3) 可以用 ²¹⁰Pb 活度浓度、颗粒物浓度(PM2.5)作为判断海洋气团的指标。放射性 ²¹⁰Pb 可以作为大气气溶胶中超细粒子特性的指示物质, 不受气团路径(是否经过海洋)的影响。临近大陆的海洋(黄海、东海)上层大气受到大陆气流的影响, 其海洋气团的特征有所减弱。

随着我国大气污染治理工作的推进, 高空长距离气团携带的细颗粒物(亚微米颗粒物)成为影响沿海城市区域空气质量的重要因素。目前的大气气溶胶中颗粒物浓度(PM2.5、PM10)还不能完全反映大气环境质量的特征, 应增加亚微米颗粒物作为新的空气质量指标之一。

致谢: 美国国家海洋和大气局(NOAA)空气资源(ARL)提供本文使用的 HYSPLIT 运输和分散模型和 READY 网站(<http://www.ready.noaa.gov>)

参考文献:

- [1] 陈多宏, 何俊杰, 张国华, 等. 不同气团对广东鹤山大气超级监测站单颗粒气溶胶理化特征的影响[J]. 生态环境学报, 2015, 24(1): 63-69.
Chen Duohong, He Junjie, Zhang Guohua, et al. The influence of different air masses on the single particle aerosol physical and chemical characteristics in Heshan

- atmospheric supersite of Guangdong[J]. *Ecology and Environmental Sciences*, 2015, 24(1): 63-69.
- [2] 门武, 林静, 王芬芬, 等. 基于 ^7Be 、 ^{210}Pb 和 ^{210}Po 的厦门岛沿岸地区大气过程示踪研究及辐射剂量评估[J]. *应用海洋学学报*, 2016, 35(2): 266-274.
Men Wu, Lin Jing, Wang Fenfen, et al. Atmospheric processes studies and radiation dose assessment based on ^7Be , ^{210}Pb and ^{210}Po around Xiamen Island[J]. *J Appl Oceanog*, 2016, 35(2): 266-274.
- [3] Suzuki T, Maruyama Y, Nakayama N, et al. Measurement of the $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$ activity ratio in size fractionated aerosols from the coast of the Japan sea[J]. *Atmospheric Environment*, 1999, 33(33): 2285-2288.
- [4] Yamamoto M, Sakaguchi A. Measurements of ^{210}Po and ^{210}Pb in total sample: estimate of dietary of ^{210}Po and ^{210}Pb for Japanese[J]. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 2009, 279(1): 93-103.
- [5] 中华人民共和国国家卫生和计划生育委员会. GB 11713-2015 高纯锗 γ 能谱分析通用方法[S]. 北京: 中国标准出版社, 2015.
National Health and Family Planning Commission, People's Republic of China. GB/T 11713-2015 General Analytical Methods of High-Purity Germanium Gamma Spectrometer[S]. Beijing: Standards Press of China, 2015.
- [6] 张京, 徐翠华, 付杰. 大流量气溶胶样品分析中的 γ 能谱效率刻度[J]. *中华放射医学与防护杂志*, 2007, 27(4): 398-399.
Zhang Jing, Xu Cuihua, Fu Jie. γ -spectrum calibration techniques in aerosol samples collected with high flux air sampler[J]. *Chin J Radiol Med Prot*, 2007, 27(4): 398-399.
- [7] Stein A F, Draxler R R, Rolph G D, et al. NOAA's Hysplit atmospheric transport and dispersion modeling system[J]. *Bull Amer Meteor Soc*, 2015, 96: 2059-2077.
- [8] Rolph G D. Real-time environmental applications and display system (READY) website[J/OL]. NOAA Air Resources Laboratory, Silver Spring, 2003[2018-02-08]. <http://www.arl.noaa.gov/ready/hysplit4.html>.
- [9] Moffet R C, Foy B, Molina L T, et al. Measurement of ambient aerosols in northern Mexico city by single particle mass spectrometry[J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2008, 8(16): 4499-4516.
- [10] Turekian K K, Graustein W C, Cockran J K, 1989. Lead-210 in the SEAREX Program: an Aerosol Tracer Across the Pacific[M]. Riley J P, Chester R, Duce R A. *Chemical Oceanography*. London: Academic Press, 2017: 51-81.

Influence and identification of maritime air masses of coastal cities' atmospheric environment

SHI Hong-qi¹, WANG Xiao-tong², ZHANG Hao-yang², SHI Bo-xin³, ZHANG Rui²

(1. First Institute of Oceanography, MNR, Qingdao 266061, China; 2. Qingdao No. 2 Middle School of Shandong Province, Qingdao 266061, China; 3. Qingdao No. 39 Middle School of Shandong Province, Qingdao 266106, China)

Received: Feb. 8, 2018

Key words: maritime air mass; aerosol; ^{210}Pb ; PM10; PM2.5; backward air mass trajectories

Abstract: This study provides a scientific basis for objective evaluation of atmospheric environment quality of coastal cities by identifying the characteristics of ocean air masses and the influence of maritime air masses on the atmosphere of coastal cities. With Qingdao as an example, the data of radionuclides ^{210}Pb , ^{40}K , and local atmospheric particulate matter in atmospheric aerosol samples were collected, the changes of ^{210}Pb activity and aerosol particle concentration were analyzed, and the simulated trajectory of atmospheric air masses at the time was investigated. Results show the following: (1) Characteristics of air pollution in Qingdao coastal areas were significantly different between April 2015~June 2016 and June 2016~June 2017. A significant correlation between the ^{210}Pb activity and the concentration of contaminated particles in April 2015~June 2016 was observed. Meanwhile, no correlation between the ^{210}Pb activity in June 2016~June 2017 and the concentration of particulate matter in winter was observed. (2) Land air masses passing through the ocean were characterized by high ^{210}Pb activity and low particulate matter concentration. Meanwhile, aerosols from marine air masses exhibited low ^{210}Pb activity and low particulate matter concentration. (3) The ^{210}Pb activity and concentration in marine aerosol were low. The upper atmosphere of the ocean near the mainland (the Yellow Sea and East China Sea) was affected by continental air masses, and the characteristics of ocean air masses were weakened. The ^{210}Pb activity and particulate matter concentration (PM2.5) are indicators of marine air masses that identify the difference between "air masses from the sea" and "air masses passing through the ocean."

(本文编辑: 梁德海)