

# 中国南海大气降水化学特征

肖红伟<sup>1</sup>, 龙爱民<sup>1</sup>, 谢露华<sup>2</sup>, 肖化云<sup>3</sup>, 刘丛强<sup>3</sup>

(1. 中国科学院南海海洋研究所热带海洋环境国家重点实验室, 广州 510301; 2. 中国科学院广州地球化学研究所同位素地球化学国家重点实验室, 广州 510640; 3. 中国科学院地球化学研究所环境地球化学国家重点实验室, 贵阳 550002)

摘要: 利用中国科学院南海海洋研究所“实验 3”号船南海海洋断面科学考察 2012 年夏季航次进行大气降水采样, 测定样品 pH 值和主要阴阳离子浓度, 结合 TrajStat 软件模拟后向气团轨迹, 分析南海夏季大气降水离子化学特征及来源。结果表明, 夏季降水 pH 平均值为 6.3, 最小值为 5.6。阴阳离子浓度顺序均分别表现为  $\text{Cl}^- > \text{SO}_4^{2-} > \text{NO}_3^-$  和  $\text{Na}^+ > \text{Mg}^{2+} > \text{Ca}^{2+} > \text{K}^+$ ,  $\text{Cl}^-$  和  $\text{Na}^+$  是主要的阴离子和阳离子, 浓度平均值分别为  $2\,637.5\ \mu\text{eq}\cdot\text{L}^{-1}$  和  $2\,095.5\ \mu\text{eq}\cdot\text{L}^{-1}$ , 表现出了海洋性大气降水的特征。7 种离子间均表现出良好的线性相关关系, 相关系数在 0.9 以上, 说明它们可能具有统一来源;  $\text{NO}_3^-$  与其他离子的相关系数相对较低, 可能  $\text{NO}_3^-$  具有相对复杂的来源;  $\text{Ca}^{2+}$  和  $\text{K}^+$  还可能跟南海珊瑚环境有关。本研究的 6 个站位后向轨迹显示, 水汽气团来源于正南或西南方向, 未经过大陆上空, 因此本研究中南海夏季大气降水的离子来源受人为影响可以忽略。

关键词: 南海; 化学组成; 大气降水; 来源; 后向轨迹

中图分类号: X131 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2014)02-0475-06

## Chemical Characteristics of Precipitation in South China Sea

XIAO Hong-wei<sup>1</sup>, LONG Ai-min<sup>1</sup>, XIE Lu-hua<sup>2</sup>, XIAO Hua-yun<sup>3</sup>, LIU Cong-qiang<sup>3</sup>

(1. State Key Laboratory of Tropical Oceanography, South China Sea Institute of Oceanology, Chinese Academy of Sciences, Guangzhou 510301, China; 2. State Key Laboratory of Isotope Geochemistry, Guangzhou Institute of Geochemistry, Chinese Academy of Sciences, Guangzhou 510640, China; 3. State Key Laboratory of Environmental Geochemistry, Institute of Geochemistry, Chinese Academy of Sciences, Guiyang 550002, China)

**Abstract:** Rainwater samples were collected in the summer on “Shiyan 3” during the 2012 South China Sea Sectional Scientific Survey. The concentrations of anion and cation, and pH in precipitation were determined and backward trajectories of air mass were simulated to analyze the chemical characteristics of ions and examine the source of ions. The results indicated that the mean pH value of precipitation was 6.3, with 5.6 of minimal value in summer in South China Sea. The order of anion and cation abundance was  $\text{Cl}^- > \text{SO}_4^{2-} > \text{NO}_3^-$  and  $\text{Na}^+ > \text{Mg}^{2+} > \text{Ca}^{2+} > \text{K}^+$ .  $\text{Cl}^-$  was the major anion and  $\text{Na}^+$  was the major cation, with concentrations of  $2\,637.5\ \mu\text{eq}\cdot\text{L}^{-1}$  and  $2\,095.5\ \mu\text{eq}\cdot\text{L}^{-1}$ , respectively, showing that they were the characteristics of marine atmospheric precipitation. There was a good linear relationship between each pair of 7 ions, with correlation coefficient above 0.9, suggesting that they may have a common source. However, the correlation coefficients were lower between  $\text{NO}_3^-$  and other ions than the others, suggesting that  $\text{NO}_3^-$  had more complex sources. The concentrations of  $\text{Ca}^{2+}$  and  $\text{K}^+$  in precipitation may be related to coral environment in South China Sea. The backward trajectories in 6 stations showed that the air mass was from south and southwest of South China Sea, without passing through above the continent. These results suggested that precipitation affected by human ion source can be ignored in summer in South China Sea.

**Key words:** South China Sea; chemical composition; precipitation; source; backward trajectory

大气降水化学组成的时空变化受到生物释放、局地农业生产、长距离输送、局地气象条件、海盐输入以及火山活动的影响<sup>[1]</sup>。海洋大气降水在营养元素(如氮、磷)以及痕量元素的海气循环起着重要的作用<sup>[2]</sup>, 影响海洋初级生产力; 同时, 大气降水能够有效地清除大气气溶胶<sup>[3,4]</sup>, 减少气溶胶对太阳的反射<sup>[5]</sup>, 进而影响全球的气候变化。海洋上空的大气降水化学主要受海洋上空的气溶胶和可溶性气态物质影响<sup>[2]</sup>, 其中气溶胶的影响较大。自然释放的气溶胶主要来源于风传输的沙尘、火山活动以及海盐粒子<sup>[6]</sup>。海洋通过海浪破

碎和气泡破裂过程, 产生大量组分与海水相似的气溶胶输向大气<sup>[7,8]</sup>。

随着全球工业化进程的加速, 世界各地均出现了不同程度的酸雨污染<sup>[9]</sup>。在全球大气环流以及水汽气团运动的影响下, 极可能存在内陆排放到大气中的污染物质对海域大气降水产生影响<sup>[10]</sup>。然而目前的研究主要集中在内陆、近岸或个别海域岛屿上<sup>[3,11-14]</sup>, 对远离大陆和海岛的大洋海域上降水的

收稿日期: 2013-06-19; 修订日期: 2013-08-30

基金项目: 国家自然科学基金项目(41203015)

作者简介: 肖红伟(1984~), 男, 博士, 助理研究员, 主要研究方向为大气环境同位素地球化学, E-mail: xiaohw@sesio.ac.cn

观测和研究还很少. 近年来, 亚洲地区人口的增长和经济的快速发展加速了温室气体和空气污染物质的排放<sup>[12]</sup>, 给亚洲地区经济和环境带来巨大的损失, 严重影响了其经济和社会的可持续发展. 水汽气团在长距离输送过程中, 经过亚洲地区城市上空, 携带其所排放的物质, 到达中国南海, 势必影响南海上空大气化学组成及含量, 进而影响南海大气降水组成及含量. 这一过程将对南海生态系统产生深远影响.

因此, 本研究利用中国科学院南海海洋研究所“实验3”号船南海海洋断面科学考察夏季航次进行大气降水采样, 通过测定样品中阴阳离子组成及模拟后向轨迹, 了解南海降水大气化学组成特征, 探讨降水中化学成分的不同来源以及影响因素, 以期为中国南海外来输入的研究提供证据.

## 1 材料与方 法

### 1.1 研究区域

南海是中国以南的边缘海, 北接中国广东、广西, 东面和南面分别隔菲律宾群岛和大巽他群岛与太平洋、印度洋为邻, 西临中南半岛和马来半岛(图1). 东北以台湾海峡与东海相接, 并经巴士海峡、巴

林塘海峡和巴布延海峡与太平洋相通, 东部经民都洛海峡、巴拉巴克海峡与苏禄海相接, 南部经卡里马塔海峡、加斯帕海峡、邦加海峡与爪哇海相连, 西南经马六甲海峡与印度洋沟通. 广阔的南海和西太平洋有丰富的水汽来源, 大量水汽受各种各样条件的作用形成丰沛的降水, 主要集中在夏季. 南海热带海洋性季风气候非常明显, 每年11月至次年3月盛行东北季风; 每年5~9月盛行西南季风; 4月和10月是季风转换时期.

### 1.2 采样与分析方法

本研究中雨水采样路线为中国科学院南海海洋研究所“实验3”号船南海海洋断面科学考察2012年夏季航次(2012年8月6日~2012年9月6日)路线. 如图1所示, 分别在KJ19(110.5°E, 18.0°N)、KJ23(113.0°E, 16.5°N)、KJ32(113.0°E, 12.0°N)、KJ39(113.0°E, 8.5°N)、KJ47(112.5°E, 6.0°N)、KJ53(109.5°E, 6.0°N)等6个站位发生降水事件. 雨水采样器为用酸泡洗净的整理箱, 安放在“实验3”号船顶层前端甲板的一个平台上(见中新社新闻报道图: <http://www.chinanews.com/tp/2012/09-05/4161504.shtml>), 降水时打开整理箱盖, 以防降水样品受海水飞溅和轮船烟囱排放废气的污染.

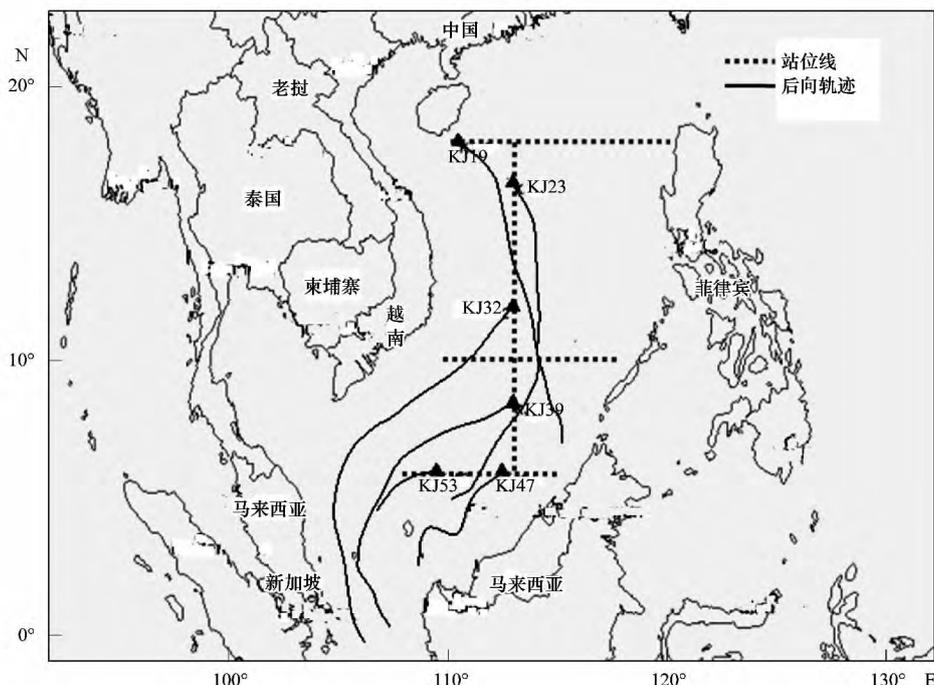


图1 采样站位分布图及后向轨迹

Fig. 1 Distribution of sampling stations and backward trajectory

样品采集后立即取少量用于测定雨水的pH值, 其余样品用0.45 μm稀盐酸泡过的尼龙微孔滤

膜过滤后存放在-20℃的冰箱内保存, 待航次结束后尽快进行化学组成分析. 样品在中国科学院广州

地球化学研究所同位素地球化学国家重点实验室的美国戴安公司(Dionex)生产的ICS-900型号离子色谱仪测试,仪器检出限大约为0.1 ppm,精度及准确度都小于5%。测试的阴离子和阳离子分别为: $F^-$ 、 $HCOOH^-$ 、 $Cl^-$ 、 $Br^-$ 、 $NO_3^-$ 、 $SO_4^{2-}$ 和 $Li^+$ 、 $Na^+$ 、 $NH_4^+$ 、 $K^+$ 、 $Mg^{2+}$ 、 $Ca^{2+}$ ,其中大部分样品的 $F^-$ 、 $HCOOH^-$ 、 $Br^-$ 、 $PO_4^{3-}$ 、 $Li^+$ 、 $NH_4^+$ 等离子浓度低于仪器检测限。

### 1.3 后向轨迹分析

后向轨迹是根据大气气团在一定时间内运动的路径来分析降水气团的来源和传输途径。利用美国国家海洋和大气局(NOAA ARL)提供的GDAS数据和HYSPLIT模式模拟计算南海降水事件的气团路径。轨迹的起始时间为降水事件的0点,并后推3 d(-72 h),起始高度为1 000 m<sup>[3]</sup>。

## 2 结果与讨论

### 2.1 pH 与水溶性无机离子

表1列出了不同站位大气降水的pH及离子浓度及其平均值。pH值的范围为5.6~6.5,平均值为6.3,与1988年西沙群岛旱季降水的pH接近<sup>[15]</sup>。均高于酸雨的临界值5.6,其中4个站位的pH值均大于6.0,说明中国南海海域并未受到酸雨的影响。南海海域大气降水的pH值远高于中国内陆城市如贵阳<sup>[3]</sup>、沿海城市如深圳<sup>[16]</sup>,也要高于西太平洋和印度洋的大气降水<sup>[17,18]</sup>,但与西沙群岛、南海周边一些国家的pH值较为接近,说明南海海域大气降水可能与中国陆地城市以及西太平洋、印度洋水汽来源不同,但与西沙群岛、南海周边国家的来源较为接近<sup>[3,12,15]</sup>,进而表现出大气降水的pH值不同。

由表1可见,南海6个站位大气降水的各种主要离子浓度变化范围较大,如 $Cl^-$ 浓度的变化范围为280.0~9 596.7  $\mu eq \cdot L^{-1}$ , $Na^+$ 浓度的变化范围为244.7~7 788.6  $\mu eq \cdot L^{-1}$ ,2种离子的最大值与最

小值相差超过30倍,这可能跟采样前降水间隔时间以及水汽气团来源不同导致离子分成在大气中的累积量存在差异<sup>[3,15]</sup>。同时,各离子浓度之间也存在较大的差异,但其阴阳离子浓度顺序均分别表现为 $Cl^- > SO_4^{2-} > NO_3^-$ 和 $Na^+ > Mg^{2+} > Ca^{2+} > K^+$ , $Cl^-$ 和 $Na^+$ 浓度明显高于其他离子的浓度,是降水中主要的离子成分,表现出海洋性大气降水的特征<sup>[1,17-19]</sup>,明显高于内陆和沿海城市(表2)。 $SO_4^{2-}$ 浓度最小值超过10  $\mu eq \cdot L^{-1}$ 的背景值<sup>[18,20]</sup>,平均值甚至略高于我国西南地区的贵阳市<sup>[3]</sup>。但 $Cl^-$ 和 $SO_4^{2-}$ 的平均当量浓度比为9.69,比较接近海盐的比值9.66<sup>[18]</sup>,反映其来源主要为海源。 $NO_3^-$ 在KJ19和KJ47接近2.8  $\mu eq \cdot L^{-1}$ 的背景值,其余均高于背景值多倍。 $Mg^{2+}$ 离子为海源性离子<sup>[21]</sup>,其离子浓度变化与 $Na^+$ 变化具有一致性。 $Ca^{2+}$ 和 $K^+$ 的浓度变化也比较大,分别从15.8  $\mu eq \cdot L^{-1}$ 增至462.2  $\mu eq \cdot L^{-1}$ 和11.1  $\mu eq \cdot L^{-1}$ 增至186.0  $\mu eq \cdot L^{-1}$ ,平均值高于深圳等城市(表2),这可能与热带海区广泛分布的珊瑚礁与珊瑚-贝壳沙有关<sup>[15]</sup>。 $NH_4^+$ 离子与很多海域不同<sup>[1]</sup>,除KJ32(17.8  $\mu eq \cdot L^{-1}$ )外,其余站点的降水均低于检测限,有可能受南海海水贫营养盐的影响,与内陆城市高 $NH_4^+$ 来源不同<sup>[22]</sup>。

### 2.2 主要离子来源分析

#### 2.2.1 离子相关性分析

进一步对各主要离子浓度进行相关性分析,得到各离子浓度间的相关系数矩阵(表3)。从表3可以看出, $Cl^-$ 、 $NO_3^-$ 、 $SO_4^{2-}$ 、 $Na^+$ 、 $K^+$ 、 $Mg^{2+}$ 、 $Ca^{2+}$ 这7种离子间的相关系数均在0.9以上,说明这些离子可能具有几乎相同的来源。虽然 $NO_3^-$ 与其他6种离子间的相关系数也在0.95左右,但要稍低于其他离子间的相关系数,说明 $NO_3^-$ 不仅与其他6种离子具有相同的来源,还可能与其他来源。这种离子间的关系与陆地较为复杂的来源大气降水离子的关系具有明显的不同<sup>[3,23]</sup>。

表1 不同站位降水pH及离子浓度<sup>1)</sup>/ $\mu eq \cdot L^{-1}$

Table 1 pH and ionic concentrations of precipitation in different stations/ $\mu eq \cdot L^{-1}$

站位	日期(月-日)	pH	$Cl^-$	$NO_3^-$	$SO_4^{2-}$	$Na^+$	$Mg^{2+}$	$K^+$	$Ca^{2+}$
KJ19	09-06	5.6	501.9	3.6	46.7	480.8	109.7	24.6	32.4
KJ23	09-05	—	1 153.4	23.9	105.0	824.3	203.0	21.4	40.2
KJ32	09-03	6.5	1 921.1	21.7	214.6	1 700.8	420.0	40.9	80.5
KJ39	09-01	6.3	2 372.1	11.8	181.6	1 533.9	381.9	42.9	79.6
KJ47	08-30	6.5	280.0	2.0	30.5	244.7	62.2	11.1	15.8
KJ53	08-29	6.5	9 596.7	65.1	1 054.3	7 788.6	1 948.4	186.0	462.2
平均值		6.3	2 637.5	21.4	272.1	2 095.5	520.9	54.5	118.4

1) “—”表示无数据

表 2 南海降水中 pH、无机离子与内陆、沿海城市及其他海域的比较/ $\mu\text{eq}\cdot\text{L}^{-1}$ Table 2 Comparison of pH and ion concentrations of precipitation in this study with those in cities and other sea/ $\mu\text{eq}\cdot\text{L}^{-1}$ 

地区	pH	$\text{Cl}^-$	$\text{NO}_3^-$	$\text{SO}_4^{2-}$	$\text{Na}^+$	$\text{Mg}^{2+}$	$\text{K}^+$	$\text{Ca}^{2+}$
本研究	6.3	2 637.5	21.4	272.1	2 095.5	520.9	54.5	118.4
贵阳 <sup>[3]</sup>	4.2	20.7	7.3	265.6	13.9	10.5	9.6	182.9
深圳 <sup>[16]</sup>	4.5	24.5	23.6	66.1	14.4	10.7	5.9	30.7
西沙群岛 <sup>[15]</sup>	6.4	3 518.2	22.9	461.7	2 073.0	719.0	133.3	426.8
Petaling Jaya <sup>1)</sup>	4.2	8.4	52.8	55.0	4.6	1.2	1.3	4.0
Kuching <sup>1)</sup>	5.4	11.5	5.0	8.1	9.1	1.5	0.9	6.3
Metro Manila <sup>1)</sup>	5.6	29.8	14.4	37.4	21.4	14.3	23.5	25.8
Western Atlantic <sup>[18]</sup>	4.9	185.3	1.7	27.2	165.0	38.8	3.4	10.8
Indian Ocean <sup>[17]</sup>	4.9	371.0	1.9	45.0	321.0	71.0	7.0	13.9

1) \* 来源于东亚酸雨监测网(EANET) 2011 年数据

表 3 南海大气降水离子相关性分析<sup>1)</sup>

Table 3 Correlation analysis of precipitation ions

	$\text{Cl}^-$	$\text{NO}_3^-$	$\text{SO}_4^{2-}$	$\text{Na}^+$	$\text{Mg}^{2+}$	$\text{K}^+$	$\text{Ca}^{2+}$
$\text{Cl}^-$	1	0.949	0.997	0.998	0.998	0.996	0.996
$\text{NO}_3^-$		1	0.956	0.954	0.954	0.938	0.945
$\text{SO}_4^{2-}$			1	1.000	1.000	0.997	0.999
$\text{Na}^+$				1	1.000	0.998	0.999
$\text{Mg}^{2+}$					1	0.998	0.998
$\text{K}^+$						1	0.999
$\text{Ca}^{2+}$							1

1) 所有离子均表现为显著相关( $P < 0.01$ )

## 2.2.2 降水离子源贡献

为了解释南海大气降水离子可能的生物地球化学行为和人为来源影响,假定  $\text{Na}^+$  全部来源于海洋并以  $\text{Na}^+$  作为参考元素,进行不同离子来源贡献的计算<sup>[3, 21, 24]</sup>:

$$\text{SSF}(\%) = \frac{100(\text{Na}_{\text{rain}}^+)(X/\text{Na}^+)_{(\text{sea})}}{X_{\text{rain}}}$$

$$\text{CRF}(\%) = \frac{100(\text{Ca}_{\text{rain}}^+)(X/\text{Ca}^+)_{(\text{soil})}}{X_{\text{rain}}}$$

$$\text{NSSCRF}(\%) = 100 - \text{SSF} - \text{CRF}$$

式中  $X_{\text{rain}}$  为降水中的某一离子的浓度( $\mu\text{eq}\cdot\text{L}^{-1}$ ),  $(X/\text{Na}^+)_{(\text{sea})}$  为海水中某一离子与海水中  $\text{Na}^+$  的浓度比较,SSF 为海源输入所占比例,CRF 为陆源输入所占比例,NSSCRF 为非海源和非陆源输入所占比例。

不同站位的 SSF、CRF、NSSCRF 值如表 4 所示, $\text{Cl}^-$  基本上来源于海源,但在站位 KJ23、KJ39、KJ53 分别有 17.10%、24.98%、5.85% 是其他来源,可能有部分来源于大陆物质的远距离输送或海洋环境本身生物活动等形成的物质在海洋上空积累<sup>[15]</sup>。 $\text{SO}_4^{2-}$  也与  $\text{Cl}^-$  有类似的现象,在站位

KJ23、KJ39、KJ53 分别有 1.15%、0.24%、6.83% 是其他来源,这种低  $\text{SO}_4^{2-}$  的非海源来源输入比例,说明其受人类活动等来源对大气降水中的  $\text{SO}_4^{2-}$  贡献可以忽略。 $\text{NO}_3^-$  的来源主要为非海源和非陆源的输入,其原因并不十分清楚<sup>[19]</sup>,雷电固氮可能存在一定的贡献以及人为活动产生的  $\text{NO}_x$  经长距离输送至南海并停留在南海上空<sup>[25]</sup>。 $\text{Mg}^{2+}$  主要为海源输入,还有部分陆源输入,可能跟南海珊瑚环境有关<sup>[15]</sup>。 $\text{Ca}^{2+}$  和  $\text{K}^+$  所占陆源输入相对较高,特别是在靠近西沙群岛的站位 KJ19,分别占 34.63% 和 57.01%,这可能跟西沙群岛周边海域有丰富的珊瑚有关<sup>[15]</sup>,其他站位也可能受此影响。

## 2.2.3 后向轨迹分析

南海在夏季主要盛行西南季风,夏季整个海区受热带海洋性气团和赤道海洋气团的影响,气团经卡里马塔海峡进入南海。如图 1 所示,所有站位的后向轨迹均指示其水汽气团来源于正南或者西南方向,并未经过陆地上空,因此这些站位受人类活动的影响较小,反映大气降水主要来自海洋等自然来源。

表4 南海大气降水离子海源、陆源、非海陆源的贡献/%  
Table 4 Sea salt, crustal and non-sea-salt-non-crustal fractions of ions in precipitation/%

离子	项目	KJ19	KJ23	KJ32	KJ39	KJ47	KJ53
Cl <sup>-</sup>	SSF	100	82.90	100	75.01	100	94.14
	CRF	0	0	0	0.01	0	0.01
	NSSCRF	0	17.10	0	24.98	0	5.85
NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	SSF	0.27	0.07	0.16	0.26	0.25	0.24
	CRF	1.89	0.35	0.78	1.41	1.70	1.49
	NSSCRF	97.84	99.58	99.04	98.33	98.05	98.27
SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	SSF	100	98.13	99.06	100	100	92.35
	CRF	0	0.72	0.70	0	0	0.82
	NSSCRF	0	1.15	0.24	0	0	6.83
Mg <sup>2+</sup>	SSF	100	92.19	91.93	91.17	89.27	90.74
	CRF	0	7.81	8.07	8.83	10.73	9.26
	NSSCRF	0	0	0	0	0	0
K <sup>+</sup>	SSF	42.99	84.85	91.55	78.58	48.38	92.15
	CRF	57.01	15.15	8.45	21.42	51.62	7.85
	NSSCRF	0	0	0	0	0	0
Ca <sup>2+</sup>	SSF	65.37	90.32	93.01	84.74	68.07	74.14
	CRF	34.63	9.68	6.99	15.26	31.93	25.86
	NSSCRF	0	0	0	0	0	0

### 3 结论

(1) 中国南海夏季降水 pH 平均值为 6.3, 未出现酸雨污染。主要离子为 Na<sup>+</sup> 和 Cl<sup>-</sup>, 高出其他离子浓度多倍。

(2) 中国南海夏季降水 7 种离子几乎具有相同的来源, 主要为海洋来源, 但 NO<sub>3</sub><sup>-</sup> 的来源更为复杂。不仅受到由海水产生的气溶胶等影响, 还可能受到珊瑚环境以及其他生物过程的影响。

#### 参考文献:

- [1] Ceron R M, Ceron J G, Cordova A G, *et al.* Chemical composition of precipitation at Coastal and Marine sampling sites in Mexico[J]. *Global NEST Journal*, 2005, 7(2): 212-221.
- [2] Baker A R, Weston K, Kelly S D, *et al.* Dry and wet deposition of nutrients from the tropical Atlantic atmosphere: Links to primary productivity and nitrogen fixation [J]. *Deep Sea Research Part I: Oceanographic Research Papers*, 2007, 54(10): 1704-1720.
- [3] 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.
- [4] 肖红伟, 肖化云, 王燕丽, 等. 典型污染城市 9d 连续大气降水化学特征: 以贵阳市为例[J]. *环境科学*, 2010, 31(4): 865-870.
- [5] 宋薇, 张镭. 大气气溶胶光学厚度遥感研究概况[J]. *干旱气象*, 2007, 25(3): 76-81.
- [6] Balasubramanian R, Karthikeyan S, Potter J, *et al.* Chemical characterization of aerosols in the equatorial atmosphere over the Indian Ocean[J]. *Atmospheric Environment*, 2013, 78: 268-276.
- [7] 徐新华, 姚荣奎. 海洋气溶胶对沿海地区降水组成的贡献[J]. *上海环境科学*, 1997, 16(10): 12-14.
- [8] 高原. 沿海海-气界面的化学物质交换[J]. *地球科学进展*, 1997, 12(6): 553-563.
- [9] Galloway J N, Likens G E, Edgerton E S. Acid precipitation in the northeastern United States: pH and acidity [J]. *Science*, 1976, 194(4266): 722-724.
- [10] 刘昌岭, 陈洪涛. 大气中微量元素的沉降对海洋生态系统的影响[J]. *海洋通报*, 2003, 22(2): 89-96.
- [11] 肖辉, 沈志来, 黄美元. 西太平洋热带海域降水化学特征[J]. *环境科学学报*, 1993, 13(2): 143-148.
- [12] 叶小峰, 王自发, 安俊岭, 等. 东亚地区降水离子成分时空分布及其特征分析[J]. *气候与环境研究*, 2005, 10(1): 115-123.
- [13] 吴玉霞, 沈志来, 黄美元. 东海海域春季降水的化学特征[J]. *环境科学学报*, 1998, 18(4): 362-366.
- [14] 吴兑, 项培英, 常业谛, 等. 西沙永兴岛降水的酸度及其化学组成[J]. *气象学报*, 1989, 47(3): 381-384.
- [15] 吴兑. 西沙群岛旱季小阵雨的酸度及化学成分[J]. *气象*, 1990, 16(9): 18-22.
- [16] 牛彧文, 何凌燕, 胡敏. 深圳大气降水的化学组成特征[J]. *环境科学*, 2008, 29(4): 1014-1019.
- [17] Galloway J N, Gaudry A. The composition of precipitation on Amsterdam island, Indian Ocean[J]. *Atmospheric Environment* (1967), 1984, 18(12): 2649-2656.
- [18] Galloway J N, Knap A H, Church T M. The composition of western Atlantic precipitation using shipboard collectors [J]. *Journal of Geophysical Research: Oceans* (1978-2012), 1983, 88(C15): 10859-10864.

- [19] 于晓岚, 汤洁, 师昱锋, 等. 中国南极长城站 1998 年大气降水化学特征的初步研究[J]. 气象学报, 2002, **60**(4): 494-501.
- [20] Pio C A, Salgueiro M L, Nunes T V. Seasonal and air-mass trajectory effects on rainwater quality at the south-western European border [J]. Atmospheric Environment, Part A. General Topics, 1991, **25**(10): 2259-2266.
- [21] 张金良, 于志刚, 张经, 等. 黄海西部大气湿沉降(降水)的 pH 与主要酸碱离子的关系[J]. 海洋环境科学, 2000, **19**(3): 30-34.
- [22] Xiao H W, Xiao H Y, Long A M, *et al.* Who controls the monthly variations of  $\text{NH}_4^+$  nitrogen isotope composition in precipitation? [J]. Atmospheric Environment, 2012, **54**: 201-206.
- [23] 陈圆圆, 田贺忠, 杨懂艳, 等. 1997~2011 年北京市空气中酸性物质与降水组分变化趋势的相关性分析[J]. 环境科学, 2013, **34**(5): 1958-1963.
- [24] Zhang J, Chen S Z, Yu Z G, *et al.* Factors influencing changes in rainwater composition from urban versus remote regions of the Yellow Sea [J]. Journal of Geophysical Research: Atmospheres (1984-2012), 1999, **104**(D1): 1631-1644.
- [25] 肖红伟, 肖化云, 龙爱民, 等. 贵阳地区大气降水中  $\delta^{15}\text{N}-\text{NO}_3$  组成及来源分析[J]. 环境科学学报, 2012, **32**(4): 940-945.