

# 广州市含铁颗粒混合状态及化学特征

鲁楠<sup>1</sup>, 廉秀峰<sup>1,2\*</sup>

<sup>1</sup>广州禾信仪器股份有限公司, 广东 广州

<sup>2</sup>暨南大学, 环境与气候学院, 质谱仪器与大气环境研究所, 粤港澳环境质量协同创新联合实验室, 广东省大气污染在线源解析系统工程技术研究中心, 广东 广州

收稿日期: 2024年10月18日; 录用日期: 2024年11月21日; 发布日期: 2024年12月20日

## 摘要

本研究利用单颗粒气溶胶质谱仪(SPAMS)于2021年1月1日至31日在广州市对大气中含铁颗粒的化学组成、混合状态、来源及其在污染过程中的演变特征进行了研究。结果表明, 含铁颗粒主要分为Fe-BB、Fe-C、Fe-D、Fe-HM、Fe-N、Fe-S、Fe-SN等七种类型, 以Fe-N、Fe-SN和Fe-HM三类颗粒为主, 这三类颗粒在所有含铁颗粒中数量占比达85%。大部分含铁颗粒与二次无机离子尤其是硝酸盐混合, 部分含铁颗粒与生物质燃烧源特征离子有机氮、元素碳、沙尘特征组分或重金属混合。在1月13~16日PM<sub>2.5</sub>重污染过程期间, 发生了三次PM<sub>2.5</sub>突升, 分别为污染前期、中期和后期。在污染前期和中期, PM<sub>2.5</sub>浓度升高受到来自工业排放和机动车尾气的一次排放的含铁颗粒的影响, 在污染后期, 受到含铁颗粒上硝酸盐生成的影响。

## 关键词

广州, Fe, 颗粒物, 单颗粒气溶胶质谱仪(SPAMS)

# Mixing States and Chemical Characteristics of Fe-Containing Particles in Guangzhou

Nan Lu<sup>1</sup>, Xiufeng Lian<sup>1,2\*</sup>

<sup>1</sup>Guangzhou Hexin Instrument Co., Ltd., Guangzhou Guangdong

<sup>2</sup>College of Environment and Climate, Institute of Mass Spectrometer and Atmospheric Environment, Guangdong-Hong Kong-Macau Joint Laboratory of Collaborative Innovation for Environmental Quality, Guangdong Engineering Research Center for Online Atmospheric Pollution Source Appointment Mass Spectrometry System, Jinan University, Guangzhou Guangdong

Received: Oct. 18<sup>th</sup>, 2024; accepted: Nov. 21<sup>st</sup>, 2024; published: Dec. 20<sup>th</sup>, 2024

\*通讯作者。

文章引用: 鲁楠, 廉秀峰. 广州市含铁颗粒混合状态及化学特征[J]. 环境保护前沿, 2024, 14(6): 1290-1298.  
DOI: 10.12677/aep.2024.146163

## Abstract

To investigate the particle types, mixing states, sources and evolution during pollution of Fe-containing particles, a single particle aerosol mass spectrometer was used to perform an campaign in Guangzhou from January 1 to 31, 2021. The results showed that the Fe-containing particles were classified as Fe-BB, Fe-C, Fe-D, Fe-HM, Fe-N, Fe-S and Fe-SN, which Fe-N, Fe-SN and Fe-HM was the main types, accounted for 85% of all Fe-containing particles. Most of the Fe-containing particles were mixed with secondary inorganic ions, especially nitrate, and some were mixed with the characteristic ions of biomass combustion of organic nitrogen, elemental carbon, dust characteristic components or heavy metals. During the heavy PM<sub>2.5</sub> pollution event from January 13 to 16, three spikes in PM<sub>2.5</sub> concentrations occurred, which were divided into the early, middle and later stages of pollution. In the early and middle stages of pollution, the increase of PM<sub>2.5</sub> concentration was influenced by Fe-containing particles from primary emissions of industrial and vehicle. In the later stages of pollution, the formation of nitrate was the main driver.

## Keywords

Guangzhou, Fe, Particulate Matter, Single Particle Aerosol Mass Spectrometer (SPAMS)

Copyright © 2024 by author(s) and Hans Publishers Inc.

This work is licensed under the Creative Commons Attribution International License (CC BY 4.0).

<http://creativecommons.org/licenses/by/4.0/>



Open Access

## 1. 引言

铁(Fe)是海洋生态系统中一种重要微量元素,在海洋浮游生物的光合作用、呼吸作用和固氮过程中发挥着重要的作用[1]。大气气溶胶中的 Fe 通过大气传输沉降海洋是促进海洋表面浮游生物初级生产力和海洋生物固氮的关键过程,进而改变海洋和大气之间二氧化碳的分布,影响全球碳循环、海洋生态系统和地球气候[2]。此外,气溶胶中的 Fe 被吸入人体后,还会通过诱导活性氧的形成影响人体健康[3]。

Fe 对海洋、气候、地球化学的影响主要取决于大气气溶胶中 Fe 的溶解度,也就是可溶性铁的含量(可溶部分浓度/总浓度 × 100%)。气溶胶中 Fe 溶解度变化范围很大,不同来源的铁溶解度跨越几个数量级。人为源(工业活动、煤炭燃烧和生物质燃烧等)比自然源排放的气溶胶 Fe 溶解度更高。以往的研究结果[4]表明沙尘中 Fe 的溶解度一般小于 1%,而化石燃料燃烧源 Fe 的溶解度为 35.7%~77%。

Fe 的溶解度受气溶胶化学组分影响。大气气溶胶在长距离传输过程中,大气化学过程(尤其是污染气团的酸性环境)易使不溶 Fe 向可溶 Fe 转化[5]。然而,目前对大气传输过程中含 Fe 颗粒的化学组分及其混合状态的研究还较少。Zhang 等人[6]基于单颗粒气溶胶质谱(SPAMS)将上海市大气中含铁颗粒分为富铁、富钾、含沙尘和含钒等四个类型,且认为含铁气溶胶是上海大气含铁颗粒物中最重要的组成部分,即钢铁工业活动产生的富铁类、生物质燃烧或煤燃烧产生的富钾类,占比分别为 55%和 18%。同时,该研究还表明人为的富钾和富铁颗粒倾向于与硫酸盐和硝酸盐结合,可能导致可溶性铁的比例更高。Dall'Osto 等人[7]发现,伦敦和巴塞罗那的含铁颗粒主要与硝酸盐混合,而不是硫酸盐,并且这种颗粒主要与城市交通有关。Li 等人[8]阐述了陆地污染区域的工业活动(煤燃烧和钢铁工业)产生的含铁颗粒在大气中停留 1 至 2 天后被硫酸盐包裹,使不溶性的氧化铁以可溶性的硫酸铁的形式存在于酸性硫酸盐颗粒壳层中,进一步证实人为源排放的含 Fe 颗粒在长距离输送过程中发生了气溶胶酸化过程。He [9]的研究

表明成都冬季含铁颗粒物主要有 7 类, 其中铁与碳质组分混合的颗粒贡献最大, 与硫酸盐的混合程度高于硝酸盐。Ma 等人[10]在广州基于 SPAMS 也对大气中含铁颗粒进行了研究, 发现含铁颗粒主要分为 4 类, 其中富铁类占主导地位, 占 61%, 其余颗粒分别为富金属(Metal-rich, 13%)、富钠钾(NaK-rich, 12%)和富尘(Dust-rich, 14%), 但该研究专注于含铁细颗粒对 $\cdot\text{OH}$ 生成的贡献, 进而探讨对人体健康的影响, 未对含铁颗粒在大气化学过程中的演变开展更深入探讨。这些结果表明不同城市含铁颗粒化学成分和混合状态有明显的区域差异。此外, 目前对广州市大气老化及污染天含铁颗粒变化特征的研究较少。

广州是位于粤港澳大湾区的一座超大城市, 常住人口接近 2000 万人。人为排放是影响广州市空气质量的重要因素。本研究于 2021 年 1 月在八十六中站点开展  $\text{PM}_{2.5}$  在线监测, 重点研究了大气传输老化及重污染天期间含铁颗粒的化学组分、混合状态的变化特征, 研究结果将进一步深化对广州市大气中含铁颗粒的认识。

## 2. 材料与方法

### 2.1. 研究区域概况

观测点选择在广州市的国控站点之一, 八十六中学站点。该站点位于广州市黄埔区大沙地(23.06°N, 113.52°E)国控点楼栋的楼顶, 距离地面大约 28 m。站点下垫面主要以建城区为主, 北面、东北面、东南面分布着多家电厂和大型企业, 南面是风景区, 伴随南面的河道分布着码头和港口, 西面和西北面存在明显的交通主干道。因此, 该站点可代表典型的城市工业-交通-绿化混合区。本次观测时间为 2021 年 1 月 1 日至 2021 年 1 月 31 日。

监测期间, 在 1 月 13 日~17 日发生了一次颗粒物重污染过程, 小时  $\text{PM}_{2.5}$  浓度最高达到  $171\ \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ , 根据空气质量等级划分, 达到重度污染( $150 < \text{PM}_{2.5} \leq 250$ )等级。该污染过程发生了三次  $\text{PM}_{2.5}$  突升, 以此划分为三个污染阶段, 分别为污染前期(1 月 13 日 16 时至 1 月 14 日 15 时)、污染中期(1 月 14 日 16 时至 1 月 15 日 12 时)和污染后期(1 月 15 日 13 时~1 月 17 日 0 时), 三个污染阶段  $\text{PM}_{2.5}$  浓度均值分别为  $77.0\ \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 、 $119.1\ \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 、 $127.7\ \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 。

### 2.2. 研究方法

采用单颗粒气溶胶质谱仪(Single Particle Aerosol Mass Spectrometer, SPAMS; 广州禾信仪器股份有限公司)对大气颗粒物进行采样分析, 该仪器可实现在线检测单个气溶胶颗粒的粒径和化学组成。SPAMS 的工作原理在先前的研究中已经有详细的论述[11], 简单来说, 大气气溶胶通过空气动力学透镜被聚焦成粒子束, 随后进入测径系统(两束 532 nm 激光测径), 不同粒子由于粒径的差异具有不同的飞行速度, 根据对应的速度进一步换算成粒径。离开测径系统后, 颗粒在电离系统中被 266 nm 的紫外脉冲激光电离。电离产生的正负离子分别被双极飞行时间质量分析器检测。最后经过数据处理系统获取每个气溶胶颗粒的质谱图。

气象观测资料来自八十六中的气象监测站。

### 2.3. 数据分析

数据处理采用 Matlab 软件, 使用海量数据处理软件 COCO 工具包对原始数据进行处理, 一共获取具有测径颗粒(SIZE) 26,516,403 个, 其中具有正负谱图信息的颗粒(MASS)有 4,307,315 个。基于采样得到的 MASS 颗粒数据, 继续通过 COCO 工具包在 Matlab 软件上对含 Fe 颗粒进行筛选。含铁颗粒的筛选参考谢等人[12]的方法, 把质荷比( $m/z$ )为 54、56, 同时满足  $m/z$  中 56/54 的峰面积大于 10 的颗粒定义为含 Fe 颗粒。筛选出含 Fe 颗粒后, 利用自适应共振理论神经网络算法(ART-2a)对获得的含 Fe 颗粒进行聚类分析, ART-2a 算法分类设置的参数为: 警戒因子 0.8, 学习效率 0.05, 迭代次数 20。ART-2a 分类是将颗粒

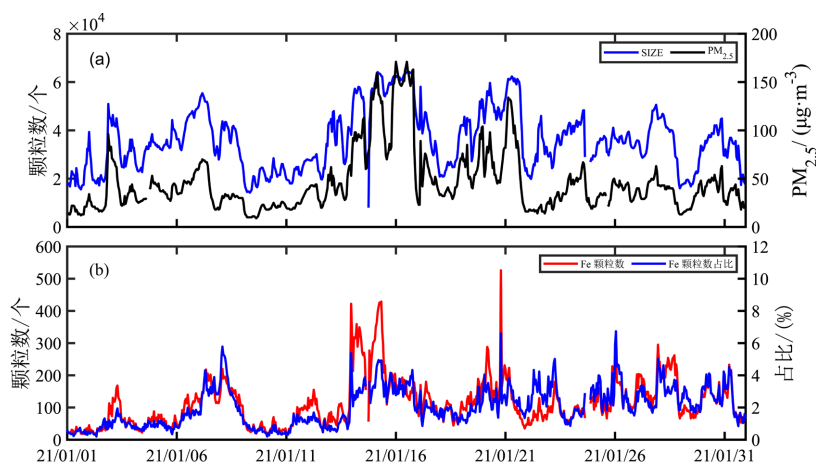
质谱中离子峰的种类和强度相似的颗粒归为一类, 经过 ART-2a 聚类后, 含 Fe 颗粒被分成了上百类。之后, 结合质谱特征对 Atr-2a 聚类结果进行人工手动聚类, 将具有相似质谱特征的颗粒物进一步整合, 一共获得 Fe-BB (Fe 与生物质燃烧颗粒混合)、Fe-C (Fe 与碳质颗粒混合)、Fe-D (Fe 与沙尘颗粒混合)、Fe-HM (Fe 与其他重金属颗粒混合)、Fe-N (Fe 与硝酸盐颗粒混合)、Fe-S (Fe 与硫酸盐颗粒混合)、Fe-SN (Fe 与硝酸盐和硫酸盐颗粒混合) 等七种类型, 这七类颗粒物约占含铁颗粒的 95%。

### 3. 结果与讨论

#### 3.1. 概述

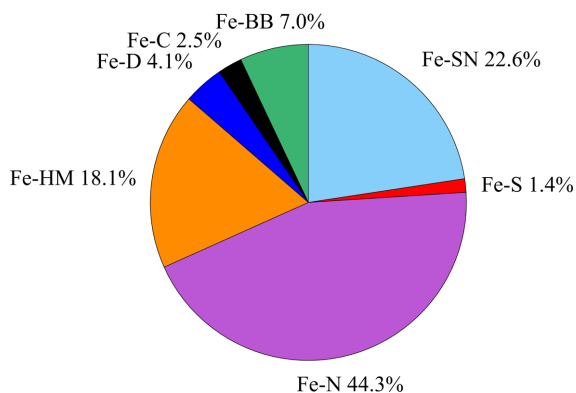
监测期间, 具有测径信息的颗粒物数浓度(SIZE)与质量浓度变化趋势相关系数  $r$  值为 0.85, 达到高度相关, 说明 SPAMS 的数浓度变化趋势对反映大气污染状况具有一定的代表性, 从图 1(a)中 SIZE 和  $PM_{2.5}$  浓度逐小时变化趋势也可以看出。本次观测共有 83852 个含 Fe 颗粒物, 占总颗粒数(MASS)的 1.95%。图 1(b)中显示了含 Fe 颗粒数及其占比随时间变化趋势, 由图可知, 含 Fe 颗粒数小时占比在 0.2%~6.7% 范围之内。

图 2 显示的是监测期间 7 类含铁颗粒物的占比, 主要是 Fe-N、Fe-SN、Fe-HM 这三类, 占比分别为 44.3%、22.6%、18.1%, 其它类型分别为 Fe-BB (7.0%)、Fe-D (4.1%)、Fe-C (2.5%)、Fe-S (1.4%)。



**Figure 1.** Temporal variations in the (a) total number and  $PM_{2.5}$  concentration, (b) number and fraction of Fe-containing particles

**图 1.** (a) 测径颗粒数(SIZE)、 $PM_{2.5}$  浓度随时间变化趋势; (b) 含铁颗粒数以及含铁颗粒数占比随时间变化趋势



**Figure 2.** Number fraction of Fe-containing particle types

**图 2.** 含铁颗粒的占比分布

### 3.2. 含铁颗粒类型

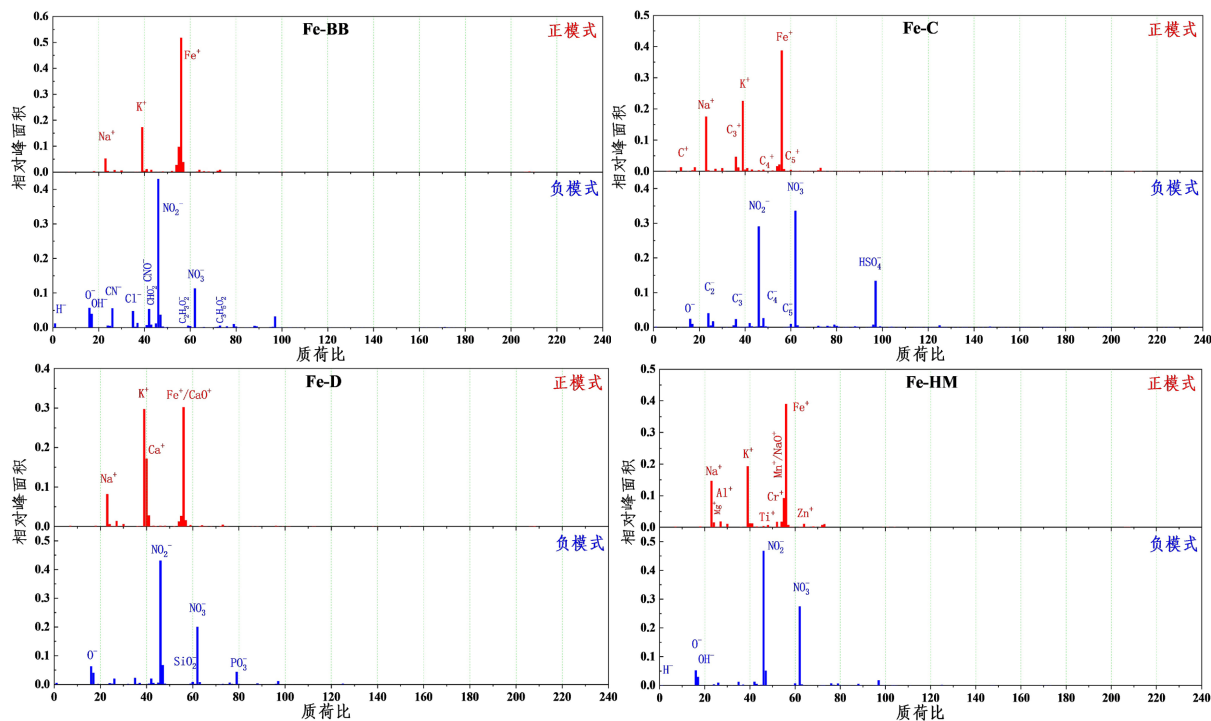
图 3 中显示了每类颗粒物的平均谱图。Fe-BB 类颗粒物的正谱图主要具有较强的  $^{23}[\text{Na}]^+$ 、 $^{39}[\text{K}]^+$  和  $^{56}[\text{Fe}]^+$ 。负谱图含有丰富的硝酸盐( $^{46}[\text{NO}_2]^-$ 、 $^{62}[\text{NO}_3]^-$ )，表明此类颗粒在大气中经历了老化过程。除此之外，负谱图中还出现有机氮( $^{26}[\text{CN}]^-$ 、 $^{42}[\text{CNO}]^-$ )和氯化物( $^{35}[\text{Cl}]^-$ )离子峰，而这三种离子峰被认为是生物质燃烧的重要标记物。并且，这类颗粒还有弱左旋葡聚糖( $^{45}[\text{CHO}_2]^-$ 、 $^{59}[\text{C}_2\text{H}_3\text{O}_2]^-$  和  $^{73}[\text{C}_3\text{H}_5\text{O}_2]^-$ )等有机碎片峰，说明此类含铁颗粒主要是以生物质燃烧的一次排放形式进入到大气中，而后在大气中与气态硝酸或颗粒相硝酸发生均相或非均相反应形成硝酸盐。

Fe-C 类颗粒物的主要特征是正谱图中既有较强 Na、K 和 Fe 离子峰，还存在较明显的间隔为 12 的碳元素链峰  $\text{C}_n^+$ ，如  $^{12}[\text{C}]^+$ 、 $^{36}[\text{C}_3]^+$ 、 $^{48}[\text{C}_4]^+$ 、 $^{60}[\text{C}_5]^+$ 。同时，负谱图中也含有类似的碳元素链峰  $\text{C}_n^-$ ，表明 Fe-C 类颗粒物主要来自于燃煤或者机动车排放。这类颗粒物同样经历了传输和老化过程，与二次离子硝酸盐和硫酸盐均有混合。

Fe-D 类颗粒物的主要特征是  $^{40}[\text{Ca}]^+$  和  $^{56}[\text{CaO}]^+ / [\text{Fe}]^+$ ，这些均为沙尘颗粒的示踪物。负谱图中主要是  $^{46}[\text{NO}_2]^-$ 、 $^{62}[\text{NO}_3]^-$ ，说明 Fe-D 这类颗粒在大气老化过程中也形成了较多的硝酸盐。

Fe-HM 类颗粒物的质谱中，其他金属离子峰也很明显，包括  $^{24}[\text{Mg}]^+$ 、 $^{27}[\text{Al}]^+$ 、 $^{48}[\text{Ti}]^+$ 、 $^{52}[\text{Cr}]^+$ 、 $^{55}[\text{Mn}]^+$ 。先前的研究表明这些重金属元素可以从机动车排放、煤炭燃烧、重油燃烧和各种工业过程中排放，如炼油、金属冶炼和钢铁工业。负谱图中主要是硝酸盐离子峰，表明这类颗粒物主要与硝酸盐混合。

Fe-N、Fe-S、Fe-SN 这三类颗粒物是典型的二次颗粒物，正谱图均含有明显的 K 和 Fe 的离子峰，而负谱图中有所差异，分别是硝酸盐离子峰、硫酸盐离子峰为主、硝酸盐和硫酸盐强离子峰同时存在的特征。He 等人[9]研究表明，Fe-N 颗粒主要与城市交通有关，而 Fe-S 颗粒则与粉煤灰、煤炭和生物质的燃烧有关，而 Fe-SN 颗粒同时含有硝酸盐和硫酸盐，可能受到城市交通和燃烧过程的影响。此外，可以发现含铁颗粒主要与硝酸盐混合，而与硫酸盐混合较少，因为 Fe-N 类颗粒的占比高于 Fe-S。





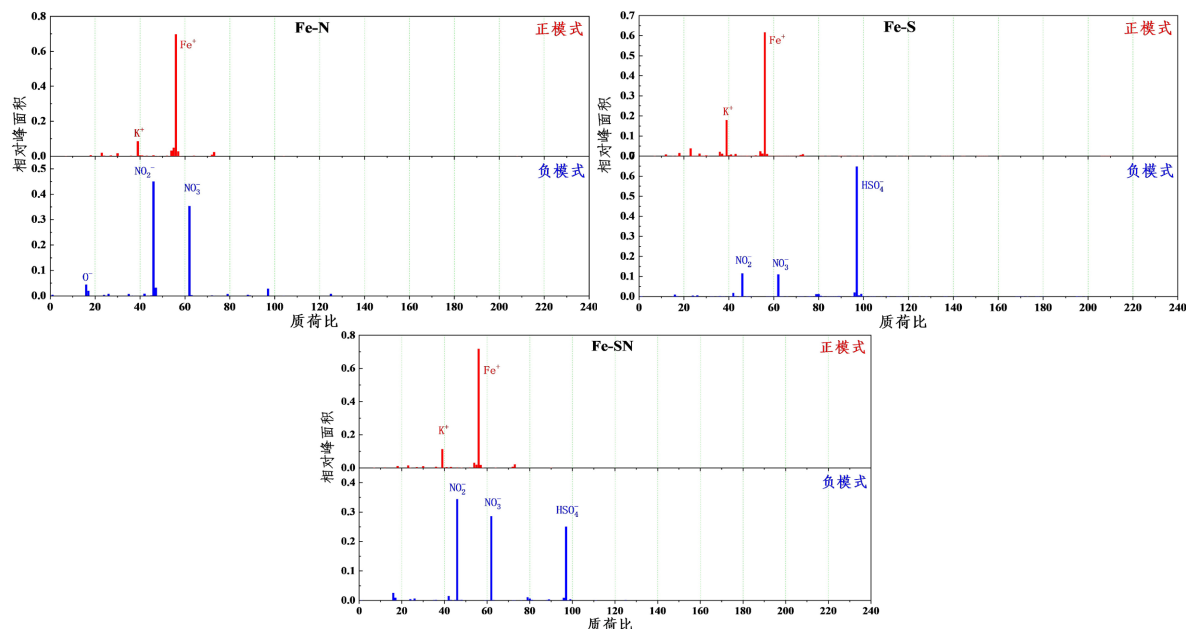


Figure 3. Average mass spectra of the seven classes of Fe-containing particles

图 3. 七类含铁颗粒的平均质谱图

### 3.3. 含铁颗粒组成及其粒径分布

图 4 显示的是不同类别含 Fe 颗粒占比的粒径分布。从含 Fe 颗粒总数的粒径分布可以看出, 含 Fe 颗粒粒径主要集中在  $0.5\sim 0.8\ \mu\text{m}$ 。Fe-BB 在小粒径范围( $0.2\sim 0.4\ \mu\text{m}$ )内占比较高, 平均占比为 12.8%; 在大粒径( $>1\ \mu\text{m}$ )也有一定的占比, 但分布不均匀, 其占比均小于 5.5%。这表明本研究区域小粒径的 Fe-BB 主要来自于一次排放, 同时大粒径也有一定的占比, 说明部分 Fe-BB 经历了老化过程。Fe-C 和 Fe-D 在小粒径段和大粒径段均出现贡献峰值。Fe-C 占比峰值粒径范围分别为  $0.1\sim 0.2\ \mu\text{m}$  和  $1.6\sim 1.7\ \mu\text{m}$ , Fe-D 占比峰值粒径分别为  $0.1\sim 0.2\ \mu\text{m}$  和  $1.8\sim 1.9\ \mu\text{m}$ , 说明两种类型既有一次排放颗粒, 同时也包含在大气传输中不断二次老化的颗粒。Fe-HM 和 Fe-SN 在小粒径段( $<0.5\ \mu\text{m}$ )占比较小, 在中粒径段( $0.5\sim 1\ \mu\text{m}$ )和大粒径段( $>1\ \mu\text{m}$ )占比较高且相对稳定, 分别在 18% 和 22% 左右。Fe-N 在各个粒径范围维持稳定的高占比, 占比在 34.5%~54.2% 范围之间。Fe-S 在含铁颗粒中贡献最小, 在  $0.4\sim 0.5\ \mu\text{m}$  粒径段占比最大(5.1%)。整体来看, 各个粒径段均由 Fe-N 占主要比例。在小粒径段, 次要占比含铁颗粒为 Fe-C、Fe-BB 以及 Fe-HM。在中粒径段和大粒径段, 次要占比含铁颗粒主要为 Fe-HM 或者 Fe-SN。

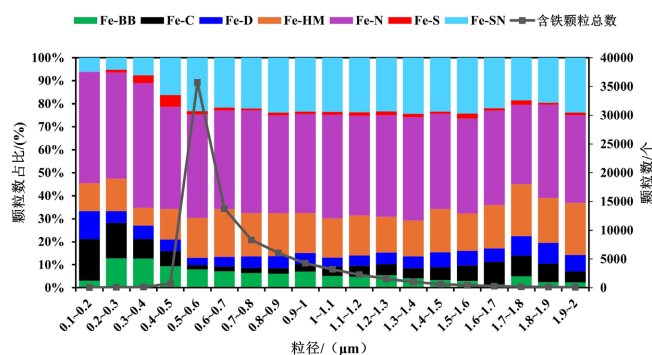


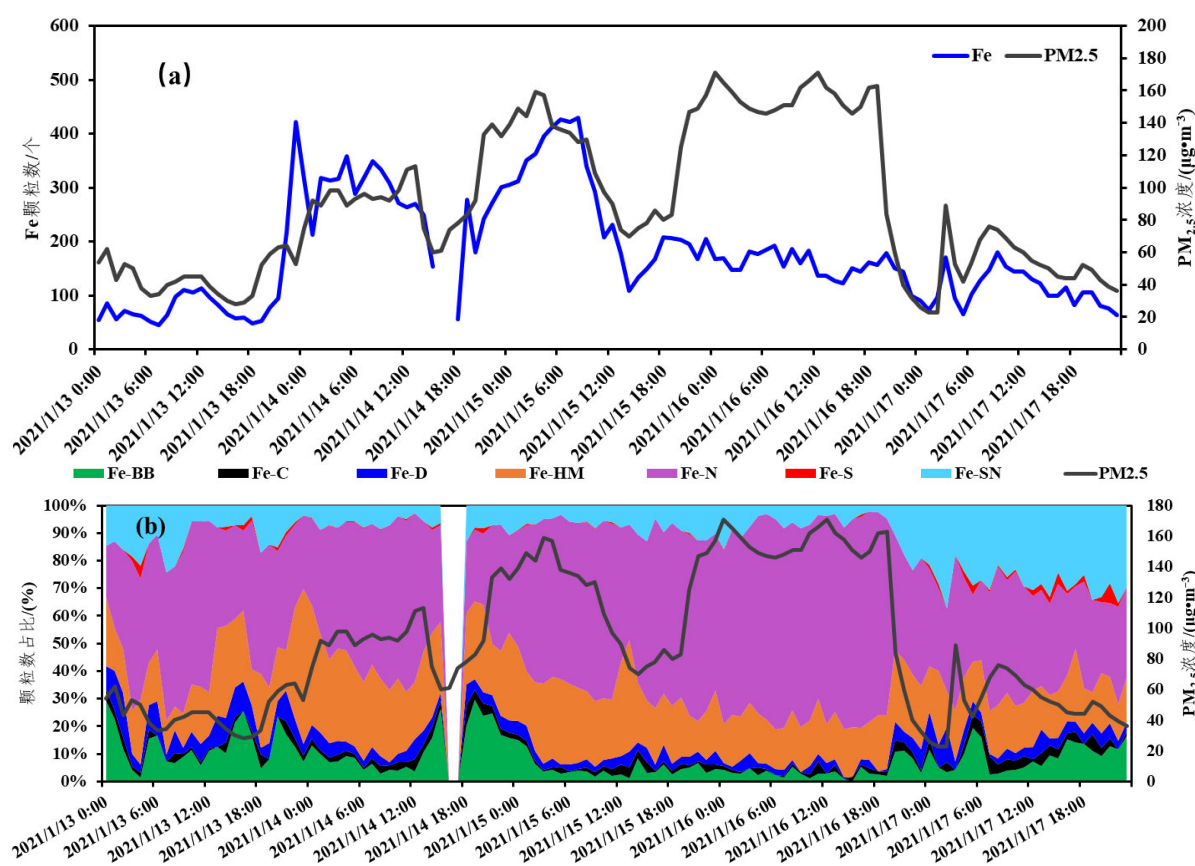
Figure 4. Number fraction-based size distribution of Fe-containing particle types and total Fe-containing particle number

图 4. 不同类别含铁颗粒占比和含铁颗粒总数的粒径分布

### 3.4. 一次重污染过程中含铁颗粒的特征分析

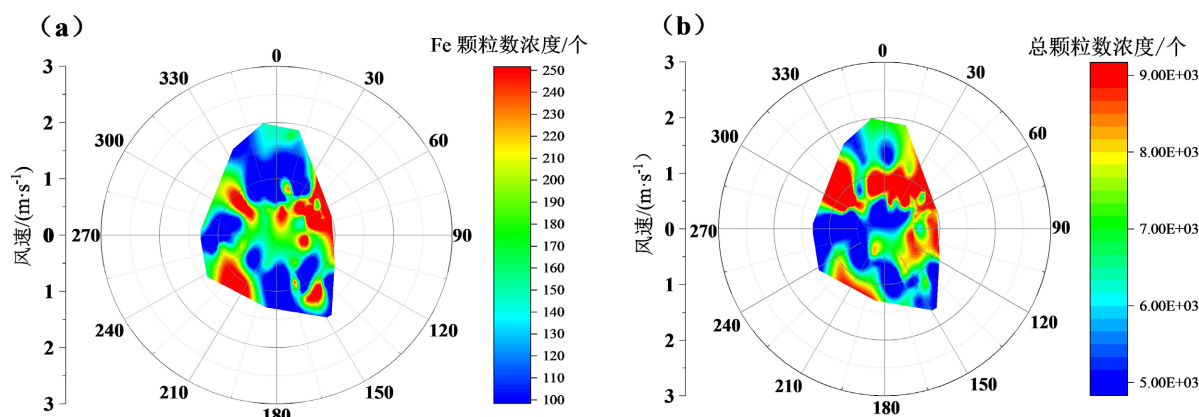
图 5(a)显示的是重污染事件过程中含 Fe 颗粒数浓度和  $PM_{2.5}$  浓度时间变化图, 由图可知, 污染前期和污染中期两者的一致性较好, 含 Fe 颗粒数浓度随  $PM_{2.5}$  浓度上升而升高, 表明含铁颗粒对污染前期和中期  $PM_{2.5}$  浓度升高有一定贡献。污染后期, 含 Fe 颗粒数浓度虽然随  $PM_{2.5}$  浓度上升而小幅度升高, 但明显不是颗粒物浓度上升的主要原因。从源解析的结果(如图 5(b))所示)来看, 污染前期和中期  $PM_{2.5}$  浓度升高过程中, 含铁颗粒组分中, 主要是 Fe-HM 和 Fe-N 这两类颗粒占比升高较为明显。由前文可知, Fe-HM 主要是机动车排放、煤炭燃烧、重油燃烧和各种工业过程中排放的含铁颗粒, Fe-N 是典型的二次转化的含铁颗粒物。因此, 在污染前期和中期, 可能机动车、煤炭燃烧、重油燃烧和工业过程是主要排放源, 同时二次转化加剧了污染的产生。从源解析结果的污染后期来看, Fe-N 这类颗粒在  $PM_{2.5}$  浓度升高过程中明显增大且是主要贡献组分, 占比高达 64.1%。前文提到含铁颗粒物在污染后期对污染贡献不明显, 但源解析结果表明 Fe-N 是主要贡献来源, 这些结果表明污染中前期污染以一次排放源为主, 污染后期二次组分如硝酸盐的形成是持续加剧的主要原因。

图 6 显示的是重污染事件过程中颗粒物数浓度随风速风向的变化图。可以看出, 含铁颗粒(图 6(a))数浓度高值和总颗粒数浓度高值主要分布在西北向、东北向、西南向等方位。站点偏北方向存在大型的工业企业, 西北面和西面与交通主干道不足 1 km, 因此, 推测含铁 Fe 颗粒高值主要受到站点偏北向的工业排放以及偏西向的道路排放(汽车刹车片磨损和柴油机燃烧等)的影响。



**Figure 5.** Time series of (a) number of Fe-containing particles and  $PM_{2.5}$  concentration, (b) Number fraction of Fe-containing particle types from 13 to 17 in January 2021

**图 5.** 2021 年 1 月 13 日~17 日(a) Fe 颗粒数浓度和  $PM_{2.5}$  浓度时间变化、(b) 不同类别含 Fe 颗粒占比时间变化



**Figure 6.** Relationship between number fraction of (a) Fe-containing particle, (b) total particle with wind from 13 to 17 in January 2021

**图 6.** 2021 年 1 月 13 日~17 日颗粒物数浓度与风的依赖关系: (a) 含 Fe 颗粒数、(b) 总颗粒数

#### 4. 结论

含铁颗粒的混合状态及化学特征研究对阐明其来源、演化和健康效应具有非常重要的意义, 然而目前对于广州地区的研究还较少。本研究在广州开展含铁颗粒的混合状态、组分特征和来源进行分析, 并重点探讨了重污染期间含铁颗粒的变化规律, 以下是主要结论:

(1) 广州市大气中含铁颗粒小时占比在 0.2%~6.7% 范围之间, 主要可以分为七大类: Fe-BB、Fe-C、Fe-D、Fe-HM、Fe-N、Fe-S、Fe-SN。其中, 以 Fe-N、Fe-SN 和 Fe-HM 这三类颗粒为主, 占比分别为 44.3%、22.6% 和 18.1%。

(2) 大部分含铁颗粒与二次无机离子尤其是硝酸盐混合, 表明大部分含铁颗粒经历了老化过程。此外, 部分含铁颗粒与生物质燃烧源特征离子有机氮( $^{26}\text{[CN]}^-$ 、 $^{42}\text{[CNO]}^-$ )、元素碳、沙尘特征组分( $^{40}\text{[Ca]}^+$ 和 $^{56}\text{[CaO]}^+/\text{[Fe]}^+$ )或重金属( $^{24}\text{[Mg]}^+$ 、 $^{27}\text{[Al]}^+$ 、 $^{48}\text{[Ti]}^+$ 、 $^{52}\text{[Cr]}^+$ 、 $^{55}\text{[Mn]}^+$ )混合。表明可能来自生物质燃烧源、机动车尾气源或工业排放源。

(3) 七类含铁颗粒中, Fe-BB 在小粒径段( $0.2\sim0.4\ \mu\text{m}$ )占比较高; Fe-C 和 Fe-D 在小粒径段和大粒径段( $>1\ \mu\text{m}$ )均出现峰值; Fe-HM 和 Fe-SN 在中粒径段( $0.5\sim1\ \mu\text{m}$ )和大粒径段占比较高且相对稳定; Fe-S 在  $0.4\sim0.5\ \mu\text{m}$  粒径段占比最大; Fe-N 在各粒径段占比较稳定, 无明显的粒径分布变化。

(4) 经研究发现, 采样期间发生的 1 次  $\text{PM}_{2.5}$  重污染过程中含铁颗粒主要受到采样点周围工业排放和道路排放影响。在重污染过程前期和中期,  $\text{PM}_{2.5}$  增加主要受到一次排放含铁颗粒的贡献, 伴随二次无机离子的生成。重污染过程后期, 主要受到含铁颗粒上二次形成的硝酸盐增多的影响。

#### 基金项目

本研究由国家重点研发计划(2023YFC3705502)资助。

#### 参考文献

- [1] Xiu, P. and Chai, F. (2021) Impact of Atmospheric Deposition on Carbon Export to the Deep Ocean in the Subtropical Northwest Pacific. *Geophysical Research Letters*, **48**, e2020GL089640. <https://doi.org/10.1029/2020gl089640>
- [2] Shi, J., Guan, Y., Ito, A., Gao, H., Yao, X., Baker, A.R., *et al.* (2020) High Production of Soluble Iron Promoted by Aerosol Acidification in Fog. *Geophysical Research Letters*, **47**, e2019GL086124. <https://doi.org/10.1029/2019gl086124>
- [3] 王玥, 张银晓, 齐冰, 等. 杭州市大气细颗粒物中铁溶解度的变化特征及影响因素[J]. 中国环境科学, 2023, 43(1): 115-121.



- [4] Schroth, A.W., Crusius, J., Sholkovitz, E.R. and Bostick, B.C. (2009) Iron Solubility Driven by Speciation in Dust Sources to the Ocean. *Nature Geoscience*, **2**, 337-340. <https://doi.org/10.1038/ngeo501>
- [5] 齐宇轩, 周杨. 大气气溶胶中的铁及其溶解度研究综述[J]. 海洋气象学报, 2021, 41(2): 1-13.
- [6] Zhang, G., Bi, X., Lou, S., Li, L., Wang, H., Wang, X., *et al.* (2014) Source and Mixing State of Iron-Containing Particles in Shanghai by Individual Particle Analysis. *Chemosphere*, **95**, 9-16. <https://doi.org/10.1016/j.chemosphere.2013.04.046>
- [7] Dall'Osto, M., Beddows, D.C.S., Harrison, R.M. and Onat, B. (2016) Fine Iron Aerosols Are Internally Mixed with Nitrate in the Urban European Atmosphere. *Environmental Science & Technology*, **50**, 4212-4220. <https://doi.org/10.1021/acs.est.6b01127>
- [8] Li, W., Xu, L., Liu, X., Zhang, J., Lin, Y., Yao, X., *et al.* (2017) Air Pollution-Aerosol Interactions Produce More Bioavailable Iron for Ocean Ecosystems. *Science Advances*, **3**, e1601749. <https://doi.org/10.1126/sciadv.1601749>
- [9] He, R., Zhang, J., Chen, L., Zhang, W. and Xi, Y. (2024) Characterization of Fe-Containing Particles in Chengdu, Southwest China, Using Single-Particle Aerosol Mass Spectrometry. *Journal of Environmental Sciences*, **136**, 110-120. <https://doi.org/10.1016/j.jes.2022.10.001>
- [10] Ma, S., Ren, K., Liu, X., Chen, L., Li, M., Li, X., *et al.* (2015) Production of Hydroxyl Radicals from Fe-Containing Fine Particles in Guangzhou, China. *Atmospheric Environment*, **123**, 72-78. <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2015.10.057>
- [11] Li, L., Huang, Z., Dong, J., Li, M., Gao, W., Nian, H., *et al.* (2011) Real Time Bipolar Time-Of-Flight Mass Spectrometer for Analyzing Single Aerosol Particles. *International Journal of Mass Spectrometry*, **303**, 118-124. <https://doi.org/10.1016/j.ijms.2011.01.017>
- [12] 谢芹惠, 苏柏江, 卓泽铭, 等. 基于 SPAMS 探究南京市秋季大气中含草酸重金属颗粒的混合状态[J]. 环境科学学报, 2022, 42(7): 73-83.