

沧海桑田

——中国的沙尘暴、气溶胶与全球生物地球化学循环

庄国顺

[作者简介]庄国顺 北京师范大学大气化学教授、博士生导师；留美博士，美国麻省州立大学研究教授；北京师范大学大气环境研究中心主任。从八十年代初期至今在美国长期从事大气环境化学主要是气溶胶颗粒物的研究。八十年代提出大气中的铁限制部分海区生产力的假设。九十年代初作为第一作者提出了全球生物地球化学循环中的硫铁耦合机理，并发表于“Nature”，引起国际同行的广泛注意。在包括“Nature”等国际一流杂志发表论文合计50多篇。近期相继承担国家自然科学基金会和北京自然科学基金会有关我国气溶胶沙尘暴问题的重点项目的研究，并已取得一系列重要成果，得到了基金会领导和国内外同行专家“国内最高水平和国际领先水平”的评价。

研究生物地球化学即研究大气圈、水圈、地圈、生物圈以及人类圈之间的生物地球化学平衡对于人类自身具有生死攸关的重大意义。地壳中的各种岩石在大气和水的长期作用下不断地形成了土壤。地球表层的土壤在包括雨水、河水、地下水的水圈的侵蚀和冲刷作用下不仅破坏了表层中包括生物圈在内的各种生态平衡，并经由河流等各种途径把土壤从一处搬迁到另一处，直至沉积于遥远的河口和海洋。大气的运动，即风，可把土壤以及沙石拔地而起，形成随时可见的气溶胶直至铺天盖地的沙尘暴，并经由大气中的水以及重力的作用，同样可把土壤从一处搬迁到另一处，直至沉积于遥远的河口和海洋。我国广阔的黄土高原巨厚的黄土即是在过去二百万年间由风力搬运我国西北沙漠及亚洲中纬度干旱区产生的沙尘堆积而成。我国的沙尘暴甚至可远征数千公里至一万公里以上，沉降于远离其来源的北太平洋，直接影响全球环境的变化。海洋沉积物经由长期的历史变迁，最后又形成为各种岩石，而后再演变成土壤，真所谓“沧海桑田”。这就是一幅全球生物地球化学循环的简要图像。

现代工业化无论是在发达国家还是在发

展中国家都伴生出大气质量的急剧恶化。大气环境酸化，臭氧层破坏以及温室效应等三大生态危机直接威胁着全人类的生存和发展，这其中的每一个问题都直接与大气污染有关。我国是个燃煤大国，年排放 SO_2 超过二千万吨，占世界总排量的1/4强。此数字引起不少国家和民众的关注。仅仅我国东南地区，年排放 SO_2 占全球人为源的11.6%，其形成的硫酸盐气溶胶占全球9%。我国所属海域上空的非海盐气溶胶约有81%~97%来自于我国大陆人为源的排放^[1]。我国约70%的谷物，由于气溶胶形成烟雾的影响，至少减产5%~30%^[2]。我国汽车交通事业的迅速现代化，即机动车的大量增加，不仅将造成我国大多数大中城市空气的严重污染，据预测对流层的臭氧浓度可能因之增加数十ppb，而且将对东亚及整个太平洋的海洋大气体系及整个大洋的初级生产力发生重要影响。硝酸盐在大洋表层水的沉降将使北太平洋表层水的碳生产力增加百分之几^[2]。最近的研究预计，我国约70%的谷物，由于气溶胶形成烟雾的影响，至少减产5.30%^[2]。大气中各种颗粒物包括沙尘暴形成的各种粒度的气溶胶成为当今大气环境问题的主要研究焦点。20世纪80年代以来，国际上对气溶胶的研究获得了飞速的进展。气溶胶远距离输送被认为是全球生物地球化学循环的重要途径之一，也成为研究全球环境变化及生态危机的重要领域。

1. 对远洋中许多元素和化合物的来源而言，大气传输是较之河流传送更为重要的途径

多少世纪以来，人们都认为河流是提供海洋中各种物质的最主要途径。对于近海领域这种认识也许是对的，但对于辽阔的远洋领域，人们知之甚少。只有在过去二三十年内，人们发现了海底热泉和海底火山，才得以了解海底也是海水中物质的来源之一。早在20世纪70年代人们发现大洋深海沉积物的许多重要成份来自于大气传输。太平洋上

空大气粉尘的矿物组成与太平洋深海沉积物十分相似^[3]。某些沙尘暴事件产生的大气颗粒物，甚至可在数千上万公里之外的阿拉斯加和夏威夷等遥远地区观测到。到了20世纪80年代初期，以Duce为首的大气科学家开始了大洋上空气溶胶的大尺度的调查研究。主要的有太平洋上空的海气交换研究项目(The Sea-Air Exchange, SEAREX)^[4]和大西洋上空的大气海洋化学实验(the Atmosphere-Ocean Chemistry Experiment, AEROCE)^[5]。通过这两个重大项目提供了两个大洋上空大气沙尘气溶胶的浓度、沉降速率及其时空分布的精确数据，人们发现了海洋中许多元素，如Pb, Al, V, Mn, Zn，以及某些碳氢化合物和某些有机合成化合物，大气远距离的传输都是比河流入海更为重要的途径。大陆干旱和半干旱地区，诸如我国西北地区的沙漠和黄土高原以及非洲的撒哈拉沙漠等地随风飘起的颗粒物是深海沉积物的重要来源。来自于我国西北部的沙尘经过1万公里以上的长途输送，沉降于北太平洋的广大地区。最近的报道指出，我国的沙尘暴已经输送到美洲大陆，并为遥感卫星的照片所证实^[6]。经估计，每年从中国传送到北太平洋地区的沙尘总量约为 $6 \sim 12 \times 10^6$ 吨^[7]。

2. 大气中的铁是某些大洋海区的最重要来源，且是某些海区生产力的限制因素

美国海洋科学家Martin^[8]1988年根据对东北太平洋中Fe元素的分布及Fe和其它营养元素如N, P在海水中的含量与海水中浮游生物的生产力的关系的研究，提出了铁是这一海区海洋生产力的限制因素的假设，被称为铁限制假设。Duce^[9]根据铁在气溶胶的含量在某些海区大气中的沙尘在海水中的溶解气溶胶含量的计算指出，在大洋中的许多地方大气中的铁可能是海洋表层水中的铁的主要来源。研究何种形态的铁可被海洋生物所利用至关重要，但至今并无定论^[10-11]。

一般认为只有可溶于水的铁才能为浮游生物所吸收。庄国顺等^[12]直接测定了北太平洋气溶胶样品中的铁在该地区海水中的可溶性(指实验上可通过 $0.4\ \mu\text{m}$ Nucleopore 滤膜的部分),发现大气中的铁在海水中的溶解亦有“饱和度”(10~17 $\text{nmol}\cdot\text{kg}^{-1}$)的限制,不过当海水中总铁浓度很低时($<2\ \text{nmol}\cdot\text{kg}^{-1}$),尽管三价铁在海水中的溶解度极低,仍有约50%的气溶胶铁可溶于海水。且此溶解过程在投入海水的几分钟内完成。此数据表明气溶胶中的铁在进入海水后沉降于深海之前便能为表层浮游生物所利用。据此推断,庄国顺等提出了在某些海区海水中的铁可能99%以上来自于大气中气溶胶在海洋中的沉降。不过,此处的“可溶性”并非分子水平的“溶解度”。Behra和Sigg^[13]报道了在瑞士 Zurich 收集的 pH 值为3~7的雾样中,Fe(II)占总铁的20%~90%。庄国顺等^[14]首次检测到北太平洋地区的远洋气溶胶中Fe(II)占总铁的 $56\% \pm 32\%$,在大西洋 Barbados 岛的样品中占 $49\% \pm 15\%$ 。在中国的西部的黄土中,Fe(II)占总铁量0.4%,而在西安的气溶胶中占5%,而当气溶胶传送到北太平洋上空,Fe(II)占总铁量的>55%。气溶胶从中国西北,内蒙古自治区,包括途经北京的途径,最后到达北太平洋中心以及美国西海岸,气溶胶的Fe(II)似乎在不断增加。这一组数据表明气溶胶的铁从Fe(III)变为Fe(II)的转化过程很可能是在气溶胶的长距离传输过程中发生。此反应机理会大大增强铁在海洋气溶胶及雨水中的溶解度,并最终提供给大洋表层海水中的浮游生物作为其所必需的营养物质^[14-16]。Martin^[17]通过对南大洋、赤道太平洋和近北极北太平洋地区的研究,进一步证明铁限制假说对以上重要地区也适用。Martin 建议如果增加这些地区铁的供应,将南大洋这些广阔地区的初级生产力大大提高,那么由于光合作用会大大增加海洋对大气中 CO_2 的吸收。海洋生物可利用的铁与海洋吸收二氧化碳的能力直接相关,进而与全球温室效应直接有关。这一假说的提出引起了全球科技界内外的普遍重视^[18-23]。由于海洋表层生产力的增加能够直接增加海洋对大气中 CO_2 的吸收,从而为解决全球温室效应提供了一条可供人们参考的思路。许多大洋海区的人工加铁实验证实了大气中的铁对海洋初级生产力的限制和决定性作用^[24, 25]。1996年美国科学家在赤道太平洋地区^[26],1999年欧美及澳大利亚、新西兰等国科学家^[27]一起在南大洋地区进行了中尺度的人为加铁实验,在一星期内



[图 1]2002 年 3 月 20 日北京特大沙尘暴街景

便引起了表层生产力的数倍增长,并从人造卫星的遥感照片中直接拍摄到该地区海洋表层水硅藻大量增长的彩色照片,从而证实了铁限制假说。最近的研究表明海水中的可溶性铁与海洋的固氮能力亦密切相关^[28-33]。目前这一假说已成为全球普遍注意的理论,并成为海洋大气科学家研究的热点。

3. 二甲基硫 (DMS) 和人为污染源产生的硫酸盐气溶胶及其降温效应

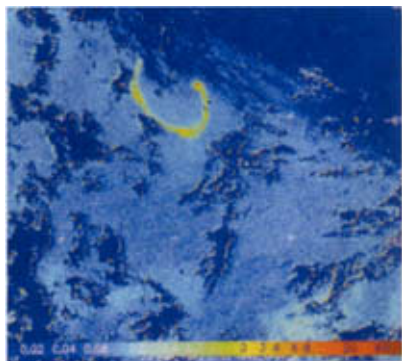
气溶胶的远距离输送不仅对大洋表层水生产力及深海沉积物有十分重要的影响,而且大气中的气溶胶通过其对太阳辐射的直接负强迫及通过气溶胶形成云凝结核 (CCN) 的能力而产生的间接负强迫对气候变化产生重大影响。硫酸盐气溶胶作为气溶胶的主要组成部分受到大气科学家的广泛关注,在遥远的大洋区域,海洋边界层中91%~95%的颗粒物是非海盐硫酸盐^[34]。对流层中的非海盐硫酸盐气溶胶来自于两个最主要来源,一是来自海洋表层生物产生的DMS, DMS排放到大气中经过一系列光氧化和化学氧化过程,其最终产物主要为非海洋硫酸盐气溶胶;二是来自陆地人为源,主要由燃煤和石油等矿物产生的 SO_2 ,再经过一系列光氧化和化学氧化过程而生成硫酸盐气溶胶^[35]。人为源产生的气溶胶量与海洋源甚至可以相比较。如在中国沿海由于具有高排放量 SO_2 ,人为源产生的硫酸盐气溶胶甚至高达81%~97%^[1]。

Charlson 等人^[36]根据海洋浮游植物产生的二甲基硫进入大气被氧化成 SO_2 ,进而又被氧化为 SO_4^{2-} ,成为气溶胶的主要来源,

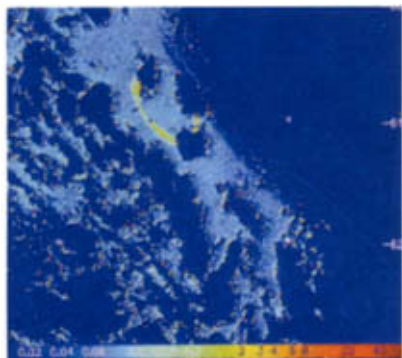
提出了海洋浮游植物减少太阳辐射的反馈模式。继之,90年代初,Charlson^[37]及其它不少人^[38]对现代工业排出的 SO_2 形成的硫酸盐气溶胶提出了同样的模式,并认为人为源产生的硫酸盐是大气中气溶胶的主要部分,硫酸盐气溶胶的增加,既增加了云量又增加了成云的凝结核,导致云层反射率的增加,其对太阳辐射的负强迫将对全球产生降温效应。但在全球平均意义上其作用与温室效应相比较小,且在时间和空间上有差异。

4. 大气中硫铁氧化还原耦合原理

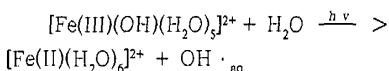
如上所述,铁的远距离输送是大洋中某些海区生产力的限制因素。引起广泛兴趣的不仅在于长距离传输而来的陆地沙尘即矿物气溶胶是许多海区铁的主要来源和海洋生产力的限制因素^[39-43],而且在于气溶胶中Fe(III)的光解是云、雾及雨水中产生 $\text{OH}\cdot$ 自由基的重要来源^[44]。Fe(III)光解产生的 $\text{OH}\cdot$ 自由基是大气中低价含硫化合物如二甲基硫(DMS)变成S(IV)和 SO_2 生成硫酸盐的主要氧化剂。于是同是生物体重要成分的铁和硫在大气中借着 $\text{OH}\cdot$ 自由基又紧密相关。庄国顺等人发现了相当多地区的雨水、云层水及气溶胶中存在着高浓度的二价铁^[45],比较了大量实测数据并在实验室模拟研究的基础上于1992年在“Nature”发表论文^[44],最先提出了硫铁氧化还原耦合的全球循环模式,揭示了硫和铁的生物地球化学循环及其可能的连锁循环反馈的模式,引起国际上的广泛注意^[46-47]。Fe(III)的光还原被认为是云层、雾和雨水中产生氢氧根自由基 $\text{OH}\cdot$ 的主要来源^[44]



[图 2(a)] 1999 年在南大洋地区进行了中尺度的人为加铁实验,在一星期内便引起了表层生产力的数倍增长,并从人造卫星的遥感照片中直接拍摄到该地区海洋表层水硅藻大量增长(图中黄色圆圈)的彩色照片,从而证实了铁限制假说。



[图 2(b)] 1999 年在南大洋地区进行了中尺度的人为加铁实验,在一星期内便引起了表层生产力的数倍增长,并从人造卫星的遥感照片中直接拍摄到该地区海洋表层水硅藻大量增长(图中黄色圆圈)的彩色照片,从而证实了铁限制假说。



OH^- 的产生直接催化氧化了 SO_2 和海水相中的 HSO_3^- , 产生 SO_4^{2-} 。由于 Fe(II) 在海水中溶解度远大于 Fe(III) , 这一发现对于揭示大气中的铁被海水中生物吸收的机制十分重要。根据硫铁耦合机理, 气溶胶以及大气云层水中的四价硫 S(IV) 可能被其中的三价铁 Fe(III) 或直接氧化或光氧化或催化氧化, 生成六价硫的硫酸盐气溶胶, 而三价铁 Fe(III) 则被还原成二价铁 Fe(II) 。我国西北部沙漠及黄土高原所产生大量气溶胶含有大量三价铁 Fe(III) , 随着硫酸盐气溶胶的增加, 从我国大陆上空远距离输送到太平洋的包括地壳源及人为源的气溶胶中对海洋表层生物有决定意义的可为之吸收的二价铁也随之增加。因之海洋表层的浮游生物即初级生产力也随之增加。海洋大气生态体系的这一变化, 会立即反馈到其生物地球化学

循环之中。浮游生物的增加导致 DMS 排放量的增加。 DMS 的增加又导致海洋大气中硫酸盐气溶胶的增加。硫酸盐气溶胶的增加又导致生物所必需的二价铁的增加, 如此反复循环不已。加上海洋生物的增加又导致海洋对 CO_2 吸收量的增加, 这就直接影响了全球气候变化。此连锁循环反馈可能对全球气候和环境变化有重要影响。生态体系尺度的现场海区实验证实了海洋浮游生物排出的二甲基硫对添加生物可利用铁的直接响应^[46]。这些中、大尺度的现场实验结果提供了铁硫耦合反馈机制假设的论据。近年来一些学者的研究进一步指出, 某些有机物 (如 $\text{H}_2\text{C}_2\text{O}_4$ 、 HCHO) 的存在如能与不同价态的铁和硫生成络合物, 对 S(IV) 的氧化过程会有阻碍、屏蔽或加速作用^[46]。

5. 中国气溶胶的长距离输送对太平洋乃至全球环境变化的影响

中国西北部的沙漠和黄土高原是太平洋上空气溶胶的来源。从 20 世纪 80 年代初开始, 以 Duce 为首的大气科学家在太平洋的许多小岛设网络取样站, 开始了 SEAREX 这一大规模的海气交换研究。根据卫星传送的各地气象资料进行的气溶胶传输轨迹追踪分析, 清楚地证明北太平洋上空的气溶胶来自中国中西部的沙漠和黄土高原。1986 年 4 月 15 日在太平洋中的小岛 Oahu 北面附近收得的气溶胶, 来自于 4 月 8 日中国中西部的沙漠和黄土高原地区。气溶胶的传输途径位于对流层的中上部即在海拔 4~6 公里高度。这一运动轨迹是气溶胶从亚洲传输到太平洋的典型运动轨迹。气溶胶从中国传输到太平洋海岛上 (如 Midway 或 Oahu) 一般需要 5~10 天。

6. 太平洋上空沙尘沉降与太平洋海水组分及深海沉积物组分的关系

太平洋上空沙尘的沉降与太平洋表层水及其下层水以及海底沉积物中非生物所产生的矿物质直接相关。海水中矿物质的浓度随着大洋上空沙尘浓度升高而升高。海水中矿物质下沉的速率, 如在北太平洋的夏威夷东部^[50] ($500 \text{ mg m}^{-2} \text{ yr}^{-1}$) 和在北太平洋的 Aleutian 岛附近^[51] ($1000 \sim 2000 \text{ mg m}^{-2} \text{ yr}^{-1}$), 与该地区附近的 Midway 和 Oahu 测定的大气沉降速率^[50] ($600 \text{ mg m}^{-2} \text{ yr}^{-1}$, $420 \text{ mg m}^{-2} \text{ yr}^{-1}$) 处于可相比较的同一数量级范围。同样在这一地区某一沙尘小高峰期间的最初两天所测定沉降速率 ($0.30 \sim 0.56 \text{ mg m}^{-2} \text{ d}^{-1}$) 与在同一地区海水中 37

米深处所测定的矿物质下降速率 ($0.45 \text{ mg m}^{-2} \text{ d}^{-1}$) 甚为近似^[53]。中太平洋上空的气溶胶的沉降速率 (估算值^[7] $6 \sim 12 \times 10^{12} \text{ g yr}^{-1}$; 测定值^[54] $20 \times 10^{12} \text{ g yr}^{-1}$) 约占这一地区所估算的沉积物的沉积速率的 75%~95%^[3]。从西太平洋海底收集的沉积物的组成与长距离传送进入太平洋的中国及亚洲的气溶胶的组成非常相似^[3]。所有这些数据表明, 来自中国及亚洲的气溶胶是太平洋海水中矿物质及海底沉积物的最主要来源。

7. 中国的沙尘暴对北太平洋乃至全球环境变化的影响

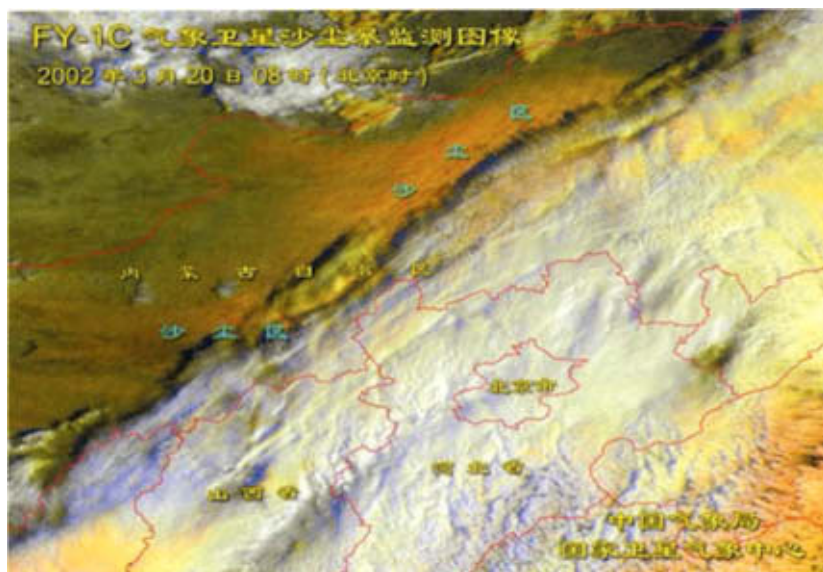
在远洋气溶胶中, 铝的含量约占来自沙尘的矿物质的 8%。根据这一比例推算气溶胶的总质量浓度。太平洋的气溶胶浓度的分布可分为五个区域^[55]。第一区域是高浓度区, 位于高纬度的北太平洋, 春天来自中国的沙尘暴形成了这一区域的沙尘高峰, 秋天的浓度次之, 冬夏最低; 第二区域是赤道太平洋地区, 全年期间都是低浓度, 偶尔在春天期间由于中国的沙尘暴而形成的沙尘高峰可到达这一区域; 第三区域是中心南太平洋, 这一区域浓度很低, 少量沙尘从北太平洋进入南太平洋; 第四区域是位于澳大利亚附近的西南太平洋地区, 这一区域可观测到浓度随季节而变化的来自于澳大利亚沙漠的中高浓度的沙尘; 第五区域是高纬度区域的南大洋以及南极洲沿岸地区, 这一区域气溶胶浓度极低, 来自中国亚洲的沙尘气溶胶的影响, 远远大于来自澳大利亚沙漠的沙尘。

气溶胶最终沉降于大洋。在高浓度及高雨量期间, 其沉降量最大。约 80% 的气溶胶由湿沉降 (如雨水冲刷) 进入大洋。由于高纬度区域低雨量, 而低纬度的赤道区域虽雨量高而气溶胶含量低, 导致气溶胶在整个大洋的沉降空间分布较为均匀。但是太平洋上的气溶胶的浓度及雨量时间分布均具有极大的事件脉冲特性, 导致气溶胶的年沉积量的很大部分常常是在很短时间由几个重大沙尘事件所完成。数据表明在 Midway 岛上年沙尘沉降量的约一半发生于两星期内。由于取样是以一个星期为周期, 若每天取样, 在 Midway 和太平洋上其它岛屿的结果表明, 每年沙尘高峰只有 2~4 天。太平洋上的绝大部分沙尘沉降发生在仅仅几天时间。这一结果表明中国的沙尘暴虽然每年只是短短的几次或短短的几天, 但对太平洋的沙尘沉降总量以至全球的生态变化有着至关重要的影响。由于大风发生和地表裸露时间的耦合, 我国黄土高原疏松的黄土、西北地区 and 内蒙

古地区干旱及半干旱地区的荒漠成为我国沙尘暴的主要源地。人类所谓“征服”自然的不合理社会活动导致地表荒漠化的急剧扩展,成为沙尘暴产生及其频率增加的重要因素。铺天盖地而来的沙尘,加之燃煤产生的二氧化硫和迅速增长的机动车排放的尾气,使北京地区的大气污染犹如雪上加霜,迅速进入世界十大污染城市之列。沙尘暴不仅横扫我国华北和部分华东地区的城市和乡村,甚至远征数千公里至一万公里以上,沉降于远离其来源的北太平洋。来自我国和亚洲的沙漠的沙尘,约有一半最后被输送到中国海区乃至遥远的北太平洋^[56]。庄国顺等人对我国去年沙尘暴作了深入研究,有以下重要发现^[57, 58]: (1) 沙尘暴中所增加的污染物主要来自于沙尘暴所经过地区的二次扬尘,以及二次形成的硫酸盐气溶胶和有机物气溶胶及其表面发生的多相反应,如对痕量污染元素的表面吸附或液相结合。(2) 沙尘暴气溶胶在其长距离传输过程中,既输送比常日气溶胶高达数十倍的痕量污染元素,同时又输送比常日气溶胶高得多的Fe(II),以及高出数十倍的尚未被还原的Fe(III)。这些细粒子即便在沙尘暴气候结束后的若干天内,还能滞留于大气中,进而传输到数百上千甚至上万公里之外。每年的沙尘暴期间虽短,但其浓度比平时高数十倍,其输送至北太平洋地区的气溶胶量却占据全年输送量的绝大部分。由此可见我国的沙尘暴不仅会对局部地区,如北京的气候以至人们的身体健康带来重大影响,而且会对全球气候变化带来重大影响。深入研究我国沙尘暴的成因和转化机制及其最后归宿,不仅是促进我国经济发展和改善人们生活质量的急需,也是正视全球生态危机和全球环境变化问题的急需。包括沙尘暴在内的气溶胶对全球气候变化起着重大作用。■

参 考 文 献

- Gao, Y. et al. Atmospheric non-sea-salt sulfate, nitrate and methanesulfonate over the China Sea. *J. Geophys. Res.*, [Atmos.], 1996, 101(D7): 12601-12611.
- Elliott, S. et al. Motorization of China implies changes in Pacific air chemistry and primary production, *Geophysical Research Letters*, 1997, 24: 2671-2674.
- Blank, M. M. et al. Major Asian aeolian inputs indicated by the mineralogy of aerosols and sediments in the western North Pacific, *Nature*, 1985, 314: 84-86.
- Prospero, J. M. et al. Mineral aerosol transport to the Pacific Ocean, p188-218, In J. P. Riley et al. [eds.], *Chemical Oceanography*, 1989, Vol. 10 Academic Press.
- Arimoto, R. et al. Trace elements in aerosol particles from Bermuda and Barbados: concentrations, sources and relationships to aerosol sulfate, *J. Atmos. Chem.*, 1992, 14(1-4): 439-457.
- Reggie Royston, China's Dust Storms Raise Fears of Impending Catastrophe, *National Geographic News*, USA, 2001, 1.
- Uematsu, M. et al. Transport of mineral aerosol from Asia over the North Pacific Ocean, *J. geophys. Res.*, 1983, 88: 5343-5352.
- Martin, J. H. et al. Iron deficiency limits phytoplankton growth in the north-east Pacific subarctic, *Nature*, 1988, 331: 341-343.
- Duce, R. A. The impact of atmospheric nitrogen, phosphorus, and iron species on marine biological productivity, p497-529, In P. Buat-Menard [Ed.], *The role of air-sea exchange in geochemical cycling*, Reidel Press, 1986.
- Saydam, A. C., Senyuva, H. Z., Deserts: Can they be the potential suppliers of bioavailable iron? *Geophysical Research Letters*, 2002, 29(11), 19/1-19/3.
- Jickells, T. D., Spokes, L. J., IUPAC Series on Analytical and Physical Chemistry of Environmental Systems, 2001, 7(Biogeochemistry of Iron in Seawater), 85-121.
- Zhuang, G., Duce, R. A., and Kester, D. R., The dissolution of atmospheric iron in the surface seawater of the open ocean, *J. Geophys. Res.*, 1990, 95, 16207-16216.
- Behra, P., and Sigg, L., Evidence for redox cycling of iron in atmospheric water droplets, *Nature*, 1990, 344, 419-421.
- Zhuang, G. et al. Link between iron and sulfur cycles suggested by detection of iron(II) in remote marine aerosols, *Nature*, 1992, 355 (6360): 537-539.
- Zhuang, G. et al. Chemistry of iron in marine aerosols, *Global Biogeochemical Cycles* 1992, 6(2): 161-173.
- Zhuang, G. et al. The adsorption of dissolved iron on marine aerosol particles in surface waters of the open ocean. *Deep-Sea Res.*, Part I 1993, 40(7): 1413-1429.
- Martin, J. H. et al. Testing the iron in ecosystems of the equatorial Pacific Ocean, *Nature*, 1994, 371: 123-129.
- Ridgwell, A. J., Maslin, M. A., and Watson, A. J., Reduced effectiveness of terrestrial carbon sequestration due to an antagonistic response of ocean productivity, *Geophysical Research Letters*, 2002, 29(6), 19/1-19/4.
- Lefevre, N. and Watson, A. J., Modeling the geochemical cycle of iron in the oceans and its impact on atmospheric CO₂ concentrations, *Global Biogeochemical Cycles*, 1999, 13(3), 727-736.
- Watson, A. J., Iron in the oceans: influences on biology, geochemistry and climate. *Progress in Environmental Science*, 1999, 1(4), 345-370.
- Watson, A. J., Bakker, D. C., Ridgwell A. J., et al., Effect of iron supply on Southern Ocean CO₂ uptake and implications for glacial atmospheric CO₂, *Nature*, 2000, 407 (6805), 730-733.
- Cooper, D. J., Watson, A. J., and Nightingale, P. D., Large decrease in ocean-surface CO₂ fugacity in response to in situ iron fertilization, *Nature*, 1996, 383(6600), 511-513.
- Watson, A. J., Law, C. S., Van Scoy, K. A., et al. Minimal effect of iron fertilization on sea-surface carbon dioxide concentrations, *Nature*, 1994, 371(6493), 143-145.
- Gervais, F., Riebesell, U., Gorbunov, M. Y., et al., Changes in primary productivity and chlorophyll a in response to iron fertilization in the southern polar frontal zone. *Limnology and Oceanography*, 2002, 47(5), 1324-1335.
- Hall, J. A., Safi, K., The impact of in situ Fe fertilisation on the microbial food web in the Southern Ocean, *Deep-Sea Research, Part II: Topical Studies in Oceanography*, 2001, 48(11-12), 2591-2613.
- Coale, K. H. et al. A massive phytoplankton bloom induced by an ecosystem-scale iron fertilization experiment in the equatorial Pacific Ocean, *Nature*, 1996, 383: 495-501.
- Boyd, P. W. et al. A mesoscale phytoplankton bloom in the polar Southern Ocean stimulated by iron fertilization, *Nature*, 2000, 407: 695-699.
- Chu, S., Elliott, S., Maltrod, M. E., Global eddy permitting simulations of surface ocean nitrogen, iron, sulfur cycling, *Chemosphere*, 2003, 50(2), 223-235.
- Ganeshram, R. S., Pedersen, T. F., Calvert, S. E., et al., Reduced nitrogen fixation in the glacial ocean inferred from changes in



2002年3月20日气象卫星沙尘暴气象监测图像

marine nitrogen and phosphorus inventories, *Nature*, 2002, 415(6868), 156–159.

30 Milligan, A. J., Harrison, P. J., Effects of non-steady-state iron limitation on nitrogen assimilatory enzymes in the marine diatom *Thalassiosira weissflogii* (Bacillariophyceae). *Journal of Phycology*, 2000, 36(1), 78–86.

31 Berman-Frank, I., Cullen, J. T., Shaked, Y., et al. Iron availability, cellular iron quotas, and nitrogen fixation in *Trichodesmium*, *Limnology and Oceanography*, 2001, 46(6), 1249–1260.

32 Cullen, J. J., *Oceanography: Iron, nitrogen and phosphorus in the ocean*, *Nature*, 1999, 402(6760), 372.

33 Lenes, J. M., Darrow, B. P., Catrall, C., et al., Iron fertilization and the *Trichodesmium* response on the West Florida shelf, *Limnology and Oceanography*, 2001, 46(6), 1261–1277.

34 Fitzgerald, J. W. Marine aerosols: A review, *Atmos. Environ.*, 1991, 25: 533–545.

35 Galloway, J. N. Sulfur in the western North Atlantic Ocean atmosphere: Results from a summer 1998 ship/aircraft experiment, *Global Biogeochemical Cycles*, 1990, 4:349–365.

36 Charlson, R. J. et al. A climate feedback loop of sulfate aerosols, *Nature*, 1987, 326: 655–661.

37 Charlson, R. J. Climate forcing by anthropogenic aerosols, *Science*, 1992, 255: 423–430.

38 Schwartz, S. E. The whitehouse ef-

fect—shortwave radiative forcing of climate by anthropogenic aerosols: An overview, *J. Aerosol. Science*, 1996, 27: 359–382.

39 Saydam, A. C., Senyuva, H. Z., Deserts: Can they be the potential suppliers of bioavailable iron? *Geophysical Research Letters*, 2002, 29(11), 19/1–19/3.

40 Jickells, T. D., Spokes, L. J., IUPAC Series on Analytical and Physical Chemistry of Environmental Systems, 2001, 7(Biogeochemistry of Iron in Seawater), 85–121.

41 Johnson, K. S., Iron supply and demand in the upper ocean: is extraterrestrial dust a significant source of bioavailable iron? *Global Biogeochemical Cycles*, 2001, 15(1), 61–63.

42 Bishop, J. K. B., Davis, R. E., Sherman, J. T., Robotic Observations of Dust Storm Enhancement of Carbon Biomass in the North Pacific, *Science*, 2002, 298(5594), 817–821.

43 Duce R. A., The impact of atmosphere nitrogen, phosphorus, and iron species on marine biological productivity, in *The Role of Air–Sea Exchange in Geochemical Cycling*, edited by P. Buat-Menard, 1986, pp. 497–529, D. Reidel, Dordrecht, Holland.

44 Faust, B. C. et al. Photolysis of Fe(III)–hydroxy complexes as sources of OH radicals in cloud, fog and rain, *Atmospheric Environment*, 1990, 24: 79–89.

45 Zhuang, G. et al. Iron(II) in rainwater, snow, and surface seawater from a coastal environment. *Mar. Chem.* 1995, 50(1–4):41–50.

46 Uematsu, M. Influence of aerosols origi-

nated from the Asian continent to the marine environment. A view from biogeochemical cycles, *Eurozoru Kenkyu* (in Japanese), 1999, 14(3): 209–213.

47 Warneck, P., *Chemistry of the natural atmosphere*, 2nd edition, 2000, 499–502, Academic Press, New York.

48 Turner, S. M., Nightingale, P. D., Spokes, L. J., et al., Increased dimethyl sulfide concentrations in sea water from in situ iron enrichment, *Nature*, 1996, 383(6600), 513–517.

49 Faust, B. C. et al. Sunlight-initiated partial inhibition of the dissolved Iron(III)–catalyzed oxidation of S(IV) species by molecular oxygen in aqueous solution, *Atmospheric Environment*, 1994, 28: 745–749.

50 Honjo, S. et al. Sedimentation of Lithogenic particles in the deep ocean, *Mar. Geol.*, 1982, 50: 199–220.

51 Tsunogai, S. et al., Sediment trap experiment in the northern North Pacific: Undulation of settling particles, *Geochem. J.*, 1982, 16: 129–147.

52 Uematsu, M. et al. Deposition of atmospheric mineral particles in the North Pacific Ocean, *J. Atmos. Chem.*, 1985, 3: 123–138.

53 Betzer, P. R. et al. A pulse of Asian dust to the central North Pacific: Long range transport of giant mineral aerosol particles, *Nature*, 1988, 336: 568–570.

54 Uematsu, M. et al. Short-term temporal variability of aeolian particles in surface waters of the northwestern North Pacific, *J. geophys. Res.*, 1985, 90: 1167–1172.

55 Duce, R. A. et al. Atmospheric transport of iron and its deposition in the ocean, *Limnol. Oceanogr.*, 1991, 36: 1715–1726.

56 Zhang, X. Y. et al. An, Z. S., Dust emission from Chinese desert sources linked to variations in atmospheric circulation. *J. Geophys. Res.*, [Atmos.], 1997, 102(D23): 28041–28047.

57 Zhuang, G. et al. The compositions, sources, and size distribution of the dust storm from China in spring of 2000 and its impact on the global environment, *China Science Bulletin*, 2001, 46(1): 895–901.

庄国顺, 郭敬华, 袁蕙, 赵承易, 2000年我国沙尘暴的组成、来源、粒径分布及其对全球环境的影响, *科学通报*, 2001, 46(1): 191–197.