

中国海洋上空细粒子气溶胶与短寿命痕量气体的时空关系

徐彬仁¹, 魏媛媛^{2,3}, 张晗¹, 宋毅¹, 杨支中¹

1. 北京航天宏图信息技术股份有限公司, 北京 100195;

2. 中国科学院遥感与数字地球研究所, 北京 100101;

3. 中国科学院大学, 北京 100049

摘要: 定量分析气溶胶与痕量气体之间的时空变化关系有助于进一步研究气粒转化。本文采用2006年—2015年MODIS气溶胶光学厚度(AOD)、细粒子模态比(FMF)和OMI痕量气体(SO₂、NO₂和HCHO)数据,对黄海、东海和南海区域上空的细粒子气溶胶与痕量气体进行定量分析。先对气溶胶和痕量气体作均值分析发现:AOD_{fine}、SO₂、NO₂和HCHO的均值在黄海、南海、东海均依次减小;再对气溶胶对痕量气体的敏感度分析发现:黄海地区的AOD_{fine}对SO₂最敏感,敏感度为0.424,这与中国东部沿海城市的人为排放有关;而东海和南海地区对HCHO的敏感度较高,依次为0.664和0.545,主要受东南亚和中国南方地区生物质燃烧影响。最后,对3个区域的气溶胶与痕量气体按季节作相关性分析发现:黄海地区AOD_{fine}在夏秋两季与SO₂的相关性较强($R>0.5$),主要由于夏秋两季的温湿度大,利于发生气—粒转化;东海地区夏季HCHO与AOD_{fine}相关性较明显($R=0.57$);南海春季HCHO与AOD_{fine}相关性较好($R=0.57$),呈现出区域与季节性的变化。最终发现,气溶胶与痕量气体随着时空变化存在相关关系。

关键词: 遥感, 人为排放, AOD_{fine}, 气溶胶, 痕量气体, 中国海域, 时空变化

引用格式: 徐彬仁,魏媛媛,张晗,宋毅,杨支中.2020.中国海洋上空细粒子气溶胶与短寿命痕量气体的时空关系.遥感学报,24(2): 173–181

Xu B R, Wei Y Y, Zhang H, Song Y and Yang Z Z. 2020. Temporal and spatial relationship between fine particle aerosols and short-lived trace gas in Chinese ocean. *Journal of Remote Sensing (Chinese)*, 24(2): 173–181 [DOI: 10.11834/jrs.20208231]

1 引言

大气气溶胶在改变全球能量收支平衡、云的属性、影响降雨频率和大气环流方面起着重要的作用(Lohmann和Feichter, 2005),研究气溶胶的空间分布、微物理特性、长期的变化情况以及对气候的影响,有助于进一步了解气溶胶的上述影响机制(Itahashi等, 2012)。人为气溶胶主要来源于工业生产、火力发电厂、交通运输和生物质燃烧;自然气溶胶主要来源于沙漠扬尘、海水泡沫蒸发、生物源排放、火山喷发和生物质燃烧。总之,由于大气对流、湍流和运输,这些气溶胶形成了以沙尘、海盐、烟尘、硫酸盐、硝酸盐和有机物气溶胶为主的复合型混合物(Veeffkind

等, 2011)。为了更好地了解气溶胶对气候变化的影响,需要进一步了解气溶胶的组成,气体前体物的排放和气溶胶排放之间的复杂关系。

卫星观测除了可以获取气溶胶的信息外,还可以获取对流层二氧化氮(NO₂)垂直柱密度、甲醛(HCHO)和二氧化硫(SO₂)。对流层中的NO₂主要来自人为排放,例如化石燃料燃烧和生物质燃烧(姚凌等, 2012)。NO₂的寿命在低对流层中主要依赖于温度,在夏季只有几小时,而在冬季可以达到一天。除了硝酸盐气溶胶的气体前体物之外,对流层NO₂也是燃烧过程排放的良好指标(Veeffkind等, 2011)。HCHO是大气中最丰富的碳氢化合物之一,是非甲烷挥发性有机化合物(NMVOC)排放的重要指标,且非甲烷挥发性有机化合物排放是

收稿日期: 2018-05-30; 预印本: 2018-09-19

第一作者简介: 徐彬仁,1990年生,男,硕士研究生,研究方向为大气遥感。E-mail: xubr@radi.ac.cn

二次有机气溶胶 (SOA) 的前体物。虽然 HCHO 是生物质燃烧和化石燃料燃烧的主要产物, 但主要的全球来源是甲烷和非甲烷碳氢化合物的光化学氧化 (De Smedt 等, 2008)。HCHO 在低对流层的寿命是 1.5—4 h (Veefkind 等, 2011)。SO₂ 气体是硫酸盐气溶胶的前体物, 主要来自人为排放和火山喷发, 其寿命通常为半小时到几天不等 (Dickerson 等, 2007; 高一博 等, 2016)。

历史数据显示, 在北美和欧洲地区, 硫排放量与 AOD 变化趋势较一致, 从 20 世纪 80 年代初期开始由于当地强制控制污染气体的排放, 硫排放量和 AOD 都呈现下降趋势 (Streets 等, 2006)。东亚地区的硫排放主要来源于化石燃料的燃烧, 大多数 SO₂ 排放源自煤炭燃烧 (68%), 而中国这一数字高达 85% (Ohara 等, 2007)。过去 30 年里, 东亚地区人为 SO₂ 排放量随着经济的增长而迅速增加。尤其从 2000 年—2005 年, 中国的人为 SO₂ 排放量从每年 28 Mt 到每年 51 Mt, 年增长率为 12.7% (Ohara 等, 2007)。在这种情况下, 全球模型模拟实验和地表太阳辐射观测实验显示, 东亚地区的 AOD 从 1980 年—2006 年也呈增加趋势 (Streets 等, 2009)。在中国东北地区, NO₂、SO₂、HCHO 以及 AOD 的浓度高, 并且空间分布上显示出良好的相关性。对于中国四川盆地而言, AOD、SO₂ 和 HCHO 浓度高, 但 NO₂ 比中国工业化的东北地区低的多。在中国中部和南部, 远离主要的工业地区, AOD 主要与 HCHO 相关性较好, 而与 NO₂ 和 SO₂ 浓度低 (Veefkind 等, 2011)。

人为气溶胶是细粒子主导的大气颗粒物, 主要成分以可溶性无机盐 (以 SO₂、NO_x 气粒转化生成的二次气溶胶), 黑炭 (BC, 主要由不完全燃烧产生), 有机碳 (OC, 甲醛等 VOC 形成 SOA、生物质燃烧等) 为主 (Xie 等, 2017), 其在粗模态中较少, 因此, 本文认为相比于总气溶胶光学厚度, 细粒子光学厚度和痕量气体的关系更加密切。Remer 等 (2008) 指出, 海洋产品本身包含比陆地产品更多的信息内容, 其中海洋上细粒子模态比 (FMF) 比陆地更精确 (张莹和李正强, 2013; Zhang 和 Li, 2015)。由于春季东亚地区沙尘气溶胶占主导地位, 为了避免这种粗模态粒子给气体与气溶胶分析带来的不确定性 (Itahashi 等, 2012), 本研究基于 A-Train 卫星观测数据分析了 2006 年—2015 年中国海域 AOD_{fine} (AOD_{fine}=AOD_{550 nm}*FMF) 与 SO₂、NO₂ 和 HCHO 的定量关系。

2 数据来源与方法

2.1 数据源

采用 2006 年—2015 年 MODIS/Aqua 3 级大气日产品 (MYD08_D3), 空间分辨率为 1°×1°, 包括气溶胶、云和大气温湿度廓线产品 (King 等, 2003; Yu 等, 2007)。海洋和陆地的气溶胶反演方法分别在 Remer 等 (2005) 和 Levy 等 (2007) 的文章中已详细介绍。本研究使用的是数据集 5 中 550 nm 的气溶胶光学厚度 AOD, 此波段更接近太阳光谱的峰值, 主要与辐射效应相关 (Kang 等, 2015)。1°×1° 的 3 级产品是由分辨率为 10 km 的 2 级产品求平均所得 (Niu 和 Li, 2012; Peng 等, 2016)。2 级气溶胶产品与地基观测有很好的致性 (Li 等, 2007; Mi 等, 2007; Levy 等, 2007, 2010)。相对于分辨率更高的 2 级产品而言, 平均后的 3 级产品可以减少传感器获取数据时的系统误差, 但是更多细节信息也会减少。本文主要研究长时序大范围区域气溶胶与痕量气体的定量关系, 所以采用 1°×1° 的 3 级产品。

OMI (Ozone Monitoring Instrument) 是搭载在 EOS-Aura 卫星上, 具有高分辨率的天底观测成像光谱仪, 并继承了 TOMS (Total Ozone Mapping Spectrometer) (Heath 等, 1975) 传感器的特性 (Sreekanth, 2014)。本文运用的痕量气体数据来自 OMI, Aura 卫星也是 A-Train 系列卫星之一, 与 Aqua 卫星具有相近的观测时间 (Jones 和 Christopher, 2011), 过境时间约为当地时间 13:30 pm, A-Train 不同卫星协同分析减少了因时空差异大而带来的误差。OMI 除了提供气溶胶光学厚度和紫外波段气溶胶指数 (UV-AI) 产品外, 还提供多种痕量气体, 如二氧化硫 (SO₂)、二氧化氮 (NO₂)、甲醛 (HCHO) 和臭氧 (O₃) 等气体。数据空间分辨率为 0.25°×0.25°, 为了与 MODIS 数据空间匹配, 将 OMI 数据重采样为 1°×1° 的空间分辨率。

本文的再分析资料来自欧洲中期天气预报中心 (ECMWF), 其主要功能除了提供常规气象 (温度、湿度、大气压强、风速、风向、降水等) 再分析资料以外, 还提供气溶胶、痕量气体、辐射通量等多种数据。

2.2 方法

为了确定 AOD_{fine} 与 3 种气体的定量关系, 本研

究引进关于 AOD_{fine} 与气体的自然对数斜率 S ，也可称为敏感度 (Quaas 等, 2008)，它表示 AOD_{fine} 随着气体 gas (SO_2 , NO_2 和 $HCHO$) 的变化程度，正值表示 AOD_{fine} 随着气体浓度增加而增加，负值表示 AOD_{fine} 随着气体浓度减小而增加，斜率绝对值越大，变化程度越明显，公式为

$$S(AOD_{fine}, gas) = \frac{\Delta \ln(AOD_{fine})}{\Delta \ln(gas)} \quad (1)$$

3 结果分析

3.1 2006 年—2015 年细粒子 AOD 和痕量气体的空间分布情况

图 1 是利用 2006 年—2015 年卫星数据得到的东亚地区 (a) AOD_{fine} 、(b) SO_2 、(c) NO_2 和 (d) $HCHO$ 10 年平均空间分布图。中国东部地区 SO_2 、 NO_2 和 $HCHO$ 污染高值区出现在 3 个地区，即京津

冀地区，长三角地区和珠三角地区，这些地区均为人口密集、工农业较发达地区，可见人类活动对 SO_2 、 NO_2 和 $HCHO$ 的形成有密切关系图 1 (a)。

从图 1 (a) 中黄海地区 ($31^\circ N - 37^\circ N$, $123^\circ E - 125^\circ E$) AOD_{fine} 的值分布在 0.2—0.4 之间，均值为 0.297。东海地区 ($25^\circ N - 28^\circ N$, $125^\circ E - 129^\circ E$) AOD_{fine} 主要在 0.1—0.2 之间，均值为 0.12；南海地区 ($18^\circ N - 22^\circ N$, $113^\circ E - 119^\circ E$) AOD_{fine} 与东海地区的主要变化范围一样，均值为 0.158。分析图 1 (b)、图 1 (c) 和图 1 (d) 可知， SO_2 在这 3 个区域的均值分别为 0.489 DU、0.166 DU、0.174 DU。 NO_2 在这 3 个区域的均值为 0.345 molec/cm²、0.094 molec/cm²、0.122 molec/cm²。 $HCHO$ 在这 3 个区域的均值为 0.673 molec/cm²、0.544 molec/cm²、0.653 molec/cm²。因此， AOD_{fine} 值与 3 种气体浓度在黄海、南海、东海依次递减，即黄海 > 南海 > 东海。

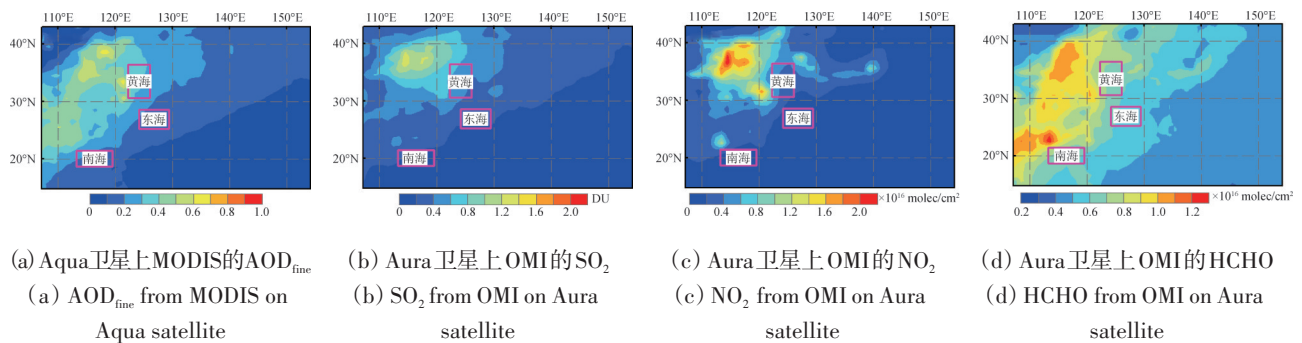


图 1 2006 年—2015 年 AOD_{fine} , SO_2 , NO_2 和 $HCHO$ 10 年平均空间分布图

Fig.1 Ten-year (2006–2015) average spatial distribution of AOD_{fine} , SO_2 , NO_2 and $HCHO$

3.2 不同地区细粒子 AOD 对痕量气体的敏感度分析

图 2 展示了近 10 年中国海洋地区 AOD_{fine} 对痕量气体的敏感度空间分布，表 1 列出了 3 个研究区域 AOD_{fine} 对不同气体的平均敏感度。黄海地区 AOD_{fine} 受 3 种人为排放气体敏感度均为正值， AOD_{fine} 对 SO_2 最为敏感，敏感度为 0.424；东海地区和南海地区主要受 $HCHO$ 影响较为明显，敏感度分别为 0.664 和 0.545。从图 2 (c) 红色区域可以看出 $HCHO$ 气体排放源头来自中国南部和东南亚地区，并且 Baek 等 (2014) 研究发现，在东南亚 $HCHO/OMI$ 的时空分布在干旱季节表现出最大值，而这种分布与该地区地面燃烧火点分布非常一致，说明 $HCHO$ 的变化受到生物质燃烧的强烈影响。结合 Penning 等 (2015) 对气溶胶分类的研究可

知，图 2 (c) 红色区域主要是来自东南亚的生物质燃烧产生的烟尘气溶胶。因此，红色区域的细粒子气溶胶对 $HCHO$ 较为敏感。海洋地区 AOD_{fine} 对 NO_2 的敏感性较小，并且存在负值。这可能与 NO_2 参与的多种大气过程有关，例如，可以催化对流层臭氧形成，作为对流层的氧化剂和参与气溶胶的产生过程等。此外，氮氧化物的存在对二次有机气溶胶的形成有比较大的影响，例如，在清洁空气中，环氧化合物（形成二次有机气溶胶的中间体物质）的浓度较高，但是在氮氧化物浓度较高的污染空气中，环氧化合物的量会迅速减少。并且 NO_2 在大气圈，生物圈和海洋圈的积累以及相互之间的传输速率具有较大的不确定性。因此，上述多种原因都可能导致 AOD_{fine} 对 NO_2 的敏感度存在不确定性 (Shang, 2013)。

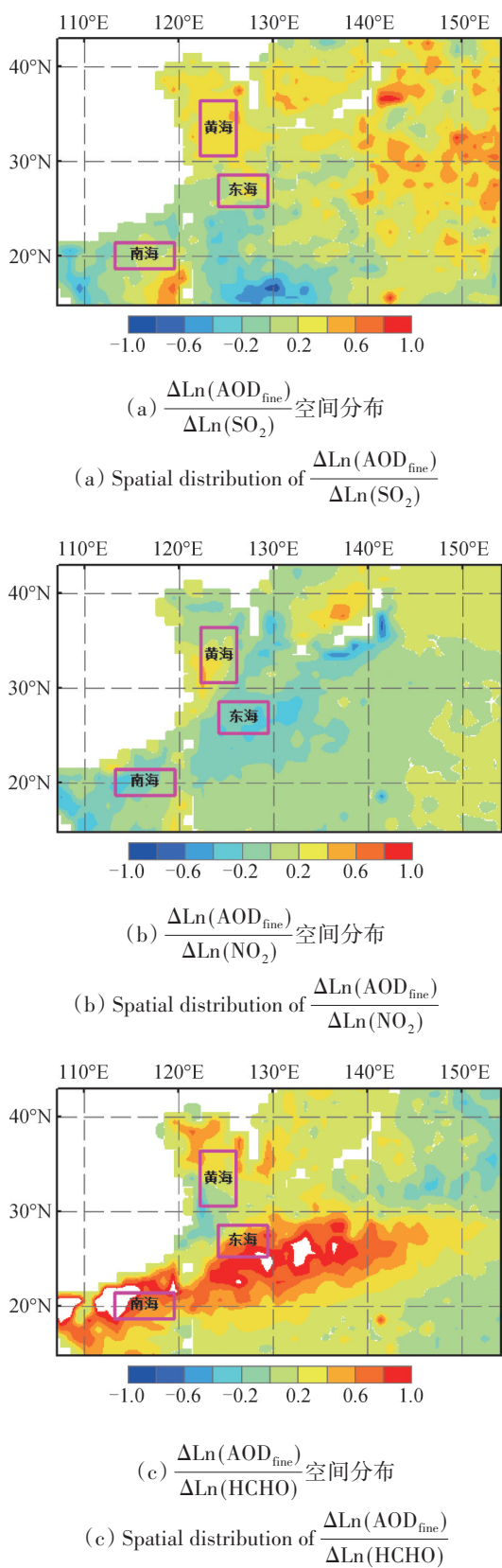


图2 2006年—2015年气溶胶分别对不同气体的平均敏感
度空间分布图

Fig.2 Spatial distribution of the average sensitivity of aerosols
to different gases from 2006 to 2015

表1 3个地区AOD_{fine}对3种气体的平均敏感度

Table 1 Average sensitivity of AOD_{fine} to three gases in
three regions

	$\frac{\Delta \text{Ln}(\text{AOD}_{\text{fine}})}{\Delta \text{Ln}(\text{SO}_2)}$	$\frac{\Delta \text{Ln}(\text{AOD}_{\text{fine}})}{\Delta \text{Ln}(\text{NO}_2)}$	$\frac{\Delta \text{Ln}(\text{AOD}_{\text{fine}})}{\Delta \text{Ln}(\text{HCHO})}$
黄海	0.424	0.182	0.201
东海	0.235	-0.275	0.664
南海	0.037	-0.098	0.545

另外, 2006年—2015年东海和南海850 hPa下的大气温度、相对湿度图如图3所示。选用该高度场是因为 Aqua 和 Aura 卫星过境时刻为当地时间13:30左右, 850 hPa一般位于海洋边界层顶附近或上空 (Tang等, 2014; Guo等, 2016)。由图3可知, 黄海、东海和南海的平均温度逐渐升高, 依次为287 K、296 K、298 K。黄海、东海和南海的平均相对湿度依次为42.5%、63%、59.8%。东海和南海较高的平均温度和平均湿度, 也为气—粒转化提供了有利的气象条件。

3.3 同一区域细粒子AOD在不同季节与痕量气体的定量关系

根据3.2得出的结论, 黄海地区AOD_{fine}对SO₂较敏感, 东海和南海地区AOD_{fine}对HCHO较为敏感, 因此进一步研究黄海地区AOD_{fine}随着SO₂的季节性变化, 东海和南海地区AOD_{fine}随着HCHO的季节性变化。其中, 春季为每年的3—5月, 夏季为6—8月, 秋季为9—11月, 冬季为12月与次年的1—2月。

图4为黄海、东海和南海4个季节里AOD_{fine}与SO₂、HCHO、HCHO的散点图。相比于东海和南海, 由于特殊的地理位置, 黄海地区4个季节受到陆地人为活动产生的气溶胶影响更加显著, AOD_{fine}较大。黄海地区4个季节的SO₂与AOD_{fine}均具有明显的线性相关性, 且线性拟合函数的斜率具有相同的数量级, 表明黄海地区的细粒子气溶胶和SO₂具有相同的来源, 其中夏秋两季的斜率更大, 因为这两个季度的温湿度相对春季和冬季较高, 更有利于气—粒转化的发生 (图4)。

相比于其他季节, 东海地区在夏季, AOD_{fine}和HCHO具有显著的线性相关性, 说明该地区的细粒子气溶胶和HCHO具有相同的来源。但是, AOD_{fine}和HCHO的数值在夏秋两季相对较小, 春冬两季

相对较大, 由于夏秋两季盛行海风, 一定程度上阻碍陆地向海洋输送气溶胶。但是, 春季 AOD_{fine} 和 HCHO 的线性相关性较差, 秋冬两季 AOD_{fine} 与

HCHO 线性拟合函数斜率与下级具有明显的差异, 说明气溶胶除了东南亚生物质燃烧来源外, 还有其他非生物质燃烧的来源。

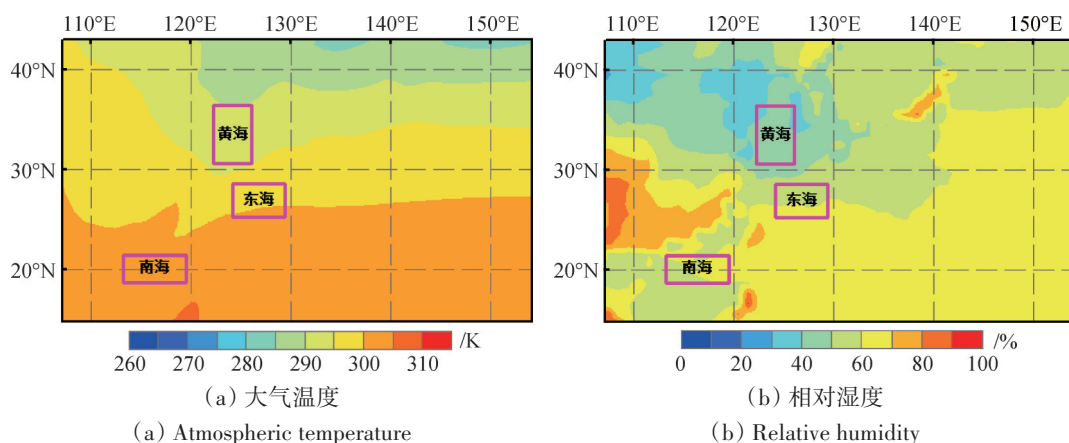


图3 来自 ECMWF 再分析资料 2006 年—2015 年 850hPa 的大气温度(T)、相对湿度(RH)年平均分布
Fig. 3 Annual distribution of atmospheric temperature (T) and relative humidity (RH) at 850 hPa from ECMWF reanalysis data during 2006—2015

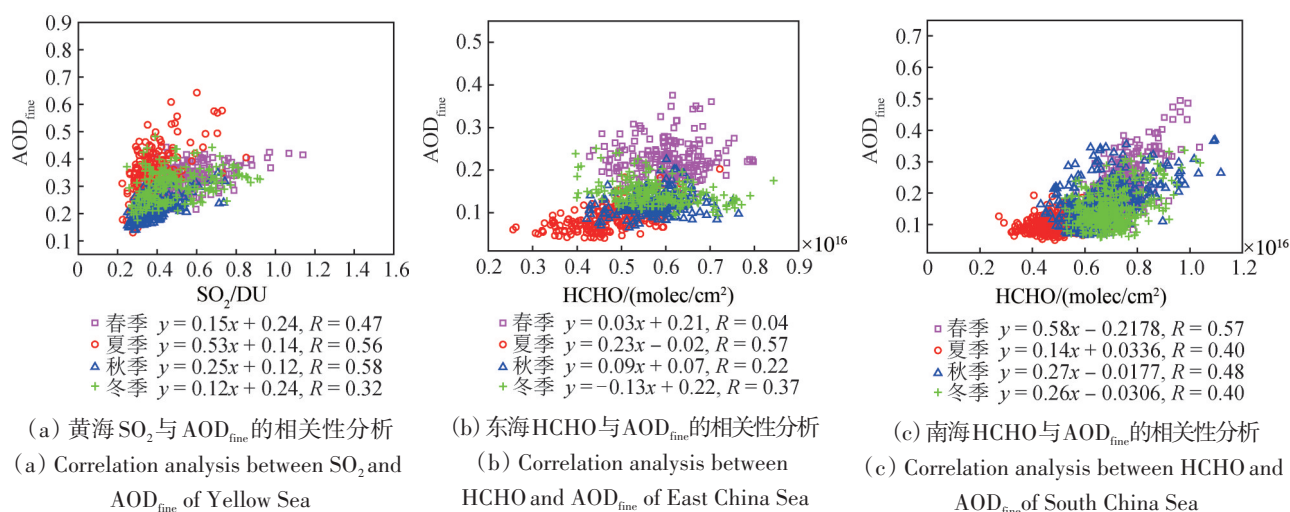


图4 2006 年—2015 年黄海、东海和南海 AOD_{fine} 随着敏感度高的气体季节性变化

Fig.4 Seasonal changes of gases with high sensitivity in the AOD_{fine} of the Yellow Sea, East China Sea and South China Sea during 2006—2015

由于纬度较低, 南海地区海陆风的季节性差异较小, AOD_{fine} 和 HCHO 的季节性差异较小。南海 4 个季度的 AOD_{fine} 与 HCHO 具有显著线性相关性, 且斜率具有相同的量级, 说明该地区的细粒子气溶胶和 HCHO 具有相同的来源, 并且 AOD_{fine} 和 HCHO 在春季最大, 主要由于东南亚地区春季大量生物质燃烧更加剧烈, HCHO 浓度增加, 同时 AOD_{fine} 增大, 使该季度细粒子气溶胶与 HCHO 的相关性较强。

图 5 是通过 ECMWF 再分析资料位势高度

(Chen 等, 2018) 与风向进一步分析不同季节气象条件对气溶胶与痕量气体相关关系的影响。通过图 4 对比分析可知, 东海地区夏季 AOD_{fine} 、HCHO 比其他两个地区偏低是受西太平洋副热带高压影响。同时, SO_2 、 NO_2 、HCHO 污染气体主要来自陆地人为排放, 图 5 可以明显看出, 东海地区夏季风向是由赤道和西太平洋风向吹向北半球中高纬地区。因此, 东海地区夏季气溶胶与痕量气体浓度受副热带高压影响较为明显。

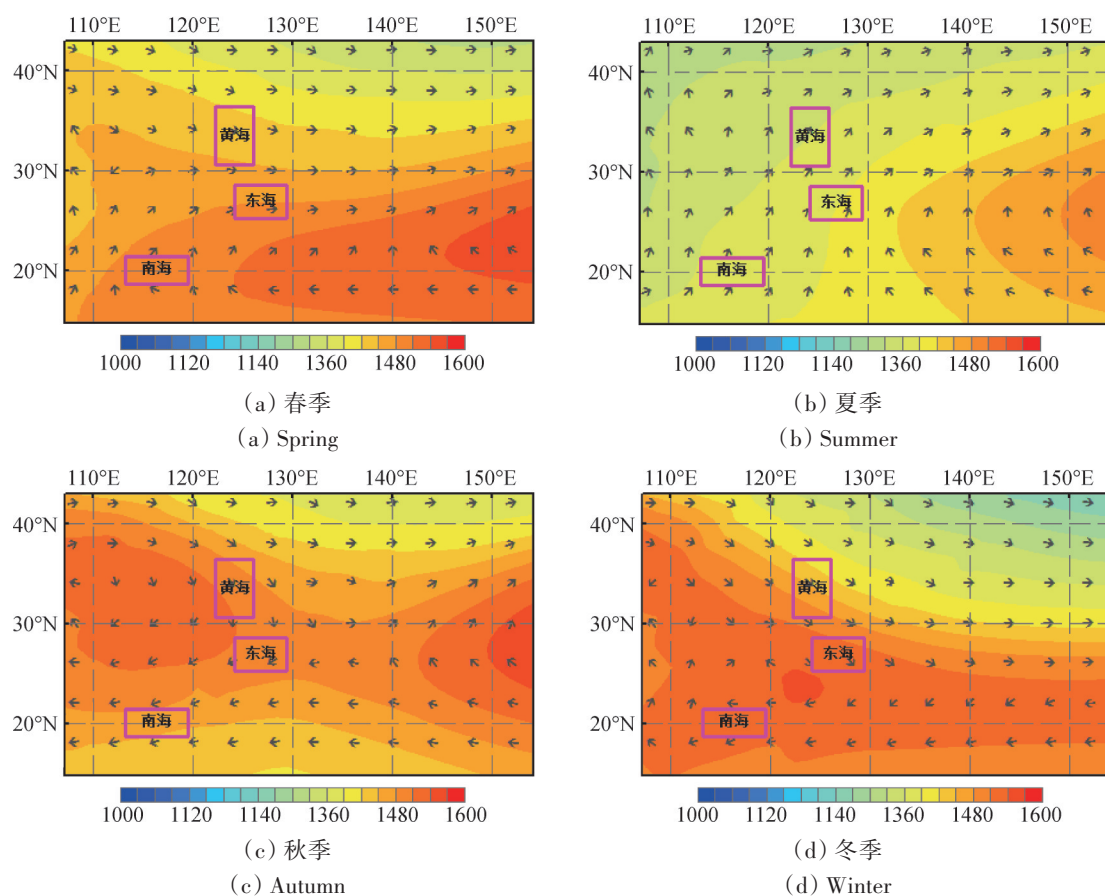


图5 2006年—2015年ECMWF4个季节850 hPa位势高度与风向图

Fig.5 Four seasons geopotential height and wind direction at 850 hPa from ECMWF during 2006—2015

4 结 论

利用10年MODIS气溶胶产品 AOD_{fine} (AOD_{550nm} 和FMF)和OMI痕量气体(SO_2 、 NO_2 和HCHO)研究中国黄海、东海和南海3个区域气溶胶与痕量气体的时空分布关系以及来源,得出以下结论:

(1) 卫星观测可以大范围、长时间观测气溶胶和气体的区域分布,弥补了地基和机载观测的不足。 AOD_{fine} 与 SO_2 、 NO_2 和HCHO的年平均空间分布在3个研究区域的变化一致:黄海>南海>东海,说明黄海地区受人为活动影响最大,南海次之,东海受到的人为影响最小。

(2) 卫星数据能够定量评估不同区域气溶胶对多种气体的敏感度,3个研究区域的 AOD_{fine} 对 SO_2 的敏感度主要与中国东部沿海城市的人为排放有关;对 NO_2 的敏感度出现负值,由于当地气象条件所导致;东海和南海对HCHO较敏感主要受东南亚和中国南方生物质燃烧的影响。

(3) 气溶胶与气体的相关关系受季节性变化影响较为明显。在结论(2)基础上,进一步研究 AOD_{fine} 随着敏感性高的气体季节性变化,黄海地区 AOD_{fine} 与 SO_2 在夏秋两季两者相关性较强,表明气—粒转化还与气象条件密切相关;东海夏季HCHO与 AOD_{fine} 相关性较明显;南海春季HCHO与 AOD_{fine} 相关性较好,并且, AOD_{fine} 与HCHO数值春季最大,夏季最小,季节性变化明显。

人为气体和气溶胶主要来源于陆地,但由于陆地上空FMF参数不确定性较大,本文只研究海洋上空气溶胶与痕量气体的定量关系。如何提高陆地上空FMF参数的可靠性仍是一个亟待解决的问题,这一问题将在以后进一步深入研究。

志 谢 本文MODIS、OMI数据由美国国家航空航天局NASA (National Aeronautics and Space Administration) 提供,再分析资料由欧洲中期天气预报中心ECMWF (European Centre for Medium-Range Weather Forecasts) 提供。

参考文献(References)

- Baek K H, Kim J H, Park R J, Chance K and Kurosu T P. 2014. Validation of OMI HCHO data and its analysis over Asia. *Science of the Total Environment*, 490: 93-105 [DOI: 10.1016/j.scitotenv.2014.04.108]
- Chen D D, Guo J P, Wang H Q, Li J, Min M, Zhao W H and Yao D. 2018. The cloud top distribution and diurnal variation of clouds over East Asia: preliminary results from Advanced Himawari Imager. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 123(7): 3724-3739 [DOI: 10.1002/2017JD028044]
- De Smedt I, Müller J F, Stavrou T, van der A R, Eskes H and Van Roozendaal M. 2008. Twelve years of global observations of formaldehyde in the troposphere using GOME and SCIAMACHY sensors. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 8(16): 4947-4963 [DOI: 10.5194/acp-8-4947-2008]
- Dickerson R R, Li C, Li Z, Marufu L T, Stehr J W, McClure B, Krotkov N, Chen H, Wang P, Xia X, Ban X, Gong F, Yuan J and Yang J. 2007. Aircraft observations of dust and pollutants over north-east China: insight into the meteorological mechanisms of transport. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 112(D24): D24S90 [DOI: 10.1029/2007JD008999]
- Gao Y B, Mei S Y, Ma J J, Wu S C, Zhang H H and Xu D D. 2016. Spatiotemporal variations of SO₂ over China by OMI observations during 2005 ~ 2012. *Journal of Atmospheric and Environmental Optics*, 11(4): 299-312 (高一博, 梅世玉, 麻金继, 吴时超, 张洪海, 许丹丹. 2016. 基于 OMI 数据 2005 ~ 2012 年中国区域 SO₂ 时空变化特征研究. *大气与环境光学学报*, 11(4): 299-312) [DOI: 10.3969/j.issn.1673-6141.2016.04.008]
- Guo J P, Miao Y C, Zhang Y, Liu H, Li Z Q, Zhang W C, He J, Lou M Y, Yan Y, Bian L G and Zhai P M. 2016. The climatology of planetary boundary layer height in China derived from radiosonde and reanalysis data. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 16(20): 13309-13319 [DOI: 10.5194/acp-16-13309-2016]
- Heath D F, Krueger A J, Roeder H A and Henderson B D. 1975. The solar backscatter ultraviolet and total ozone mapping spectrometer (SBUV/TOMS) for Nimbus G. *Optical Engineering*, 14(4): 144323 [DOI: 10.1117/12.7971839]
- Itahashi S, Uno I, Yumimoto K, Irie H, Osada K, Ogata K, Fukushima H, Wang Z and Ohara T. 2012. Interannual variation in the fine-mode MODIS aerosol optical depth and its relationship to the changes in sulfur dioxide emissions in China between 2000 and 2010. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 12(5): 2631-2640 [DOI: 10.5194/acp-12-2631-2012]
- Jones T A and Christopher S A. 2011. A reanalysis of MODIS fine mode fraction over ocean using OMI and daily GOCART simulations. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 11(12): 5805-5817 [DOI: 10.5194/acp-11-5805-2011]
- Kang N, Kumar K R, Yin Y, Diao Y W and Yu X N. 2015. Correlation analysis between AOD and cloud parameters to study their relationship over China using MODIS data (2003-2013): impact on cloud formation and climate change. *Aerosol and Air Quality Research*, 15(3): 958-973 [DOI: 10.4209/aaqr.2014.08.0168]
- King M D, Menzel W P, Kaufman Y J, Tanre D, Platnick S, Ackerman S A, Remer L A, Pincus R and Hubanks P A. 2003. Cloud and aerosol properties, precipitable water, and profiles of temperature and water vapor from MODIS. *IEEE Transactions on Geoscience and Remote Sensing*, 41(2): 442-458 [DOI: 10.1109/TGRS.2002.808226]
- Levy R C, Remer L A, Mattoo S, Vermote E F and Kaufman Y J. 2007. Second-generation operational algorithm: retrieval of aerosol properties over land from inversion of Moderate Resolution Imaging Spectroradiometer spectral reflectance. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 112(D13): D13211 [DOI: 10.1029/2006JD007811]
- Levy R C, Remer L A, Kleidman R G, Mattoo S, Ichoku C, Kahn R and Eck T F. 2010. Global evaluation of the Collection 5 MODIS dark-target aerosol products over land. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 10(21): 10399-10420 [DOI: 10.5194/acp-10-10399-2010]
- Li Z Q, Niu F, Lee K H, Xin J Y, Hao W M, Nordgren B, Wang Y S and Wang P C. 2007. Validation and understanding of Moderate Resolution Imaging Spectroradiometer aerosol products (C5) using ground-based measurements from the handheld Sun photometer network in China. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 112(D22): D22S07 [DOI: 10.1029/2007JD008479]
- Lohmann U and Feichter J. 2005. Global indirect aerosol effects: a review. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 5(3): 715-737 [DOI: 10.5194/acp-5-715-2005]
- Mi W, Li Z Q, Xia X G, Holben B, Levy R, Zhao F S, Chen H B and Cribb M. 2007. Evaluation of the Moderate Resolution Imaging Spectroradiometer aerosol products at two aerosol robotic network stations in China. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 112(D22): D22S08 [DOI: 10.1029/2007JD008474]
- Niu F and Li Z Q. 2012. Systematic variations of cloud top temperature and precipitation rate with aerosols over the global tropics. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 12(18): 8491-8498 [DOI: 10.5194/acp-12-8491-2012]
- Ohara T, Akimoto H, Kurokawa J, Horii N, Yamaji K, Yan X and Hayasaka T. 2007. An Asian emission inventory of anthropogenic emission sources for the period 1980-2020. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 7(16): 4419-4444 [DOI: 10.5194/acp-7-4419-2007]
- Peng J, Li Z Q, Zhang H, Liu J J and Gribb M. 2016. Systematic changes in cloud radiative forcing with aerosol loading for deep clouds in the tropics. *Journal of the Atmospheric Sciences*, 73(1): 231-249 [DOI: 10.1175/JAS-D-15-0080.1]
- Penning de Vries M J M, Beirle S, Hörmann C, Kaiser J W, Stammes P, Tilstra L G, Tuinder O N E and Wagner T. 2015. A global aerosol classification algorithm incorporating multiple satellite data sets of aerosol and trace gas abundances. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 15(18): 10597-10618 [DOI: 10.5194/acp-15-10597-2015]
- Quaas J, Boucher O, Bellouin N and Kinne S. 2008. Satellite-based es-

- time of the direct and indirect aerosol climate forcing. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 113(D5): D05204 [DOI: 10.1029/2007JD008962]
- Remer L A, Kaufman Y J, Tanré D, Mattoo S, Chu D A, Martins J V, Li R R, Ichoku C, Levy R C, Kleidman R G, Eck T F, Vermote E and Holben B N. 2005. The MODIS aerosol algorithm, products, and validation. *Journal of the Atmospheric Sciences*, 62(4): 947-973 [DOI: 10.1175/JAS3385.1]
- Remer L A, Kleidman R G, Levy R C, Kaufman Y J, Tanré D, Mattoo S, Martins J V, Ichoku C, Koren I, Yu H B and Holben B N. 2008. Global aerosol climatology from the MODIS satellite sensors. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 113(D14): D14S07 [DOI: 10.1029/2007JD009661]
- Shang X J. 2013. Studies on Reactions of Nitric Oxides with Volatile Organic Compounds in Atmosphere. Lanzhou: Lanzhou University (尚筱洁. 2013. 大气中挥发性有机化合物与氮氧化物的反应研究. 兰州: 兰州大学)
- Sreekanth V. 2014. On the classification and sub-classification of aerosol key types over south central peninsular India: MODIS – OMI algorithm. *Science of the Total Environment*, 468-469: 1086-1092 [DOI: 10.1016/j.scitotenv.2013.09.038]
- Streets D G, Wu Y and Chin M. 2006. Two-decadal aerosol trends as a likely explanation of the global dimming/brightening transition. *Geophysical Research Letters*, 33(15): L15806 [DOI: 10.1029/2006GL026471]
- Streets D G, Yan F, Chin M, Diehl T, Mahowald N, Schultz M, Wild M, Wu Y and Yu C. 2009. Anthropogenic and natural contributions to regional trends in aerosol optical depth, 1980-2006. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 114(D10): D00D18 [DOI: 10.1029/2008JD011624]
- Tang J P, Wang P C, Mickley L J, Xia X G, Liao H, Yue X, Sun L and Xia J R. 2014. Positive relationship between liquid cloud droplet effective radius and aerosol optical depth over Eastern China from satellite data. *Atmospheric Environment*, 84: 244-253 [DOI: 10.1016/j.atmosenv.2013.08.024]
- Veefkind J P, Boersma K F, Wang J, Kurosu T P, Krotkov N, Chance K and Levelt P F. 2011. Global satellite analysis of the relation between aerosols and short-lived trace gases. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 11(3): 1255-1267 [DOI: 10.5194/acp-11-1255-2011]
- Xie Y S, Li Z Q, Zhang Y X, Zhang Y, Li D H, Li K T, Xu H, Zhang Y, Wang Y Q, Chen X F, Schauer J J and Bergin M. 2017. Estimation of atmospheric aerosol composition from ground-based remote sensing measurements of Sun-sky radiometer. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 122(1): 498-518 [DOI: 10.1002/2016JD025839]
- Yao L, Lü N and Shi H D. 2012. Study on spatial-temporal variations in total NO₂ column amounts over China using SCIAMACHY data. *Research of Environmental Sciences*, 25(4): 419-424 (姚凌, 吕宁, 师华定. 2012. 利用 SCIAMACHY 遥感资料研究我国 NO₂ 柱浓度及其时空分布. 环境科学研究, 25(4): 419-424)
- Yu H B, Fu R, Dickinson R E, Zhang Y, Chen M X and Wang H. 2007. Interannual variability of smoke and warm cloud relationships in the Amazon as inferred from MODIS retrievals. *Remote Sensing of Environment*, 111(4): 435-449 [DOI: 10.1016/j.rse.2007.04.003]
- Zhang Y and Li Z Q. 2013. Estimation of PM_{2.5} from fine-mode aerosol optical depth. *Journal of Remote Sensing*, 17(4): 929-943 (张莹, 李正强. 2013. 利用细模态气溶胶光学厚度估计 PM_{2.5}. 遥感学报, 17(4): 929-943) [DOI: 10.11834/jrs.20133063]
- Zhang Y and Li Z Q. 2015. Remote sensing of atmospheric fine particulate matter (PM_{2.5}) mass concentration near the ground from satellite observation. *Remote Sensing of Environment*, 160: 252-262 [DOI: 10.1016/j.rse.2015.02.005]

Temporal and spatial relationship between fine particle aerosols and short-lived trace gas in Chinese ocean

XU Binren¹, WEI Yuanyuan^{2,3}, ZHANG Han¹, SONG Yi¹, YANG Zhizhong¹

1. Beijing PieSat Information Technology Co., Ltd., Beijing 100195, China;

2. Institute of Remote Sensing and Digital Earth, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100101, China;

3. University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China

Abstract: Aerosols have important effects on global energy balance, cloud properties, rainfall frequency, and atmospheric circulation. To understand the impact of aerosols on climate change, this paper explores the quantitative relationship between fine particle aerosols and gases. Aerosol Optical Depth (AOD), Fine Mode Fraction (FMF) from MODIS, and trace gas (SO₂, NO₂, and HCHO) from OMI were used to analyze the quantitative relationship between the fine aerosols and trace gases over the Yellow Sea, East China Sea, and South China Sea between 2006 and 2015. First, the mean values of the aerosols and trace gases were analyzed. The mean values of AOD_{fine}, SO₂, NO₂, and HCHO decreased orderly in the Yellow Sea, South China Sea, and East China Sea all decreased. Meanwhile, the sensitivity analysis of the relationship between aerosols and trace gases revealed that: AOD_{fine} is most sensitive to SO₂ with a sensitivity of 0.424, which may be ascribed to the anthropogenic emissions from the coastal cities of Eastern China. Meanwhile, East China Sea and South China Sea

demonstrate high sensitivity to HCHO (0.664 and 0.545, respectively), which can be ascribed to the biomass combustion in Southeast Asia and Southern China. The seasonal correlation analysis of aerosols and trace gases in these three regions reveal that the AOD_{fine} in the Yellow Sea has a strong correlation with SO_2 during summer and autumn ($R>0.5$) mainly due to the high temperature and humidity. A significant correlation is observed between HCHO and AOD_{fine} was significant in the East China Sea ($R=0.57$), and a relatively good correlation is observed between HCHO and AOD_{fine} in the South China Sea was relatively good ($R=0.57$) due to regional and seasonal changes. In sum, fine particle modal aerosol has a significant correlation with trace gases, and such relationship provides a scientific basis for understanding the aerosol processes, especially those of artificial aerosols dominated by fine particles.

Key words: remote sensing, anthropogenic emissions, AOD_{fine} , aerosols, trace gases, China's neighboring sea, spatiotemporal change