天津城区秋冬季黑碳气溶胶观测与分析*

姚青1,2** 蔡子颖! 韩素芹! 黄鹤!

(1. 天津市气象科学研究所, 天津, 300061; 2. 中国气象局云雾物理环境重点开放实验室, 北京, 100081)

摘 要 利用天津大气边界层观测站 2010 年 9 月—2011 年 1 月黑碳气溶胶、 $PM_{2.5}$ 质量浓度、大气能见度及常规气象观测数据,研究天津城区秋冬季黑碳气溶胶污染特征. 结果表明,天津秋冬季黑碳气溶胶质量浓度均值 7.24 μ g·m⁻³和 6.46 μ g·m⁻³,分别占 $PM_{2.5}$ 质量的 9.42% 和 7.98%,其吸收作用分别贡献大气消光的 17.2% 和 17.6%;采用最大频数浓度法计算黑碳浓度本底值为 2.50 μ g·m⁻³;黑碳浓度的日变化特征与天气过程有关,雾和霾天气下黑碳浓度较高,降水利于清除黑碳污染,秋季高浓度黑碳除局地源污染外,可能还与河北、山西、天津等地燃烧秸秆有关.

关键词 黑碳气溶胶, 天气过程, 消光特性, 天津.

黑碳(BC)是由化石燃料和生物质不完全燃烧排放出来的无定型碳质,对太阳辐射有着强烈吸收特性,对大气物理、大气化学和大气环境质量等有着显著的影响,还对全球气候变化产生明显的影响.国外自 20 世纪 70 年代起开展 BC 研究,1989 年由世界气象组织(WMO)组织的全球大气监测网(GAW)也将 BC 作为气溶胶重要的观测项目之一[1],最新研究表明 BC 的辐射强度大约为 0. 24 W·m^{-2[2]},介于 CO₂和 CH₄之间,是影响全球变暖仅次于 CO₂的第二位重要因素^[3].我国自 20 世纪 90 年代开始,各地相继开展 BC 观测,对鞍山^[4]、广州^[5-6]、西安^[7]、北京^[8]、上海^[9-10]、长春^[11]、西宁^[12-13]等城市及瓦里关^[14]等大气成分本底站的 BC 浓度水平、分布特征、影响因素和本底值等进行分析,一些观测时间持续较长的研究表明,BC 分布具有明显的季节特征,如肖秀珠在上海的对比观测表明 BC 浓度市郊均为冬季高于夏季^[11],瓦里关地区^[14]和塔克拉玛干沙漠腹地^[15]均有冬季观测值显著高于其它季节的特征,西宁地区^[12]的 BC 观测高值出现在 10 月至次年 1 月,珠江三角洲地区^[5]旱季(9 月—次年 2 月) BC 观测值高于雨季(3 月—8 月),各地的这种季节分布表明秋冬季 BC 浓度较高,应作为 BC 研究的重点时期加以关注.

天津地处北方沿海地区,作为环渤海地区的经济中心,近年来社会经济快速发展,城市大气环境不容乐观. 天津地区对含碳气溶胶的研究多采用膜采样-实验室分析方法[16-17],时间分辨率较低,且不利于与气象数据等作相关性分析,蔡子颖等分析了天津夏季 BC 浓度及其吸收特性[18],对于 BC 污染最为严重的秋冬季观测资料尚未见诸文献.

本文采用2010年天津城区秋冬季 BC 浓度实时在线监测数据,从浓度水平、本底值、日变化特征、消光特性和输送特征等方面初步分析了 BC 污染特征,以期为空气污染治理和气候变化研究提供科学依据.

1 实验方法

观测地点位于中国气象局天津大气边界层观测站(N39°04′,E117°12′,海拔高度 2.2 m,台站编号:54517),该站点地处天津市城区南部,其北距快速路约 200 m,东距友谊路-友谊南路约 100 m,西面和南面主要为低层住宅区,附近 500 m 内无高层建筑和工业源,交通源和生活源排放对其有一定影响. 观测时间为 2010 年 9 月 1 日—2011 年 1 月 31 日,考虑到采暖对 BC 浓度的影响,秋季设定为 9 月 1 日—

²⁰¹¹年7月5日收稿.

^{*}国家环保公益性行业科研专项(201009001);国家公益性行业(气象)科研专项(GYHY201006011);中国气象局云雾物理环境重点开放实验室开放课题(2009011)资助.

^{* *} 通讯联系人, Tel:02228134030; E-mail:yao.qing@163.com

11 月14 日,合计 74 d;冬季为 11 月 15 日—1 月 31 日,其中 12 月 7 日—12 月 22 日因仪器故障缺测,合 计62 d.

BC 观测采用美国玛基科学公司生产的 AE-31 黑碳仪,该仪器有7个测量通道,波长分别为370、 470、520、590、660、880 和 950 nm,时间分辨率为 5 min,采样管高度距地面 3 m,采用 PM, 5 切割头,仪器 测量原理参见参考文献[9],本文采用波长为880 nm的测量通道数据,在剔除仪器故障及调试期间的 异常值后,获得小时值 3274 组,有效率 89.2%. PM25质量浓度测量采用热电公司生产的 RP-1400a 颗粒 物分析仪,采样流量 16.7 L·min⁻¹,检测限 0.06 μg·m⁻³,测量范围 0—1500 μg·m⁻³,质量分辨率为 0.01 μg·m⁻³,准确度 0.75%,精度 1.5 μg·m⁻³(1 h),0.5 μg·m⁻³(24 h),采样管距地面 3 m;大气能见 度测量采用美国 Belfort 公司生产的 MODLE6000 型前向散射能见度仪,仪器测量上限为 20 km,下限为 6 m,精确度 10%,所有测量数据经过质量控制后处理成小时均值,并按相关要求处理成日均值和月 均值.

常规气象资料来源于与天津大气边界层观测站位于同一位置的天津市城区国家气象观测站,所有 数据均通过质量控制和数据订正. 应用美国国家海洋和大气管理局(NOAA) 等研发的,提供质点轨迹、 扩散及沉降分析使用的综合模式系统 HYSPLIT(http://ready. arl. noaa. gov/HYSPLIT_traj. php[2011-05-08])分析天津气流后向轨迹,轨迹模式采用 NCEP(National Centers for Environmental Prediction)的 FNL 全球分析资料,并经过 ARL(NOAA-Air Resources Laboratory)的预处理模块转化成模式所需要的格式.

结果与讨论 2

2.1 BC 气溶胶浓度水平

表 1 为观测期间 BC 质量浓度的平均值、标准差、中位值及最小/最大值,观测期间 BC 浓度秋季平

均值为 7. 24 μ g·m ⁻³ ,冬季平均值为 6. 46 μ g·m ⁻³ ,最高值出现在 10 月 23 日 20 时,达到 35. 68 μ g·m ⁻³ ,
最低值出现在 1 月 29 日 2 时,仅为 0.37 $\mu g \cdot m^{-3}$.分析 BC 浓度小时值的频数,发现 95% 的观测值低于
19.34 $\mu g \cdot m^{-3}$,本文以此作为划分 BC 高污染的标准,11 月污染高值出现频率最大,达到 10.0%,1 月最
低,仅1.7%的BC 小时值超过19.34 $\mu g \cdot m^{-3}$.以0.5 $\mu g \cdot m^{-3}$ 作为步长,采用五点法拟合BC 浓度小时值
频数分布,如图 1,以其光滑外廓曲线的最高点作为最大出现频数浓度,为 2.50 μg·m ⁻³ ,以此作为 BC
浓度的本底值[14]. 此外也有文献[7]采用降水日 BC 平均值作为本底,本次观测期内共有 12 个降水日,降
水日 BC 平均浓度为 3.70 μg·m ⁻³ ,仅有观测期 BC 浓度平均值的一半,但高于最大频数浓度法计算获
得的本底值,表明湿沉降可有效降低 BC 浓度,但并不足以完全清除大气中的 BC. 本次观测值与国内近
几年同期观测相比,低于长春[11]、西安[7]等内陆城市,高于西宁[12-13]、塔中[15]等西部站点及瓦里关[14]
等大气本底站,与广州[5-6]、北京[8]、上海[9-10]等城市相当.

平均值 月份 标准差 中位值 最小值 最大值 污染高值频率 $PM_{2.5}$ 样本数 9 0.94 6.11 4.22 5.07 23.39 1.8% 69.12 720 10 7.87 6.65 5.72 0.7235.68 7.8% 82.29 744 11 9.10 6.91 7.77 0.64 35.04 10.0% 94.86 720 12 6.07 0.59 6.49 3.56 32.28 2.3% 103.58 346 1 4.70 4.38 3.16 0.37 25.42 1.7% 49.49 744 秋季 7.24 5.49 0.64 6.00 35.68 5.7% 76.89 1800 冬季 0.37 1474 6.46 5.83 4.39 32.28 4.2% 80.96 观测期 6.89 5.93 5.07 0.37 35.68 5.0% 78.97 3274

观测期间 BC 质量浓度统计分析(μg·m⁻³)

Statistics of black carbon mass concentrations during the observation period

图 2 为观测期间 BC 质量浓度的逐小时分布特征以及经 24 h 平滑后的浓度趋势,从图 2 可见 BC 质 量浓度分布很不均衡, 11 月最高, 1 月最低,各月份均有污染高值(≥19.34 μg·m⁻³)出现,而持续的 BC 高值多出现在 10 月下旬和 11 月期间,这与观测期间的天气条件有关,统计 10 m 处静风(正点前 10 min风速低于 0.3 m·s^{-1})数据可知,9 月—次年 1 月静风频率依次为 20.0%、22.0%、23.5%、13.3% 和 15.9%,统计表明静风时 BC 平均浓度为 11.39 $\mu g \cdot m^{-3}$,高于观测期平均浓度 65%,而统计 BC 高污染时段(BC 浓度高于 19.34 $\mu g \cdot m^{-3}$)合计 164 h,其中记录为静风的有 74 h,约占 BC 高值时段的 45%,远高于其它任一风向,表明秋冬季高静风频率是造成 BC 气溶胶高浓度的重要原因之一.

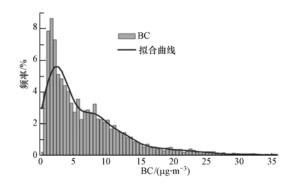


图1 BC 浓度频数分布

Fig. 1 The frequency distribution of BC hourly mean concentration

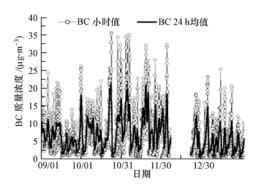


图 2 BC 浓度的逐时分布

Fig. 2 Time series of per hour BC concentration

2.2 日变化特征

BC 作为典型的一次源排放物,其浓度变化仅取决于源排放和干湿沉降的清除过程,以及风速、混合层高度等气象条件.以往文献研究 BC 浓度日变化特征,多采用统计平均方法,非降水日下城市 BC 气溶胶日分布一般存在两个峰值,即上午 8—9 时和晚间 18—21 时,与交通高峰相对应,午后多出现谷值,塔中^[11]观测结果表明午间存在一个峰值,认为这可能与午间下垫面对流活跃,利于周边源输送有关.各地区各类天气下的 BC 浓度日分布不能一概而论,应结合具体天气过程分析,本文从雾、霾、雨等秋冬季典型天气过程入手.探讨 BC 气溶胶浓度的日变化特征.

11 月 18 日—19 日,天津城区连续 48 h 大气能见度不足 10 km,最小值仅 0. 87 km,而相对湿度 (59 ± 16)%,最大值 81%,根据《霾的观测与预报等级》气象行业标准^[19],将这 2 d 作为典型霾日, $PM_{2.5}$ 质量浓度为(196. 78 ± 88. 56) μ g·m⁻³,约为观测期平均值的 2. 49 倍,BC 浓度(15. 45 ± 7. 71) μ g·m⁻³,约为观测期平均值的 2. 24 倍. 分析 BC 日变化特征,见图 3-霾所示,午后至次日凌晨出现峰值,长达 15 h BC 浓度超过 20 μ g·m⁻³,BC 在霾日天气下维持长时间高浓度,与当时的天气条件相关,持续的静风天气不利于污染物扩散,偏西偏南的低速气流也可能带来沿线地区的污染气溶胶.

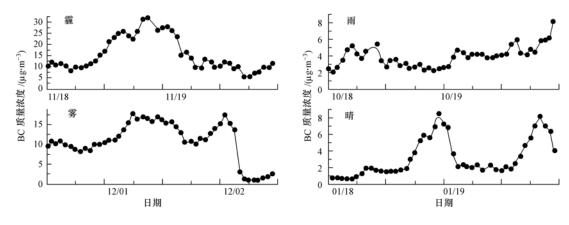


图 3 不同天气过程下 BC 浓度的日分布特征

Fig. 3 The diurnal variation of BC mass concentration

11月30日—12月2日连续3d地面天气现象记录为雾,气象信息综合分析处理系统(Meteorological Information Comprehensive Analysis and Process System, Micaps)显示此次雾影响范围极

广,持续时间极长,属于典型的平流雾,天气形势分布为高空平直环流,大气斜压性极小,地面气压系统较弱,低层有西南气流输送水汽.图3-雾显示11月30日12时—12月2日11时的BC浓度分布,峰值主要出现在1日凌晨到午后,浓雾期间BC浓度与相对湿度正相关,线性相关系数0.63,与能见度负相关,线性相关系数-0.58,表明随着雾强度增大,BC浓度也相应增大.

10月18日—19日两日天津城区有降水发生,日降水量为9.5 mm 和0.1 mm,图3-雨显示降水日BC污染水平相对非降水日低,平均值为(3.93±1.25)μg·m⁻³,且日变化没有明显的峰值,可见降水对BC的清除较明显,并且降水日大气边界层较稳定且其高度日变化幅度较小,造成其日变化不明显.

选取 2011 年 1 月 18 日—19 日作为典型晴日,两日 8 时、14 时和 20 时云量均为 0,图 3-晴表明白昼 BC 浓度很低,基本维持在 2 μg·m⁻³以下,夜间对流层大气活动减弱,混合层高度降低,污染物易形成堆积,出现浓度约 8 μg·m⁻³的 BC 浓度峰值.

2.3 消光特性

BC 作为 $PM_{2.5}$ 重要的组成部分,其质量浓度分别占 $PM_{2.5}$ 的 9.42% (秋季) 和 7.98% (冬季),对秋 冬季 BC 浓度与 $PM_{2.5}$ 质量浓度作散点图(图略),两者线性相关系数分别为 0.62(秋季) 和 0.53(冬季). BC 作为最为重要的大气吸光物质,其浓度水平直接影响大气消光系数,进而影响大气能见度,对秋冬季 BC 浓度与大气能见度作散点图(图略),两者呈幂指数关系,秋季两者相关性($R^2=0.33$)并不显著,表明秋季影响大气能见度的因素较多,静风等不利天气也会造成其它污染物聚集从而降低能见度,冬季高相关性($R^2=0.71$)表明高 BC 浓度是造成大气能见度下降的重要原因.

在已知 BC 质量浓度的基础上,可以得到其吸收系数:

$$\sigma_{\rm ap} = R \times [BC]/1.9 \tag{1}$$

式中, σ_{ap} 为吸收系数,单位取 Mm^{-1} ; [BC]为 BC 质量浓度,单位取 $\mu g \cdot m^{-3}$; R 为吸收常数,其数值依赖于波长变化,在 880 nm 处 R 取 16.6;1.9 为校准常数,用于滤除气溶胶在石英膜上对光的多次散射和吸收造成的影响^[20].

根据 WMO 推荐值,可实现能见度和消光系数的转换,其公式为:

$$\sigma_{\text{ext}} = 2996/\text{vis} \tag{2}$$

式中, σ_{ext} 指大气消光系数,单位取 Mm^{-1} ; vis 为大气能见度,单位取 km. 取该值时,有以下假设条件:目标物为深色理想物体; 國对比度取 0.05;目标物和观察者之间大气组成均一;地球曲率可忽略;目标物、天空背景和观察者等各处的光亮度相同.

公式(1)可用以计算 BC 的吸收系数,而公式(2)可用来计算大气消光系数,则 BC 的吸收作用对大气消光的贡献比例为 17.2%(秋季)和 17.6%(冬季),这一比例高于以前在同一地点进行的夏季观测值^[18],表明天津秋冬季 BC 对大气能见度的影响高于夏季.

2.4 输送特征

BC 主要来源于化石燃料及生物质燃烧,有研究表明其来源可分为局地源、外来源和本底值 3 部分^[7],天津作为环渤海地区经济中心,大量化石燃料用于工业生产和交通运输,所排放的 BC 在静小风天气下容易积聚而形成局地污染,此外周边地区的 BC 排放也可能导致输送型污染.不同风向下 BC 浓度与风速的相互关系见图 4(图中带圆圈的点系样本数低于 10,仅供参考),静风状态下 BC 浓度最高,平均值达到 11.39 µg·m⁻³,西风和南风下 BC 浓度显著高于北风和东风,并且随着风速增大,除南风外各风向下 BC 浓度均有不同程度的下降,东风下降最为明显,这与东风下来自渤海的海洋气团稀释有关. 当北风风速超过 2.5 m·s⁻¹时,BC 浓度增大,表明北部地区对天津 BC 仍有一定贡献;西风和南风下 BC 浓度显著高于北风和东风,显示远距离输送存在的可能性,天津以西以南方向的河北、山西、山东等地作为我国北方的主要粮产区之一,当地农民秋收后经常燃烧秸秆以清除作物残余并为土壤增肥,生物质燃烧所形成的大量 BC 在西南气流输送下聚集在城市上空,在降低大气能见度,影响交通的同时,还会对人体健康造成危害.

观测期内天津地区出现了一次连续 BC 污染过程,11 月 16 日—20 日连续 5 d BC 浓度日均值在 $10~\mu g \cdot m^{-3}$ 以上,最大小时值达到 32.09 $\mu g \cdot m^{-3}$,这 5 d 内 PM_{10} 质量浓度为(306.48 ± 114.57) $\mu g \cdot m^{-3}$, $PM_{2.5}$ 质量浓度为(161.97 ± 74.13) $\mu g \cdot m^{-3}$,呈现严重的气溶胶持续污染.分析 16—20 日每日 16 时(世

界标准时间 UTC,同北京时间次日零时,下同)24 h 后向气流轨迹(图5),终点时间选取夜间以尽可能减少局地工业和交通源对 BC 浓度的影响,以天津大气边界层观测站(N39°04′,E117°12′,海拔高度2.2 m,台站编号:54517)为终点,选取轨迹高度 100 m,以避免城市冠层影响,发现这几日影响天津的气流主要来自偏南和西南方向,气流高度不足 200 m,气流途径河北中南部、山西西南、山东北部等地,据环境保护部《秸秆焚烧遥感监测日报》^[21]同期监测,11 月中旬河北、山西、天津等地均有不同程度的秸秆焚烧火点(图略),秸秆燃烧所释放的大量 BC 随西南气流远距离输送到天津,可能也是造成天津 BC 污染高峰的重要原因之一.

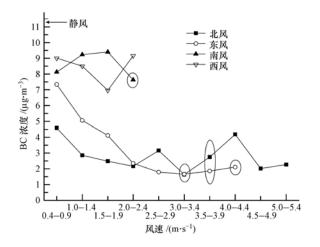


图 4 不同风向下 BC 浓度与风速的相互关系

Fig. 4 Relationship of BC mass concentrations with wind speed under different wind directions

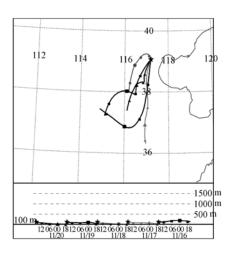


图 5 11 月 16 日—20 日每日 16 时(UTC) 后向轨迹分析

Fig. 5 Back-trajectories for Tianjin from 16 to 20 November

3 结论

通过对天津城区 2010 年 9 月—2011 年 1 月近 5 个月 BC 连续观测,基本得出天津市秋冬季 BC 浓度的变化特征. 初步结论如下:

- (1) 天津 2010 年秋季 BC 质量浓度均值 7. 24 $\mu g \cdot m^{-3}$, 占 PM_{2.5}质量的 9. 42%, 其吸收作用贡献大气消光的 17. 2%; 冬季 BC 浓度均值 6. 46 $\mu g \cdot m^{-3}$, 占 PM_{2.5}质量的 7. 98%, 其吸收作用贡献大气消光的 17. 6%; 采用最大频数浓度法计算 BC 浓度本底值为 2. 50 $\mu g \cdot m^{-3}$.
- (2)BC浓度的日变化特征与天气过程有关,雾霾等低能见度天气下BC浓度较高,与大气能见度呈显著负相关,降水日BC污染水平相对非降水日低,且无明显日变化特征,典型晴日下由于夜间对流层大气活动减弱,混合层高度降低,易形成污染物堆积.
- (3)降水、风等气象条件对 BC 浓度作用明显,降水有利于清除 BC,高风速利于降低 BC 浓度,秋季 BC 污染主要来自于西南和东南偏南方向,可能与河北、山西、天津等地燃烧秸秆有关.

参考文献

- [1] WMO/ Geneva. Global Atmosphere Watch Guide [Z]. 1993, No. 86: 32-33
- [2] IPCC. Climate change 2007: The physical science basis [M]. Cambridge, UK: Cambridge University Press, 2007
- [3] Jacobson M Z. Strong radiative heating due to the mixing state of black carbon in atmospheric aerosols[J]. Nature, 2001, 409: 695-697
- [4] 王绪鑫,马雁军,向旬,等. 鞍山黑碳气溶胶观测[J]. 环境化学,2010,39(6):1091-1095
- [5] 吴兑,毛节泰,邓雪娇,等,珠江三角洲黑碳气溶胶及其辐射特征的观测研究[J],中国科学 D 辑,2009,39(11):1542-1553
- [6] 陶俊, 朱李华, 韩静磊,等. 广州城区冬季黑碳气溶胶污染特征及其来源初探[J]. 中国环境监测,2009,25(2):53-56
- [7] 李杨,曹军骥,张小曳,等. 2003 年秋季西安大气中黑碳气溶胶的演化特征及其来源解析[J]. 气候与环境研究, 2005, 10(2): 229-237
- [8] 娄淑娟,毛节泰,王美华. 北京地区不同尺度气溶胶中黑碳含量的观测研究[J]. 环境科学学报,2005,25(1):17-22

- [9] 杨朔, 张武, 韩晶晶, 等. 上海市浦东新区秋冬黑碳气溶胶特性[J]. 兰州大学学报(自然科学版),2008,44(4):66-70
- [10] 肖秀珠,刘鹏飞,耿福海,等. 上海市区和郊区黑碳气溶胶的观测对比[J]. 应用气象学报,2011,22(2):158-168
- [11] 高枞亭, 张仁健, 苏丽欣. 长春秋冬季大气黑碳气溶胶的特征分析[J]. 高原气象, 2009, 28(4); 803-807
- [12] 赵玉成, 德力格尔, 蔡永祥, 等. 西宁地区大气中黑碳气溶胶浓度的观测研究[J]. 冰川冻土, 2008, 30(5): 789-794
- [13] 赵玉成,德力格尔,马元仓,等. 2005—2006 年秋冬季西宁大气中黑碳气溶胶的浓度变化特征[J]. 城市环境与城市生态,2008,21 (2):26-29
- [14] 汤洁, 温玉璞, 周凌晞, 等. 中国西部大气清洁区黑碳气溶胶的观测研究[J]. 应用气象学报, 1999, 10: 160-170
- [15] 薛福民,李娟,黄侃,等. 塔克拉玛干沙漠黑碳气溶胶的特性及来源[J]. 中国科学: 化学,2010,40(5): 556-566
- [16] 吴琳,冯银厂,戴莉,等. 天津市大气中 PM₁₀、PM_{2.5}及其碳组分污染特征分析[J]. 中国环境科学, 2009, 29(11):1134-1139
- [17] 古金霞,白志鹏,刘爱霞,等. 天津冬季 PM_{2.5}与 PM₁₀中有机碳、元素碳的污染特征[J]. 环境污染与防治,2009,31(8):33-36
- [18] 蔡子颖,韩素芹,黄鹤,等. 天津夏季黑碳气溶胶及其吸收特性的观测研究[J]. 中国环境科学,2011,31(5):719-723
- [19] 中国气象局. 霾的观测和预报等级. QX/T 113—2010 中华人民共和国气象行业标准[S]. 北京: 气象出版社
- [20] Hansen A D A. The Aethalometer [EB/OL]. [2011-07-01]. http://sirta.ipsl.polytechnique.fr/parisfog/images/stories/parisfog2010/DOC. Instruments/Aethalometer_book.pdf
- [21] 环境保护部. 秸秆焚烧遥感监测日报[EB/OL]. [2011-05-08]. http://hjj. mep. gov. cn/stjc

Observational and analysis of black carbon aerosol in the autumn and winter in Tianjin

YAO Qing^{1,2*} CAI Ziying¹ HAN Suqin¹ HUANG He¹

(1. Tianjin Institute of Meteorological Science, Tianjin, 300061, China;

2. Key Laboratory for Cloud Physics and Weather Modification of CMA, Beijing, 100081, China)

ABSTRACT

Based on the data on the black carbon aerosol (BC), PM_{2.5} mass concentration, visibility and meteorological condition at Tianjin boundary layer station from September 2010 to January 2011, characteristics and influencing factors of BC concentration variation were analyzed. The results show that the average concentration of BC was 7.24 μg·m⁻³, and its mass percentage in PM_{2.5} was 9.42% in the autumn, while the average concentration was 6.46 μg·m⁻³, and mass percentage was 7.98% in the winter. The extinction proportion of BC was 17.2% in autumn and 17.6% in winter. BC diurnal variation of concentration related to the weather processes such as fog and haze with low visibility, while precipitation removed black carbon pollution. Burning of straws from the southwest and south region such as Hebei, Shanxi and Tianjin contributed to high concentrations BC in autumn.

Keywords: black carbon aerosol, weather process, extinction characteristics, Tianjin.