

珠江三角洲黑碳气溶胶及其辐射特性的观测研究

吴兑^{①*}, 毛节泰^②, 邓雪娇^①, 铁学熙^③, 张远航^④, 曾立民^④, 李菲^①, 谭浩波^①,
毕雪岩^①, 黄晓莹^⑤, 陈静^⑥, 邓涛^①

① 中国气象局广州热带海洋气象研究所, 广州 510080;

② 北京大学物理学院, 北京 100871;

③ National Center for Atmospheric Research, Boulder, CO 80303, USA;

④ 北京大学环境学院, 北京 100871;

⑤ 广东省气象台, 广州 510080;

⑥ 中山大学环境科学与工程学院, 广州 510275

* E-mail: wudui@grmc.gov.cn

收稿日期: 2008-08-18; 接受日期: 2009-06-07

国家自然科学基金(批准号: U0733004, 40375002, 40418008, 40775011)、国家高技术研究计划(编号: 2006AA06A306, 2006AA06A308)和国家重点基础研究发展计划(编号: 2005CB422207)资助

摘要 大气气溶胶的气候效应和环境效应研究是当今国际科技界的热门研究话题. 而气溶胶的辐射特征是评估气候变化的重要参数. 对广州番禺大气成分站 2004~2007 年黑碳仪观测的黑碳浓度与吸收系数, 浊度计观测的散射系数, 以及导出的单次散射反照率进行了分析讨论. 主要结果如下: 使用黑碳仪观测黑碳浓度与吸收系数, 必须与国际公认的仪器进行对比观测, 对资料进行校准和订正, 才能得到质量保证的资料序列. 分析表明黑碳浓度月均值在 $3.1\sim 14.8\ \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 之间变化, 4 年来黑碳浓度逐年下降; 每年年均值下降 $1\ \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 左右, 旱季浓度较高, 多年平均为 $8.9\ \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, 雨季浓度比较低, 多年平均为 $8.0\ \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, 月均值极大值出现在 2004 年 12 月份, 月均值极小值出现在 2007 年 7 月份, 黑碳浓度 4 年均值为 $8.4\ \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$. 计算的散射系数月均值在 $129\sim 565\ \text{Mm}^{-1}$ 之间变化; 吸收系数月均值在 $32\sim 139\ \text{Mm}^{-1}$ 之间变化, 单次散射反照率月均值在 $0.71\sim 0.91$ 之间变化, 2004~2007 年的年均值分别为 0.80, 0.82, 0.79, 0.84. 使用 3 台黑碳仪, 分别同步观测 PM_{10} , $\text{PM}_{2.5}$, PM_1 中的黑碳, 结果表明 $\text{PM}_{2.5}$ 占到 PM_{10} 的大约 90%; PM_1 占到 $\text{PM}_{2.5}$ 的大约 68%; 黑碳气溶胶主要存在于细粒子中. 将相距 8 km 的广州番禺大气成分站(海拔 141 m)与番禺气象局(海拔 13 m)在一年中的观测结果进行对比, 两站黑碳浓度的变化趋势比较一致, 居于山顶的大气成分站的黑碳浓度总是低于平原的番禺气象局, 两站的年均值也相差近 $4\ \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, 表明黑碳气溶胶在近地面浓度较高, 在高度较高的大气成分站浓度较低.

关键词

珠江三角洲
黑碳气溶胶
散射系数
吸收系数
单次散射反照率

大气气溶胶做为全球变化的重要强迫因子, 因其全球气候效应近年来成为科学家们广泛关注的一个重

要领域^[1~3], 并且已经成为当前国际全球变化研究的热点问题之一^[4,5].

气溶胶粒子是悬浮在大气中的直径 $10^{-3}\sim 10\ \mu\text{m}$ 的固体或液体粒子, 其质量仅占整个大气质量的十亿分之一, 但其对大气辐射传输和水循环均有重要的影响^[6]. 大气中的气溶胶粒子的自然来源主要是海洋、土壤和生物圈以及火山等. 气溶胶对气候变化、云的形成、能见度的改变、环境质量变化、大气微量成分的循环及人类健康也有着重要影响. 工业化以来, 人类活动直接向大气排放大量粒子和污染气体, 污染气体通过非均相化学反应亦可转化形成气溶胶粒子. 气溶胶的物质成份主要包括: 硫酸盐、硝酸盐、铵盐、有机碳、元素碳和矿物元素, 其中碳气溶胶是大气气溶胶中最复杂的一种成分. 不论从哪一个角度, 研究者们研究大气气溶胶时最有可能涉及到的成分就是碳气溶胶. 一方面, 可吸入的大气气溶胶中存在几千种潜在有害的含碳有机物, 对人群健康带来严重的危害; 另一方面在大气气溶胶对气候变化的影响中, 碳气溶胶对气候的影响具有最大的不确定性. 很多重要的大气化学反应发生在碳气溶胶粒子的表面或受其影响.

大气气溶胶可以散射和吸收太阳辐射, 因而对气候变化的辐射强迫有重要影响, 其中含碳气溶胶可以分为无机碳(EC)和有机碳(OC), 以及碳酸盐碳(CC). 其中碳酸盐中的碳在大气气溶胶中的含量很低, 占总碳含量的比例 $<5\%$ ^[7]. 根据已有的观测结果表明, 碳酸盐含量大约为 $0.1\sim 0.53\ \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, 因此, 绝大多数研究者研究气溶胶含碳物质时, 只讨论OC和EC, 认为总碳量(TC)等于无机碳(EC)加有机碳(OC)量^[8]. 因为无机碳表现出强烈的吸光性又被称为黑碳(BC). OC一般表现为对太阳辐射的散射, 而BC表现为对太阳辐射的吸收, 因而对气溶胶直接辐射强迫有重要的贡献. 黑碳气溶胶作为大气气溶胶的重要组成部分, 在大气物理、大气化学过程中有非常重要的作用, 其变化将影响云的形成、云的寿命、云量变化以及能见度的变化. 传统观点认为气溶胶对大气具有冷却作用, 但由于气溶胶中含有黑碳粒子, 它可以在中低空直接吸收太阳辐射加热大气, 黑碳气溶胶的加热效果有可能抵消矿物气溶胶及硫酸盐气溶胶的冷却效果^[9], IPCC2001 年报告中指出黑碳气溶胶的辐射强迫是正值^[10], 最近的研究表明, 黑碳气溶胶的直接辐射强迫介乎于二氧化碳和甲烷之间, 是影

响全球变暖仅次于二氧化碳的第二位重要因素^[11], 因而对全球气候变暖和区域气候变化和区域环境效应都有重要影响.

碳气溶胶的研究是近年来才开展起来的, 研究历史非常短, 很多方面尚处在初步研究阶段, 在黑碳测量技术和方法方面也存在相当大的不确定性, 因而常有争议. 近年来, 碳气溶胶已成为大气科学的一个研究热点, 由于碳气溶胶对大气的广泛影响及其复杂性, 其本身的特性和对大气影响在实验及理论研究上存在的问题, 这些都使它成为当前气溶胶研究的重点对象. 但目前关于它的科学认识程度还比较低, 其不确定性因素也很多.

中国有关碳气溶胶的研究工作开展较晚, 在中国国家自然科学基金项目和国际合作研究项目的资助下, 中国学者通过现场观测、实验室分析、数值模拟及理论研究等方法, 对中国黑碳气溶胶的物理特征、光学性质、来源、时空分布及其对环境和气候的影响做了一些研究. 在 20 世纪 80 年代中国曾有气溶胶吸收系数观测方法的介绍和结果^[12,13], 自 90 年代起, 黑碳气溶胶的观测研究在中国逐步开展, 汤洁等^[14]1991 年在临安大气本底站和 1998 年在拉萨地区进行过短期的BC浓度观测; 王庚辰等^[15]于 1992 年及 1996~2001 年在北京市北郊测量了BC的浓度; 1994 年在青海海拔 3810 m 的瓦里关山上建成了中国第一个全球大气本底基准观象台, 得到一些有价值的黑碳气溶胶的研究结果^[16]. 迟旭光等^[17]对北京碳气溶胶进行了研究; 孙宏等^[18]对齐齐哈尔市的碳气溶胶进行过研究; 朱忠等^[19]对浦东新区的碳颗粒物进行了研究; Cao和Lee^[20]等近年在香港地区和珠江三角洲地区对碳气溶胶进行了观测, 得出了OC和EC在 $\text{PM}_{2.5}$ 和 PM_{10} 的浓度分布特征. 姜淑娟等^[21]2003~2004 年在北京大学用黑碳仪观测了黑碳. 我们课题组从 2003 年底在珠江三角洲地区开始了对BC(黑碳仪)、EC(滤膜采样分析)浓度连续的观测和研究. 与国外已有的工作相比, 中国系统深入的BC, EC观测和分析到现在刚刚展开.

在国际事务中, 黑碳气溶胶也扮演着重要角色, 1999 年欧美科学家发现, 在亚洲南部上空经常笼罩着一层 3 km 厚的棕色气溶胶云, 并称其为亚洲棕色云^[22], 也有人将其称为灰霾天气^[23], 其组成主要包

括: 黑碳、粉尘、硫酸盐、铵盐、硝酸盐等, 后来发现各大洲都存在类似现象, 又将其称为大气棕色云。并进而提出, 原来假定的气溶胶辐射强迫的冷却效应要做一定的修正, 尤其认为大气灰霾中的黑碳气溶胶是气候变暖的重要角色^[22], 这就使得气溶胶辐射强迫对气候变化影响的不确定性增加, 而且也存在国际上发达国家, 主要是美国利用减排黑碳气溶胶问题对中国进行经济遏制, 对中国进行打压的外交压力。获取供中国独立自主评估气溶胶气候效应所需的准确、时空分辨率高的气溶胶辐射参数的直接观测资料就显得更加迫切。

已有不少观测事实和数值模拟研究揭示出气溶胶对气候辐射强迫的重要性, 但由于气溶胶时、空分布的不确定及粒子物理、化学特性的多变性, 加上观测资料的严重缺乏, 使得大气气溶胶成为当今环境与气候变化研究中一个既重要又难以估计的不确定因子。大气气溶胶对环境与气候变化的研究在很大程度上依赖于对其时、空分布状况的了解和其光学特性的准确估计。其中吸收系数是表征大气气溶胶状况的重要物理参量, 而黑碳气溶胶代表了气溶胶的吸收特性。

珠江三角洲(Pearl River Delta, PRD)作为 20 个世纪末最后 20 年全球经济发展最快的地区之一, 也是国内气溶胶颗粒物大气污染相当严重的区域之一。在这个总面积只有 8000 多平方公里的区域, 聚集了广州、香港、深圳、东莞、佛山、澳门、珠海这样拥有数百万以上人口的国际化城市和几十个人口在几十万左右的中等城市, 在大量土地被工业化利用、植被减少、交通工具迅猛增加、乡镇企业工厂蓬勃发展的情况下, 这一地区频繁发生的大气污染事件已经引起政府和公众的广泛关注^[24,25]。

本文使用自 2003 年开始在珠江三角洲开展的对 BC(黑碳仪)浓度连续系统的观测资料序列, 对该地区的黑碳气溶胶分布特征及气溶胶的吸收特性进行了分析。

1 资料来源与处理说明

珠江三角洲是中国大陆第二大的三角洲, 位于大陆海岸线南端, 河网纵横, 孤丘散布, 平均海拔 1~20 m。珠江三角洲大气成分站网始建于 2003 年,

先后建设了中国气象局广州番禺大气成分站等 9 个大气成分观测站点, 其中本文使用的资料主要涉及 2 个站, 中国气象局广州番禺大气成分站位于广州市番禺区南村镇大镇岗山山顶, 是番禺第一高峰, 海拔 141 m, 23°00.236'N, 113°21.292'E, 地处珠江三角洲腹地, 本站代表珠江三角洲经济圈大气成分均匀混合的平均特征。番禺气象局位于番禺区西部, 海拔 13 m, 22°56.265'N, 113°19.143'E, 代表珠江三角洲典型地形。两站直线距离 8 km。

我们使用的高时间分辨率的气溶胶辐射仪器包括: 黑碳仪(欧洲 Magee Scientific Aethalometer AE-31-HS, AE-31-ER, AE-16-ER 共 7 台)、积分式浊度仪(澳大利亚 Nephelometer M9003 共 6 台), 得到连续的黑碳气溶胶浓度与大气气溶胶散射系数、吸收系数、消光系数、单次散射反照率等重要的气溶胶辐射强迫参数的长时间资料序列。本文主要使用黑碳仪观测的 BC 长期连续观测资料进行分析。

AE-31 型黑碳仪(Aethalometer)有 7 个测量通道, 波长分别为 370, 470, 520, 590, 660, 880 和 950 nm, AE-16 型黑碳仪只有 880 nm 1 个测量通道, 可以连续实时观测黑碳气溶胶的质量浓度。其基本测量原理建立在石英滤纸带所收集的粒子对光的吸收造成的衰减上, 相对于黑碳气溶胶的吸收来说, 气溶胶其他成分对可见光的吸收可以忽略不计, 当用一束光照射附有黑碳气溶胶的滤膜时, 由于黑碳气溶胶对可见光具有吸收衰减特性, 通过测量透过采样滤膜的不同波长光的光学衰减量, 就可以确定样品中黑碳气溶胶的含量。

在一定范围内, 光学衰减量与单位面积采样膜上黑碳气溶胶的沉积量有如下线性关系:

$$\Delta ATN_{\lambda} = \ln \left(\frac{I_0}{I} \right) = \sigma_{\lambda} \times BC, \quad (1)$$

式中 ΔATN_{λ} 为某一波长采样一个周期的光学衰减量、 I_0 为采样前透过滤膜的光强、 I 为采样后透过滤膜的光强、 σ_{λ} 为某一波长黑碳气溶胶的比衰减系数, 表示单位面积沉积在滤膜上的单位质量的黑碳气溶胶对光的衰减率, 其单位为 $\text{m}^2 \cdot \text{g}^{-1}$ 。根据黑碳气溶胶的不同来源及混合状态, σ_{λ} 在一定范围内变化, 一般在 $10 \sim 19 \text{ m}^2 \cdot \text{g}^{-1}$ 之间。本文采用的是厂家推荐的 $16.6 \text{ m}^2 \cdot \text{g}^{-1}$, BC 为单位面积采样膜上的黑碳质量, 单位

为 $\text{g} \cdot \text{m}^{-2}$, 在测量过程中, 分别测量灯亮时和灯灭时测量光束探测器输出, 与分别测量灯亮时和灯灭时参考光束的输出, 可以得到光衰减值, 利用相邻两个周期测得的光衰减值, 知道采样时间间隔 Δt , 采样流量 Q , 气溶胶沉积在滤膜上的面积 S , 可以得到该时间段的空气样品中的黑碳气溶胶质量浓度, 单位是 $\text{ng} \cdot \text{m}^{-3}$. 观测中黑碳仪的采样流量为 3 或 $5 \text{ L} \cdot \text{min}^{-1}$, 每 5 min 做一次循环观测^[21]. 黑碳仪安装在观测集装箱内, 进气口位于箱顶, 采样口离地面高度大于 3 m, 周围无障碍物遮挡. 进气管路无明显弯折. 通过 1.5 m 内壁涂有特富龙的黑管(Black tube)与仪器相连, 可以忽略样品在管壁附着的损失, 观测时使用了 $10 \mu\text{m}$ 的切割头. 黑碳仪每 3 个月进行一次流量检查和零点数据检查. 依据流量检查结果对观测数据进行流量订正; 在进气口前加入粒子涤除器检查零气状态下的测量值. 测量时及时检查光源的稳定性情况. 另外通过仪器参数设定控制观测滤膜上黑碳气溶胶的载荷量(控制透射光衰减不超过 100%).

积分式浊度仪(Nephelometer)有 1 个测量通道, 波长为 525 nm, 安装在观测集装箱内, 进气口位于箱顶, 通过 2.0 m 内壁涂有特富龙的铝管与仪器相连, 可以忽略样品在管壁附着的损失, 测量时在进气管加热以保证测量时的相对湿度不超过 60%. 积分式浊度仪除设定每天自动进行零点检查, 还定期进行

零点和跨度检查. 跨度检查的标准气为 R134a 气体. 如果零点/跨度偏离较大, 则对仪器进行全标定.

2 仪器的对比观测试验

2004 年 10 月 14~29 日, 在 2004 年 PRIDE-PRD2004 的综合试验中, 使用我们的黑碳仪(Aethalometer, 880 nm)分别在广州市区和广州市南端的南沙区新垦, 与德国 Max Planck 研究所的 Photoacoustic Spectrometer(PAS, 532 nm, 声光法) 以及 Multi-Angle Absorption Photometry (Carusso, 690 nm, 多向散射法)进行了平行对比观测. 目前国际上公认声光法测量的吸收系数具有优越性, 可作为参比标准对照^[26]. 从图 1 和 2 来看, 黑碳仪无论是与声光法还是多向散射法相对比, 有比较一致的趋势性变化.

黑碳仪存在观测误差, 主要是由于光线在滤膜中多次散射, 造成比衰减系数 σ_a 偏大引起浓度值偏高^[26], 我们的 Aethalometer(880 nm)仪器与德国 Max Planck 研究所的多向散射法(Carusso)进行平行对比观测数据拟合得到如下公式:

$$BC_{\text{car}} = 0.897 BC_{\text{aet}} - 0.062, R^2 = 0.94, \quad (2)$$

式中 BC_{car} , BC_{aet} 分别是多向散射法和 Aethalometer 观测的黑碳气溶胶质量浓度, 单位是 $\text{ng} \cdot \text{m}^{-3}$. 我们观测的黑碳浓度结果用该式进行了订正.

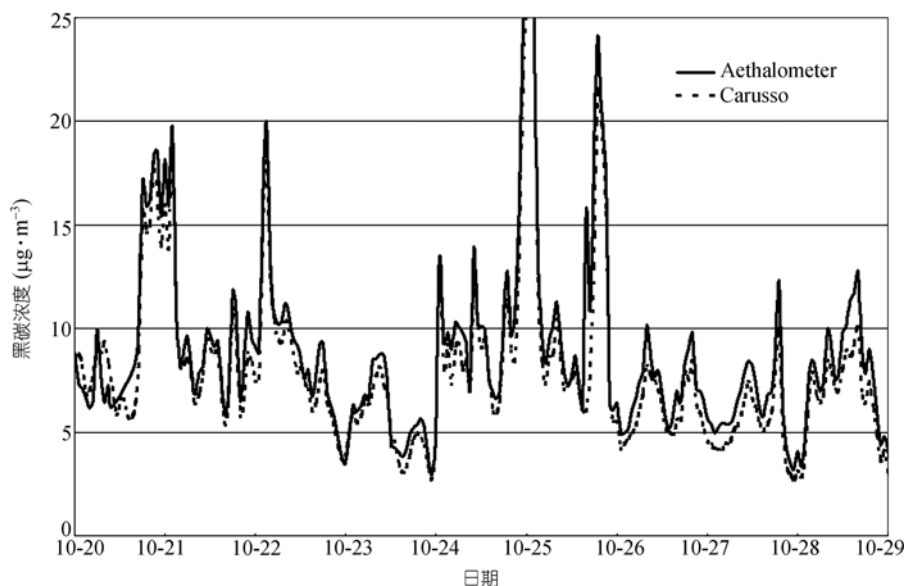


图 1 黑碳仪(Aethalometer)与德国马普多向散射法(Carusso)在广州新垦测量黑碳浓度对比实验的时间序列

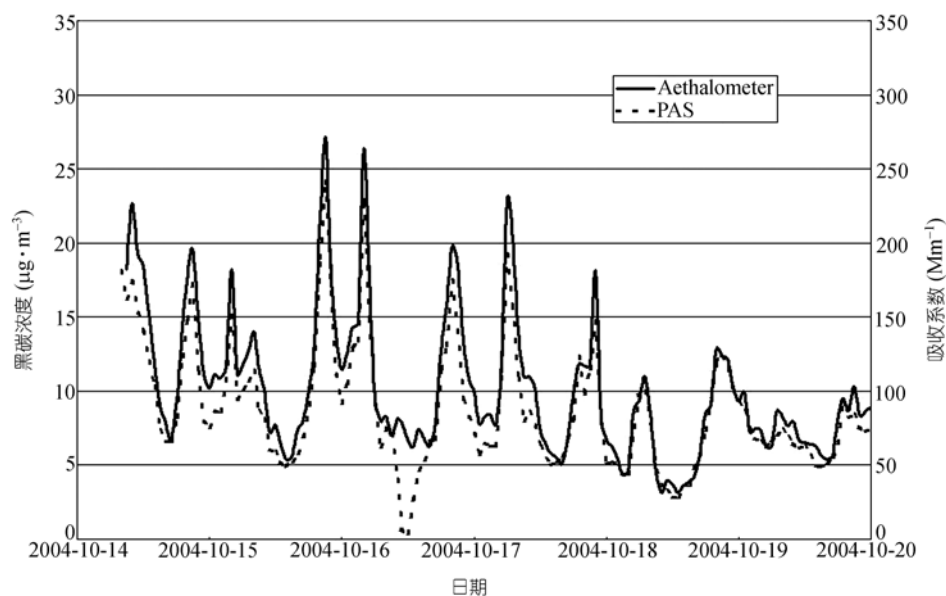


图2 黑碳仪(Aethalometer, 880 nm)与德国马普声光法(PAS, 532 nm)在广州市区测量黑碳浓度与吸收系数对比实验的时间序列

使用黑碳仪的资料获取气溶胶吸收系数是资料处理的关键环节, 由于仪器原来利用测量的光强计算浓度的中间量衰减系数 σ_λ 是滤膜上沉积的黑碳粒子在压缩态的结果, 而我们需要的是大气中分散态的黑碳粒子的吸收系数, 因而需要使用实验对比的方法得到。

我们已经知道了黑碳浓度, 如果认为气溶胶的吸收主要由黑碳气溶胶引起, 可以进一步得到吸收系数^[27]:

$$Abs_\lambda = \sigma \times M_{BC}, \quad (3)$$

式中 σ 为大气中分散态单位质量黑碳气溶胶的比吸收系数, M_{BC} 是黑碳气溶胶质量浓度, 单位是 $ng \cdot m^{-3}$ 。

目前国际上公认声光法测量的吸收系数具有代表性, 可作为参比标准对照。该方法由于测量的气溶胶为悬浮状态, 克服了滤膜采样的不足, 因此, 声光方法常被作为吸收系数的参考方法, 用于校准基于滤膜采样的吸收系数测量方法^[27]。在2004年PRIDE-PRD2004的综合试验中, 我们的Aethalometer(880 nm)仪器与德国Max Planck研究所的Photoacoustic Spectrometer(PAS, 532 nm)进行了平行对比观测(图2), 平行观测数据拟合得到如下公式:

$$Abs_{532} = 8.28 \times M_{BC} + 2.23, \quad R^2 = 0.92, \quad (4)$$

其中 M_{BC} 是Aethalometer在880 nm波长处测量的未经

订正的黑碳浓度, 单位 $\mu g \cdot m^{-3}$; Abs_{532} 为PAS测量的气溶胶吸收系数, 单位 Mm^{-1} 。回归方程的斜率为 $8.28 \text{ m}^2 \cdot g^{-1}$, 这个斜率与BRAVO试验(Big Bend Regional Aerosol and Visibility Observation Study)中Arnett等^[27]在德克萨斯国家公园用Aethalometer和PAS观测的全部数据回归得到的斜率 $8.5 \text{ m}^2 \cdot g^{-1}$ 比较接近, 也与Barnard等^[28]在墨西哥城市区(Mexico City Metropolitan Area)2003年试验获得的黑碳比吸收系数 $8 \sim 10 \text{ m}^2 \cdot g^{-1}$ (550 nm波长处)比较一致。

因此, 由Aethalometer观测的黑碳浓度用 $8.28 \text{ m}^2 \cdot g^{-1}$ 的质量吸收比计算532 nm的吸收系数具有一定的依据, 但由于气溶胶的吸收性质本质上是由气溶胶的成分谱、粒子尺度谱以及气溶胶的亲水性等物理化学性质所决定, 不同时间不同季节不同地点的气溶胶的物理化学性质有不同。短期的对比观测期间得到的黑碳质量吸收比系数 $8.28 \text{ m}^2 \cdot g^{-1}$ 应用到所有由黑碳浓度计算吸收系数的观测数据中, 误差是存在的。

使用单波长积分式浊度计可以直接观测散射系数, 实际上仪器并不真正满足积分限为 $0 \sim \pi$, 而是有一定的角度范围。对美国TSI厂家生产的积分式浊度仪, 该角度为 $7^\circ < \theta < 170^\circ$; 澳大利亚ECOTECH公司生产的M9003积分式浊度仪, 该角度为 $10^\circ < \theta < 170^\circ$;

美国OPTEC公司生产的NGN-2 型积分式浊度仪的测量角度范围为 $5^{\circ}<\theta<175^{\circ}$. 对这种由于散射角积分角度不理想(截断)带来的误差就是浊度仪的截断误差. 理论分析表明, 对一般大气气溶胶, 积分式浊度计测量的散射系数误差不大于10%, 但对气溶胶主要为较粗粒子时(如沙尘天气), 该误差可能较大^[29], 由于华南地区没有沙尘暴现象, 气溶胶粒子以细粒子为主, 因而未作订正.

通过上面的讨论, 使用黑碳仪与积分式浊度计观测吸收系数与散射系数, 除了对仪器进行必须的标定和校准外, 还需要进行必要的订正, 才可能获得合理的资料, 目前中国在大气成分站网和沙尘暴站网都安装了黑碳仪(Aethalometer)与积分式浊度计(Nephelometer), 这些宝贵资料可以参考上述的(2)式和(4)式的思路进行相应的订正, 而沙尘天气时的散射系数测量误差需要专门讨论.

另外, 在观测中发现 2005 年 10 月 12~14 日的散射系数异常偏高, 而仪器参数检测都在正常范围, 经过反复检查, 发现浊度计反应釜内壁积尘, 导致散射系数测值偏高, 因而去除了这些数据, 并且形成制度定期清理浊度计反应釜内壁积尘.

3 气溶胶中的黑碳浓度和吸收特性

已获取黑碳仪自 2004 年 1 月 1 日以来的黑碳浓度和气溶胶吸收系数资料、浊度计自 2004 年 2 月 8 日以来的气溶胶散射系数资料(表 1), 计算了相应的单次散射反照率因子. 对 2004~2007 年的观测资料的

初步分析表明黑碳浓度月均值在 $3.1\sim14.8\ \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 之间变化, 4 年来黑碳浓度逐年下降; 每年年均值下降 $1\ \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 左右, 旱季浓度较高, 多年平均为 $8.9\ \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, 雨季比较低多年平均为 $8.0\ \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$; 月均值极大值出现在 2004 年 12 月份, 月均值极小值出现在 2007 年 7 月份, 4 年均值为 $8.4\ \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$. 与国内其他地区相比^[11,18], 雨季低于北京夏季的 $8.8\ \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, 旱季低于北京冬季的 $11.4\ \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, 但各月均高于临安 1991 年 9~10 月的 $2.3\ \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$.

计算的散射系数、吸收系数、单次散射反照率因子列于表 2 与图 3, 我们看到散射系数在 $129\sim565\ \text{Mm}^{-1}$ 之间变化, 旱季均比雨季高; 吸收系数在 $32\sim139\ \text{Mm}^{-1}$ 之间变化, 旱季一般比雨季高, 有逐年减小的趋势; 单次散射反照率因子在 $0.71\sim0.91$ 之间变化, 旱季一般比雨季高, 2004~2007 年的年均值分别为 0.80, 0.82, 0.79, 0.84. 4 年总平均是 0.81.

与其他地区相比较, 结果下表 3. 看到在珠三角地区, 不同研究的结果单次散射反照率比较接近, 我们得到的 0.81 与Garland等^[30]得到的 0.82 非常接近, 与北京地区相比, 珠三角的单次散射反照率略高于毛节泰等^[31]得到北京城区的 0.79, 而低于Yan等^[32]得到远郊区的 0.88, 与太湖及亚洲地区整层大气柱的单次散射反照率相比较, 明显偏低, 尤其是与海洋气溶胶相比. 城市群近地面的单次散射反照率与整层大气柱的明显不同, 这有两种可能, 由于地基采样观测得到的是干气溶胶的单次散射反照率, 与真实大气环境不同, 在真实大气中, 由于具散射能力的粒子

表 1 广州番禺黑碳浓度($\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$)的月平均值

年份	旱季(9~次年 2 月)	雨季(3~8 月)	年平均
2004	11.85±1.69	9.95±1.63	10.9±1.87
2005	9.28±2.63	8.52±1.77	8.9±2.17
2006	7.23±1.57	8.1±2.02	7.67±1.78
2007	7.17±2.29	5.27±1.37	6.22±2.06
总平均	8.88±2.76	7.96±2.36	8.42±2.58

表 2 珠三角散射系数(Mm^{-1})、吸收系数(Mm^{-1})和单次散射反照率

	散射系数(525 nm)			吸收系数(532 nm)			单次散射反照率(525 nm)		
	雨季	旱季	年平均	雨季	旱季	年平均	雨季	旱季	年平均
2004	359±75	471±6	401±80	94±13	112±13	103±16	0.78±0.03	0.82±0.01	0.80±0.03
2005	339±110	462±77	401±113	81±15	94±23	87±21	0.80±0.02	0.83±0.05	0.82±0.04
2006	296±114	330±57	313±92	81±16	76±11	79±14	0.77±0.05	0.81±0.02	0.79±0.04
2007	321±137	340±34	331±100	51±11	69±19	60±18	0.85±0.03	0.83±0.04	0.84±0.04
平均	327±115	391±85	358±107	77±21	88±24	82±23	0.80±0.05	0.82±0.03	0.81±0.04

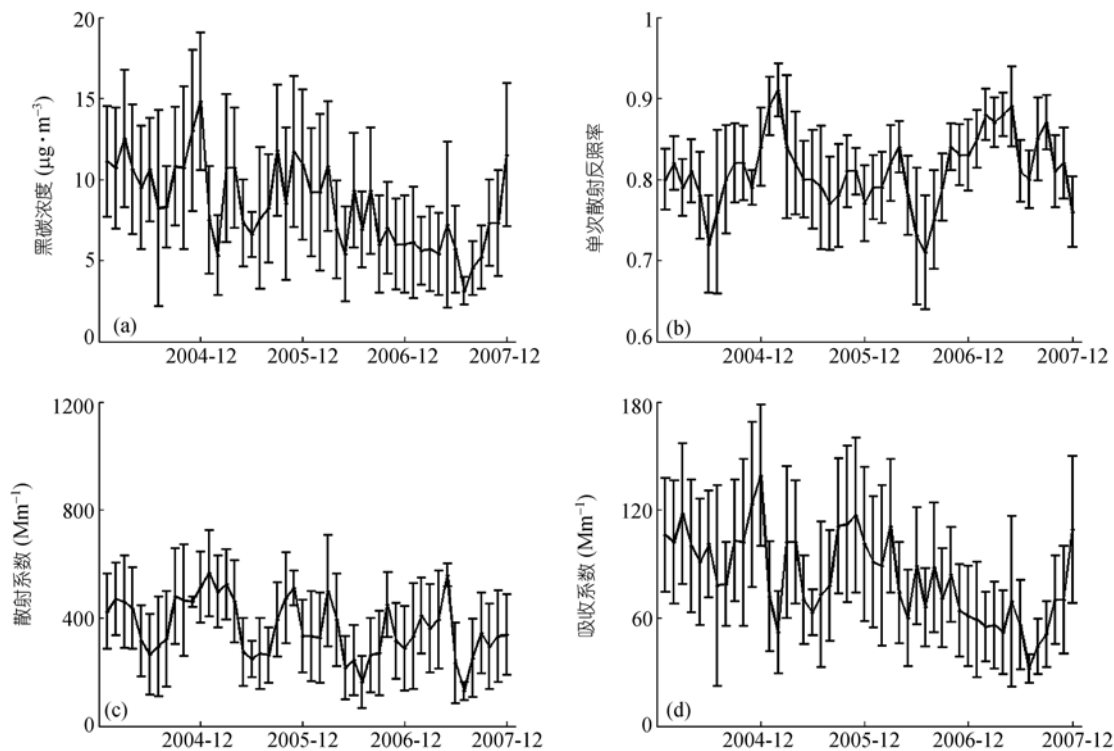


图3 珠江三角洲气溶胶辐射特性的逐月变化
(a) 黑碳浓度, (b) 单次散射反照率(525 nm), (c) 散射系数(525 nm), (d) 吸收系数(532 nm)

表3 不同地区单次散射反照率(SSA)的比较

地区	时间	λ/nm	SSA	RH	粒子范围	备注	作者
珠三角腹地	2004-01~2007-12	532	0.81	<60%	PM ₁₀	地面	本研究
珠三角北缘	2006-07	532	0.82	<40%	PM ₁₀	地面	Garland等 ^[30]
北京城区	2003-06~2003-12	532	0.79	<60%	TSP	地面	毛节泰等 ^[31]
北京远郊区	2003-09~2005-01	525	0.88	<60%	TSP	地面	Yan等 ^[32]
太湖	2005-09~2006-08	440	0.90	<78%	Aerosol	整层大气	Xia等 ^[33]
香河	2004-09~2005-09	550	0.81~0.85	<42.5%	TSP	整层大气	Li等 ^[34]
Ace-Asia	2001-03~2001-05	550	0.92	<40%	TSP	飞机观测	Anderson等 ^[35]
Ace-Asia	2001-03~2001-05	550	0.97	<55%	PM ₁₀	海洋气溶胶	Quinn等 ^[36]

会不同程度的吸湿增长, 因而有一个含水气溶胶附加的散射贡献, 因而会比测值高; 另外由于遥感方法得到的是整层大气柱的单次散射反照率, 而气溶胶的垂直分布无论在尺度上还是在成分上都存在差异, 因而地面气溶胶的单次散射反照率与整层大气柱中气溶胶的单次散射反照率应该存在较大差异.

4 气溶胶黑碳浓度和吸收特性的日变化特征

将4年逐日资料进行平均, 得到了黑碳浓度、吸收系数、散射系数和单次散射反照率的平均日变化特征, 如图4所示, 它们都有显著的日变化特征. 在1

天中黑碳浓度有两个峰值, 清晨8时与傍晚19~20时各有一个峰值, 中午13~14时黑碳浓度最低, 清晨的高浓度和中午的低浓度与混合层的日变化特征密切相关, 而傍晚的高浓度可能与粒子排放有关^[30]. 散射系数与吸收系数也有相似的日变化特征, 只是清晨的散射系数高值出现时间较吸收系数滞后1 h, 出现在9时, 而散射系数较吸收系数有更为显著的日变化; 与其相对应, 单次散射反照率的日变化是吸收系数日变化的镜像反映. 单次散射反照率的峰值出现在中午13~14时, 低值出现在19时与7时. 另外, 在日出时段(6~8时), 散射系数与吸收系数下降、而单次

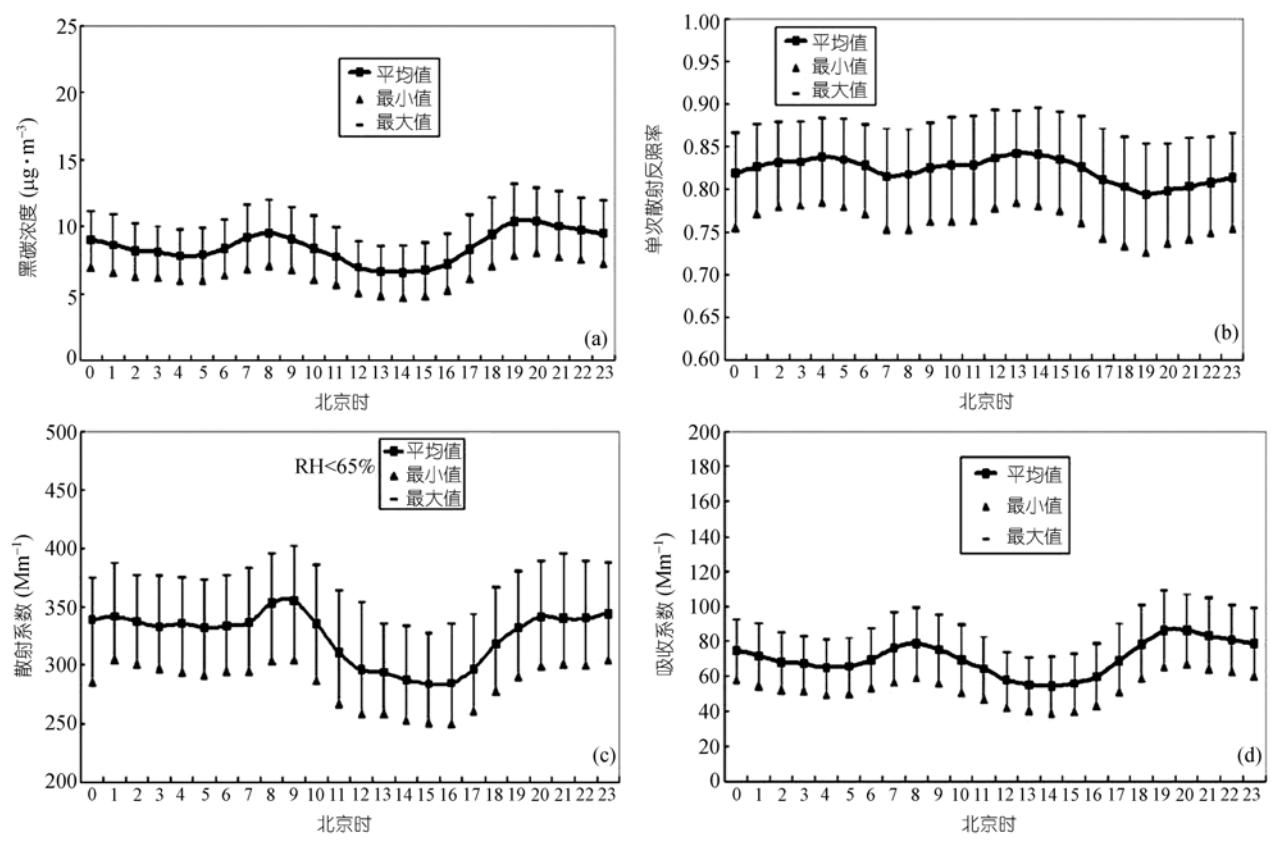


图 4 珠江三角洲气溶胶辐射特性的日变化特征

(a) 黑碳浓度, (b) 单次散射反照率(525 nm), (c) 散射系数(525 nm), (d) 吸收系数(532 nm)

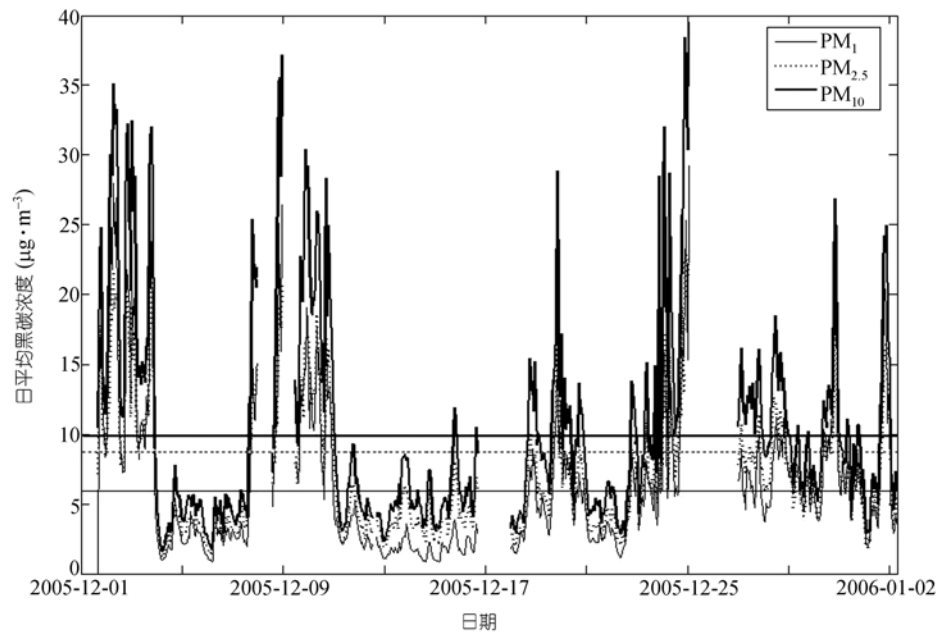


图 5 广州番禺大气成分站 3 台黑碳仪同步观测结果

散射反照率增加, 在 10 时达至极大后一直稳定持续到 16 时. 日变化特征与Garland等^[30]在珠三角北缘的日变化趋势相吻合, 而与Yan等^[32]在北京东北部远郊区得到的单峰型日变化趋势不同.

上述变化很大可能的原因是, 反映了边界层的日变化及其对测站气溶胶浓度的影响, 散射系数与吸收系数的日变化是由白天的对流混合造成的, 对流混合导致散射系数与吸收系数的稀释和减少. 日落后, 稳定夜间边界层的形成、结合颗粒物与气态污染物在夜晚的连续排放或区域输送, 使得散射系数与吸收系数和黑碳浓度增加^[30]. 因此, 气溶胶辐射参数的日变化可能是由边界层的改变以及区域交通等

排放引起的. 下午散射系数的增加, 也可能与当地二次气溶胶的生成有关^[30], 但是受资料所限, 尚不能得到二次气溶胶生成的数量及其重要性.

5 不同粒径气溶胶的吸收特性和黑碳浓度

我们在 2005 年 12 月至 2006 年 1 月在广州番禺大气成分站同时使用 3 台黑碳仪, 分别同步观测 PM₁₀, PM_{2.5}, PM₁ 中的黑碳, 如图 5, 6 所示, 我们看到 3 种尺度范围的黑碳浓度变化趋势非常一致, 在观测期间, PM₁₀, PM_{2.5}, PM₁ 中的黑碳平均浓度分别为 9.98, 8.54, 6.25 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, PM_{2.5} 占到 PM₁₀ 的大约 90%; PM₁ 占到 PM_{2.5} 的大约 68%; 黑碳气溶胶主要存在于细粒子中.

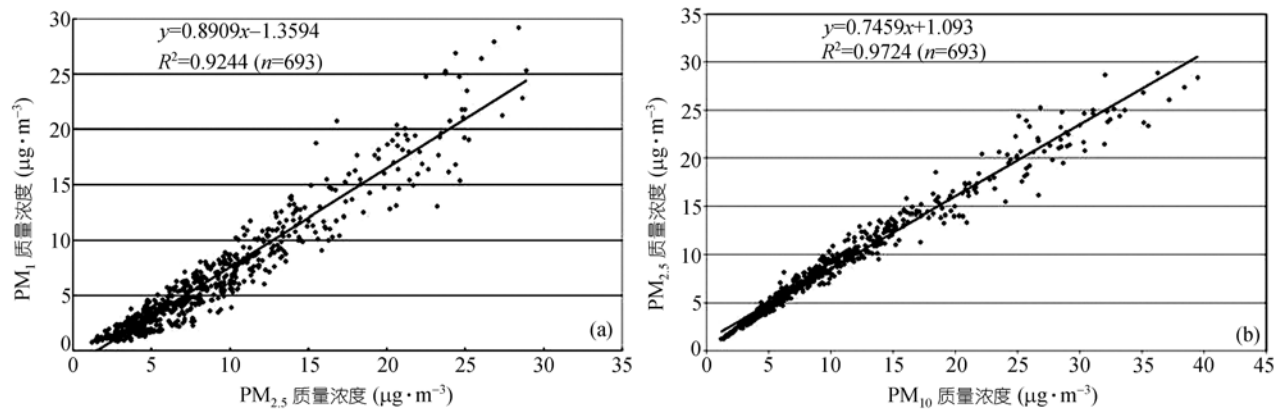


图 6 不同尺度气溶胶中黑碳的关系
(a) PM_{2.5} 与 PM₁; (b) PM₁₀ 与 PM_{2.5}

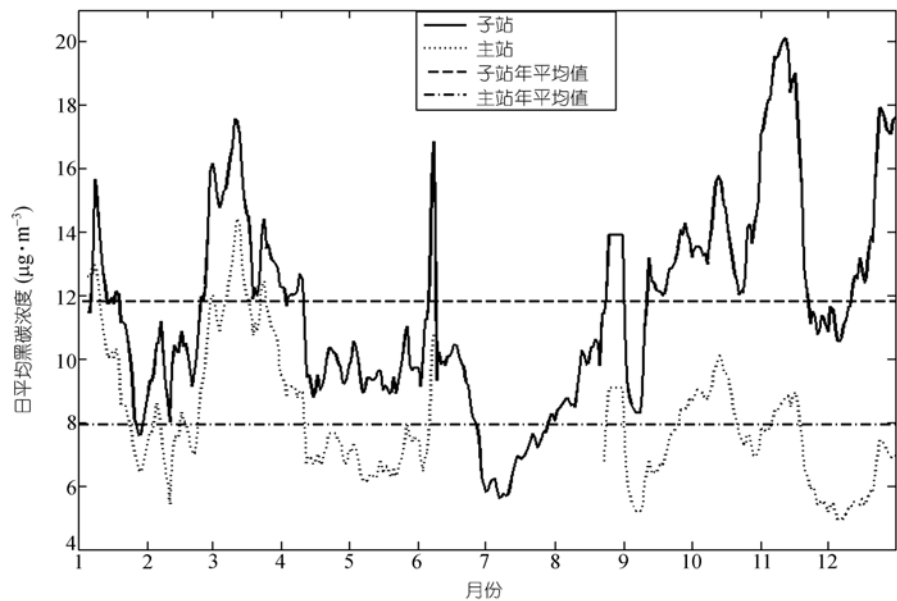


图 7 不同高度测站黑碳浓度对比观测
主站海拔 141 m, 子站海拔 13 m, 两站相距 8 km

6 不同高度黑碳气溶胶变化

将广州番禺大气成分站与番禺气象局在 2006 年中的观测结果绘于图 7, 两站相距 8 km, 我们看到, 两站黑碳浓度的变化趋势比较一致, 居于海拔 141 m 山顶的大气成分站的黑碳浓度总是低于海拔 13 m 的番禺气象局, 两站的年均值也相差近 $4 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$, 表明黑碳气溶胶在近地面浓度较高, 在高度较高的大气成分站浓度较低.

7 典型过程的气流输送分析

如图 8 所示, 选择了几个黑碳浓度维持在较高水平, 单次散射反照率偏低的典型过程, 使用美国国家海洋和大气局(NOAA) 等开发的HYSPLIT-4 模式分析了其气流的后向轨迹^[37], 以位于珠江三角洲腹地的广州番禺(23°00.236'N, 113°21.292'E)为参考点, 选取 150 m 高度层(测站传感器高度), 分别计算了后向轨迹, 以追踪抵达珠三角的气团过去 24~72 h 所经过

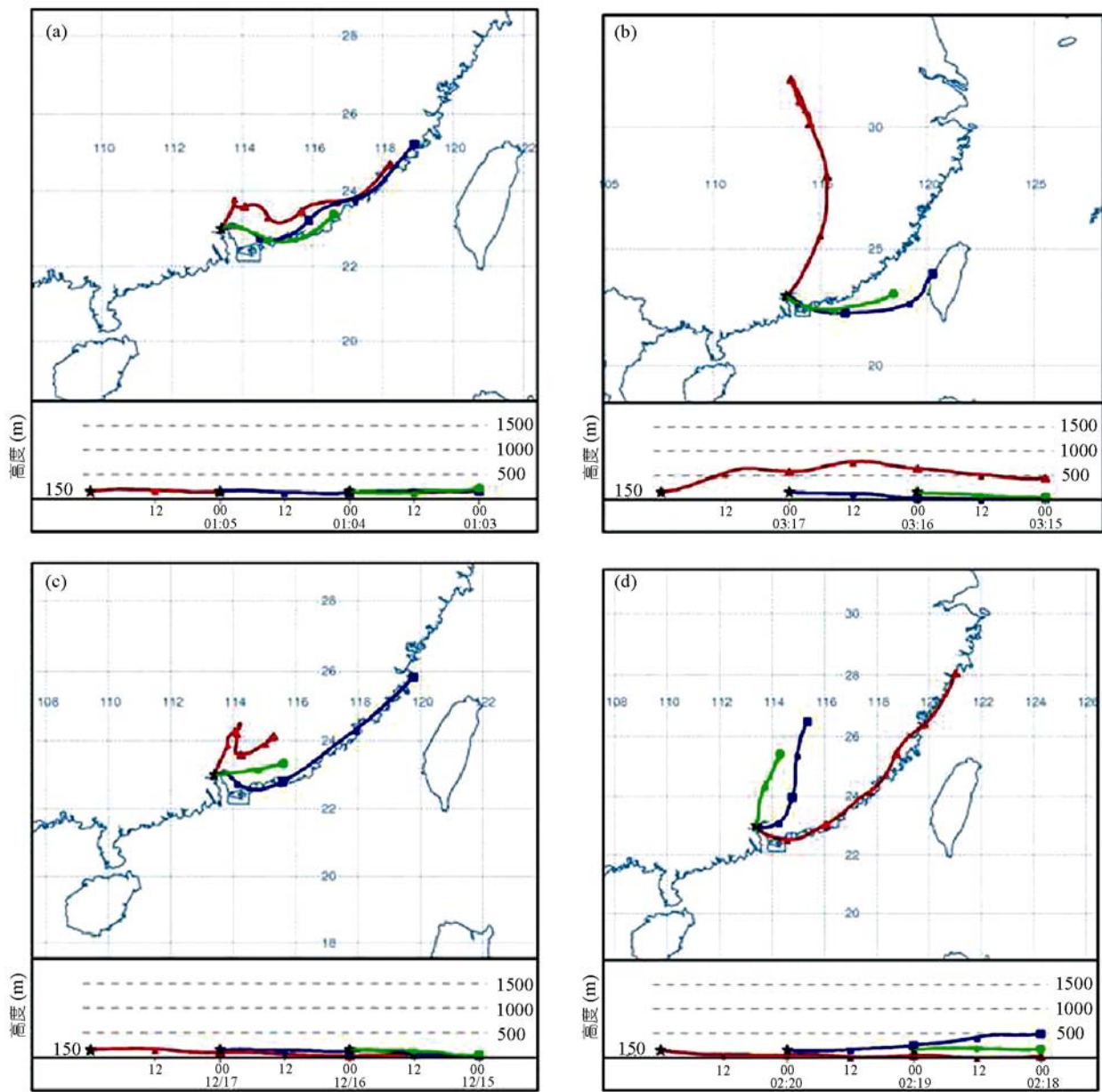


图 8 典型过程气流的后向轨迹

(a) 2004 年 1 月 3~6 日; (b) 2005 年 3 月 15~18 日; (c) 2007 年 12 月 15~18 日; (d) 2007 年 12 月 18~21 日. ★为终点, 位置为 23.00°N, 113.40°E

的路径, 我们看到珠三角明显受两股不同的气流影响, 黑碳浓度高值期主要受沿华南海岸线的偏东转偏南气流控制, 也有气流基本在珠三角区域内回旋的例子(图 7(c)), 好转期则受偏北气流控制. 在垂直方向上, 黑碳浓度高值期粒子的轨迹线一直在 300 m 以下, 说明影响测站的粒子长距离输送通道一直稳定在近地层. 当转为偏北气流控制时, 气流在垂直方向上来自较高层次(500 m 以上), 黑碳浓度明显下降. 单次散射反照率明显回升, 这表明, 珠三角地区黑碳高浓度过程大部分情况可能与来自珠三角周边香港、深圳、东莞等地的输送有关, 这为周边地区黑碳粒子向珠三角腹地的区域间输送的研究提供了重要信息.

8 小结

对广州番禺大气成分站 2004~2007 年黑碳仪观测的黑碳浓度与吸收系数, 浊度计观测的散射系数, 以及导出的单次散射反照率进行了分析讨论, 有如下主要结果:

(1) 使用黑碳仪观测黑碳浓度与吸收系数, 使用积分式浊度计观测散射系数, 必须与国际公认的仪器进行对比观测, 对资料进行校准和订正, 才能得到质量保证的资料序列.

(2) 分析表明黑碳浓度月均值在 $3.1 \sim 14.8 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ 之间变化, 4 年来黑碳浓度逐年下降; 每年年均

值下降 $1 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ 左右, 旱季浓度较高, 多年平均为 $8.9 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$, 雨季比较低多年平均为 $8.0 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$, 月均值极大值出现在 2004 年 12 月份, 月均值极小值出现在 2007 年 7 月份, 黑碳浓度 4 年均值为 $8.4 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$.

(3) 计算的散射系数月均值在 $129 \sim 565 \text{ Mm}^{-1}$ 之间变化; 吸收系数月均值在 $32 \sim 139 \text{ Mm}^{-1}$ 之间变化, 单次散射反照率因子月均值在 $0.71 \sim 0.91$ 之间变化, 2004~2007 年的年均值分别为 0.80, 0.82, 0.79, 0.84.

(4) 气溶胶辐射参数的日变化可能是由边界层的改变以及区域交通等排放引起的.

(5) 使用 3 台黑碳仪, 分别同步观测 PM_{10} , $\text{PM}_{2.5}$, PM_1 中的黑碳, 结果表明 $\text{PM}_{2.5}$ 占到 PM_{10} 的大约 90%; PM_1 占到 $\text{PM}_{2.5}$ 的大约 68%; 黑碳气溶胶主要存在于细粒子中.

(6) 将相距 8 km 的广州番禺大气成分站(海拔 141 m)与番禺气象局(海拔 13 m)在一年中的观测结果进行对比, 两站黑碳浓度的变化趋势比较一致, 居于山顶的大气成分站的黑碳浓度总是低于平原的番禺气象局, 两站的年均值也相差近 $4 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$, 表明黑碳气溶胶在近地面浓度较高, 山顶大气成分站的浓度较低.

(7) 珠三角地区高浓度黑碳与低单次散射反照率过程可能与来自珠三角周边香港、深圳、东莞等地的输送有关.

致谢 感谢审稿专家提出的宝贵意见, 美国国家大气海洋局(NOAA)空气资源实验室(ARL)提供的后向轨迹模型(<http://www.arl.noaa.gov/ready.html>)在本文中使用.

参考文献

- 1 Penner J E, Dong X Q, Chen Y. Observational evidence of a change in radiative forcing due to the indirect aerosol effect. *Nature*, 2004, 427(6971): 231—234[[doi](#)]
- 2 Lohmann U, Lesins G. Stronger constraints on the anthropogenic indirect aerosol effect. *Science*, 2002, 298(5595): 1012—1015[[doi](#)]
- 3 Menon S, Hansen J, Nazarenko L, et al. Climate effects of black carbon aerosols in China and India. *Science*, 2002, 297(5590): 2250—2253[[doi](#)]
- 4 Reddy M S, Venkataraman C. Atmospheric optical and radiative effects of anthropogenic aerosol constituents from India. *Atmos Environ*, 2000, 34: 4511—4523[[doi](#)]
- 5 Babu S S, Moorthy K K. Anthropogenic impact on aerosol black carbon mass concentration at a tropical coastal station: a case study. *Curr Sci*, 2001, 81(9): 1208—1214
- 6 罗云峰, 周秀骥, 李维亮. 大气气溶胶辐射强迫及气候效应的研究现状. *地球科学进展*, 1998, 13(6): 572—581
- 7 Japar S M, Brachaczek W W, Grose R A. The contribution of elemental carbon to the optical properties of rural atmospheric aerosols. *Atmos Environ*, 1986, 20: 1281—1289[[doi](#)]
- 8 Clarke A G, Karani G N. Characterisation of the carbonate content of atmospheric aerosols. *J Atmos Chem*, 1992, 14: 119—128[[doi](#)]

- 9 Meinrat O A. The dark side of aerosols. *Nature*, 2001, 409: 671—672[[doi](#)]
- 10 Houghton J T, Ding Y, Griggs D J, et al. IPCC Climate Change 2001: The Scientific Basis, Radiative Forcing of Climate Change. Cambridge: Cambridge University Press, 2001
- 11 Jacobson M Z. Strong radiative heating due to the mixing state of black carbon in atmospheric aerosols. *Nature*, 2001, 409: 695—697[[doi](#)]
- 12 栾胜基, 毛节泰. 大气气溶胶吸收系数的测量. *气象学报*, 1986, 44(3): 321—327
- 13 黄世鸿, 李子华, 杨军. 中国地区边界层大气气溶胶辐射吸收特性. *高原气象*, 2000, 19(4): 487—494
- 14 汤洁, 温玉璞, 周凌晔, 等. 中国西部大气清洁区黑碳气溶胶的观测研究. *应用气象学报*, 1999, 10: 160—170
- 15 王庚辰, 孔琴心, 任丽新, 等. 北京地区大气中的黑碳气溶胶及其变化特征. *过程工程学报*, 2002, 2: 284—288
- 16 秦世广, 汤洁, 温玉璞. 黑碳气溶胶及其在气候变化研究中的意义. *气象*, 2001, 27: 3—7
- 17 迟旭光, 段凤魁, 董树屏, 等. 北京大气颗粒物中有机碳和元素碳的浓度水平和季节变化. *中国环境检测*, 2000, 16(3): 35—38
- 18 孙宏, 张泽, 裴力民, 等. 齐齐哈尔市大气气溶胶中有机碳和元素碳污染初步研究. *齐齐哈尔师范学院学报(自然科学版)*, 1997, 17(2): 57—61
- 19 朱忠, 张大年. 浦东新区大气气溶胶中碳颗粒的分布规律. *上海环境科学*, 1996, 15(2): 12—15
- 20 Cao J J, Lee S C, Ho K F, et al. Characteristics of carbonaceous aerosol in Pearl River Delta Region, China during 2001 winter period. *Atmos Environ*, 2003, 37: 1451—1460[[doi](#)]
- 21 姜淑娟, 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. *环境科学学报*, 2005, 25(1): 17—22
- 22 Ramanathan V, Crutzen P J, Mitra A P, et al. The Indian Ocean experiment and the Asian brown cloud. *Curr Sci*, 2002, 83(8): 947—955
- 23 吴兑. 关于霾与雾的区别和灰霾天气预警的讨论. *气象*, 2005, 31(4): 3—7
- 24 吴兑, 毕雪岩, 邓雪娇, 等. 珠江三角洲大气灰霾导致能见度下降问题研究. *气象学报*, 2006, 64(4): 510—518
- 25 Wu D, Tie X X, Li C C, et al. An extremely low visibility event over the Guangzhou region: a case study. *Atmos Environ*, 2005, 39(35): 6568—6577[[doi](#)]
- 26 Moosmüller H, Arnott W P, Rogers C F, et al. Photoacoustic and filter measurements related to aerosol light absorption during the Northern Front Range Air Quality Study (Colorado 1996/1997). *J Geophys Res*, 1998, 103(D21): 28149—28157[[doi](#)]
- 27 Arnott W P, Moosmüller H, Sheridan P J, et al. Photoacoustic and filter-based ambient aerosol light absorption measurements: instrument comparisons and the role of relative humidity. *J Geophys Res*, 2003, 108(D1): 4034[[doi](#)]
- 28 Barnard J C, Kassianov I E I, Ackerman T P, et al. Measurements of black carbon specific absorption in the Mexico City Metropolitan area during the MCMA 2003 Field Campaign. *Atmos Chem Phys Discuss*, 2005, 5: 4083—4113
- 29 Anderson T L, Ogren J A. Determining aerosol radiative properties using the TSI 3563 integrating nephelometer. *Aerosol Sci Technol*, 1998, 29: 57—69
- 30 Garland R M, Yang H, Schmid O, et al. Aerosol optical properties in a rural environment near the mega-city Guangzhou, China: implications for regional air pollution and radiative forcing. *Atmos Chem Phys Discuss*, 2008, 8: 6845—6901
- 31 毛节泰, 李成才. 气溶胶辐射特性的观测研究. *气象学报*, 2005, 63(5): 622—635
- 32 Yan P, Tang J, Huang J, et al. The measurement of aerosol optical properties at a rural site in Northern China. *Atmos Chem Phys*, 2008, 8: 2229—2242
- 33 Xia X A, Li Z Q, Holben B, et al. Aerosol optical properties and radiative effects in the Yangtze Delta region of China. *J Geophys Res*, 2007, 112: D22S12[[doi](#)]
- 34 Li Z Q, Xia X A, Maureen C, et al. Aerosol optical properties and their radiative effects in northern China. *J Geophys Res*, 2007, 112: D22S01[[doi](#)]
- 35 Anderson T L, Masonis S J, Covert D S, et al. Variability of aerosol optical properties derived from *in situ* aircraft measurements during ACE-Asia. *J Geophys Res*, 2003, 108(D23): 8647[[doi](#)]
- 36 Quinn P K, Coffman D J, Bates T S, et al. Aerosol optical properties measured on board the Ronald H. Brown during ACE-Asia as a function of aerosol chemical composition and source region. *J Geophys Res*, 2004, 109(D19): D19S01[[doi](#)]
- 37 Draxler R R, Rolph G D. HYSPLIT (HYbrid Single-Particle Lagrangian Integrated Trajectory) Model access in NOAA ARL READY Website. NOAA Air Resources Laboratory, Silver Spring, MD. 2003