

天津黑碳气溶胶潜在来源分析与健康风险评估

姚青*,郝天依,蔡子颖,王晓佳,韩素芹 (天津市环境气象中心,中国气象局-南开大学大气环境与健康研究联合实验室,天津 300074)

摘要: 采用2010~2013年BC连续在线观测资料,分析天津地区BC的季节分布、潜在来源及其健康效应.结果表明,2010~2013年BC气溶胶浓度平均值为 $(4.49 \pm 3.26) \mu\text{g}/\text{m}^3$,秋季浓度最高,为 $6.31 \mu\text{g}/\text{m}^3$,冬季和夏季次之,春季最低,为 $2.59 \mu\text{g}/\text{m}^3$.各季节BC浓度的日变化特征类似,均呈早晚双峰分布,早间峰值高于晚间,且夜间高于日间.混合层高度和近地层风从垂直和水平两方面影响BC的时空分布,各季节作用强度并不相同.浓度权重轨迹分析表明天津高浓度BC的主要贡献区域为河北、山东、河南等华北平原地区.此外,秋季内蒙古中部和山西北部等西北区域也会影响天津.天津城区各季节成人和儿童的致癌风险(CR)均高于EPA给定的可接受风险水平(10^{-6}),非致癌风险水平较低,秋季因高浓度BC引发的呼吸系统死亡率相对风险为1.118,需要引起高度关注.

关键词: 黑碳; 潜在来源; 健康风险; 天津

中图分类号: X511 文献标识码: A 文章编号: 1000-6923(2020)12-5221-08

Potential source analysis and health risk assessment of black carbon aerosol in Tianjin City. YAO Qing*, HAO Tian-yi, CAI Zi-ying, WANG Xiao-jia, HAN Su-qin (Tianjin Environmental Meteorology Center, CMA-NKU Cooperative Laboratory for Atmospheric Environment-Health Research, Tianjin 300074, China). *China Environmental Science*, 2020,40(12): 5221~5228

Abstract: Black carbon (BC) produced by incomplete combustion of fossil fuels and biofuels has an important impact on human health and climate change. Based on the continuous online observation data of Tianjin from 2010 to 2013, the seasonal distribution, potential sources and health effects of BC in the atmosphere of Tianjin were analyzed. The average BC aerosol concentration was $(4.49 \pm 3.26) \mu\text{g}/\text{m}^3$, which was the highest in autumn, the second in winter and summer, and the lowest in spring. The diurnal variation characteristics of BC concentration in different seasons were similar, showing a bimodal distribution in the morning and evening. The peak value in the morning was higher than in the evening. The concentration of BC in night was higher than that in day in each season. Mixed layer thickness (MLT) and near-surface wind affected the spatial and temporal distribution of BC under horizontal and vertical directions. Concentration weight trajectory (CWT) analysis showed that Hebei, Shandong and Henan were the main potential areas affecting BC in Tianjin. In addition, northwest regions such as Inner Mongolia and northern Shanxi affected Tianjin in autumn. The lifetime cancer risk (CR) of adults and children in Tianjin was higher than USAEPA given acceptable risk level (10^{-6}), but the Hazard Quotient (HQ) was acceptable. Since the relative risk (RR) of respiratory mortality caused by high concentration of BC in autumn was 1.118, we need to pay close attention to the health risk of BC.

Key words: black carbon; potential source; health risk; Tianjin

黑碳(BC)气溶胶是大气气溶胶的重要组成部分,来自于化石燃料和生物质燃料等含碳物质的不完全燃烧,由污染源直接排放,是典型的一次气溶胶^[1].环境大气中的BC吸收太阳短波辐射,引起大气的不均匀加热,从而导致大气环流和对流产生区域性差异,影响大尺度范围的温度和降水变化^[2].BC吸收可见光,可导致大气能见度降低^[3],在BC大规模排放期间易造成大气能见度的迅速下降^[4].BC的时空分布具有不均匀性^[5],其来源也存在差异.近年来,随着基于拉格朗日混合单粒子轨道(HYSPLIT)模型建立的潜在源贡献函数(PSCF)算法在大气污染物来源解析上的广泛应用,气溶胶的潜在来源分析发展

迅速,天津^[6]、北京^[7]和乌鲁木齐^[8]等地的相关研究表明各地气溶胶潜在来源不同,且不同季节、不同输送路径下周边区域对当地的影响差异显著.

BC表面具有疏松多孔结构,易吸附多环芳烃(PAHs)、重金属等多种有毒有害物质,同时BC气溶胶由于多具有纳米尺度,易穿透人体的肺组织,造成严重的健康影响,如氧化应激损伤和呼吸道刺激症状等^[10].2012年,国际癌症研究机构(IARC)将煤烟列

收稿日期: 2020-04-15

基金项目: 天津市生态环境治理科技重大专项(18ZXSZSF00160);天津市自然科学基金资助项目(19JCQNJC08000);天津市气象局重点科研项目(202003zdxm02)

* 责任作者,高级工程师, yao.qing@163.com

为 1 类致癌物^[11].在排除季节变化和气温、相对湿度的影响等混杂因素后,Janssen 等^[12]通过 BC 浓度与死亡率之间的关系进行 Meta 分析,发现其不良健康反应强于 PM_{2.5} 和 PM₁₀.国内开展 BC 的健康效应研究起步较晚^[13-14],对于从致癌风险、非致癌风险和特定原因死亡率的相对风险等方面系统开展 BC 健康效应的研究有待深入.

天津地区前期已在 BC 气溶胶的浓度水平、时空分布及其大气消光特性^[15]等方面开展了一些研究,并从气象条件、边界层结构^[16]等方面探讨了 BC 浓度分布的影响因素,但这些研究多为短期的月或季节长度的观测,缺乏对于 BC 气溶胶来源及其健康效应的研究.本研究采用 2010~2013 年连续 3a BC 连续在线观测资料,分析天津城区 BC 的季节分布、潜在来源及其健康效应,以期为天津市气溶胶污染治理和公共卫生管理提供技术支持.

1 材料与方法

1.1 观测仪器与资料来源

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 2.2m,台站编号:54517),该站点地处天津市城区南部,其北距快速路约 200m,东距友谊路一友谊南路约 100m,西面和南面主要为低层住宅区,附近 500m 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.黑碳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 950nm,时间分辨率为 5min,采样管高度距地面 3m,采用 PM_{2.5} 切割头,仪器采用光学灰度测量法测量,具体原理可参考文献[17].本文采用波长为 880nm 的测量通道数据,观测时间为 2010 年 9 月 1 日~2013 年 8 月 31 日,剔除因设备故障和维护期间缺失的数据,合计有效观测日数为 895d,资料有效率为 81.7%.观测期间京津冀区域空气质量,尤其是 PM_{2.5} 浓度处于近年来的高值时期,大规模的环境空气治理工作尚未开始或尚未见诸成效,观测资料能够反映气溶胶污染的峰值,有助于评估严重污染阶段 BC 的来源和健康效应.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.风速、风向等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.混合层厚度资料来自于蔡子颖等^[18]建立的天津地区混合层厚度数据集,该数据基于云高仪反演数据和中尺度模式获得,并在前期有关 PM_{2.5} 长期变化趋势和影响因素的研究^[19]中获得了应用.

1.2 潜在源区分析方法

潜在源贡献函数(PSCF)算法是一种根据气流轨迹分析辨别源区的方法,利用美国大气海洋局开发的 HYSPLIT 模型计算的后向轨迹在空中的停留时间,通过污染过程和所有轨迹在途经区域所停留时间的比值,来解析每个区域对受电地区的污染贡献.由于 PSCF 只能反映每个网格中污染轨迹所占的比例大小,不能反映污染轨迹的污染程度,本研究采用浓度权重轨迹(CWT)分析法计算潜在源区气流轨迹浓度权重,分析不同轨迹和潜在源区的污染程度,并给出不同源区贡献的相对大小.该方法具体原理和计算方法可参考文献[10].

1.3 健康风险评估方法

基于美国 EPA 人体健康风险评估方法^[20],分为危害识别、暴露评估、剂量-效应关系以及危险特征分析等 4 部分,来评估 BC 的健康风险^[21].本研究采用 2009 年美国 EPA 提出的针对特定场所吸入途径污染物的健康风险评价方法(EPA-540-R-070-002)^[20]进行 BC 的人群健康风险.评价具体计算公式^[14]如下:

$$CDI=C \times IR \times EF \times ED / (BW \times AT) \quad (1)$$

式中:CDI 为日平均摄入量,mg/(kg·d);C 为 BC 环境浓度,mg/m³;IR 为吸入率,m³/d;EF 为暴露频率,d/a;ED 为暴露时间,a;BW 为体重,kg;AT 为平均时间,d.根据相关研究^[22],IR 取 7.6m³/d (儿童)和 20m³/d (成人);基于中国人口出行情况,EF 取 346d/a,剩余 19d/a 用作外地旅行^[14];参考 EPA 数据^[14],ED 设定为 6a(儿童)和 26a(成人).对于致癌风险评估,有 AT=365d/a×70a,而非致癌风险评估则为 AT=365d/a×ED^[23].BW 按照儿童和成人分别设定为 15 和 70kg^[14].

BC 的健康风险可分为致癌性和非致癌性.一般假设 BC 可连续 70a 致癌,而可接受的风险水平为 10⁻⁶^[14].BC 的致癌风险具体评价公式如下:

$$CR=CDI \times CSF \quad (2)$$

式中:CR 为终生致癌风险,无量纲;CSF 为癌症斜率因子,由于空气中的 BC 来源复杂,本研究采用柴油

车排气中颗粒物的测量值($1.1\text{mg}/(\text{kg}\cdot\text{d})$)作为 BC 的 $\text{CSF}^{[24]}$,这一数值也在珠三角等地的研究^[14]中应用。

BC 的非致癌风险可采用下式获得:

$$\text{HQ}=\text{CDI} / \text{RfC} \quad (3)$$

式中:HQ 为危害商,无量纲;RfC 为参考浓度,本研究也采用柴油车排气中颗粒物的测量值($5\mu\text{g}/\text{m}^3$)作为 BC 的 RfC^[24]。

本研究还计算了 BC 全因死亡率、心血管死亡率和呼吸系统死亡率的相对风险,如下式:

$$\text{RR}=\exp(\beta(C_n-C_0)) \quad (4)$$

式中:RR 为相对风险(无量纲), β 为与 BC 暴露有关的死亡率风险系数,本研究计算其全因死亡率、心血管死亡率和呼吸系统死亡率, β 分别取 0.0145 (95% CI:0.0132,0.0157),0.0177 (95% CI: 0.0108,0.0308)和 0.0272(95% CI:0.0009,0.0542),该系数来自于 Janssen 等^[11]对 BC 健康风险的 Meta 分析,也应用于 Lin 等^[14]在珠三角区域 BC 健康风险的相关研究中。 C_n 和 C_0 分别是暴露期和给定基线期的平均 BC 浓度, C_0 被视为可引起 BC 浓度与人群全因死亡率、心血管死亡率和呼吸系统死亡率的浓度-反应关系的阈值。

2 结果与分析

2.1 BC 浓度水平与时间变化特征

图 1 为观测期间 BC 气溶胶的逐日平均浓度以及经 30d 平滑后的浓度趋势,天津城区 2010 年~2013 年 BC 浓度平均值为(4.49 ± 3.26) $\mu\text{g}/\text{m}^3$,观测期间 BC 浓度最高值出现在 2011 年 11 月 16 日 09:00,达到 $43.71\mu\text{g}/\text{m}^3$,该日 BC 浓度日均值也高达 $23.32\mu\text{g}/\text{m}^3$ 。分析 BC 浓度小时值的频数,发现 90% 的观测值低于 $9.55\mu\text{g}/\text{m}^3$,以 $0.5\mu\text{g}/\text{m}^3$ 作为步长,采用五点法拟合 BC 浓度小时值频数分布,以其光滑外廓曲线的最高点作为最大出现频数浓度^[4],为 $2.0\mu\text{g}/\text{m}^3$ 。观测期间 BC 浓度呈逐年下降趋势,年均浓度下降 $1.4\mu\text{g}/\text{m}^3$ 。BC 浓度季节差异明显,高值时段集中在秋冬季,这与秋冬季节较高的化石燃料和生物质燃烧排放有关,同时还受到不利气象条件影响,2010 年秋季在同一地点的观测研究^[4]表明,期间持续多日的 BC 高值与较高的静风频率有关,静稳天气下 BC 在低层大气中逐渐累积并形成污染。表 1 给出了观测期间天津城区与国内外其他城市 BC 气溶胶浓度长期观测值

(观测时长达到 1a 以上)的对比结果,天津城区 BC 浓度水平与北京^[25]、成都^[27]等城市接近,高于上海^[28]、深圳^[29]等南方城市,纽约^[30]、伦敦^[31]等欧美城市以及上甸子大气本底站^[26],低于河北固城农村^[26]以及印度德里^[32]。

表 1 天津与国内外其它城市 BC 气溶胶长期观测结果的比较

Table 1 Comparison of BC concentrations between Tianjin and other regions

观测地点	代表区域	观测时间	BC 平均浓度($\mu\text{g}/\text{m}^3$)
天津(本研究)	城区	2010.09~2013.08	4.49 ± 3.26
北京 ^[25]	城区	2013.11~2015.10	4.77 ± 4.49
北京南郊 ^[26]	城区	2006.01~2012.07	6.5 ± 7.3
北京上甸子 ^[26]	本底站	2008.11~2012.07	2.2 ± 2.4
河北固城 ^[26]	农田	2006.01~2012.07	9.6 ± 8.4
成都 ^[27]	城区	2017.12~2018.11	5.26 ± 4.67
上海 ^[28]	城区	2016.06~2017.06	1.17 ± 0.61
上海 ^[28]	郊区	2016.06~2017.06	2.09 ± 0.97
深圳 ^[29]	城区	2014.01~2015.06	2.58 ± 2.00
深圳 ^[29]	郊区	2014.01~2015.06	1.12 ± 0.90
美国纽约 ^[30]	城区	2007.01~2010.12	$1.4\sim 2.0$
英国 7 城市平均 ^[31]	城区	2009~2011	1.83 ± 0.46
印度德里 ^[32]	城区	2011.01~2011.12	6.7 ± 5.7

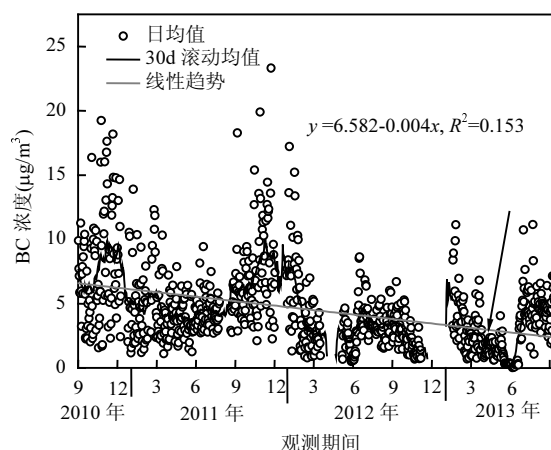


图 1 观测期间 BC 气溶胶质量浓度的时间变化特征
Fig.1 Time series of black carbon aerosol mass concentration during the observation period

不同季节 BC 浓度的日变化分布(图 2a)和昼夜浓度比值(图 2b)表明,秋季浓度最高,为 $6.31\mu\text{g}/\text{m}^3$,冬季和夏季次之,分别为 $4.74, 4.31\mu\text{g}/\text{m}^3$,春季最低,为 $2.59\mu\text{g}/\text{m}^3$ 。这一季节差异特征与张宸赫等^[25]研究结论一致,这与 BC 排放和气象条件的季节差异有关,秸秆等生物质燃烧和采暖用燃煤排放量增大是秋

冬季 BC 高排放的主要原因.春季常见大风天气,夏季因降水形成的湿清除以及高混合层,都有助于地面 BC 的扩散和清除,这与张骁等^[26]和Cao 等^[33]的研究结论一致.各季节 BC 浓度的日变化特征类似,均呈早晚双峰分布,且早间峰值高于晚间,其中冬季早间峰值晚于夏季 1~2h,可能受市民冬季早间出行时间延迟影响,同时与夏季太阳辐射较强,大气边界层发展早于冬季,污染物较早扩散有关.各季节 BC 浓度的夜间/日间比值均高于 1,其中秋季最高,夜间 BC 浓度比白天高 30%左右,冬季和春季次之,夏季两者几乎相等,不同季节大气边界层结构和地面气象条件的差异对 BC 扩散和输送特征起到了重要作用.

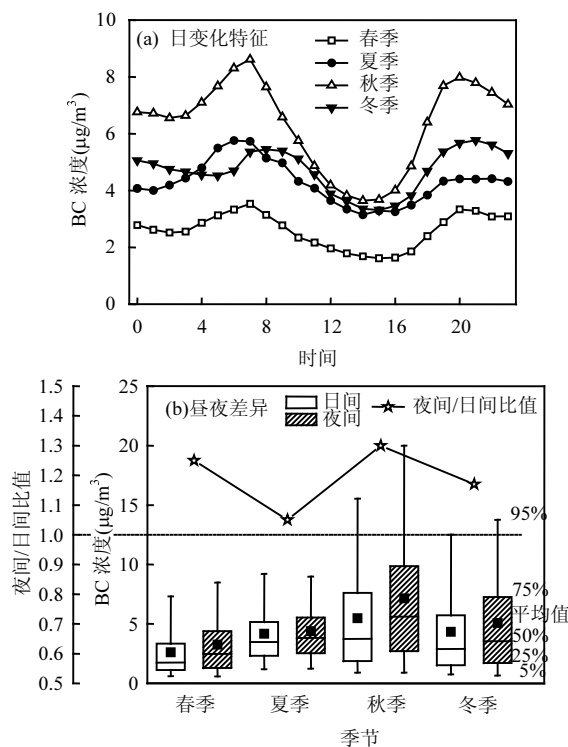


图2 观测期间黑碳气溶胶的日变化特征和昼夜差异
Fig.2 Daily variation and diurnal variation of black carbon aerosol mass concentration during the observation period

2.2 BC 影响因素与潜在来源分析

研究表明,相对湿度、风速和混合层厚度(MLT)是影响天津城区 2009~2018 年 PM_{2.5} 浓度的主要气象因素^[19].有研究表明,伴随高相对湿度发生的降水天气能在一定程度上因湿清除作用造成 BC 浓度下降^[34],但降水对气溶胶的清除作用具有不确定性^[35],其清除强度与雨量、延续时间以及气溶胶浓度等有关,魏夏潞等^[36]在安徽寿县的研究表明,BC 浓度与

相对湿度和降水量无显著相关关系,这可能与 BC 气溶胶吸水性较弱^[37]有关.MLT 和近地层风从垂直和水平两方面影响 BC 的时空分布^[23],地面风场可以大致判断 BC 的来源,高风速有利于 BC 水平扩散,MLT 受到太阳辐射和热力湍流强度影响,反映大气污染物可以达到的混合高度以及大气污染物垂直方向的扩散能力,高 MLT 可以表征较高的污染物垂直扩散能力^[18].分析 BC 浓度与 MLT 和风速的偏相关系数,如表 2 所示,春季和夏季风速与 BC 浓度显著负相关,秋季和冬季则变为 MLT 与 BC 浓度呈显著负相关.

表2 BC 气溶胶浓度与混合层厚度和风速的偏相关系数

季节	BC	
	(控制风速) 混合层厚度	(控制混合层厚度) 风速
春季	-0.251*	0.007
夏季	-0.235*	-0.063
秋季	-0.120	-0.425*
冬季	-0.119	-0.308*

注:* $P<0.01$.

为分析 BC 的输送途径,采用 HYSPLIT-4 模式计算观测期间采样点的后向轨迹,以中国气象局天津大气边界层观测站(N39°04',E117°12',海拔高度 2.2m,台站编号 54517)为参考点,选取 200m 作为高度层,计算观测期内分季节每日 06:00(UTC)的后向轨迹,追踪抵达天津的气团过去 72h 的轨迹,并进行聚类分析.考虑到 BC 尚无相关环境质量标准,本研究以观测时段的 BC 浓度平均值,即 4.49μg/m³ 作为判断 BC 污染的阈值,高于该值所对应的轨迹设定为污染轨迹.由表 3 可见不同季节不同轨迹 BC 浓度分布差异明显,春季各类轨迹下 BC 浓度分布比较均衡,偏南气流下 BC 浓度相对较高(轨迹 2 呈西北-西南折向,也计入偏南气流),夏季西南气流(轨迹 3)下浓度 BC 较高,秋季各类轨迹下 BC 浓度均值均高于观测期间平均值,其中轨迹 4 浓度最高,达到 (9.23± 6.63)μg/m³,冬季则以在天津南部盘旋的轨迹 2 下 BC 浓度最高.从各类轨迹下 BC 浓度可以判断出高浓度 BC 主要来源于天津以南区域,携带 BC 的气流来自于西南方向,或长时间在天津以南区域滞留.

表 3 基于所有轨迹和污染轨迹的轨迹百分比及其平均 BC 浓度

Table 3 Trajectories percentage and mean BC concentrations based on all trajectories and pollution trajectories						
季节	轨迹簇	全部轨迹数量	污染轨迹数量	污染轨迹占比 (%)	全部轨迹对应的 BC 浓度($\mu\text{g}/\text{m}^3$)	污染轨迹对应的 BC 浓度($\mu\text{g}/\text{m}^3$)
春季	1	288	84	29.2	2.69 ± 2.76	5.89 ± 3.28
	2	125	61	48.8	3.83 ± 3.22	6.11 ± 3.26
	3	177	43	24.3	2.30 ± 1.57	4.57 ± 1.43
	4	179	89	49.7	3.71 ± 2.97	5.83 ± 2.86
夏季	1	197	77	39.1	4.02 ± 2.46	6.52 ± 1.95
	2	175	50	28.6	3.41 ± 1.79	5.71 ± 1.40
	3	254	135	53.1	5.15 ± 3.43	7.21 ± 3.48
	4	361	139	38.5	4.12 ± 2.44	6.30 ± 2.50
秋季	1	175	88	50.3	7.63 ± 5.68	11.62 ± 5.43
	2	171	54	31.6	5.63 ± 4.97	10.88 ± 5.63
	3	423	113	26.7	5.33 ± 5.68	12.60 ± 6.47
	4	146	91	62.3	9.23 ± 6.63	12.85 ± 5.84
冬季	1	90	18	20.0	3.25 ± 3.54	9.09 ± 3.90
	2	184	109	59.2	6.94 ± 4.71	9.55 ± 4.48
	3	317	114	36.0	4.80 ± 4.83	9.91 ± 4.69
	4	150	21	14.0	3.02 ± 2.27	7.63 ± 2.21

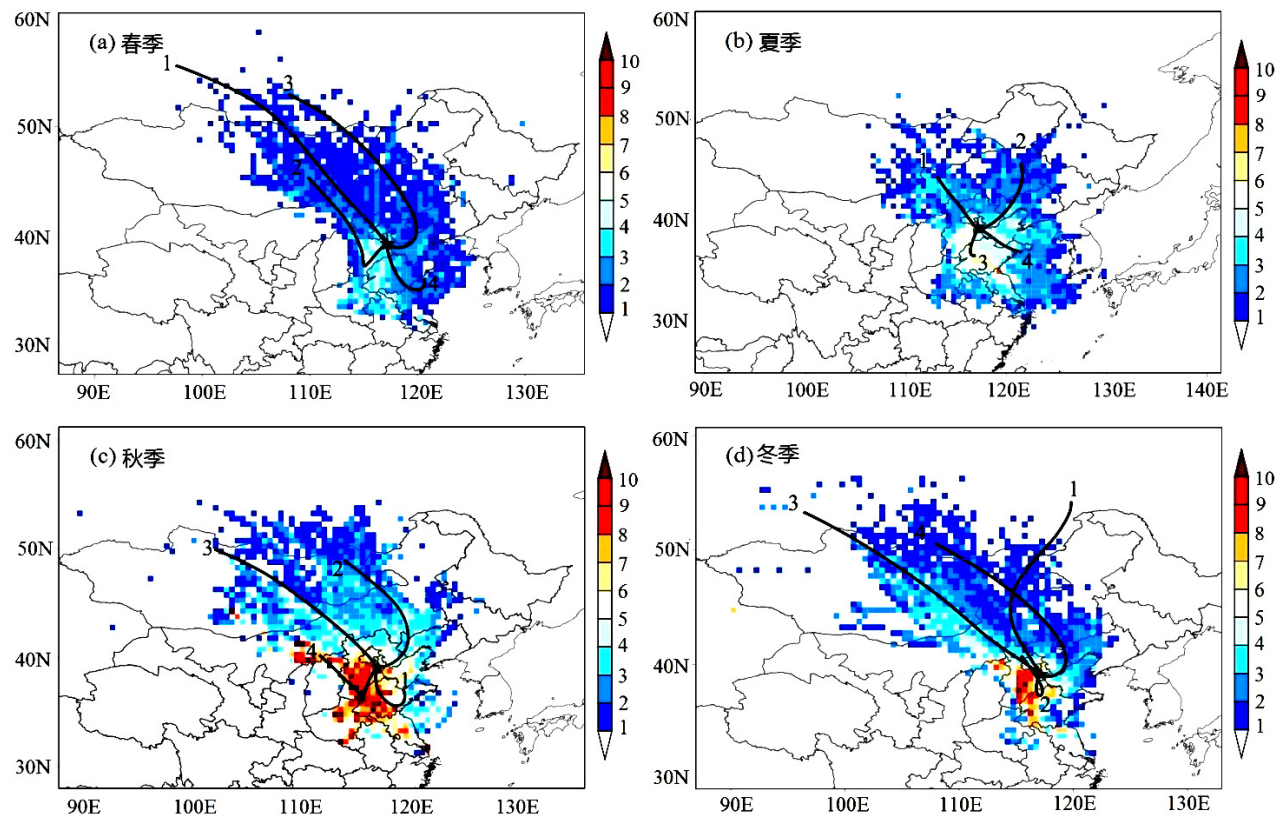


图 3 黑碳气溶胶浓度($\mu\text{g}/\text{m}^3$)权重轨迹的季节分布

Fig.3 Seasonal distribution of concentration-weighted trajectory (CWT) of BC ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)

采用浓度权重轨迹分析法(CWT)进一步计算分析不同季节 BC 浓度变化的可能潜在源区及其贡献,参考点、高度层和追踪时间等与前述后向轨迹聚类方法一致.如图 3 所示,春季和夏季 BC 浓度较低,天

津以南区域对 BC 有一定贡献,但并不足以导致 BC 高浓度污染.秋季天津 BC 的主要贡献者来自于河北、山东、河南等地的天津以南区域,这一区域分布广泛,几乎包含华北区域主要的农业和工业产区,秸

秆焚烧可能是造成天津秋季高浓度 BC 的主要贡献者^[38],京津冀区域秋季特殊的天气气候背景也会影响气溶胶时空分布^[39],内蒙古中部和山西北部等西北区域是天津秋季高浓度 BC 的另一个贡献者,西北方向的气流可将该区域的污染物长距离输送到京津冀区域.冬季这一源区面积缩小,主要集中在河北中南部以及山东西北部区域,且强度降低.Liu 等^[40]的定量分析表明,天津地区外来输送型 BC 的 49%来自于河北地区,其次为北京(16%)和山东(15%),这与本研究得到的 BC 潜在源区基本一致.

2.3 BC 的健康风险评估

根据健康风险评价方法(EPA-540-R-070-002)^[20],计算了天津城区各季节成人和儿童的致癌风险(CR)和非致癌风险(HQ),如表 4 所示,天津城区由 BC 引起的成人平均致癌风险为 4.97×10^{-4} ,略高于 Lin 等^[14]在珠三角的研究结果(4.82×10^{-4}).与儿童相比,成人 CR 水平较高,成人和儿童的 CR 均高

于 EPA 给定的可接受风险水平(10^{-6}),表明天津地区的 BC 致癌风险不容忽视.一般而言,HQ<1 表明暴露人群不太可能产生不良的非癌症影响^[14],本研究中成人的非致癌风险低于儿童,均未达到该阈值.计算该阈值(HQ=1)对应的 BC 浓度为 $18.4\mu\text{g}/\text{m}^3$,观测期间全部样本中只有 0.3%高于该阈值浓度,表明天津地区 BC 的非致癌风险水平较低.表 4 还给出了 BC 引起的全因死亡率、心血管疾病死亡率和呼吸系统疾病死亡率的相对风险(RR).目前尚无研究给出确切的 C_0 .本研究借鉴 Lin 等^[14]的方法采用其他值代替,以北京上甸子本底站长期 BC 平均浓度($2.2\mu\text{g}/\text{m}^3$)^[26]作为京津冀区域 BC 大气本底值,用作本研究的基线浓度,这一浓度值大约低于本研究 77.3%的样本.秋季全因死亡率最高(RR=1.061),冬季和夏季次之,春季最低(RR=1.006).在心血管疾病和呼吸系统疾病死亡率方面,不同季节 BC 暴露的 RR 趋势相同.

表 4 BC 的健康风险评估
Table 4 Health risk assessment of black carbon aerosol

季节	CDI* $[\times 10^{-3}\text{mg}/(\text{kg}\cdot\text{d})]$		CDI** $[\times 10^{-3}\text{mg}/(\text{kg}\cdot\text{d})]$		CR $(\times 10^{-4})$		HQ		RR		
	成人	儿童	成人	儿童	成人	儿童	成人	儿童	全因死亡率	心血管疾病死亡率	呼吸疾病死亡率
春季	2.61	1.07	0.70	1.24	2.87	1.18	0.14	0.25	1.006	1.007	1.011
夏季	4.34	1.77	1.17	2.07	4.77	1.95	0.23	0.41	1.033	1.040	1.062
秋季	6.35	2.60	1.71	3.03	6.98	2.86	0.34	0.61	1.061	1.075	1.118
冬季	4.77	1.95	1.28	2.28	5.25	2.14	0.26	0.46	1.038	1.046	1.072
全年	4.52	1.85	1.22	2.16	4.97	2.04	0.24	0.43	1.034	1.041	1.064

注:*适用于致癌风险评估(CR);**适用于非致癌风险评估(HQ).

2.4 讨论

观测期间天津 BC 浓度与京津冀区域内北京等城市相当,高于上甸子大气本底站,低于固城等农村站点,且呈逐年下降趋势,与近年来京津冀区域大规模持续的大气污染治理成效明显有关,特别是广泛推行的煤改气、秸秆综合利用等措施有力的减少了 BC 气溶胶排放,邯郸作为河北南部重要的重工业城市和雾霾天气频发城市,近年来 BC 浓度持续下降,与其严格控制气溶胶污染有关^[41].不同季节 BC 浓度与 MLT 和风速的偏相关分析存在明显差异,表明其水平和垂直方向上的扩散能力存在季节差异,这一差异对于 BC 和其他一次污染物的环境气象预报工作具有借鉴意义,需要进一步结合气象因素和边界层结构分析.一般认为 BC 主要来源于化石燃料的

不完全燃烧和秸秆等生物质燃烧的一次排放,观测期间华北平原广大农村秋季常有大规模秸秆燃烧,偏南风下 BC 远距离传输易造成天津区域 BC 高浓度爆发,不同季节 BC 浓度变化的可能潜在源区及其贡献分析也证明了这一点.结合地面风场和混合层等气象信息,有助于做出合理的 BC 来源和预报,对于制定科学可行的气溶胶污染控制策略具有重要意义.

本研究初步估算了 BC 气溶胶对天津城区各季节成人和儿童的致癌风险(CR)和非致癌风险(HQ),成人和儿童的 CR 均高于 EPA 给定的可接受风险水平(10^{-6}).成人和儿童的非致癌风险水平较低,当 BC 浓度达到 $18.4\mu\text{g}/\text{m}^3$ 时,该风险不可忽略.BC 引起的全因死亡率、心血管疾病死亡率和呼吸系统疾病死

亡率的相对风险(RR)估算,因缺乏本地区相关研究成果,故采用文献 Meta 值,存在较大的不确定性,但该估值仍有助于评估 BC 健康风险。与 Lin 等^[14]在珠三角区域的研究结果类似,天津地区 BC 的全年平均 RR 较低,但秋季呼吸系统死亡率相对风险较高,而极端状况下,即暴露在 BC 浓度最高日均值($23.32 \mu\text{g}/\text{m}^3$)下,人群全因死亡率的 RR 高达 1.358。秋季高浓度 BC 引发的人群健康危害,尤其是呼吸系统危害,应引起高度关注。

3 结论

3.1 2010~2013 年 BC 气溶胶浓度平均值为(4.49 ± 3.26) $\mu\text{g}/\text{m}^3$,秋季浓度最高,为 $6.31 \mu\text{g}/\text{m}^3$,冬季和夏季次之,春季最低,为 $2.59 \mu\text{g}/\text{m}^3$,季节差异与 BC 排放和气象条件有关。各季节 BC 浓度的日变化特征类似,均呈早晚双峰分布,且早间峰值高于晚间,各季节 BC 浓度均为夜间高于日间。

3.2 BC 浓度与地面风速和混合层厚度的相关分析表明,春夏季 MLT 对 BC 影响较大,秋冬季风速影响较大,不同季节下 BC 在水平和垂直方向上的扩散能力存在差异。采用后向轨迹的聚类分析以及浓度权重轨迹分析法,判断不同季节 BC 浓度变化的可能潜在源区及其贡献,表明秋季天津 BC 的主要贡献者来自于河北、山东、河南等地的天津以南区域,其次是内蒙古中部和山西北部等西北区域。

3.3 天津城区各季节成人和儿童的致癌风险(CR)均高于 EPA 给定的可接受风险水平(10^{-6}),而非致癌风险水平较低,秋季因高浓度 BC 引发的呼吸系统死亡率相对风险为 1.118,需要引起高度关注。

参考文献:

- [1] 章秋英,牛生杰,沈建国,等.半干旱区冬春季黑碳气溶胶吸收特性的观测研究[J]. 中国沙漠, 2009,29(1):183-188.
Zhang Q Y, Niu S J, Shen J G, et al. Observational study on aerosol absorption properties in winter and spring in semiarid area [J]. Journal of Desert Research, 2009,29(1):183-188.
- [2] 王洪强,贺千山,陈勇航,等.2008~2012 年上海黑碳浓度变化特征分析[J]. 环境科学, 2014,35(4):1215-1222.
Wang H Q, He Q S, Chen Y H, et al. Analysis of characteristics of black carbon concentration in Shanghai from 2008 to 2012 [J]. Environmental Science, 2014,35(4):1215-1222.
- [3] 姚 青,韩素芹,毕晓辉.天津 2009 年 3 月气溶胶化学组成及其消光特性研究[J]. 中国环境科学, 2012,32(2):214-220.
Yao Q, Han S Q, Bi X H, et al. Main components and extinction characteristic of aerosol during March 2009 at Tianjin [J]. China Environmental Science, 2012,32(2):214-220.
- [4] 姚 青,蔡子颖,韩素芹,等.天津城区秋冬季黑碳气溶胶观测与分析[J]. 环境化学, 2012,31(3):324-329.
Yao Q, Cai Z Y, Han S Q, et al. Observational and analysis of black carbon aerosol in the autumn and winter in Tianjin [J]. Environmental Chemistry, 2012,31(3):324-329.
- [5] 张芝娟,陈 斌,贾 瑞,等.全球不同类型气溶胶光学厚度的时空分布特征[J]. 高原气象, 2019,38(3):660-672.
Zhang Z J, Chen B, Jia R, et al. Global spatial and temporal distribution of aerosol optical depth for different kinds of aerosols [J]. Plateau Meteorology, 2019,38(3):660-672.
- [6] Qin W, Zhang Y, Chen J, et al. Variation, sources and historical trend of black carbon in Beijing, China based on ground observation and MERRA-2 reanalysis data [J]. Environmental Pollution (2018), doi: <https://doi.org/10.1016/j.envpol.2018.11.063>.
- [7] Hao T Y, Cai Z Y, Chen S C, et al. Transport pathways and potential source regions of $\text{PM}_{2.5}$ on the west coast of Bohai Bay during 2009~2018 [J]. Atmosphere, 2019,10,345;doi:10.3390/atmos10060345.
- [8] 李颜君,安兴琴,范广洲.北京地区大气颗粒物输送路径及潜在源分析[J]. 中国环境科学, 2019,39(3):915-927.
Li Y J, An X Q, Fan G Z, et al. Transport pathway and potential source area of atmospheric particulates in Beijing [J]. China Environmental Science, 2019,39(3):915-927.
- [9] 张 昕,李忠勤,明 镜,等.乌鲁木齐河源区黑碳气溶胶浓度特征及其来源分析[J]. 环境科学学报, 2019,39(1):212-221.
Zhang X, Li Z Q, Ming J, et al. Characteristics of black carbon aerosol and apportionment at the headwater of Urumqi River [J]. Acta Scientiae Circumstantiae, 2019,39(1):212-221.
- [10] Lin W, Zhu T, Xue T, et al. Association between changes in exposure to air pollution and biomarkers of oxidative stress in children before and during the Beijing Olympics [J]. American Journal of Epidemiology, 2015,181(8):575-583.
- [11] Watson A Y, Valberg P A. Carbon black and soot: two different substances [J]. American Industrial Hygiene Association journal, 2001,62(2):218-228.
- [12] Janssen N A, Hoek G, Simic-Lawson M, et al. Black carbon as an additional indicator of the adverse effects of airborne particles compared with PM_{10} and $\text{PM}_{2.5}$ [J]. Environmental Health Perspectives, 2011,119(12):1691-1699.
- [13] 陈 琛,王 娟,聂亚光,等.大气中黑碳的健康效应及机制研究进展[J]. 生态毒理学报, 2018,13(1):31-39.
Chen C, Wang J, Nie Y G, et al. Review on the health effects and mechanisms of black carbon [J]. Asian Journal of Ecotoxicology, 2018,13(1):31-39.
- [14] Lin W, Dai J, Liu R, et al. Integrated assessment of health risk and climate effects of black carbon in the Pearl River Delta region, China [J]. Environmental Research, 2019,176:108522.
- [15] 姚 青,韩素芹,蔡子颖,等.天津城区春季大气气溶胶消光特性研究[J]. 中国环境科学, 2012,32(5):795-802.
Yao Q, Han S Q, Cai Z Y, et al. Study on characteristic of aerosol extinction at Tianjin City in the spring [J]. China Environmental Science, 2012,32(5):795-802.
- [16] 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.

- Cai Z Y, Han S Q, Huang H, et al. Observational study on black carbon aerosols and their absorption properties in summer in Tianjin [J]. *China Environmental Science*, 2011,31(5):719-723.
- [17] 杨 朔,张 武,韩晶晶,等.上海市浦东新区秋冬季黑碳气溶胶特性 [J]. *兰州大学学报(自然科学版)*, 2008,44(4):66-70.
- Yang S, Zhang W, Han J J, et al. Characteristics of black carbon aerosol over Pudong district in Shanghai during autumn and winter [J]. *Journal of Lanzhou University (Natural Sciences)*, 2008,44(4):66-70.
- [18] 蔡子颖,张 敏,韩素芹,等.天津重污染天气混合层厚度阈值及应用研究 [J]. *气象*, 2018,44(7):911-920.
- Cai Z Y, Zhang M, Han S Q, et al. Research on threshold and regularity of mixed layer thickness in heavy pollution weather in Tianjin [J]. *Meteorological Monthly*, 2018,44(7):911-920.
- [19] 姚 青,蔡子颖,刘敬乐,等.气象条件对 2009~2018 年天津地区 $\text{PM}_{2.5}$ 质量浓度的影响 [J]. *环境科学学报*, 2020,40(1):65-75.
- Yao Q, Cai Z Y, Liu J L, et al. Effects of meteorological conditions on $\text{PM}_{2.5}$ concentration in Tianjin from 2009 to 2018 [J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 2020,40(1):65-75.
- [20] U.S. EPA, Human Health Risk Assessment. <https://www.epa.gov/risk/human-health-risk-assessment>.
- [21] WS/T 666-2019 大气污染人群健康风险评估技术规范 [S].
WS/T 666-2019 Technical specifications for health risk assessment of ambient air pollution [S].
- [22] Ding A J, Huang X, Nie W, et al. Enhanced haze pollution by black carbon in megacities in China [J]. *Geophysical Research Letters*, 2016, 43:2873-2879.
- [23] Huy B T, Tran T T H, Johnston R, et al. Assessing health risk due to exposure to arsenic in drinking water in hanam Province, Vietnam [J]. *Int. J. Environ. Res. Public Health*, 2014,11(8):7575-7591.
- [24] California office of environmental health hazard assessment. Diesel Exhaust Particulate. <https://oehha.ca.gov/chemicals/diesel-exhaust-particulate>.
- [25] 张宸赫,程兴宏,赵天良,等.不同季节气象条件对北京城区高黑碳浓度变化的影响 [J]. *环境科学学报*, 2017,37(6):2255-2264.
- Zhang C H, Cheng X H, Zhao T L, et al. Impact of meteorological conditions on high black carbon concentrations in urban area of Beijing in different seasons [J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 2017, 37(6):2255-2264.
- [26] 张 骁,汤 洁,武云飞,等.2006~2012 年北京及周边地区黑碳气溶胶变化特征 [J]. *中国粉体技术*, 2015,21(4):24-29.
- Zhang X, Tang J, Wu Y F, et al. Variations of black carbon aerosol observed in Beijing and surrounding area during 2006~2012 [J]. *China Powder Science and Technology*, 2015,21(4):24-29.
- [27] 王 璐,袁亮,张小玲,等.成都地区黑碳气溶胶变化特征及其来源解析 [J]. *环境科学*, 2020,41(4):1561-1572.
- Wang L, Yuan L, Zhang X L, et al. Characteristics and source apportionment of black carbon in Chengdu [J]. *Environmental Science*, 2020,41(4):1561-1572.
- [28] Peng X, Liu M, Yang Z, et al. The characteristics and local-regional contributions of atmospheric black carbon over urban and suburban locations in Shanghai, China [J]. *Environmental Pollution*, 2019, 255:113188.
- [29] 程 丁,吴 晟,吴 兑,等.深圳市城区和郊区黑碳气溶胶对比研究 [J]. *中国环境科学*, 2018,38(5):1653-1662.
- Cheng D, Wu C, Wu D, et al. Comparative study on the characteristics of black carbon aerosol in urban and suburban areas of Shenzhen [J]. *China Environmental Science*, 2018,38(5):1653-1662.
- [30] Rattigan O V, Civerolo K, Doraiswamy P, et al. Long term black carbon measurements at two urban locations in New York [J]. *Aerosol and Air Quality Research*, 2013,13(4):1181-1305.
- [31] Singh V, Ravindra K, Sahu L, et al. Trends of atmospheric black carbon concentration over the United Kingdom [J]. *Atmospheric Environment*, 2018,178:148-157.
- [32] Tiwari S, Srivastava A K, Bisht D S, et al. Diurnal and seasonal variations of black carbon and $\text{PM}_{2.5}$ over New Delhi, India: influence of meteorology [J]. *Atmospheric Research*, 2013,125-126,50-62.
- [33] Cao G L, Zhang X Y, Gong S L, et al. Emission inventories of primary particles and pollutant gases for China [J]. *Chinese Science Bulletin*, 2011,56,doi:10.1007/s11434-011-4373-7.
- [34] 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.
- Lou S J, Mao J T, Wang H M. Observational study of black carbon aerosol in Beijing [J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 2005,25(1):17-22.
- [35] 于彩霞,邓学良,石春娥,等.降水和风对大气 $\text{PM}_{2.5}$ 、 PM_{10} 的清除作用分析 [J]. *环境科学学报*, 2018,38(12):59-68.
- Yu C X, Deng X L, Shi C E, et al. The scavenging effect of precipitation and wind on $\text{PM}_{2.5}$ and PM_{10} [J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 2018,38(12):59-68.
- [36] 魏夏璐,王成刚,凌新峰,等.安徽寿县黑碳气溶胶浓度观测分析研究 [J]. *环境科学学报*, 2019,39(11):3630-3638.
- Wei X L, Wang C G, Ling X F, et al. Observational study of black carbon at Shouxian in Anhui Province [J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 2019,39(11):3630-3638.
- [37] 吴奕寅,银 燕,顾雪松,等.南京北郊大气气溶胶的吸湿性观测研究 [J]. *中国环境科学*, 2014,34(8):1938-1949.
- Wu Y X, Yin Y, Gu X S, et al. An observational study of the hygroscopic properties of aerosols in north suburb of Nanjing [J]. *China Environmental Science*, 2014,34(8):1938-1949.
- [38] 程良晓,范 萌,陈良富,等.秋季秸秆焚烧对京津冀地区霾污染过程的影响分析 [J]. *中国环境科学*, 2017,37(8):2801-2812.
- Cheng L X, Fan M, Chen L F, et al. Effects on the haze pollution from autumn crop residue burning over the Jing-Jin-Ji Region [J]. *China Environmental Science*, 2017,37(8):2801-2812.
- [39] 高庆先,李 亮,马占云,等.2013~2016 年天气形势对北京秋季空气重污染过程的影响 [J]. *环境科学研究*, 2017,30(2):173-183.
- Gao Q X, Li L, Ma Z Y, et al. The impacts of synoptic situation on heavy pollution process in autumn in Beijing during 2013~2016 [J]. *Research of Environmental Sciences*, 2017,30(2):173-183.
- [40] Liu X Y, He K B, Zhang Q, et al. Analysis of the origins of black carbon and carbon monoxide transported to Beijing, Tianjin, and Hebei in China [J]. *Science of the Total Environment*, 2019,653:1364-1376.
- [41] 齐孟姚,王丽涛,张城瑜,等.邯郸市黑碳气溶胶浓度变化及影响因素分析 [J]. *环境科学学报*, 2018,38(5):1751-1758.
- Qi M Y, Wang L T, Zhang C Y, et al. Variation of black carbon aerosol concentration and its influencing factors in Handan City, Hebei Province [J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 2018,38(5):1751-1758.

作者简介: 姚 青(1980-),男,湖北宜昌人,高级工程师,硕士,主要从事大气环境与健康气象研究.发表论文 70 余篇.