

张玉洁,涂爱琴,张武,等.山东惠民黑碳气溶胶变化特征及来源分析[J].海洋气象学报,2021,41(2):86-96.
ZHANG Yujie, TU Aiqin, ZHANG Wu, et al. Variation characteristics and source analysis of black carbon aerosols in Huimin, Shandong[J]. Journal of Marine Meteorology, 2021, 41(2): 86-96. DOI: 10.19513/j.cnki.issn2096-3599.2021.02.009. (in Chinese)

山东惠民黑碳气溶胶变化特征及来源分析

张玉洁^{1,2}, 涂爱琴^{1,2}, 张武³, 边智⁴, 王丽娟⁵

(1.山东省气象防灾减灾重点实验室,山东 济南 250031;2.山东省气象局大气探测技术保障中心,山东 济南 250031;3.兰州大学大气科学学院半干旱气候变化教育部重点实验室,甘肃 兰州 730000;4.泰安市气象局,山东 泰安 271000;5.惠民县气象局,山东 惠民 251700)

摘要: 利用山东惠民国家基准气候站2018年12月—2019年11月的黑碳质量浓度、常规气象观测资料以及GDAS数据,研究了该地区黑碳气溶胶的变化特征,并基于后向轨迹模型对其潜在源区进行了分析。研究表明:1)观测期间,黑碳质量浓度平均值为 $3.22 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$,季节变化呈冬、春季高,夏、秋季低的特点;春、夏、秋季黑碳质量浓度的高频值在 $2 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ 以内,冬季的高频值在 $6 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ 以上。2)黑碳质量浓度日变化呈双峰结构,峰值分别出现在06:00—08:00和19:00—21:00,谷值出现于13:00—15:00。3)降雨和风对黑碳质量浓度有明显影响。非降雨期黑碳质量浓度是降雨期的2.8倍;当风速小于 $3 \text{m} \cdot \text{s}^{-1}$ 时,黑碳质量浓度随风速增大而减小;冬季在西南西方向、春季在正南方向过来的气团易造成黑碳质量浓度高污染。4)惠民气流输送的季节变化特征明显。春、秋、冬季来自鲁中、河北和苏北等周边地区的气流所占比例较高,对应黑碳质量浓度高值;夏季来自海洋方向的气流占比较高,对应的黑碳质量浓度较低。

关键词: 黑碳;气溶胶;日变化;降雨;风向;风速;后向轨迹

中图分类号: X513 **文献标志码:** A **文章编号:** 2096-3599(2021)02-0086-11

DOI: 10.19513/j.cnki.issn2096-3599.2021.02.009

Variation characteristics and source analysis of black carbon aerosols in Huimin, Shandong

ZHANG Yujie^{1,2}, TU Aiqin^{1,2}, ZHANG Wu³, BIAN Zhi⁴, WANG Lijuan⁵

(1. Key Laboratory for Meteorological Disaster Prevention and Mitigation of Shandong, Jinan 250031, China; 2. Ensuring Center of Atmospheric Sounding Technology, Shandong Meteorological Bureau, Jinan 250031, China; 3. Key Laboratory for Semi-Arid Climate Change of the Ministry of Education, College of Atmospheric Sciences of Lanzhou University, Lanzhou 730000, China; 4. Taian Meteorological Bureau, Taian 271000, China; 5. Huimin Meteorological Bureau, Huimin 251700, China)

Abstract Utilizing the black carbon mass concentration and conventional meteorological data of the national reference climatological station in Huimin, Shandong, and GDAS data from December 2018 to November 2019, the variation characteristics and potential sources of black carbon aerosols are analyzed based on the TrajStat model. The research findings are shown below. 1) During the observation period, the average value of black carbon mass concentration is $3.22 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$, and the seasonal variation presents the characteristics of high in winter and spring, but low in summer and autumn; the high-

收稿日期:2020-11-24; 修订日期:2021-02-24

基金项目:山东省气象局重点科研项目(2018sdqx05);山东省气象局面上科研项目(2018sdqxm08)

通信作者:张玉洁,女,硕士,正高级工程师,主要从事探测资料应用研究,yzhyw@163.com。

frequency value of black carbon mass concentration in spring, summer, and autumn is under $2 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$, while above $6 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ in winter. 2) The diurnal variation of black carbon mass concentration has a bimodal structure, of which the peak value appears from 06:00 to 08:00 and from 19:00 to 21:00 and the valley value appears from 13:00 to 15:00. 3) The black carbon mass concentration is obviously influenced by rainfall and wind. The average value of the non-rainy period is 2.8 times that of the rainy period; when the wind speed is under $3 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$, the black carbon mass concentration decreases with the increase of wind speed; the air mass coming from west-southwest in winter and from due south in spring is liable to cause high pollution of black carbon mass concentration. 4) The seasonal variation of air flow is obvious in Huimin. The air flow from the surrounding areas such as the central Shandong, Hebei, and the north of Jiangsu takes a high proportion in spring, autumn, and winter, corresponding to high black carbon mass concentration; while the air flow from the ocean takes a high proportion in summer, corresponding to low black carbon mass concentration.

Key words black carbon; aerosol; diurnal variation; rainfall; wind direction; wind speed; backward trajectory

引言

黑碳气溶胶是指悬浮在大气中的黑色碳质颗粒物,它是由含碳物质不完全燃烧产生的不定型碳质气溶胶^[1],主要来源于人类大量使用的燃煤、石油、天然气的不完全燃烧^[2]以及热带雨林和草原火灾的燃烧^[3]。此外,由汽车尾气造成的污染物排放也成为大气尤其是城市地区大气中黑碳气溶胶的主要来源。黑碳气溶胶颗粒的粒径较小,尺度范围一般为 $0.01 \sim 1.00 \mu\text{m}$ 。尽管它在大气气溶胶的组成成分中占比小,浓度低,但却是影响大气环境和人体健康的关键因素。黑碳气溶胶具有吸附性,可通过呼吸系统进入人体,对人体健康产生极大危害^[4]。相关研究^[5-6]表明,黑碳气溶胶是影响全球环境和气候变化的重要因子之一。中国黑碳排放总量约占全球排放量的 $1/4$ ^[7],我国对黑碳气溶胶的研究最早开始于 20 世纪 80、90 年代。汤洁等^[8]于 1991 年在临安大气本底站、1998 年在拉萨进行过短时间的黑碳质量浓度的观测;肖思晗等^[9]研究了南京北郊黑碳气溶胶的特性和影响因素,并与国内其他城市的黑碳气溶胶情况进行了对比;HUANG et al.^[10]通过在深圳的观测发现,城市地区观测点的黑碳质量浓度要高于农村地区,且城市地区黑碳质量高浓度事件主要受局地排放和不利气象条件下的区域输送的综合影响。

随着我国应对气候变化以及大气污染治理工作的不断深入,大气成分观测的需求日益增强。自 2005 年开始,中国气象局在已建成的大气本底站和沙尘暴站的基础上,又建成了全国关键和典型地区

的大气成分观测网,涵盖了华南、黄淮、四川盆地、东北、内蒙古等地,惠民黑碳观测站即为其中之一。黑碳气溶胶的特性与区域来源、特点等密切相关^[11]。吴兑等^[12]通过对珠三角黑碳气溶胶的研究得到,黑碳是该地区 $\text{PM}_{2.5}$ 的重要组成部分,黑碳质量浓度干季较高,湿季较低。薛福民等^[13]对塔克拉玛干沙漠黑碳气溶胶的研究得出,该地黑碳气溶胶日变化特征与城市地区恰好相反,夜间高于白天。我国南北方区域特点差异大,黑碳气溶胶的分布特点也各不相同,研究不同区域黑碳气溶胶的分布特性非常有必要。惠民地处鲁西北平原,属于中国绿色名县和山东省历史文化名城,近年来,随着当地城市建设和经济的快速发展,大气污染状况也变得不容乐观,黑碳气溶胶作为大气中重要的污染物之一,研究其变化特性和物理、微物理特性以及它产生的环境效应具有十分重要的意义。本文利用山东惠民国家基准气候观测站的黑碳质量浓度资料、美国国家海洋和大气管理局(National Oceanic Atmospheric Administration, NOAA)提供的全球数据同化系统(global data assimilation system, GDAS)数据,并结合当地的风、雨量、能见度、湿度等常规气象观测资料,对当地大气中的黑碳气溶胶的变化特征、影响因素及潜在来源进行了分析研究,以期为当地的黑碳气溶胶的气候和环境效应评估提供基础数据,为当地的大气污染治理提供科学依据。

1 仪器与数据

1.1 仪器测量原理

本研究所用仪器是美国玛基科学公司生产的

AE-31 型黑碳仪。该仪器可在 370、470、520、590、660、880、950 nm 7 个波段上对黑碳质量浓度进行测量。其原理是实时测量石英滤纸带上收集的颗粒物对光的吸收所造成的衰减,并且假定该衰减全部是由黑碳吸收造成的,相对于黑碳气溶胶的吸收,其他成分的气溶胶对可见光的吸收可忽略不计。通过连续测量光衰减的变化计算黑碳质量浓度。仪器工作原理及黑碳质量浓度计算方法见参考文献[14]。

1.2 观测地点、时间及资料处理

仪器采样地点位于惠民国家基准气候站,在县城东北,距主城区约 2.5 km,其西南方向有居民小区,正南和北偏东各有一条东西和西北—东南向主干道,测站四周没有明显的黑碳污染排放源。该地的大气状态能够较好地反映惠民大气中黑碳的污染状况。测站位置见图 1。



图1 测站位置示意图

Fig.1 Location of observation site

选用的原始数据为 2018 年 12 月 1 日—2019 年 11 月 30 日的观测资料。仪器采样频率为 5 min,利用 5 min 的平均数据序列计算得到 1 h 的平均值。数据处理中,对原始数据进行了筛选。剔除了仪器故障以及更换滤膜时造成的异常数据。按照气象行业标准之大气黑碳气溶胶观测——光学衰减法^[15]的零点检测方法,每 3 个月左右对仪器进行零点数据检查(简称“零检”),在数据处理中将“零检”时段的数据进行了剔除。在选用的观测时段内,经过数据筛选后资料的有效率为 95.7%。文中的黑碳质量浓度日、月平均值是利用数据筛选后的小时平均值计算得来的,所用的黑碳质量浓度均选用 880 nm 波长为代表。雨量、风、能见度、湿度等气象观测资料均为与黑碳观测仪在同一时段同一地点的观测数据。GDAS 数据来自美国国家环境预报中心(National Center for Environmental Prediction, NCEP)提供的对应时间段的全球资料同化系统数

据,气象要素场包括水平和垂直风速、温度、气压、相对湿度、降水等。

2 结果与讨论

2.1 黑碳质量浓度逐日变化特征

图 2 为观测期间黑碳质量浓度日均值的逐日变化,空白区域为数据缺失(仪器故障)。黑碳质量浓度日均值变化范围为 $0.13 \sim 17.35 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ 。冬季(2018 年 12 月—2019 年 2 月)、春季(2019 年 3—5 月)、夏季(2019 年 6—8 月)、秋季(2019 年 9—11 月)的质量浓度平均值分别为 $7.31 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ 、 $2.63 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ 、 $1.02 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ 、 $1.79 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ 。其变化特征呈冬、春季高,变化幅度大,夏、秋季低,变化幅度较平缓的特点。黑碳质量浓度高值区出现在 12 月—次年 3 月,低值区出现在 6—8 月。每年 11 月中旬—次年 3 月中旬为本地的采暖季,其间大量的燃煤污染物被排放到大气中,致使大气中黑碳质量浓度增多。利用章丘探空资料统计发现,该地区冬季逆温天数占整个冬季的 53.7%,逆温层的存在也导致大气中颗粒物和污染物不易扩散。

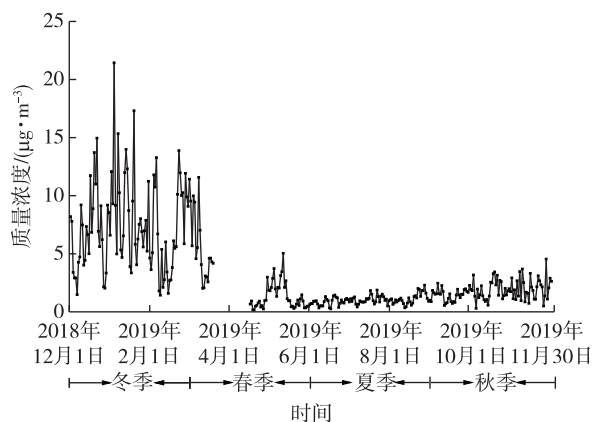


图2 2018 年 12 月 1 日—2019 年 11 月 30 日黑碳质量浓度(单位: $\mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$)逐日变化图

Fig.2 Diurnal variation of black carbon mass concentration (units: $\mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$) from 1 December 2018 to 30 November 2019

观测期间,黑碳质量浓度平均值为 $3.22 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ 。表 1 列举了不同区域背景下惠民与国内其他一些地方的黑碳质量浓度分布情况。由表 1 可见,位于城区的观测站其黑碳质量浓度总体高于农村。观测期间,惠民的黑碳质量浓度日均值低于沈阳、西宁、广州、杭州,和东莞接近,但明显高于兰州农村站和瓦里关全球本底站。出现这种差异的原因与各地的区域环境、天气条件、大气污染治理以

及能源结构不同有关。近几年国家对环保政策趋严,监管力度也进一步加大,这些都对大气污染的治理起到了积极的推动作用。此外,惠民属于鲁西

北的县级城市,与国内大中城市相比,人口少,经济不发达,相比而然,黑碳质量浓度整体水平还是偏低的。

表 1 不同地区黑碳质量浓度观测结果

Table 1 Observation results of black carbon mass concentration in different areas

观测地点	站点类型	观测时间	黑碳质量浓度均值/($\mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$)
惠民(本研究)	城市	2018 年 12 月—2019 年 11 月	3.22
沈阳 ^[16]	城市	2008 年 3 月—2009 年 2 月	6.14
西宁 ^[17]	城市	2005 年 9 月—2006 年 2 月	4.24
瓦里关 ^[17]	全球本底站	2006 年 1—12 月	0.28
广州 ^[18]	城市	2010 年 1—12 月	4.70
杭州 ^[19]	城市	2011 年 7 月—2012 年 6 月	5.14
东莞 ^[20]	城市	2010 年 4—9 月(湿季)	3.46
兰州 ^[21]	农村	2007 年 1 月—2009 年 8 月	1.57

图 3 统计分析了惠民春、夏、秋、冬黑碳质量浓度小时平均值的频率变化特征。由图可见,春、夏、秋季黑碳质量浓度的高频值(频率超过 50%)都在 $2 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ 以内,而冬季的高频值主要分布在 $6 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ 以上。春、夏、秋、冬黑碳质量浓度小时均值小于 $4 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ 的频率分别为 79.19%、99.09%、93.18%、32.64%,夏、秋季占比最高,比例基本相当,春季次之,冬季最低。可见,春、夏、秋季黑碳质量浓度小时均值主要集中在 $4 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ 以内,而冬季的黑碳质量浓度小时均值不仅高值多而且占比也偏高,其中大于 $4 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ 的高值占了冬季总数的 67.36%,表明惠民冬季的重污染事件要明显高于其他三个季节。

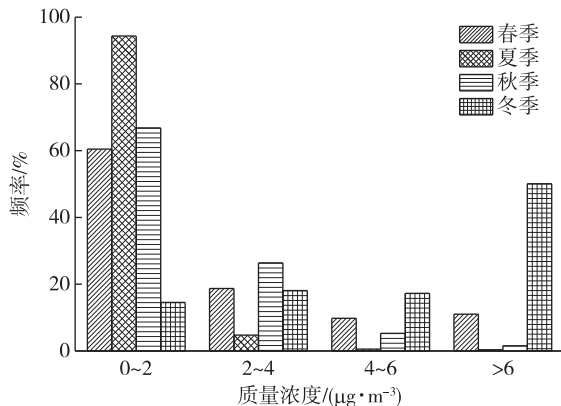


图 3 惠民春、夏、秋、冬季黑碳质量浓度小时平均值频率(单位:%)分布

Fig.3 Frequency distribution (units: %) of hourly mean black carbon mass concentration in spring, summer, autumn, and winter in Huimin

2.2 黑碳质量浓度日变化特征

观测期间惠民大气中黑碳质量浓度小时平均值变化范围为 $0.063 \sim 44.190 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ 。图 4 为春、夏、秋、冬季黑碳质量浓度平均值的日变化,四季的变化曲线总体趋势相近。黑碳质量浓度日均值冬季最高,夏季最低。冬季的日均值远高于其他三个季节,分别为春、秋、夏季的 2.68、4.04 和 7.10 倍。前文所述,惠民冬季出现逆温的天数占整个冬季的 53.7%,高频次的逆温天气对黑碳质量浓度的升高具有一定的贡献。夏季黑碳日平均质量浓度最低,且变化波动幅度较小。

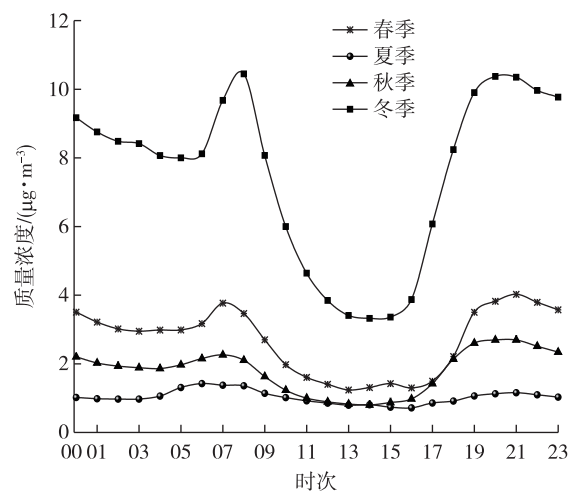


图 4 春、夏、秋、冬季黑碳质量浓度平均值(单位: $\mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$)日变化

Fig.4 Diurnal variation of average black carbon mass concentration (units: $\mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$) in spring, summer, autumn, and winter

由图4可见,四季的黑碳质量浓度日变化呈双峰结构。春、秋、冬季双峰特征明显,夏季由于黑碳质量浓度低且日变化波动小,双峰结构不明显。四季日变化的峰值分别出现在06:00—08:00和19:00—21:00,谷值出现在13:00—15:00。惠民的黑碳质量浓度日变化特征与已有的一些研究^[22-24]相一致。

惠民黑碳气溶胶的日变化主要受到大气湍流扩散条件、近地层气象条件以及交通源等因素的共同影响。日出后,大气相对稳定,湍流扩散条件较差,极易产生清晨逆温,因而造成夜间聚集的污染物不易扩散出去。清晨随着人们的活动和出行,交通流量加大,机动车污染排放加剧。在气象条件和交通源的共同影响下,07:00前后黑碳质量浓度达到一天中的峰值,之后逐渐降低。午后随着太阳辐射和大气对流、湍流的增强,加剧了黑碳气溶胶的扩散,至15:00左右降到全天的最低值。下午随着下班高峰期交通流量的再次加大及晚间取暖烹饪等,新的污染物进入大气,加上夜间易出现逆温,黑碳质量浓度在19:00—21:00达到峰值。入夜后,人类活动造成的黑碳排放量开始减少,黑碳质量浓度呈下降趋势,但由于夜间大气层结的稳定和湍流输送的减弱,在午夜至凌晨期间,黑碳质量浓度还是相对稳定在一个较高的水平。

由图4可见,冬季黑碳质量浓度日变化的早峰值出现在08:00,相比春、夏、秋的早峰值晚1h。据统计,惠民冬季早上有50%以上的天气出现逆温,加之冬季日出晚,晨起人类活动推迟,因此,冬季黑碳质量浓度早峰值出现的时间相比其他三个季节要晚一些。

2.3 降雨对黑碳质量浓度的影响

图5为黑碳月平均质量浓度与月累积降雨量关系图。观测期间惠民年降雨量为435.8mm,降雨主要集中在4、7、8月,占全年总降雨量的87.3%。降雨期和非降雨期黑碳质量浓度平均值分别为 $1.275 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ 和 $3.537 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$,非降雨期黑碳质量浓度的平均值是降雨期的2.8倍。

由分析可知,惠民地区黑碳月平均质量浓度与月累积降雨量呈负相关性,相关系数为-0.42。而BABU and MOORTHY^[25]在分析印度地区的黑碳月平均质量浓度与月累积降雨量的相关性时得到了-0.74的相关系数,其相关性较高。印度属热带地区,年降水丰沛,惠民地区属于温带季风气候,多年平均降雨量在590mm左右,降雨主要集中在7、8、9

月,冬季降雨少,强度弱,少雨期黑碳质量浓度更多的受到其他气象因素和人类活动的影响。相关的研究^[26-27]也表明,气溶胶颗粒物降雨清除系数的重要因素包括雨强、雨滴谱的尺度分布以及雨滴下落速度等,这也导致了不同的降雨过程对大气中黑碳气溶胶的冲刷作用的不同。

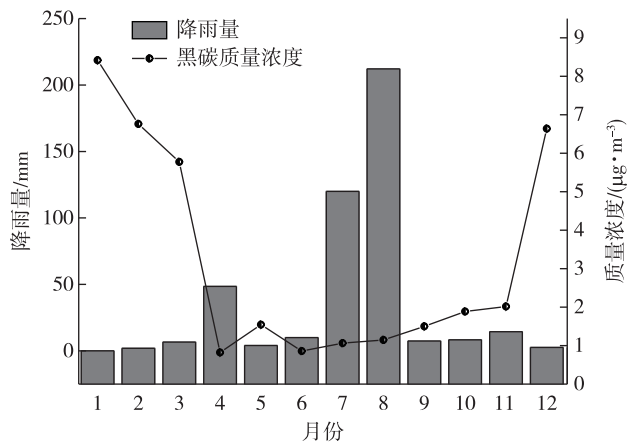


图5 黑碳月平均质量浓度(单位: $\mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$)与月累积降雨量(单位:mm)关系图

Fig.5 Relationship between monthly mean black carbon mass concentration (units: $\mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$) and monthly accumulated precipitation (units: mm)

选取观测期间日累积降雨量大于1mm的降雨日,分析了降雨对黑碳质量浓度日均值变化的影响。由图6可见,降雨日的黑碳质量浓度日均值呈现冬春季高于夏秋季,波动幅度大的变化规律。结合图5,冬春季的月累积降雨量明显小于夏秋季,大气中黑碳气溶胶湿清除效果差,这也是导致冬春季大气中黑碳质量浓度相比夏秋季偏高的一个原因。

图6中降雨前一日和降雨当日黑碳质量浓度的变化情况显示,65.5%的情况下,降雨日的黑碳质量浓度相比降雨前一日是下降的。降雨前黑碳质量浓度较高时,降雨对其清除效果明显;降雨前黑碳质量浓度较低时,降雨的清除效果不是很明显。图6中日降雨量曲线显示,日降雨量小于10mm时,降雨对黑碳气溶胶清除效果明显的比例达61.9%;而对于日降雨量大于10mm的情况,降雨对黑碳气溶胶的湿清除效果不明显。由图6可见,2019年4月25—26日、2019年6月5—6日、2019年7月2—3日、2019年7月6—7日、2019年7月29—30日、2019年8月9—13日,都出现了连续两天以上的降雨。对于连续降雨日,66.7%的情况,第二天的黑碳质量浓度相比第一天是降低的,即大气中黑碳质量浓度是逐日持续下降的。其原因是前期未降雨造

成大气中黑碳质量浓度的累积,降雨使得大气中可被雨水冲刷的黑碳气溶胶被冲刷沉降到地面。但也有 33.3% 的情况,如 2019 年 4 月 25—26 日和 2019 年 7 月 6—7 日,连续降雨期间第二天的黑碳质量浓度相比第一天是升高的。相关的研究^[9] 也表明,影响大气中黑碳气溶胶变化的因素很复杂,除了跟降雨的湿清除作用有关,还跟降雨当天的降雨时间、降雨强度以及温度、湿度、风等因素有关。

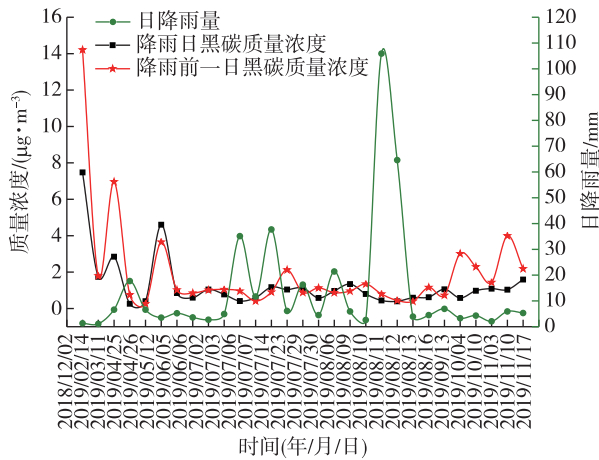


图 6 2018 年 12 月 1 日—2019 年 11 月 30 日日降雨量 (单位:mm)与降雨日及降雨前一日黑碳质量浓度(单位:µg·m⁻³)变化

Fig.6 Variation of daily precipitation (units: mm) and black carbon mass concentration (units: µg·m⁻³) on the rainy day and the day before the rainy day from 1 December 2018 to 30 November 2019

2.4 风速和风向对黑碳质量浓度的影响

风速和风向对大气污染物扩散和输送起着重要的作用,风向决定着污染物的输送方向,风速决定着对污染物的扩散能力。

2.4.1 风速对黑碳质量浓度的影响

图 7 为观测期间日平均黑碳质量浓度和日平均风速之间的变化情况。由图可见,随着风速的增大,黑碳质量浓度呈下降趋势。风速为 0.5~1.5 m·s⁻¹时,黑碳质量浓度平均值为 4.18 µg·m⁻³,风速为 2.5~3.0 m·s⁻¹时,黑碳质量浓度平均值为 1.88 µg·m⁻³。与 0.5~1.5 m·s⁻¹风速的黑碳质量浓度平均值相比,其浓度降低了 55%。当风速大于 3.0 m·s⁻¹时,黑碳质量浓度随着风速增加而下降的趋势不再明显。

图 8 给出了不同风速范围内黑碳质量浓度平均值的变化。由图可见,静风时黑碳质量浓度最高;当 0.3 m·s⁻¹≤风速≤3.0 m·s⁻¹时,黑碳质量浓度随风速的增大减小较快,有利于大气中颗粒物的扩

散;而当风速>3.0 m·s⁻¹时,黑碳质量浓度随风速的增大不再出现减小的趋势。有研究^[28-29] 也表明,当风速大于一定的值后,风速与黑碳质量浓度的相关性不再显著,这与已有的研究是相吻合的。

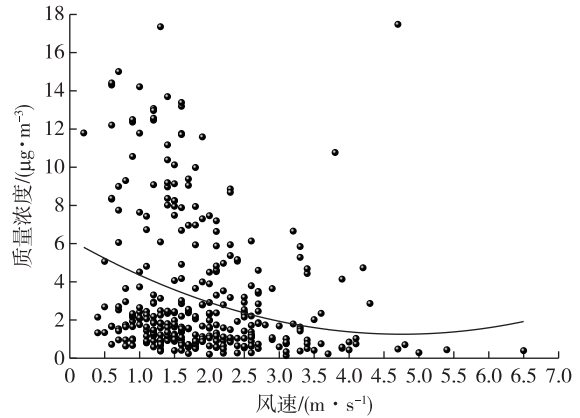


图 7 黑碳日平均质量浓度(单位:µg·m⁻³)与日平均风速(单位:m·s⁻¹)的变化关系图

Fig.7 Relationship between daily mean black carbon mass concentration (units: µg·m⁻³) and daily mean wind speed (units: m·s⁻¹)

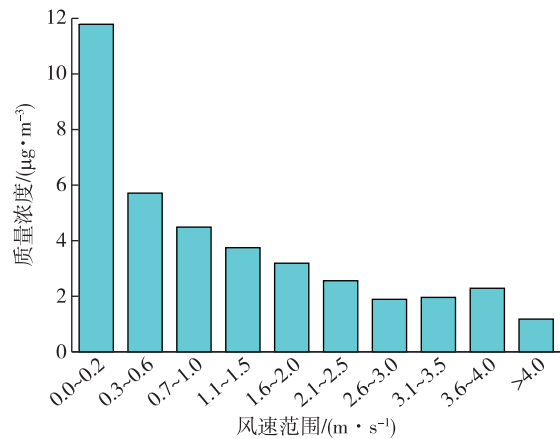


图 8 不同风速范围内黑碳质量浓度(单位:µg·m⁻³)的变化

Fig.8 Variation of black carbon mass concentration (units: µg·m⁻³) in different wind speed ranges

2.4.2 风向对黑碳质量浓度的影响

由于不同方向上污染源的影响不同,导致了不同风向对污染物的输送影响也不同,图 9 为春、夏、秋、冬季不同风向上黑碳质量浓度的分布情况。由图可见,夏、秋季不同风向上的黑碳质量浓度偏低,其中夏季最低;冬、春季不同风向上的黑碳质量浓度偏高,其中冬季最高。以大于 6 µg·m⁻³作为黑碳质量高浓度。冬季,黑碳质量高浓度在各风向上发生的频率总和为 43.9%,其中西南西风向上发生

的频率最高,为4.86%;春季,黑碳质量高浓度在各风向上发生的频率总和为9.34%,其中南风方向上发生的频率最高,为1.61%;夏、秋季黑碳质量高浓度发生的频率都非常微小,其中夏季最高频率出现在南南东风方向上,仅为0.09%,秋季最高频率出现在东南风方向上,仅为0.2%。

由图1可知,黑碳采样点所在地的西南方向为

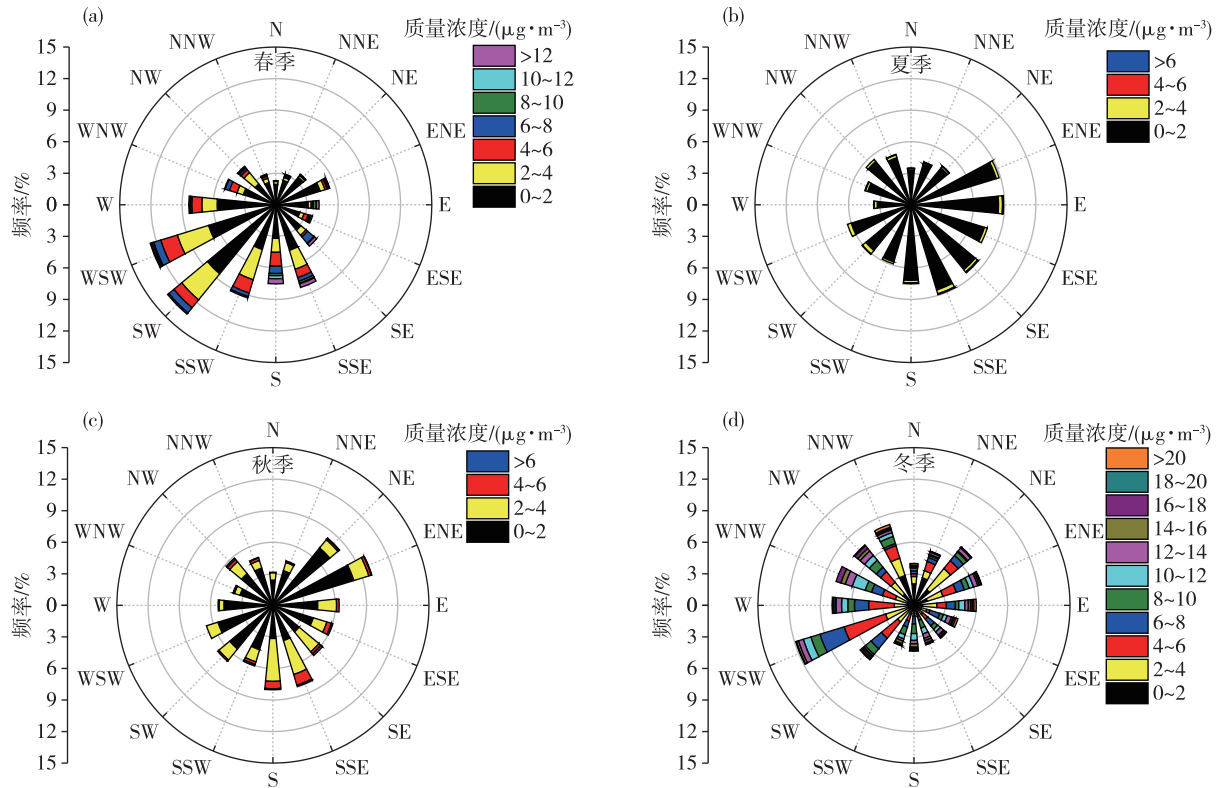


图9 春季(a)、夏季(b)、秋季(c)、冬季(d)不同风向的黑碳质量浓度(单位: $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$)分布图

Fig.9 Distribution of black carbon mass concentration (units: $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$) in different wind directions in spring (a), summer (b), autumn (c), and winter (d)

2.5 污染期间黑碳质量浓度对能见度和霾的影响

黑碳在气溶胶中所占的比例虽然很小,但它的作用却不容忽视。因为它的质量衰减系数比其他透明的气溶胶要高出2~3倍,而且它是气溶胶中吸收紫外、可见、近红外辐射的主要成分,光吸收物质可以使某些地区的能见度降低一半左右^[30-31]。黑碳粒子的变化将改变大气浑浊度和大气能见度,并且影响霾的产生^[32-33]。为了解污染条件下惠民地区黑碳气溶胶对能见度和霾的影响,按照国标霾的观测识别^[34]中霾的识别方法,将能见度小于10 km,相对湿度小于80%,排除降水、沙尘暴、扬沙、浮

尘、烟幕、吹雪、雪暴等天气现象造成的视程障碍,判识为霾。根据天气分级,当空气相对湿度小于等于80%,且能见度小于2 km,判识为重度霾。一日内霾现象持续6 h及以上时,即为一个霾日。据此统计了观测期间惠民地区非霾、霾以及重度霾期间的黑碳质量浓度、能见度和相对湿度的平均值的变化情况,见表2。非霾天气和霾天气条件下的黑碳质量浓度平均值分别为 $2.44\ \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 和 $4.78\ \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 。其中,重度霾、霾天气的黑碳质量浓度分别为非霾天气的3.80倍和1.96倍。发生霾天气时,其黑碳质量浓度明显增大。

表 2 非霾与霾天气下黑碳质量浓度、能见度、相对湿度水平

Table 2 Level of black carbon mass concentration, visibility, and relative humidity in haze weather and non-haze weather

不同天气条件	样本数	黑碳质量浓度平均值/ $(\mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3})$	相对湿度平均值/%	能见度平均值/km
非霾(能见度 ≥ 10 km)	5 240	2.44	54.8	21.2
霾(能见度 < 10 km)	2 830	4.78	72.9	5.48
重度霾(能见度 < 2 km)	70	9.28	61.2	1.51

2.6 黑碳污染源来源分析

轨迹分析常被用于研究区域性污染物来源,一个地区的黑碳污染除了本地污染源之外,还与外来污染源有关。在一定天气条件下,外来污染物会随着气流输送到该地区。通过分析吹向研究区域气流的 backward 轨迹,可以了解该地区气流的来源和路径,从而定性的分析外来污染物的潜在来源。本文利用 NCEP 提供的 GDAS 数据,采用 TrajStat 模式对

惠民 2018 年 12 月 1 日—2019 年 11 月 30 日的逐小时气流来源进行了 72 h 的后向轨迹反演,选取 500 m 高度进行计算,并根据气流后向轨迹结果对轨迹进行了聚类分析,结果见图 10。基于不同季节气流后向轨迹聚类结果,对各轨迹对应的黑碳质量浓度算术平均值进行统计分析(表 3),以此反映该类气流影响下的黑碳质量浓度的分布特征。

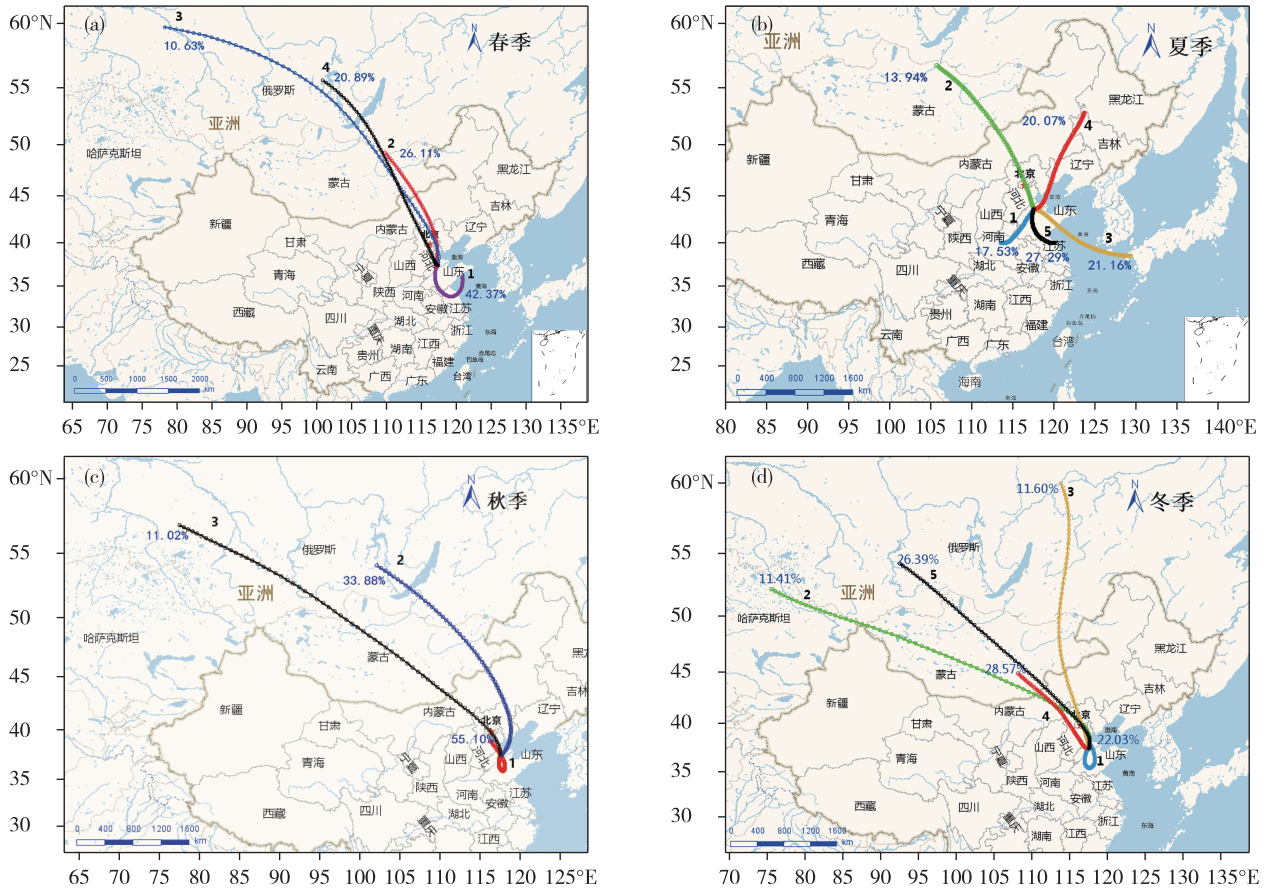


图 10 后向轨迹聚类的季节分布(a.春季,b.夏季,c.秋季,d.冬季)

Fig.10 Seasonal distribution of backward trajectory clustering (a. spring, b. summer, c. autumn, d. winter)

由图 10 可知,春、夏、秋、冬的后向轨迹分别被聚类成 4、5、3、5 类。春季来自苏北、鲁中方向的轨迹最多,占该季节气流轨迹总数的 42.37%,该轨迹上的黑碳质量浓度最高,轨迹路径最短,表明区域气象条件稳定,污染物扩散能力偏弱,易将苏北、鲁

中等沿途区域的污染物输送至惠民形成累积。而来自俄罗斯和蒙古方向的气流轨迹 4,由于所经地区的污染物含量小,气团较为清洁,加之气流轨迹长风速大,加速了污染物的扩散和稀释,故黑碳质量浓度较低;惠民属暖温带半湿润大陆型气候,夏

季受海洋气流影响较明显,来自黄、渤海的气流(轨迹3、4、5)对其影响较大,占该季节气流轨迹总数的68.52%。来自海洋的洁净气团,有利于稀释本地的黑碳质量浓度,且夏季充足的降水对污染物也有湿清除作用,使得到达惠民的气流所携带的污染物较少。夏季各轨迹对应的黑碳质量浓度都较低,范围在 $0.808 \sim 1.184 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ 之间,气流轨迹长度较为接近。秋季来自西北方向气流轨迹的分布与春季较为类似,该季节气流的影响主要来自河北东南和鲁中方向,占当季气流总数的55.10%,其对应的黑碳质量浓度较高。秋季气流轨迹长短与黑碳质量浓度大小存在明显的对应关系:长轨迹对应的黑碳质量浓度较低,短轨迹对应的浓度较高。这也与本文分析得到的风速大小与黑碳质量浓度呈负相

关的结论是一致的;冬季气流主要来自北方内陆地区,轨迹均较长,表明来自北方的气团移速较快。其中来自蒙古中部的气流(轨迹4和轨迹5)占比最大,为54.96%。来自河北和鲁中的气流轨迹1和轨迹4,其黑碳质量浓度较高,分别为 $4.057 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ 和 $3.065 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$,冬季是北方的采暖期,周边区域气流的输送易带来人为气溶胶含量较高的污染气团,因而导致黑碳质量浓度偏高。

上述分析结果表明:惠民春、秋、冬季来自周边内陆地区的气流所占比例较高,周边气流主要来自鲁中、河北和苏北等地,这些方向上的气流输送易带来人为气溶胶含量较高的污染气团,因而黑碳质量浓度较高;夏季来自海洋方向的气流占比较高,气团较为洁净,对应黑碳质量浓度较低。

表3 不同季节各轨迹黑碳质量浓度统计结果

Table 3 Statistical results of black carbon mass concentration in different seasons for each locus

季节	轨迹编号	气流占比/%	途径区域	黑碳质量浓度/ $(\mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3})$
春季	1	42.37	黄海、苏北、鲁中	2.270
	2	26.11	内蒙古东部、北京、天津、鲁西北	0.805
	3	10.63	俄罗斯西南部、蒙古东部、内蒙古西南部、北京、天津	1.033
	4	20.89	俄罗斯西南部、蒙古中东部、内蒙古西南部、河北东部	0.676
夏季	1	17.53	河南中部、鲁西南	1.085
	2	13.94	蒙古中东部、内蒙古西南部、北京、天津	1.184
	3	21.16	黄海、青岛	0.808
	4	20.07	内蒙古东部、辽宁西部、渤海	0.897
	5	27.29	黄海、江苏东北部、鲁中	1.176
秋季	1	55.10	河北东南、鲁中	2.140
	2	33.88	俄罗斯南部、蒙古东部、内蒙古中部、河北东北部、渤海	1.425
	3	11.02	俄罗斯西南、蒙古中部、内蒙古中部、河北北部、北京、天津	1.159
冬季	1	22.03	鲁西北、鲁中	4.057
	2	11.41	哈萨克斯坦东北部、蒙古西南部、内蒙古中部、河北东南部	1.132
	3	11.60	俄罗斯中部、蒙古东部、内蒙古中部、北京、天津	0.511
	4	28.57	蒙古南部、内蒙古中部、河北中部	3.065
	5	26.39	俄罗斯南部、蒙古中部、河北中部	0.753

3 结论

利用山东惠民国家基准气候站2018年12月—2019年11月的黑碳质量浓度观测资料、常规气象观测资料及GDAS资料,分析研究了该地区黑碳气溶胶的变化特征、影响因素及潜在来源,得到如下结论:

1) 观测期间,惠民黑碳质量浓度平均值为 $3.22 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$,日均值变化范围为 $0.13 \sim 17.35 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ 。

季节变化呈现冬、春季高,变化幅度较大;夏、秋季低,幅度变化平缓的特点。春、夏、秋季黑碳质量浓度小时均值集中在 $4 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ 以内,高频值主要在 $2 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ 以内;冬季黑碳质量浓度小时均值不仅高值多而且占比也偏高,其中大于 $4 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ 的值占冬季总数的67.36%。

2) 黑碳质量浓度日变化呈双峰结构,峰值分别出现于06:00—08:00和19:00—21:00,谷值出现于13:00—15:00。冬季黑碳质量浓度日均值最高,分

别为春、秋、夏季的2.68、4.04和7.10倍。

3) 黑碳月平均质量浓度与月累积降雨量呈负相关性, 相关系数为-0.42。降雨对黑碳气溶胶有湿清除作用, 非降雨期的黑碳质量浓度平均值是降雨期的2.8倍; 观测期间, 65.5%的情况下, 降雨日的黑碳质量浓度相比降雨前一日是下降的, 而对于连续降雨日, 66.7%的情况, 大气中的黑碳质量浓度是逐日持续下降的。

4) 当风速小于 $3.0 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ 时, 黑碳质量浓度随风速增大而减小。夏、秋季不同风向上的黑碳质量浓度都偏低, 夏季最低; 冬、春季不同风向上的黑碳质量浓度偏高, 冬季最高。大于 $6 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ 的黑碳质量高浓度, 冬季在西南西风方向上发生的频率最高, 春季在南风方向上发生的频率最高, 这一变化特征与黑碳气溶胶的区域输送和局地人类活动密切相关。

5) 重度霾、霾天气黑碳质量浓度平均值分别为非霾天气的3.80倍和1.96倍, 霾天气条件下, 黑碳质量浓度和相对湿度的平均值都明显增大。

6) 惠民气流输送的季节变化特征明显。春、秋、冬季来自鲁中、河北和苏北等周边地区的气流所占比例较高, 对应黑碳质量浓度高值, 是主要的潜在污染源, 对污染的贡献较大; 夏季来自东面海洋方向的气流占比较高, 气团较为洁净, 对应的黑碳质量浓度较低。

参考文献:

- [1] 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[J]. 气象, 2001, 27(11): 3-7.
- [2] 吴进, 马志强, 熊亚军, 等. 北京地区供暖季两次重污染过程气象条件对比[J]. 海洋气象学报, 2019, 39(1): 38-45.
- [3] 高玮, 屈文军. 非洲地区大气气溶胶光学厚度时空变化及亚速尔高压对沙尘越大西洋传输的影响[J]. 海洋气象学报, 2018, 38(4): 81-92.
- [4] LI Y, HENZE D K, JACK D, et al. Assessing public health burden associated with exposure to ambient black carbon in the United States[J]. Sci Total Environ, 2016, 539: 515-525.
- [5] 张华, 马井会, 郑有飞. 黑碳气溶胶辐射强迫全球分布的模拟研究[J]. 大气科学, 2008, 32(5): 1147-1158.
- [6] 华凌. 黑碳对气候变暖的影响超过甲烷: 致暖效应约是头号温室气体二氧化碳的三分之一[N]. 科技日报, 2013-01-17(2).
- [7] 张楠, 覃栋, 谢绍东. 中国黑碳气溶胶排放量及其空间分布[J]. 科学通报, 2013, 58(19): 1855-1864.
- [8] 汤洁, 温玉璞, 周凌晞, 等. 中国西部大气清洁地区黑碳气溶胶的观测研究[J]. 应用气象学报, 1999, 10(2): 160-170.
- [9] 肖思晗, 于兴娜, 朱彬, 等. 南京北郊黑碳气溶胶污染特征及影响因素分析[J]. 环境科学, 2016, 37(9): 3280-3289.
- [10] HUANG X F, SUN T L, ZENG L W, et al. Black carbon aerosol characterization in a coastal city in South China using a single particle soot photometer [J]. Atmos Environ, 2012, 51: 21-28.
- [11] 宿兴涛, 王汉杰. 中国黑碳气溶胶分布特征与辐射强迫的模拟研究[J]. 大气科学学报, 2009, 32(6): 798-806.
- [12] 吴兑, 毛节泰, 邓雪娇, 等. 珠江三角洲黑碳气溶胶及其辐射特性的观测研究[J]. 中国科学(D辑: 地球科学), 2009, 39(11): 1542-1553.
- [13] 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.
- [14] 刘琼. 上海地区气溶胶对近地面臭氧的影响研究[D]. 上海: 东华大学, 2012.
- [15] 中国气象局. 大气黑碳气溶胶观测——光学衰减方法: QX/T 68—2007[S]. 北京: 气象出版社, 2007.
- [16] 王扬锋, 马雁军, 陆忠艳, 等. 沈阳黑碳气溶胶浓度的观测研究分析[J]. 安全与环境学报, 2011, 11(3): 124-127.
- [17] 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.
- [18] 吴兑, 廖碧婷, 陈慧忠, 等. 珠江三角洲地区的灰霾天气研究进展[J]. 气候与环境研究, 2014, 19(2): 248-264.
- [19] 徐昶, 沈建东, 叶辉, 等. 杭州黑碳气溶胶污染特性及来源研究[J]. 中国环境科学, 2014, 34(12): 3026-3033.
- [20] 孙天林, 吴兑, 吴晟, 等. 东莞市黑碳气溶胶污染特征及来源分析[J]. 地球化学, 2020, 49(3): 287-297.
- [21] 张磊, 张镭, 张丁玲, 等. 兰州远郊区黑碳气溶胶浓度特征[J]. 中国环境科学, 2011, 31(8): 1248-1255.
- [22] 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.
- [23] 王扬锋, 马雁军, 陆忠艳, 等. 本溪大气黑碳气溶胶浓度的观测研究[J]. 环境科学与技术, 2011, 34(12): 22-25.
- [24] 杨卫芬, 程钟, 沈琰. 常州城区秋冬季黑碳气溶胶的浓度变化特征[J]. 环境监测管理与技术, 2013, 25(5): 11-14.
- [25] BABU S S, MOORTHY K K. Aerosol black carbon over a tropical coastal station in India [J]. Geophys Res Lett, 2002, 29(23): 13-1-13-4.
- [26] 姚克亚, 郭俊, 傅云飞, 等. 气溶胶粒子的降雨清除[J].

- 气候与环境研究,1999,4(3):297-302.
- [27] 邹长伟,黄虹,杨帆,等.大气颗粒物和气态污染物的降雨清除效率及影响因素[J].环境科学与技术,2017,40(1):133-140.
- [28] PAKKANEN T A, OJANEN C H, HILLAMO R E, et al. Atmospheric black carbon in Helsinki[J]. J Aerosol Sci, 1998,29(s1):s243-s244.
- [29] HARRISON R M, DEACON A R, JONES M R, et al. Sources and processes affecting concentrations of PM₁₀ and PM_{2.5} particulate matter in Birmingham (U.K.)[J]. Atmos Environ,1997,31(24):4103-4117.
- [30] 白建辉,王庚辰.黑碳气溶胶研究新进展[J].科学与技术工程,2005,5(9):585-591,607.
- [31] PARK Y J, FRAY D J. Recovery of high purity precious metals from printed circuit boards[J]. J Hazard Mater, 2009,164(2/3):1152-1158.
- [32] DERWENT R G, RYALL D B, JENNINGS S G, et al. Black carbon aerosol and carbon monoxide in European regionally polluted air masses at Mace Head, Ireland during 1995-1998[J]. Atmos Environ,2001,35(36):6371-6378.
- [33] PETZOLD A, OGREN J A, FIEBIG M, et al. Recommendations for reporting “black carbon” measurements[J]. Atmos Chem Phys,2013,13(16):8365-8379.
- [34] 中国气象局.霾的观测识别:GB/T 36542—2018[S].北京:中国标准出版社,2018.