

曾晨,朱俊,李季,等.苏州地区黑碳气溶胶分布特征及来源分析[J].海洋气象学报,2023,43(1):87-100.
ZENG Chen, ZHU Jun, LI Ji, et al. Characteristics and sources of black carbon aerosols in Suzhou [J]. Journal of Marine Meteorology, 2023, 43(1): 87-100. DOI:10.19513/j.cnki.issn2096-3599.2023.01.008. (in Chinese)

苏州地区黑碳气溶胶分布特征及来源分析

曾晨¹,朱俊²,李季^{3,4},杨一帆⁵

(1.苏州市气象局,江苏 苏州 215131;2.南京科略环境科技有限责任公司,江苏 南京 210000;3.山东省气象防灾减灾重点实验室,山东 济南 250031;4.山东省气象工程技术中心,山东 济南 250031;5.德国莱布尼兹对流层研究所,萨克森州 莱比锡 04318)

摘要: 基于苏州地区 2018—2021 年黑碳 (black carbon, BC) 质量浓度观测数据,结合黑碳仪模型、浓度权重轨迹分析法 (concentration weighted trajectory, CWT),对苏州地区 BC 分布特征和来源进行了分析。结果表明,2018—2021 年苏州 BC 平均质量浓度为 $1.81 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 且呈逐年下降的趋势,与 2018 年相比,2021 年 BC 年平均质量浓度下降了 43.6%。同时,苏州本地源以化石燃料 (fossil fuel, 简记为“ff”) 燃烧为主,75.5% 的 BC 由化石燃料燃烧产生。在 BC 质量浓度逐年降低的同时,BC_{ff} 占比也呈逐年下降的趋势。在季节变化上,BC 质量浓度冬季最高,夏季最低,BC 和 BC_{ff} 日变化均呈双峰型分布。与气温、降水量相比,相对湿度对 BC 质量浓度影响较小;当 BC 质量浓度小于 $6 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 时,BC 质量浓度随风速增加而减小;同时,BC 质量浓度在各风向上的分布差异并不明显。潜在源分析显示,四季 BC 的潜在源区多集中在西南方向,浙江、安徽、江西等 3 个省份对苏州 BC 影响相对更多。

关键词: 苏州;黑碳;来源解析;质量浓度特征;后向轨迹

中图分类号: X513 文献标志码: A 文章编号: 2096-3599(2023)01-0087-14

DOI:10.19513/j.cnki.issn2096-3599.2023.01.008

Characteristics and sources of black carbon aerosols in Suzhou

ZENG Chen¹, ZHU Jun², LI Ji^{3,4}, YANG Yifan⁵

(1. Suzhou Meteorological Bureau, Suzhou 215131, China; 2. Nanjing Intelligent Environmental Sci-Tech Co., Ltd, Nanjing 210000, China; 3. Key Laboratory for Meteorological Disaster Prevention and Mitigation of Shandong, Jinan 250031, China; 4. Shandong Meteorological Engineering Technology Center, Jinan 250031, China; 5. Leibniz Institute for Tropospheric Research, Leipzig 04318, Germany)

Abstract: Based on continuous observations of black carbon (BC) mass concentration between 2018 and 2021 in Suzhou, and using the Aethalometer model and concentration weighted trajectory (CWT) analysis, this study investigates the distribution characteristics and potential source apportionment of BC in Suzhou. The results show that the mean BC mass concentration in Suzhou is $1.81 \mu\text{g}/\text{m}^3$, and it presents a decreasing trend between 2018 and 2021. Compared to that in 2018, the annual mean mass concentration in 2021 decreases by 43.6%. The analysis indicates that the combustion of fossil fuels (ff) is the largest BC source in Suzhou, 75.5% of BC is derived from BC_{ff}, and the proportion decreases year by year with the decrease of BC mass concentration. Moreover, the maximum and minimum BC mass concentration are shown in winter and summer, respectively, and both the diurnal variations of BC mass

收稿日期:2022-06-20;修订日期:2022-10-10

基金项目:苏州市气象局科研项目 (szkj202004)

第一作者简介:曾晨,女,硕士,助理工程师,主要研究方向为气象观测数据分析,zengchennuist@163.com。

通信作者简介:李季,女,硕士,工程师,主要研究方向为综合气象观测资料应用与分析,ljnk0328@163.com。

concentrations and BC_{ff} present a bimodal distribution. Compared to temperature and precipitation, relative humidity has less influence on BC mass concentrations; when BC mass concentration is smaller than $6 \mu\text{g}/\text{m}^3$, it decreases as the wind speed increases; meanwhile, the distribution of BC mass concentration in different wind directions does not differ greatly. The source apportionment analysis suggests that the potential source areas of BC are mostly concentrated in the southwest direction, and Zhejiang, Anhui, and Jiangxi provinces have larger influence on BC in Suzhou.

Keywords: Suzhou; black carbon; source apportionment; characteristics of mass concentration; backward trajectory

引言

由化石燃料和生物质等不完全燃烧产生的黑碳 (black carbon, BC) 气溶胶是一种黑色吸收类气溶胶^[1]。BC 是仅次于二氧化碳的全球人为增暖因子,对区域气候和辐射强迫有很大影响^[2]。一方面 BC 使大气上层增温,下层降温,造成“穹顶效应”^[3-4],不利于水汽的循环过程和污染物在大气中的扩散;另一方面,BC 一旦被排放进入大气中便会经历老化过程,会进一步改变其光学、辐射特性^[5-7],并且老化后的 BC 可以直接作为云凝结核或者冰核,从而改变云的微物理特性,甚至辐射特性^[8-9]。此外,BC 在 $PM_{2.5}$ 中普遍存在^[10-11],BC 的强吸附性可能会吸附一些有毒物质并随呼吸进入人体^[12],引发多种疾病危害人体健康^[13]。

我国对 BC 污染一直高度重视,且国土辽阔,不同地区的生产生活存在差异,从而导致 BC 污染分布也具有地域特征,因此,研究不同地区 BC 污染分布特征具有重要的意义^[14-15]。研究发现,京津冀地区、长江三角洲(长三角)地区和珠江三角洲(珠三角)地区是我国 BC 污染较严重的地区^[16-17]。目前已有许多学者对上述 3 个地区 BC 的时空演变特征及来源进行了相关分析。肖思晗等^[18] 2015 年在长三角重要城市南京对 BC 进行观测发现,南京 BC 质量浓度季节变化为冬季>秋季>夏季>春季,日变化呈双峰型,质量浓度高值主要出现在 07:00—08:00。谢锋等^[19] 2019 年 1—5 月在南京对 BC 进行观测发现,南京 BC 排放源以机动车排放为主,同时 BC 的波长吸收指数 (absorption Ångström exponent, AAE) 冬春季整体差异不大,春季为 1.32,冬季为 1.30。孙天林等^[20] 研究了珠三角典型城市东莞的 BC 污染特征,发现本地排放、东南海岸和华中地区长距离输送是东莞地区 BC 的污染气团主要

来源,而南海方向来的气流对东莞地区的污染影响较小。关亚楠等^[21] 观测发现,在石家庄南郊 BC 质量浓度日变化仍呈双峰分布,高峰分别为 06:00—09:00 和 19:00—22:00,季节变化也为冬季>秋季>夏季>春季。苏州作为长三角重要城市和工业大城市,黑碳污染情况一直是大众关注的热点。丁铭等^[22] 发现苏州 BC 质量浓度季节变化明显,变化规律与春季秸秆燃烧、秋冬季逆温雾霾等影响因素具有相关性。陈诚等^[23] 对比了南京和苏州 BC 污染情况,发现 2013 年苏州 BC 污染比南京严重且受西北方向污染气团传输影响较大。

综上所述,目前在苏州开展的有关 BC 的观测研究还不够全面,一方面对近年来苏州大力整治环境后 BC 污染变化特征分析较少, $PM_{2.5}$ 下降显著,但 BC 的变化情况并不清晰;另一方面,苏州地区 BC 的排放来源以及潜在源区尚未明晰。因此,基于美国 Magee Scientific 公司生产的 AE (Aethalometer) 31 型黑碳仪 (以下简称“AE31 型黑碳仪”) 观测到的 BC 质量浓度数据,统计分析其年、季节、月、日变化特征,并利用黑碳仪模型分析苏州 BC 的排放源特征,同时结合浓度权重轨迹分析法 (concentration weighted trajectory, CWT) 分析苏州地区 BC 的潜在源区。这将为苏州地区 BC 变化规律及其环境效应提供数据支撑,同时为苏州大气污染治理提供科学理论依据。

1 资料和方法

本研究于 2018 年 1 月 1 日—2021 年 12 月 31 日 (其中 2021 年 10 月数据丢失) 利用 AE31 型黑碳仪对苏州黑碳气溶胶进行观测。采样点位于苏州北部一座办公楼楼顶 (31.38°N , 120.65°E , 距地约 25 m), 如图 1 所示,其周围的污染源以当地的交通和工业污染为主。同时,为方便讨论 BC 质量浓度的季节变化特

征,定义观测期间 3—5 月为春季,6—8 月为夏季,9—11 月为秋季,12 月—次年 2 月为冬季。

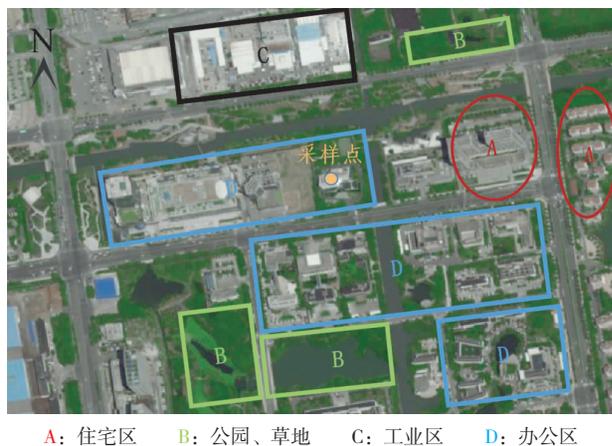


图 1 苏州黑碳气溶胶采样点示意图
Fig.1 Location of sampling site for BC aerosols in Suzhou

AE31 型黑碳仪共有 7 个波长的测量通道,分别是 370、470、525、590、660、880 和 950 nm,此研究将 BC 标准质量浓度设定为 880 nm 处测得的 BC 质量浓度。AE31 型黑碳仪根据朗伯-比尔 (Lambert-Beer) 定律和光学衰减测量方法,通过测定石英滤膜上 BC 对光的衰减量,从而计算出 BC 的质量浓度。该仪器的采样流量为 5.0 L/min,实际观测过程为 4.9 L/min,同时配备了精度为 1 ng/m³ 的 PM_{2.5} 进样切割头。仪器的具体介绍参见文献[24-25]。在数据处理过程中,首先,将原采样频率为 5 min 的数据处理成 1 h 平均值,同时参考 Ran 等[26]的方法进行数据订正;然后,参考肖思涵等[18]的方法剔除明显异常值(与该小时平均值之差的绝对值超过 3 倍标准差),同时保证每小时内可用数据不少于测得数据的 60%;最后,通过处理后的 1 h 平均值得到日平均和月平均值。

采用黑碳仪模型[27]进一步判定化石燃料 (fossil fuel, 简记为“ff”) 燃烧和生物质燃烧 (biomass burning, 简记为“bb”) 对 BC 的贡献,该模型认为,大气环境中的 BC 仅来自于化石燃料燃烧排放的 BC (BC_{ff}) 以及生物质燃烧排放的 BC (BC_{bb}),定义某一波长(λ)下 BC 的吸收如下:

$$b_{\text{abs}}(\text{BC}) = b_{\text{abs}}(\text{BC}_{\text{ff}}) + b_{\text{abs}}(\text{BC}_{\text{bb}}), \quad (1)$$

式(1)中, $b_{\text{abs}}(\text{BC}_{\text{ff}})$ 和 $b_{\text{abs}}(\text{BC}_{\text{bb}})$ 分别为化石燃料燃烧排放 BC 的吸收系数和生物质燃烧排放 BC 的吸收系数。相较于化石燃料燃烧排放 BC 的吸收系

数 $b_{\text{abs}}(\text{BC}_{\text{ff}})$,生物质燃烧排放 BC 的吸收系数 $b_{\text{abs}}(\text{BC}_{\text{bb}})$ 对波长的敏感度更高,对 370 nm 或 470 nm 的短波吸收作用要强于对 880 nm 或 950 nm 的长波吸收作用[27-28]。因此, $b_{\text{abs}} \cdot \lambda$ 与 V_{AAEff} (BC_{ff} 对应的 AAE 值)、 V_{AAEbb} (BC_{bb} 对应的 AAE 值) 的对应关系,以及 BC_{bb} 的贡献率 R_{bb} ,可由公式(2)-(6)得到。其中,AAE 主要是描述 BC 对不同波长光的吸收情况,通常认为 $V_{\text{AAEff}} = 1.0$ [28], $V_{\text{AAEbb}} = 2.0$ [24]。 $\rho(\text{BC})_{\text{bb}}$ 代表生物质燃烧产生的黑碳质量浓度, $\rho(\text{BC})$ 代表黑碳质量浓度,单位为 μg/m³。

$$\frac{b_{\text{abs}}(470)_{\text{ff}}}{b_{\text{abs}}(950)_{\text{ff}}} = \left(\frac{470}{950}\right)^{-V_{\text{AAEff}}}, \quad (2)$$

$$\frac{b_{\text{abs}}(470)_{\text{bb}}}{b_{\text{abs}}(950)_{\text{bb}}} = \left(\frac{470}{950}\right)^{-V_{\text{AAEbb}}}, \quad (3)$$

$$b_{\text{abs}}(470) = b_{\text{abs}}(470)_{\text{ff}} + b_{\text{abs}}(470)_{\text{bb}}, \quad (4)$$

$$b_{\text{abs}}(950) = b_{\text{abs}}(950)_{\text{ff}} + b_{\text{abs}}(950)_{\text{bb}}, \quad (5)$$

$$R_{\text{bb}} = \frac{b_{\text{abs}}(950)_{\text{bb}}}{b_{\text{abs}}(950)} \times 100\% = \frac{\rho(\text{BC})_{\text{bb}}}{\rho(\text{BC})} \times 100\%。 \quad (6)$$

本研究中,观测站点 BC 质量浓度的贡献区域通过运用浓度权重轨迹分析法 (CWT)[29-30] 计算得出。采样点 500 m 高度处气团的 24 h 后向轨迹模拟使用 Wang 等[31] 研发并被广泛应用的 Meteoinfo 软件中的 TrajStat 插件,之后将所有气流轨迹覆盖区间划分为分辨率 0.25°×0.25° 的网格,其中网格 ij 上的平均权重浓度 C_{ij} 由下式计算:

$$C_{ij} = \frac{1}{m} \sum_{k=1}^m C_k \tau_{ijk}, \quad (7)$$

式(7)中, C_{ij} 的单位与输入计算物质的单位一致, m 为气团轨迹总数, k 为气团轨迹, C_k 为轨迹 k 经过网格 ij 时对应的要素值, τ_{ijk} 为轨迹 k 在网格 ij 停留的时间,单位为 h[32]。作为一种条件概率函数,当各网格内气流滞留时间较短时(即经过受点区域的所有轨迹端点数 n_{ij} 的值较小),CWT 值的不确定性便会增大。综上所述,需引入经验权重函数 ($W(n_{ij})$),从而对其进行区间化赋权和降误差处理[33-34],权重函数 $W(n_{ij})$ 定义为:

$$W(n_{ij}) = \begin{cases} 1.0, & 120 < n_{ij} \\ 0.8, & 40 < n_{ij} \leq 120 \\ 0.4, & 20 < n_{ij} \leq 40 \\ 0.2, & n_{ij} \leq 20 \end{cases}。 \quad (8)$$

依此,通过对 C_{ij} 再进行加权计算,从而获得网格 ij 上的加权浓度权重轨迹 WC_{ij} ,其单位与 C_{ij} 单位一致:

$$WC_{ij} = C_{ij} \times W(n_{ij}). \quad (9)$$

2 结果与讨论

2.1 苏州 BC 质量浓度特征

2018—2021年苏州 BC 年平均质量浓度分别为 2.34、2.01、1.57、1.32 $\mu\text{g}/\text{m}^3$, 4 a 平均质量浓度为 1.81 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 。对比发现,BC 年平均质量浓度逐年降低,平均每年下降 0.35 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 。与前一年相比,2019—2021年 BC 年平均质量浓度每年分别下降 14.1%、21.9%、15.9%;与丁铭等^[22]2012年观测得到的 BC 年平均质量浓度 3.3 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 相比,2021年 BC 质量浓度下降 60.0%。

表 1 为 2018—2021年苏州 BC 季节平均质量浓度,4 a 的季节平均质量浓度分别为冬季 (2.33 $\mu\text{g}/\text{m}^3$) > 春季 (1.81 $\mu\text{g}/\text{m}^3$) > 秋季 (1.77 $\mu\text{g}/\text{m}^3$) > 夏季 (1.35 $\mu\text{g}/\text{m}^3$), BC 质量浓度冬季高、夏季低的情况与多地观测到的结果一致,魏夏潞等^[35]给予了解释。即冬季温度低,机动车燃率降低,尾气排放增加,同时边界层稳定,垂直扩散减弱,导致 BC 质量浓度较高;夏季气温高,大气湍流利于 BC 扩散,同时夏季降水量大,BC 易通过湿沉降被清除,因此夏季 BC 质量浓度低。除了 2021年 BC 秋季平均质量浓度略高于春季,其余年份结论与 4 a 平均结果一致。同时,2018—2021年 BC 季节平均质量浓度基本呈现逐年降低的趋势(2019年夏季除外),四季平均质量浓度分别下降 44.4%、27.8%、42.5%、50.9%。BC 年平均质量浓度、季节平均质量浓度下降明显,这表明近年来苏州市黑碳污染减轻显著,尤其是冬季,减轻最为明显。

表 1 2018—2021年苏州 BC 季节平均质量浓度

季节	不同年份平均质量浓度			
	2018	2019	2020	2021
春季	2.34	2.07	1.53	1.30
夏季	1.44	1.52	1.38	1.04
秋季	2.33	1.94	1.45	1.34
冬季	3.26	2.51	1.93	1.60

由 2018—2021年 BC 平均质量浓度月变化情况(图 2)来看,BC 月平均质量浓度随月份先下降后上

升,7、8月处于谷值,1、12月达到峰值。这与表 1 中 BC 污染夏季最轻、冬季最重的结论一致。对比各年份之间 BC 月平均质量浓度发现,大多月份 BC 质量浓度呈逐年下降的趋势,但也有些月份例外。如 2020年的 2、3月 BC 质量浓度与 2019年相比降幅明显,同时低于 2021年,这可能与新冠肺炎疫情爆发后采取的防控措施有关,2020年 1月 24日苏州市发布疫情防控一级响应,直到 2020年 3月 19日苏州开始陆续复工复产。此外,与同年 1、12月相比,2月 BC 质量浓度降低显著,到了 3月 BC 质量浓度又有所上升(2018年除外),这可能是由于 2月为农历春节时期,员工放假、企业停工、出行车辆大幅减少,污染排放减少,BC 质量浓度下降^[23]。

对比 2018—2021年四季 BC 质量浓度日变化(图 3)发现,四季 BC 质量浓度的日变化基本呈双峰型分布且峰值集中在 05:00—09:00、17:00—21:00。BC 质量浓度谷值集中在 12:00—15:00。BC 质量浓度第 1次峰值的出现可能主要与太阳辐射、大气层结条件及动力条件变化等密切相关,第 2次峰值主要与人为活动(交通尾气排放、生活用火等)相关。日出后人为活动增加,黑碳气溶胶质量浓度增加,特别是在交通早高峰期,大量黑碳气溶胶随着机动车尾气被排放到大气中。同时,清晨容易出现大气逆温,逆温层限制了黑碳气溶胶的垂直扩散,也会导致黑碳质量浓度升高,因此,05:00—09:00 出现第 1次峰值。之后随着太阳短波辐射增强,近地层湍流运动加强,对流边界层发展,垂直扩散能力增强,黑碳气溶胶质量浓度逐渐下降,12:00—15:00 达到谷值。17:00 之后由于晚高峰期以及居民烹饪导致 BC 排放增加,在地面堆积,使其质量浓度再次达到峰值。入夜后,人为活动减少,黑碳排放随之减少,质量浓度略有降低。同时,秋季黑碳质量浓度日变化最大,尤其是 2018年,达到 1.149 $\mu\text{g}/\text{m}^3$,其次是冬季,夏季日变化幅度最小,这主要是由各季节间气温、大气扩散能力、清除能力、边界层高度不同导致的^[36]。此外,夏季的第一个峰值略早于其他季节,冬季的第一个峰值略晚于其他季节(2018年除外)。一方面,因为夏季温度高、湍流活动发展较早,冬季温度低,湍流活动发展晚,大气层结比其他季节更为稳定;另一方面,这可能与人类活动习惯相关,夏季日出早,开始活动的时间也相应提前,而冬季日出晚,开始活动时间相应延迟^[34]。

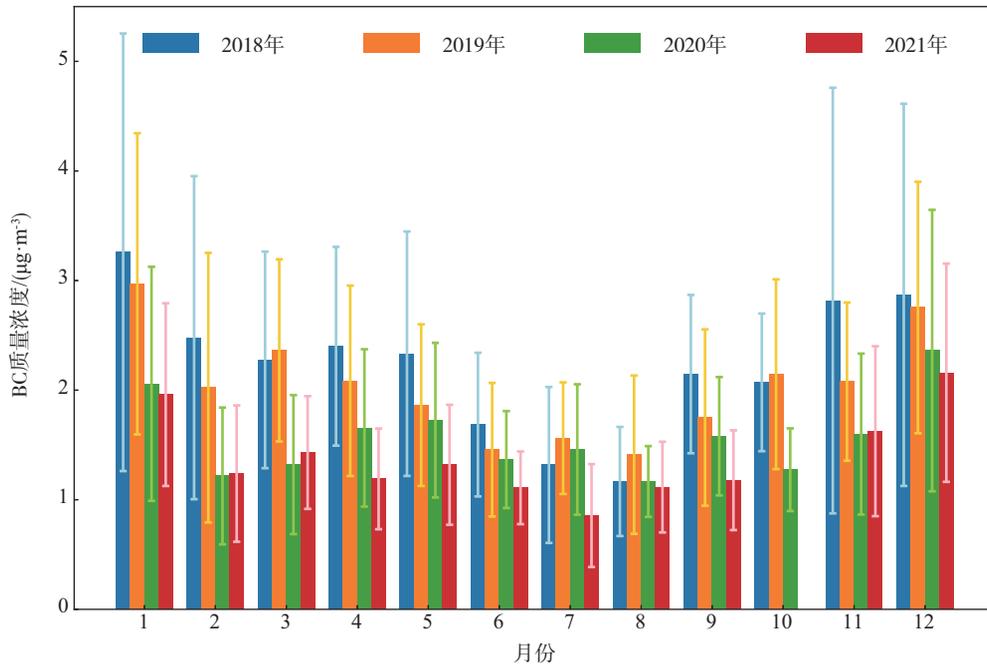


图 2 2018—2021 年 BC 平均质量浓度月变化情况 (误差棒为标准差值)
 Fig.2 Monthly variation of mean BC mass concentration from 2018 to 2021
 (the error bar represents standard deviation value)

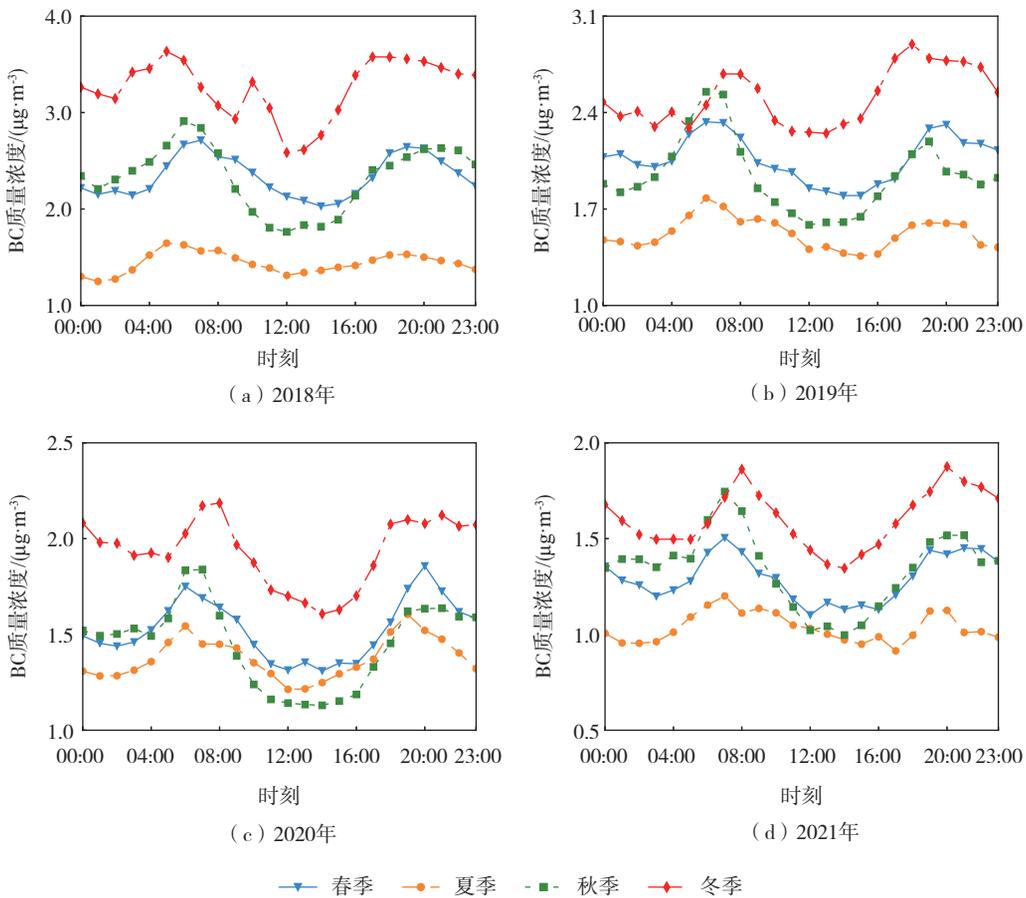


图 3 2018—2021 年四季 BC 质量浓度日变化情况
 Fig.3 Diurnal variation of BC mass concentration in different seasons from 2018 to 2021

为了解苏州 BC 污染程度,进一步对比近年来苏州与我国其他地区 BC 平均质量浓度(表 2)发现,苏州 BC 质量浓度值低于京津冀地区^[21,37-38]、华中地区^[39-40]、珠三角地区的城区^[41]以及同为长三角地区的南京^[19],略高于北京^[37]、深圳的郊区^[41]、淮南农村地区^[35]。由此可见,虽然苏州 BC 污染较其他城市较轻,但仍不可忽视。

2.2 气象要素对 BC 质量浓度的影响

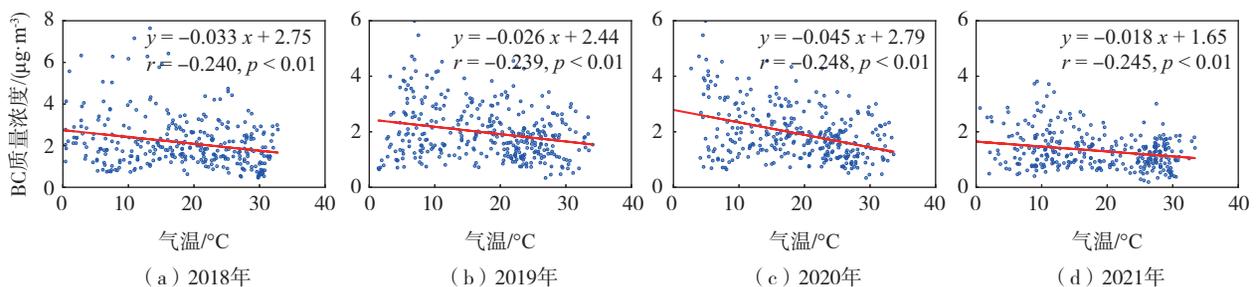
统计 2018—2021 年苏州地区日平均温度、降水量、相对湿度和风向风速小时平均数据,得到 BC 质量浓度与各气象要素直接的相关性。图 4 是 BC 日平均质量浓度与气温、降水量、相对湿度对应的散点图及其拟合结果,其中 2018—2021 年的样本量分别为 332、348、323 和 319,线性拟合公式为 $y = ax + b$, r 为相关系数, p 为显著性水平。根据散点分布情况,

3 种气象要素与 BC 质量浓度的散点图没有明显某类函数的分布特征。于是,以 2021 年温度与 BC 质量浓度的相关性为例,对比了线性拟合与非线性拟合结果。其中,线性拟合下相关系数为 -0.245 ,非线性拟合时为 -0.180 。降水量与相对湿度存在同样的结论。基于此,选取线性拟合方式,同时其相关性通过皮尔逊(Pearson)相关系数计算方法得到。由图 4 可以看出,BC 质量浓度与气温、降水量存在负相关关系,与相对湿度不存在相关关系。同时,BC 质量浓度与气温的相关性,高于 BC 质量浓度与降水量的相关性。通常,降水能一定程度上清除大气中的气溶胶,这里 BC 和降水量没有显著负相关关系可能是因为苏州的降水多为小雨,2018—2021 年苏州地区降水量达到中雨及以上的日数仅占全年的 11.5%(4 a 平均值),因此对 BC 的湿清除不明显。

表 2 苏州与我国其他城市 BC 质量浓度比较

Table 2 Comparison of BC mass concentration in Suzhou and other cities of China

地点	采样点环境	采样日期	平均质量浓度/ ($\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$)	观测仪器型号
北京 ^[37]	城区	2019-01—2019-12	2.27±1.67	AE33
	城区路边		3.35±2.13	
	外环路边		3.57±2.40	
	郊区		1.58±1.15	
平顶山 ^[39]	农村	2018-02-12—2018-08-08	3.51±2.29	AE33
石家庄 ^[21]	郊区	2018-09—2019-07	4.35±3.59	BC1054
天津 ^[38]	城区	2010-09—2013-08	4.49±3.26	AE31
淮南 ^[36]	农村	2015-11—2018-11	2016 年:2.84	AE33
			2017 年:2.10	
			2018 年:1.31	
南京 ^[19]	城区	2019-01—2019-05	3.80±2.30	AE33
武汉 ^[40]	城区	2008-01—2018-12	6.93±4.09	AE31
深圳 ^[41]	城区	2014-01-01—2015-06-30	2.58±2.00	AE31
	郊区		1.12±0.90	
广州 ^[41]	城区	2015-10-01—2016-05-31	2.91±2.28	AE33
苏州	城区	2018-01—2021-12	1.81	AE31



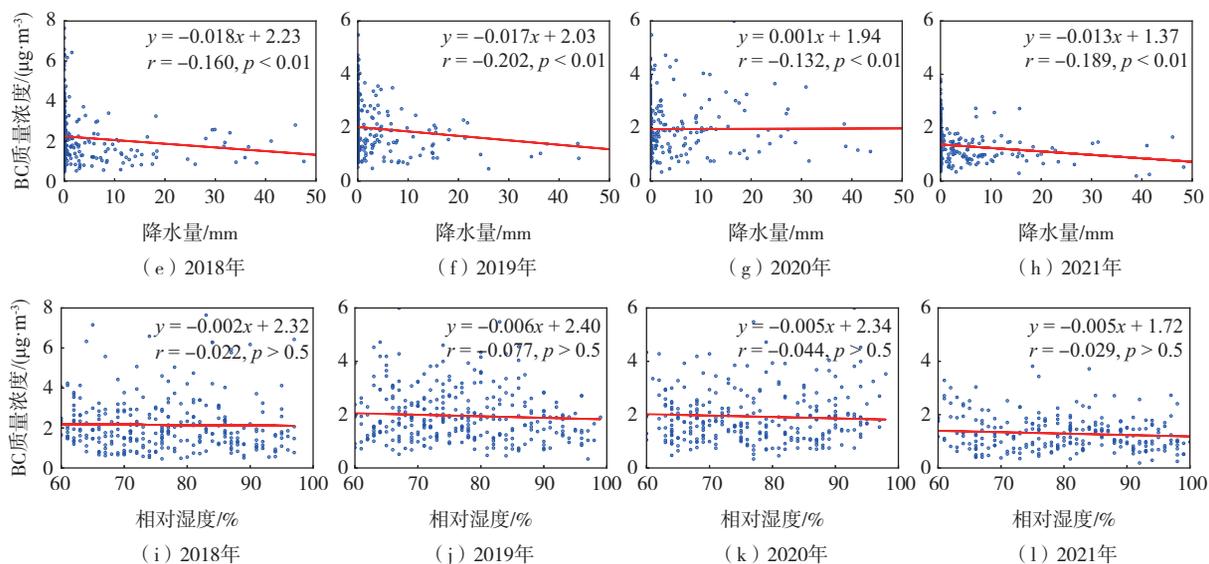


图4 2018—2021年气温、降水量、相对湿度与BC质量浓度的相关关系

Fig.4 Correlation between BC mass concentration and temperature, precipitation, relative humidity from 2018 to 2021

由2018—2021年BC质量浓度及气温、相对湿度、降水量的月变化情况(图5)可知,苏州地区月平均温度为5~30℃,月平均降水量为0~20mm,月平均相对湿度为60%~80%。与图4相关性结果一致,BC质量浓度的月变化趋势与气温、降水量相反,而其随相对湿度的变化趋势并不明显。

风向风速是影响黑碳气溶胶在大气中扩散的一个重要条件,图6为BC质量浓度频率与风速的关系。对比发现,BC质量浓度频率随质量浓度升高而降低,呈单峰分布,BC质量浓度集中在0~3 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 。同时,随着年份增加,高质量浓度BC的频率显著降低,这也验证了BC污染情况逐年转好。此外,当BC质量浓度小于6 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 时,BC质量浓度随风速增加而减小显著,这与风速越大污染物扩散越快的认知一致;而当BC质量浓度超过6 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 后,存在BC质量浓度增加同时风速略微增加的情况,这可能是其他地区的污染气团输送导致苏州BC质量浓度升高。统计发现此时的风向以西南风为主,质量浓度升高是受来自西南方向的污染气团输送过程影响,这也与2.3节中得出的苏州BC潜在源区集中在西南方向的结论一致。由风向与BC质量浓度的关系(图7)可以看出,与图6中BC质量浓度频率相对应,各风向上BC质量浓度大多小于3 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 。对比发现,BC质量浓度在各风向上的分布差异并不明显,未出现在某一风向上的集中污染。

2.3 苏州BC排放来源

BC主要源自含碳物质的不完全燃烧,通过黑碳质量浓度日变化可知苏州黑碳来源与人为活动息息相关,主要以化石燃料燃烧(燃煤、汽车尾气排放等)和生物质燃烧(秸秆、木炭、树叶等焚烧)为主,将由化石燃料燃烧和生物质燃烧产生的黑碳分别定义为 BC_{ff} 和 BC_{bb} 。图8为2018—2021年 BC_{ff} 、 BC_{bb} 、AAE及 R_{bb} 的月变化情况。2018—2021年 BC_{ff} 年平均质量浓度分别为1.78、1.52、1.19、1.00 $\mu\text{g}/\text{m}^3$, BC_{bb} 年平均质量浓度分别为0.56、0.49、0.38、0.32 $\mu\text{g}/\text{m}^3$, BC_{ff} 、 BC_{bb} 年平均质量浓度均呈下降趋势,与前一年相比,2019—2021年 BC_{ff} 分别下降14.6%、21.7%、16.0%, BC_{bb} 分别下降12.5%、22.4%、15.8%。同时,与BC月变化规律一致, BC_{ff} 和 BC_{bb} 质量浓度冬季最高、夏季最低,且多数月份 BC_{ff} 、 BC_{bb} 质量浓度呈现逐年降低的趋势。2018—2021年AAE年平均值分别为1.06、1.08、1.08及1.09,一方面AAE值接近1,说明苏州BC多由化石燃料燃烧产生,另一方面与前一年相比,2019—2021年AAE分别增加1.9%、0%、0.9%,即AAE的4a变化不明显。2018—2021年 R_{bb} 年平均值分别为24.3%、24.5%、24.6%和24.7%, R_{bb} 逐年上升且与前一年相比,2019—2021年 R_{bb} 分别增加0.8%、0.4%、0.4%,与AAE一样, R_{bb} 在4a中略有增长,但涨幅不大。AAE、 R_{bb} 的月变化规律均与 BC_{ff} 、 BC_{bb} 一致,即随着月份增大先下降后上升,冬季AAE、 R_{bb} 的平均值约是夏季的1.16倍。不同年份之间AAE、 R_{bb} 的月变化差异并不明显。

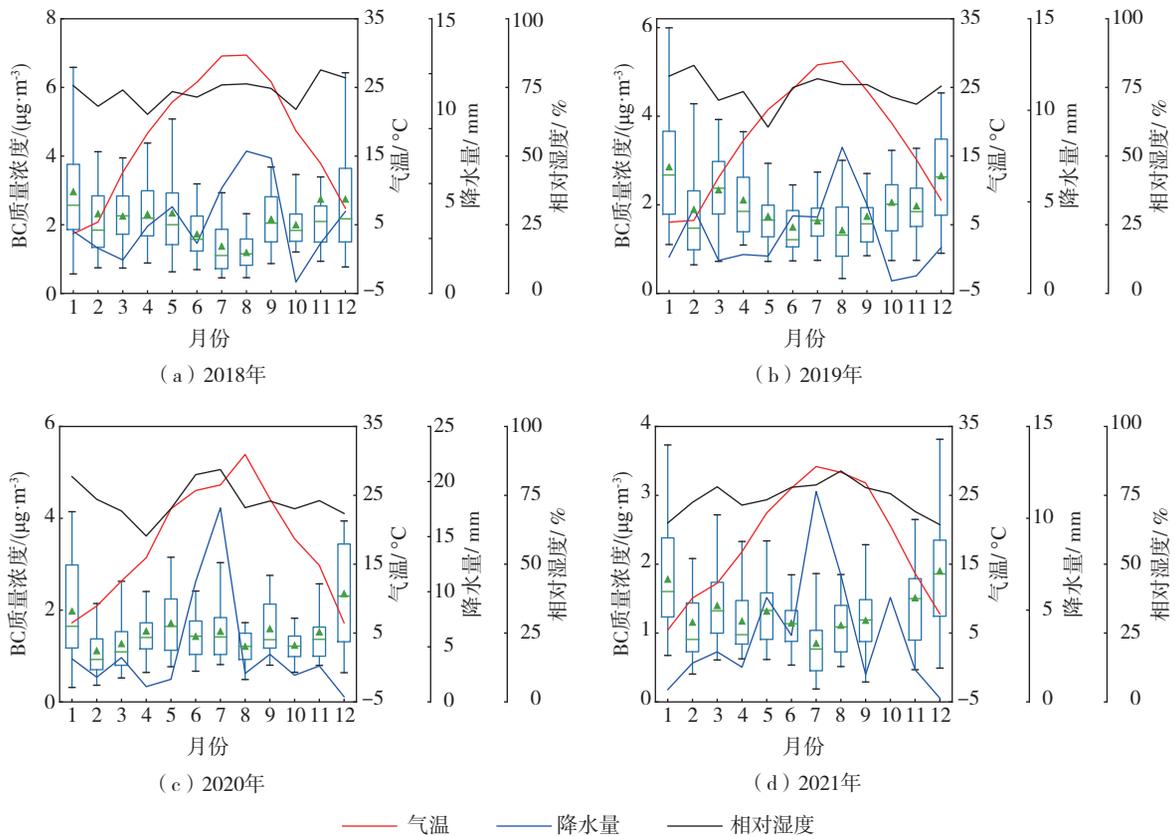


图5 2018—2021年BC质量浓度及气温、相对湿度、降水量月变化情况(BC质量浓度的箱线图触须顶部和底部、箱体顶部和底部及箱体中间绿色横线分别为95%和5%分位数、75%和25%分位数及中位数,绿色三角形为平均值)

Fig.5 Monthly variation of BC mass concentration, temperature, relative humidity, and precipitation from 2018 to 2021 (the whiskers above and below each box represent the 95th and 5th percentiles, respectively; the upper and lower boundaries of the box represent the 75th and the 25th percentiles, respectively; the green lines inside the box indicate median values; the green triangles represent mean values)

总体而言,2018—2021年 BC_{ff} 质量浓度逐年降低的同时,AAE、 R_{bb} 逐年上升,结合观测点的位置特征,说明苏州由燃煤、燃油等导致的污染逐年减轻,这也得益于近年来苏州重视黑碳污染治理及电车使用率增加。

BC_{ff} 、 BC_{bb} 四季质量浓度日变化(图9a-d)与BC质量浓度日变化规律一致,呈双峰分布,秋季质量浓度日变化最大,夏季变化最小,相较于 BC_{bb} , BC_{ff} 表现出更为显著的日变化特征。除夏季 BC_{ff} 第一个峰值出现在05:00—07:00,其他季节出现在06:00—08:00,第二个峰值则均出现在18:00—20:00,这与苏州早晚高峰时间一致。同时, BC_{bb} 质量浓度变化受早晚高峰的影响明显小于 BC_{ff} 。

前文提到,生物质燃烧产生的BC占比较高时,AAE接近2,而化石燃料燃烧产生的BC占比较高时,

AAE值会接近1^[24,28],苏州地区AAE这4a平均值为1.08,四季AAE平均值分别为1.08、1.00、1.09、1.16,进一步证实苏州BC主要源于化石燃料的燃烧。AAE值冬季最高(图9h)、夏季最低(图9f),与曹夏等^[42]在西安、孙天林等^[20]在东莞、王璐等^[43]在成都的研究结果一致,这可能与冬季居民取暖、生物质燃烧增加有关。同时,春、夏、秋三季AAE日变化呈现先下降后曲折上升再下降的趋势(图9e-g),2个拐点也与 BC_{ff} 峰值的时间接近,进一步证实 BC_{ff} 占比越高,AAE值越小,越接近1。冬季AAE日变化趋势没有其他3个季节明显,这是由于冬季大气层结稳定,垂直扩散弱, BC_{ff} 、 BC_{bb} 日变化均不明显。

R_{bb} 为 BC_{bb} 占BC总质量浓度的比例,如公式(6)所示。2018—2021年苏州地区 R_{bb} 平均值为24.5%,即苏州24.5%的BC由生物质燃烧产生,75.5%的BC由

化石燃料燃烧产生。四季 R_{bb} 平均值分别为 24.6%、23.6%、24.8%、25.6%，即 R_{bb} 冬季最高，夏季最低。同

时， R_{bb} 日变化规律(图 9i-1) 与 AAE 一致，进一步验证了早晚高峰时间 BC_{ff} 浓度升高，占比增加。

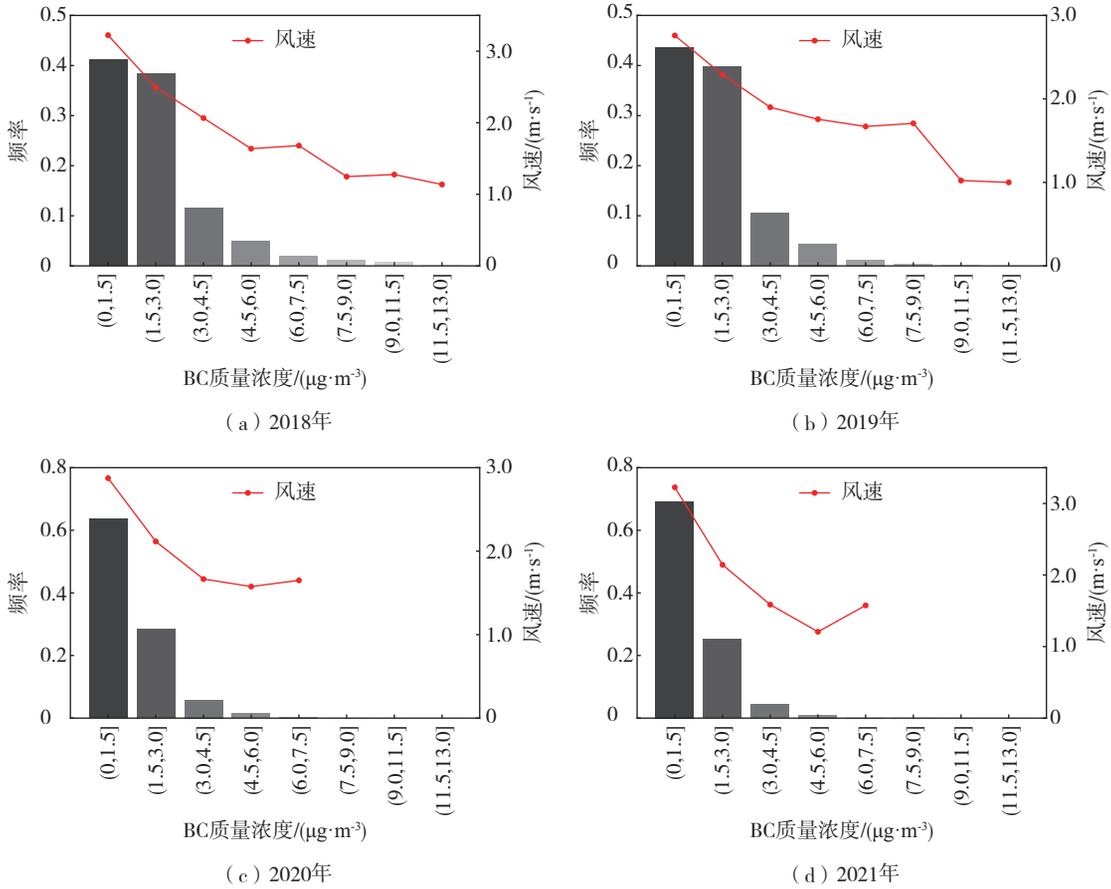
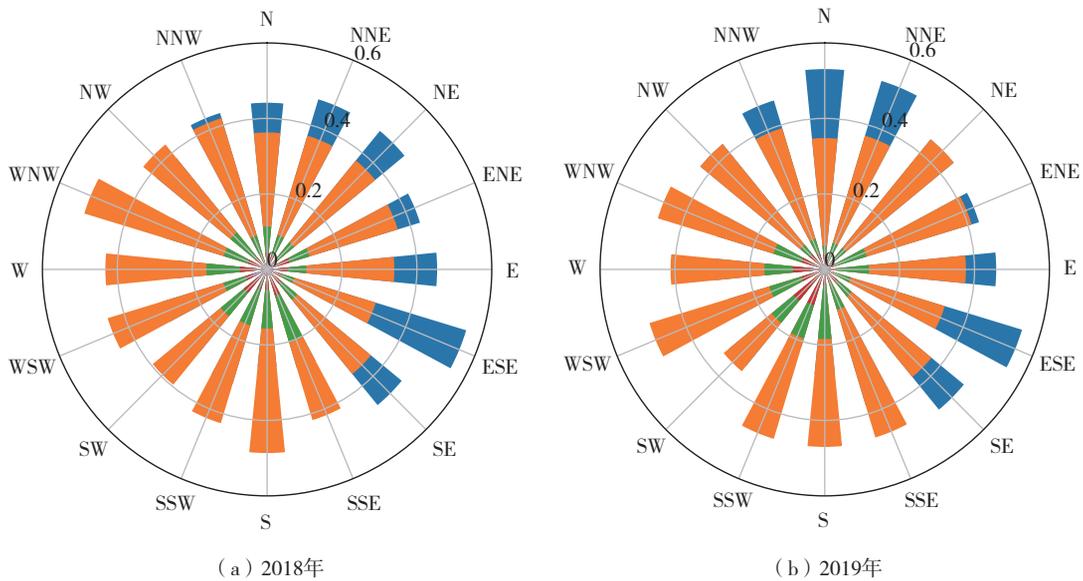


图 6 2018—2021 年 BC 质量浓度频率和风速的关系

Fig.6 Relationship between BC mass concentration and wind speed from 2018 to 2021



(a) 2018年

(b) 2019年

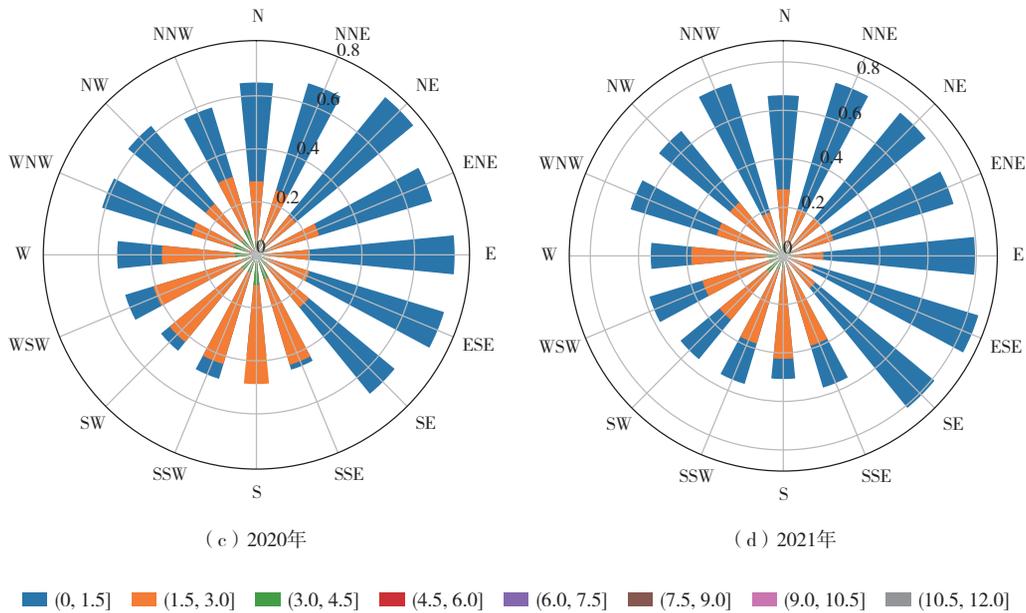


图7 2018—2021年BC质量浓度与风向的关系

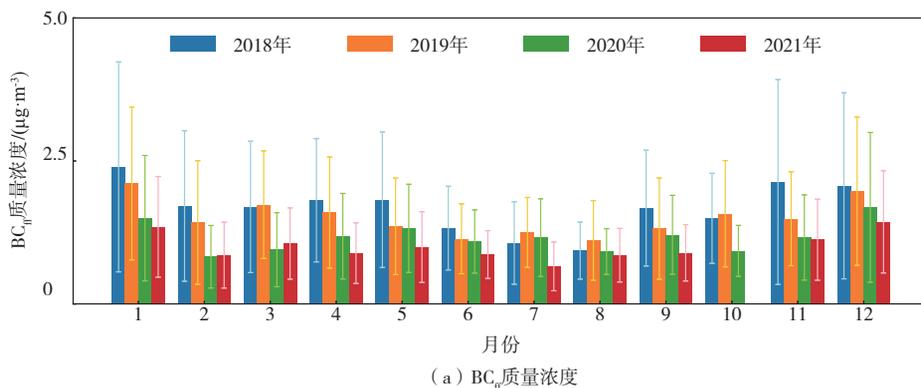
Fig.7 Relationship between BC mass concentration and wind direction from 2018 to 2021

除了本地源排放的影响,其他地区的气流输送也是影响苏州BC质量浓度变化的重要因素。因此,利用浓度权重轨迹分析法(CWT)分析了2018—2021年不同季节影响苏州BC质量浓度变化的可能潜在源区及其贡献。春季(图10a),BC的潜在源区集中在西南方向的浙江西部、安徽南部、江西中部、广东北部等区域,西北方向的东海上区域及西北方向的安徽西北部区域;夏季(图10b),CWT较大值集中在江苏北面的山东东北部、湖南东南部等区域;秋季(图10c),BC潜在源区同样主要集中在西南方向,主要是浙江北部和中部以及江西中部、东部部分区域;冬季(图10d),除海上部分气流外,CWT较大值仍集中在西南方向,浙江西北部、江西北部、安徽东南部等区域,此外,江苏中部及东南区域也是冬季苏州BC的潜在源

区。总得来说,四季BC的潜在源区多集中在西南方向,浙江、安徽、江西这3个省份对苏州BC影响相对更多。

3 结论

(1)苏州2018—2021年BC年平均质量浓度分别为2.34、2.01、1.57、1.32 $\mu\text{g}/\text{m}^3$,4a平均质量浓度为1.81 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 。4a的季节平均质量浓度分别为冬季(2.33 $\mu\text{g}/\text{m}^3$) > 春季(1.81 $\mu\text{g}/\text{m}^3$) > 秋季(1.77 $\mu\text{g}/\text{m}^3$) > 夏季(1.35 $\mu\text{g}/\text{m}^3$)。2018—2021年BC年平均质量浓度呈逐年下降的趋势,与2018年相比,2021年黑碳年平均质量浓度下降43.6%;与丁铭等^[19]2012年观测得到的BC年平均质量浓度3.3 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 相比,2021年BC质量浓度下降60.0%;四季平均质量浓度分别下降44.4%、27.8%、42.5%、50.9%。

(a) BC_p质量浓度

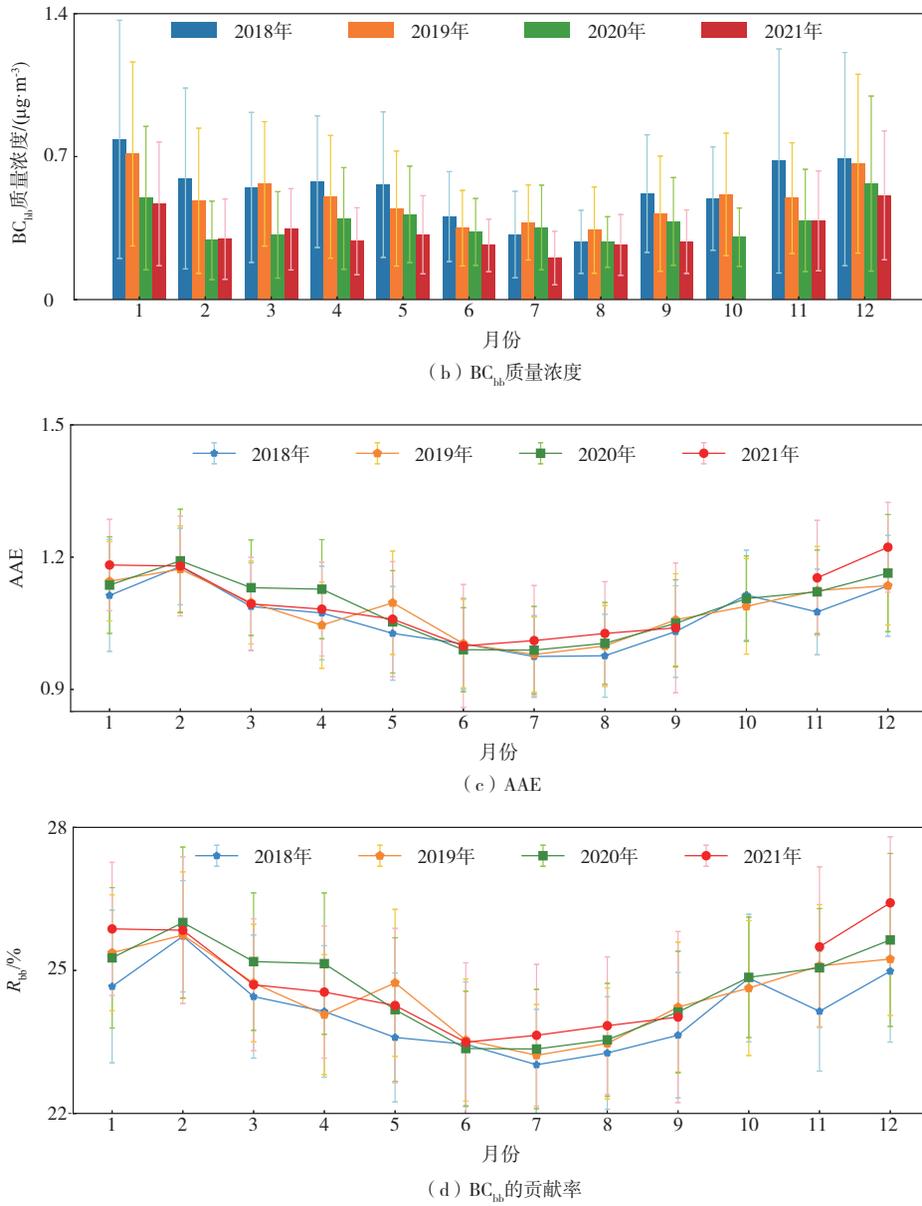
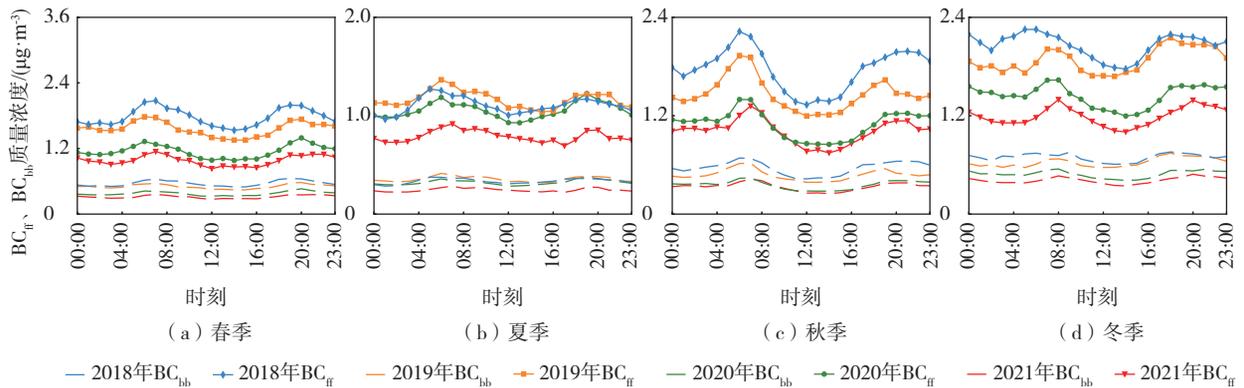


图 8 2018—2021 年 BC_{fr} 质量浓度、 BC_{bb} 质量浓度、AAE 和 R_{bb} 的月变化情况 (其中误差棒为标准差值)

Fig.8 Monthly variation of BC_{fr} mass concentration, BC_{bb} mass concentration, AAE, and R_{bb} from 2018 to 2021 (the error bar represents standard deviation value)



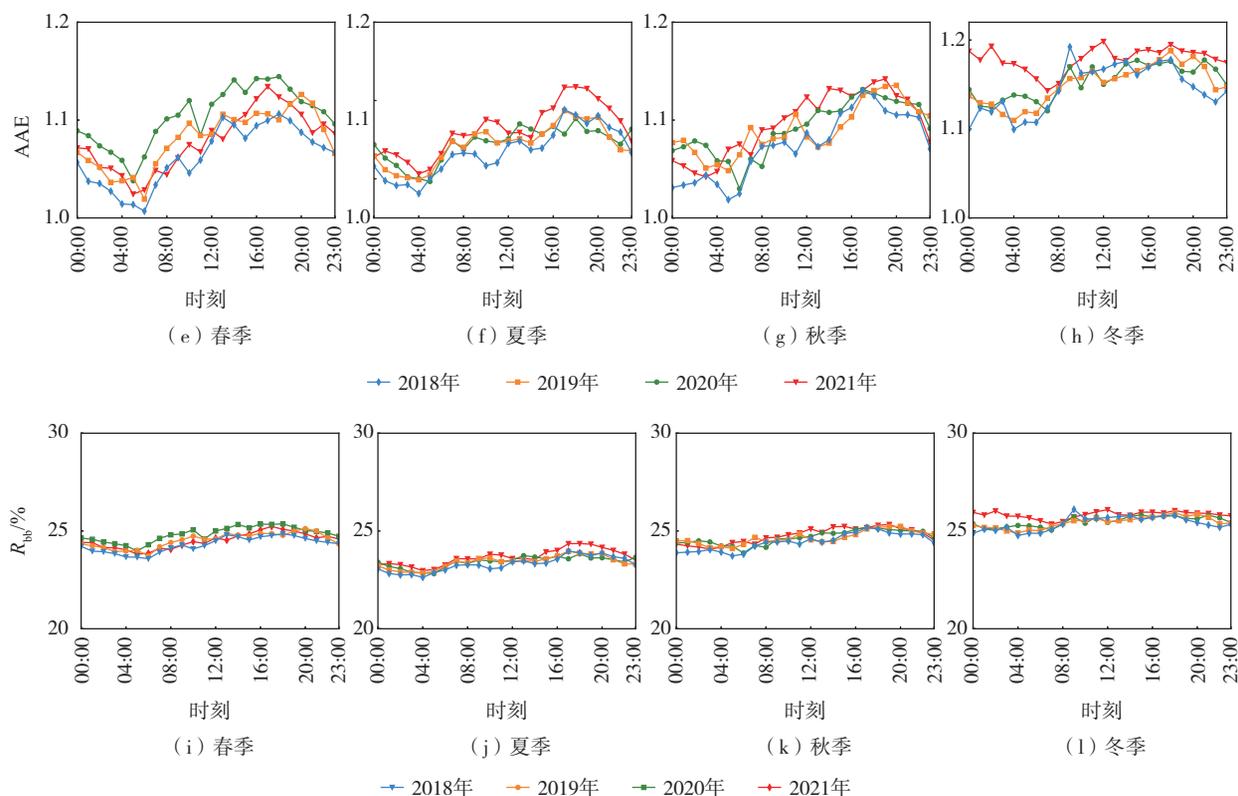


图9 2018—2021年四季BC_{ff}质量浓度、BC_{bb}质量浓度、AAE和R_{bb}日变化情况
 Fig.9 Diurnal variation of BC_{ff} mass concentration, BC_{bb} mass concentration, AAE, and R_{bb} in different seasons from 2018 to 2021

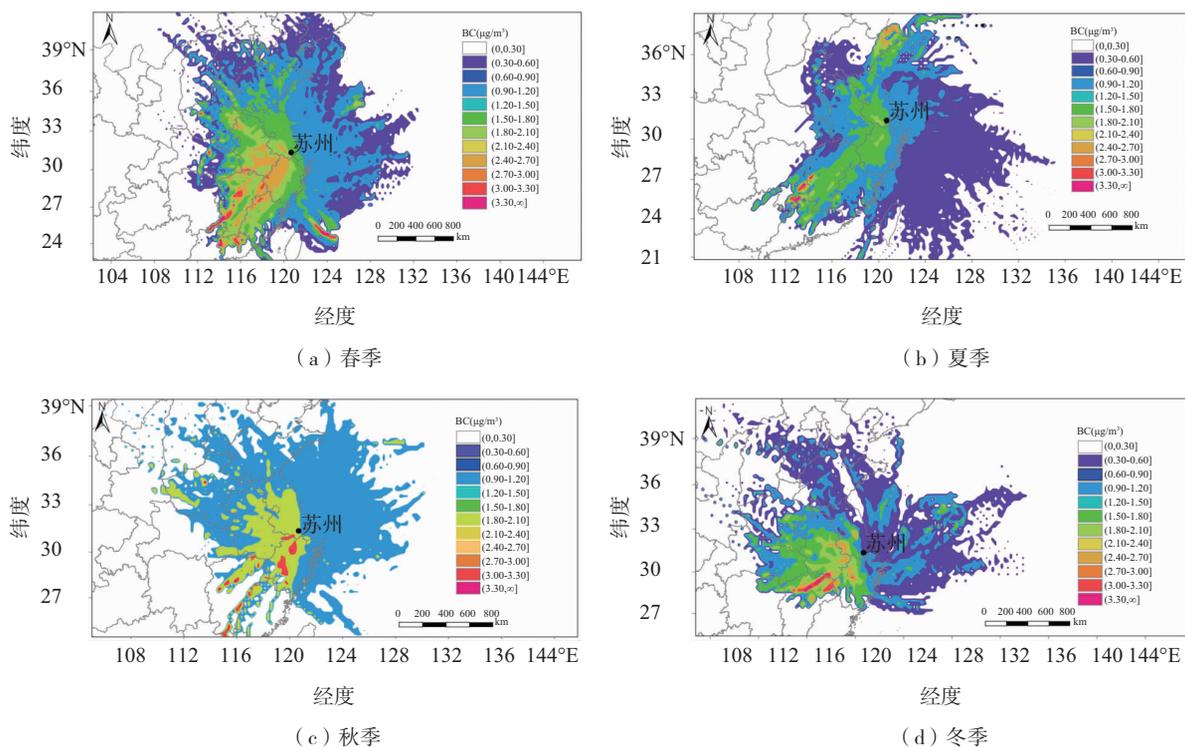


图10 2018—2021年四季BC质量浓度权重轨迹(CWT)分析
 Fig.10 CWT analysis of BC mass concentration in different seasons from 2018 to 2021

(2)苏州BC质量浓度与气温、降水量存在负相关关系,与相对湿度不存在相关关系;同时,BC质量浓度与气温的相关性,高于它与降水量的相关性;当BC质量浓度小于 $6\ \mu\text{g}/\text{m}^3$ 时,风速随BC质量浓度增加而减小显著,而当BC质量浓度超过 $6\ \mu\text{g}/\text{m}^3$ 后,存在风速略微增加的情形。同时,BC质量浓度在各风向上的分布差异并不明显。

(3)2018—2021年 BC_{fr} 年平均质量浓度分别为1.78、1.52、1.19、1.00 $\mu\text{g}/\text{m}^3$, BC_{bb} 年平均质量浓度分别为0.56、0.49、0.38、0.32 $\mu\text{g}/\text{m}^3$,同时 BC_{fr} 和 BC_{bb} 质量浓度冬季最高、夏季最低且多数月份 BC_{fr} 、 BC_{bb} 质量浓度呈现逐年降低的趋势。2018—2021年AAE年平均值分别为1.06、1.08、1.08和1.09, R_{bb} 年平均值分别为24.3%、24.5%、24.6%和24.7%,AAE、 R_{bb} 的月变化规律均与 BC_{fr} 、 BC_{bb} 一致,不同年份之间AAE、 R_{bb} 的月分布差异并不明显。

(4)苏州BC潜在源区在不同年份、不同季节均存在差异。综合4a的结果来看,春季,BC的潜在源区集中在西南方向的浙江西部、安徽南部、江西中部、广东北部等区域,西北方向的东海海上区域及西北方向的安徽西北部区域;夏季,CWT较大值集中在江苏北面的山东东北部、湖南东南部等区域;秋季,BC潜在源区同样集中在西南方向,主要是浙江北部和中部以及江西中部、东部部分区域;冬季,除海上部分气流外,CWT较大值仍集中在西南方向,浙江西北部、江西北部、安徽东南部等区域,此外,江苏中部及东南区域也是冬季苏州BC的潜在源区。

参考文献:

- [1] KUHNBUSCH T A J. Black carbon and the carbon cycle [J]. *Science*, 1998, 280(5371): 1903-1904.
- [2] 董俊玲,张仁健,符淙斌.中国地区气溶胶气候效应研究进展[J].*中国粉体技术*, 2010, 16(1): 1-4.
- [3] DING A J, HUANG X, NIE W, et al. Enhanced haze pollution by black carbon in megacities in China [J]. *Geophys Res Lett*, 2016, 43(6): 2873-2879.
- [4] 黄观,刘伟,刘志红,等.黑碳气溶胶研究概况[J].*灾害学*, 2015, 30(2): 205-214.
- [5] SCHNAITER M, LINKE C, MÖHLER O, et al. Absorption amplification of black carbon internally mixed with secondary organic aerosol [J]. *J Geophys Res: Atmos*, 2005, 110(D19): D19204.
- [6] CAPPAL C D, ONASCH T B, MASSOLI P, et al. Radiative absorption enhancements due to the mixing state of atmospheric black carbon [J]. *Science*, 2012, 337(6098): 1078-1081.
- [7] HE C, LIOU K N, TAKANO Y, et al. Variation of the radiative properties during black carbon aging: theoretical and experimental intercomparison [J]. *Atmos Chem Phys*, 2015, 15(20): 11967-11980.
- [8] KHALIZOV A F, ZHANG R Y, ZHANG D, et al. Formation of highly hygroscopic soot aerosols upon internal mixing with sulfuric acid vapor [J]. *J Geophys Res: Atmos*, 2009, 114(D5): D05208.
- [9] 张华,王志立.黑碳气溶胶气候效应的研究进展[J].*气候变化研究进展*, 2009, 5(6): 311-317.
- [10] 黄善斌,李本轩,王文青.济南 $\text{PM}_{2.5}$ 质量浓度与气象条件相关性初步研究[J].*海洋气象学报*, 2020, 40(1): 90-97.
- [11] 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.
- [12] JACOBSON M Z. Control of fossil-fuel particulate black carbon and organic matter, possibly the most effective method of slowing global warming [J]. *J Geophys Res: Atmos*, 2002, 107(D19): ACH 16-1-ACH 16-22.
- [13] JANSSEN N A H, HOEK G, SIMIC-LAWSON M, et al. Black carbon as an additional indicator of the adverse health effects of airborne particles compared with PM_{10} and $\text{PM}_{2.5}$ [J]. *Environ Health Persp*, 2011, 119(12): 1691-1699.
- [14] ZHANG Q, STREETS D G, CARMICHAEL G R, et al. Asian emissions in 2006 for the NASA INTEX-B mission [J]. *Atmos Chem Phys*, 2009, 9(14): 5131-5153.
- [15] 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.
- [16] TAO J, ZHANG L M, CAO J J, et al. A review of current knowledge concerning $\text{PM}_{2.5}$ chemical composition, aerosol optical properties and their relationships across China [J]. *Atmos Chem Phys*, 2017, 17(15): 9485-9518.
- [17] TIAN P F, CAO X J, ZHANG L, et al. Aerosol vertical distribution and optical properties over China from long-term satellite and ground-based remote sensing [J]. *Atmos Chem Phys*, 2017, 17(4): 2509-2523.
- [18] 肖思晗,于兴娜,朱彬,等.南京北郊黑碳气溶胶的来源解析[J].*环境科学*, 2018, 39(1): 9-17.
- [19] 谢锋,林煜棋,宋文怀,等.南京北郊黑碳气溶胶分布特

- 征及来源[J].环境科学,2020,41(10):4392-4401.
- [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] 关亚楠,卢晶晶,张毅森,等.石家庄南郊黑碳气溶胶污染特征与来源分析[J].环境科学学报,2020,40(9):3146-3154.
- [22] 丁铭,邹强,葛顺,等.苏州市黑碳气溶胶的污染特征分析[J].中国环境监测,2014,30(6):67-71.
- [23] 陈诚,王晨波,秦玮,等.南京市和苏州市大气黑碳气溶胶污染特征比对研究[J].四川环境,2019,38(1):53-59.
- [24] TAN Y, WANG H L, SHI S S, et al. Annual variations of black carbon over the Yangtze River Delta from 2015 to 2018[J]. J Environ Sci,2020,96:72-84.
- [25] 赵德龙,田平,周嵬,等.COVID-19 疫情期间北京市两次重霾污染过程大气污染物演变特征及潜在源区分析[J].环境科学,2021,42(11):5109-5121.
- [26] RAN L, DENG Z Z, WANG P C, et al. Black carbon and wavelength-dependent aerosol absorption in the North China Plain based on two-year aethalometer measurements [J]. Atmos Environ,2016,142:132-144.
- [27] SANDRADEWI J, PRÉVÔT A S H, SZIDAT S, et al. Using aerosol light absorption measurements for the quantitative determination of wood burning and traffic emission contributions to particulate matter [J]. Environ Sci Technol,2008,42(9):3316-3323.
- [28] BECERRIL-VALLE M, COZ E, PRÉVÔT A S H, et al. Characterization of atmospheric black carbon and co-pollutants in urban and rural areas of Spain [J]. Atmos Environ,2017,169:36-53.
- [29] ZHENG H, KONG S F, WU F Q, et al. Intra-regional transport of black carbon between the south edge of the North China Plain and central China during winter haze episodes [J]. Atmos Chem Phys, 2019, 19(7):4499-4516.
- [30] KOMPALLI S K, BABU S S, MOORTHY K K, et al. Aerosol black carbon characteristics over Central India: temporal variation and its dependence on mixed layer height [J]. Atmos Res,2014,147/148:27-37.
- [31] WANG Y Q, ZHANG X Y, DRAXLER R R. TrajStat: GIS-based software that uses various trajectory statistical analysis methods to identify potential sources from long-term air pollution measurement data [J]. Environ Modell Softw,2009,24(8):938-939.
- [32] 赵德龙,王飞,刘丹彤,等.北京市海坨山冬季不同污染过程下气溶胶化学组分及其潜在来源分析[J].环境科学,2022,43(1):46-60.
- [33] OGREN J A, CHARLSONR J. Elemental carbon in the atmosphere: cycle and lifetime [J]. Tellus B: Chem Phys Meteor,1983,35(4):241-254.
- [34] ZENG Y, HOPKE P K. A study of the sources of acid precipitation in Ontario, Canada [J]. Atmos Environ, 1989,23(7):1499-1509.
- [35] 魏夏璐,王成刚,凌新锋,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.
- [36] POLISSAR A V, HOPKE P K, POIROTR L. Atmospheric aerosol over Vermont: chemical composition and sources [J]. Environ Sci Technol,2001,35(23):4604-4621.
- [37] 曹阳,安欣欣,刘保献,等.北京市黑碳气溶胶浓度特征及其主要影响因素[J].环境科学,2021,42(12):5633-5643.
- [38] 姚青,郝天依,蔡子颖,等.天津黑碳气溶胶潜在来源分析与健康风险评估[J].中国环境科学,2020,40(12):5221-5228.
- [39] 张玲,孔少飞,郑煌,等.华北平原南部农村地区黑碳气溶胶浓度及来源 [J]. 环境科学, 2022, 43(5):2363-2372.
- [40] 王红磊,裴宇僊,沈利娟,等.2008~2018年武汉市BC气溶胶时间演变特征及其来源分析[J].地球与环境,2022,50(5):708-720.
- [41] 程丁,吴晟,吴兑,等.广州市城区干湿季黑碳气溶胶污染特征及来源分析[J].环境科学学报,2018,38(6):2223-2232.
- [42] 曹夏,周变红,王锦,等.西安城区黑碳气溶胶的污染特征及来源解析[J].环境化学,2020,39(11):3072-3082.
- [43] 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.