

古钰鑫,朱彬,钱朋.中国东西部典型本底站黑碳气溶胶时空分布及来源分析[J].海洋气象学报,2023,43(3):20-31.
GU Yuxin, ZHU Bin, QIAN Peng. Characteristics of spatial and temporal distribution and source apportionment of black carbon aerosols at typical baseline stations in eastern and western China[J]. Journal of Marine Meteorology, 2023, 43(3): 20-31. DOI: 10.19513/j.cnki.issn2096-3599.2023.03.003. (in Chinese)

中国东西部典型本底站黑碳气溶胶时空分布及来源分析

古钰鑫^{1,2,3}, 朱彬^{1,2,3}, 钱朋^{1,2,3}

(1.南京信息工程大学气象灾害预报预警与评估协同创新中心,江苏南京 210044;2.气象灾害教育部重点实验室,江苏南京 210044;3.南京信息工程大学中国气象局气溶胶与云降水重点开放实验室,江苏南京 210044)

摘要: 基于2007—2018年4个代表性大气本底站(临安、上甸子、龙凤山和瓦里关)的逐小时黑碳(black carbon, BC)观测数据和同期气象资料,开展中国东西部BC时空变化特征分析;利用黑碳仪模型和浓度权重轨迹(concentration weighted trajectory, CWT)分析法对比分析了各站点BC的来源类型和潜在源区。结果表明:(1)中国BC质量浓度分布呈现“东高西低”的特点,各站点BC多年平均质量浓度依次为临安站 $[3\ 553 \pm 2\ 336]\ \text{ng} \cdot \text{m}^{-3}$ 、上甸子站 $[2\ 045 \pm 1\ 918]\ \text{ng} \cdot \text{m}^{-3}$ 、龙凤山站 $[1\ 966 \pm 2\ 104]\ \text{ng} \cdot \text{m}^{-3}$ 、瓦里关站 $[455 \pm 380]\ \text{ng} \cdot \text{m}^{-3}$ 。(2)东西部4个典型本底站点BC质量浓度季节变化和日变化特征不同。东部站点为冬季最高、春秋季节次之、夏季最低,而西部站点表现为春季最高、夏季次之、冬季再次之、秋季最低;东部站点BC质量浓度日变化以“双峰型”分布为主,西部瓦里关站呈“昼高夜低”的高山站特征。研究期内,各站BC呈逐年显著下降的趋势,体现了中国大气污染治理的成效。(3)BC主要来自液态燃料的燃烧(简记为“BC_{liquid}”);受冬季采暖影响,夏季BC_{liquid}大于冬季。(4)受亚洲季风影响,不同季节近地面风场对东西部站点BC质量浓度的影响不同,BC潜在来源也不同。东部站冬季潜在源区多在周边大城市群,高值区范围较大;夏季多来自各站偏南方向。西部瓦里关站夏季潜在源区为四川北部城市群,冬季为中国兰州附近和印度北部。

关键词: 黑碳气溶胶;东西部;大气本底站;来源解析;时空演变

中图分类号: X513 文献标志码: A 文章编号: 2096-3599(2023)03-0020-12

DOI: 10.19513/j.cnki.issn2096-3599.2023.03.003

Characteristics of spatial and temporal distribution and source apportionment of black carbon aerosols at typical baseline stations in eastern and western China

GU Yuxin^{1,2,3}, ZHU Bin^{1,2,3}, QIAN Peng^{1,2,3}

(1. Collaborative Innovation Center on Forecast and Evaluation of Meteorological Disasters, Nanjing University of Information Science & Technology, Nanjing 210044, China; 2. Key Laboratory of Meteorological Disaster, Ministry of Education, Nanjing 210044, China; 3. CMA Key Laboratory for Aerosol-Cloud-Precipitation, Nanjing University of Information Science & Technology, Nanjing 210044, China)

Abstract: Using the hourly black carbon (BC) mass concentration and the meteorological data from 2007

收稿日期:2023-02-21;修回日期:2023-04-30

基金项目:国家自然科学基金项目(42021004);国家重点研发计划项目(2016YFA0602003)

第一作者简介:古钰鑫,女,本科生,主要从事大气物理方向的研究,yuxin_gu09@163.com。

通信作者简介:朱彬,男,博士,教授,主要从事大气化学与大气环境方面的研究,binzhu@nuist.edu.cn。

to 2018 at Lin'an (LA) station, Shangdianzi (SDZ) station, Longfengshan (LFS) station, and Waliguan (Mt. WLG) station, 4 typical baseline stations in China, the characteristics of spatial and temporal variations of BC are evaluated in eastern and western China. Combined with the Aethalometer model and the concentration weighted trajectory (CWT) model, the source types and potential source areas of BC are identified. The results are illustrated below. (1) The BC mass concentrations show large fluctuation, referred to as the "high in the east and low in the west" geographical distribution. The annual mean BC mass concentrations at each site are $(3\,553 \pm 2\,336) \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$ (LA), $(2\,045 \pm 1\,918) \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$ (SDZ), $(1\,966 \pm 2\,104) \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$ (LFS), and $(455 \pm 380) \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$ (Mt. WLG). (2) The seasonal variation of BC mass concentration is characterized differently in the east and west of China. In the east, the BC mass concentration is the highest in winter, followed by autumn and spring, and the summer has the lowest BC mass concentration; while in the west, it shows the seasonal variation of BC in the order of spring>summer>winter>autumn. Meanwhile, the diurnal variation is observed. The eastern stations are dominated by the bimodal pattern, whereas the western station (Mt. WLG) is a high-altitude station with a pattern of "high in the daytime and low at night". During the study period, the BC mass concentrations show a significant decline trend of interannual variation, reflecting the effectiveness of air pollution control in China. (3) The proportion of BC sources is dominated by the burning of liquid fuels ($\text{BC}_{\text{liquid}}$). The proportion of $\text{BC}_{\text{liquid}}$ in summer is higher than that in winter influenced by winter heating. (4) The effect of surface wind fields on BC mass concentrations varies between seasons due to the East Asian monsoon, as well as the potential sources. In winter, the BC in eastern stations mostly comes from the surrounding urban agglomerations with a large scale of high values; in summer, it tends to originate from the southern part of each station. In summer, the high potential source areas of the western station (Mt. WLG) are the northern Sichuan urban agglomerations, while in winter, the BC is mainly from the surrounding areas of Lanzhou in China and northern India.

Keywords: black carbon aerosol; the east and west of China; atmospheric baseline station; source apportionment; spatial-temporal variation

引言

黑碳(black carbon, BC)气溶胶作为大气气溶胶的重要组成部分,主要由含碳物质的不完全燃烧产生^[1]。尽管 BC 在细颗粒物($\text{PM}_{2.5}$)中的占比较小^[2-3],但它具有强吸收性,可占到大气气溶胶总吸收的 90%~95%^[4],对气候变化和全球碳循环起到重要作用^[5-6]。在大气传输过程中,BC 表面可吸附各种二次污染物,为气粒转化和非均相化学反应提供载体,并使颗粒物表面形态发生改变^[7];同时,BC 的排放还增加了细颗粒物的暴露风险,极易诱发呼吸道、心血管疾病,威胁人体健康^[8]。

近年来,国际上对 BC 的研究方兴未艾,多次开展了大型 BC 观测试验,如南半球的 ACE 1 (Aerosol Characterization Experiment) 试验^[9]、亚太地区的 ACE-Asia 计划^[10]等。Koepke^[11]分析了全球 BC 质量浓度的空间分布特征,发现北半球高于南半球、陆地高于海洋。McMeeking 等^[12]观测到欧洲北部、西部城市区域的 BC 质量浓度($300 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$)高于偏远

地区($50 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$),这与城市人口密度、工业活动水平等因素导致的燃烧排放有关。虽然人为源和自然源均为 BC 的主要来源,但在不同区域各来源所占的比例不同。Bond 等^[13]对比了全球各地区不同来源的 BC 质量浓度,发现欧洲和北美地区主要源于交通排放,非洲和东南亚来自生物质燃烧,东亚主要来自生物燃料。

中国作为东亚最主要的国家,人口稠密,经济发展迅速,BC 排放约占全球总排放的四分之一^[14],而 BC 的高排放区主要在中国东部区域^[15]。Xu 等^[16]基于 MERRA-2 地面资料指出,2000—2016 年中国东部地区年平均 BC 地面质量浓度为 $3\,410 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$,由年际变化来看,在 2000—2007 年持续增长,而在 2008—2016 年逐步减少。Jing 等^[17]研究表明长三角地区 BC 质量浓度冬季多高于夏季,有明显的季节变化特征。而不同季节 BC 质量浓度的日变化特征也存在差异^[18],张骁等^[19]发现北京地区秋、冬季 BC 日变化特征表现为与早晚出行高峰有关的“双峰型”分布。同时,Kuchel 等^[20]观测到温度、风速和

相对湿度等要素会对 BC 质量浓度产生较大影响。张宸赫等^[2]在研究北京城区不同季节、气象因素的影响时,发现在盛行风向上,BC 质量浓度与风速、边界层高度(boundary layer height, BLH)呈现负相关性。此外,大气中的一些污染物(例如 PM_{2.5} 和 CO 等)也与 BC 质量浓度存在一定的相关关系^[17]。

以往的研究多是将空间尺度设定为单一城市群,一般集中在长三角^[17,21]、京津冀^[2,19]、珠三角^[22]等东部地区。但是随着西部大开发战略的实施和城市化进程的加快,东西部差距逐渐缩小,且由于大气本底站能够代表典型区域内混合均匀的大气状况,因此对比研究中国东西部大气本底站 BC 的长期变化显得尤为重要。本研究基于 2007—2018 年中国东西部的黑碳观测数据和同期气象资料,选取临安、龙凤山、上甸子和瓦里关 4 个具有区域代表性和长期性的大气本底站作为观测站点,分析 BC 的变化

特征和潜在源区。如此,可为后续因地制宜地制定大气污染防治措施提供有效的观测证据和理论依据,有助于引导低碳技术革新和“双碳”战略实施。

1 数据与方法

1.1 观测站点

根据地理位置和经济发展状况,将中国大陆地区划分成东部和西部。东部地区地势平坦,多以平原、丘陵为主,气候条件好、降水较充足;而西部地势复杂多变,多以高原、荒漠为主,暖湿气流难以抵达,气候干燥。作为大气本底站,浙江临安、北京上甸子、黑龙江龙凤山和青海瓦里关远离工业区和城市,受局地污染源直接影响较小,能够代表其区域内大气成分均匀混合后的平均状况,且上述 4 个站点是中国建立的第一批大气本底监测站,观测资料具有区域代表性和长期性。表 1 为站点的经纬度、海拔、区域等信息。

表 1 大气本底站的站点信息及样本量统计

Table 1 Information of baseline stations in the study and integrality of datasets

| 站点 | 经纬度 | 海拔/m | 区域 | 观测时段 | 有效时长/月 | 数据完整率 |
|--------------|-------------------|---------|----|-----------------|--------|--------|
| 临安(LA) | 30°18'N, 119°44'E | 138.6 | 东部 | 2007-01—2018-12 | 130 | 90.28% |
| 上甸子(SDZ) | 40°39'N, 117°07'E | 293.3 | 东部 | 2009-03—2018-12 | 101 | 70.14% |
| 龙凤山(LFS) | 44°44'N, 127°36'E | 330.5 | 东部 | 2007-02—2017-08 | 122 | 84.72% |
| 瓦里关(Mt. WLG) | 36°17'N, 100°54'E | 3 816.0 | 西部 | 2007-11—2018-12 | 115 | 79.86% |

图 1 标注了各站点的地理位置。临安站位于长三角西南部、杭州主城区西北部约 50 km 处,四周以丘陵、农田为主。上甸子站位于北京东北部的密云区上甸子村,离北京城区约 150 km。龙凤山站位于黑龙江东南部的龙凤山山顶,东、南面为大范围的森林,西北两面为松嫩平原,哈尔滨市位于该站西北方向 175 km 处。瓦里关站作为全球大气本底站,位于欧亚大陆腹地、青藏高原东北部,北离青海湖 40 km,东距西宁约 90 km。

1.2 观测仪器和数据

观测黑碳的仪器使用 Aethalometer AE-31 型黑碳仪(美国 Magee Scientific 公司生产)^[23],该仪器首先让随气流飞行的 BC 粒子撞击并沉积在石英滤带上,再通过测量其引起的光学衰减来推断 BC 的质量浓度。它有 7 个光谱测量通道,分别为 370、470、520、590、660、880 和 950 nm。由于 BC 在 880 nm 具有强吸收性,故本次研究选用 880 nm 通道测量的数据。该仪器全天候运行,每 5 min 记录一次数据,各站点

的稳定采样流量略有差异,变化范围为 2~5 L/min。采样仪器切割头均为 2.5 μm,受采样流量影响,切割粒径略有差异。为保证黑碳仪运行稳定,需定期进行采样流量检验和零位调整。BC 的观测数据按照世界时(UTC)记录,本文已修正为北京时。

所用气象数据源于欧洲中期天气预报中心(European Centre for Medium-Range Weather Forecasts, ECMWF)的第五代再分析气候数据集 ERA5(ECMWF Reanalysis v5, <https://cds.climate.copernicus.eu/>),包括风速、风向和相对湿度(relative humidity, RH)等。时间分辨率为 1 h,水平分辨率为 0.25°×0.25°,数据质量与观测资料对比验证较好^[24-25]。

1.3 黑碳仪模型

根据液体燃料和固体燃料燃烧产生 BC 的光吸收系数不同,可以分辨这两种排放源对 BC 质量浓度的贡献。黑碳仪模型是根据固体燃料的吸收系数对波长 λ 变化更加敏感,选用 370 nm 和 880 nm 两个波长的 BC 测量值计算出吸收系数的 Ångström 指

数(α)和液体燃料的贡献占比(P)^[26],计算公式如下:

$$b_{\text{abs},\lambda}(\text{BC}) = b_{\text{abs},\lambda}(\text{BC}_{\text{liquid}}) + b_{\text{abs},\lambda}(\text{BC}_{\text{solid}}), \quad (1)$$

$$\rho(\text{BC})_{\lambda} = \frac{b_{\text{abs},\lambda}(\text{BC})}{V_{\text{MAC}}(\lambda)}, \quad (2)$$

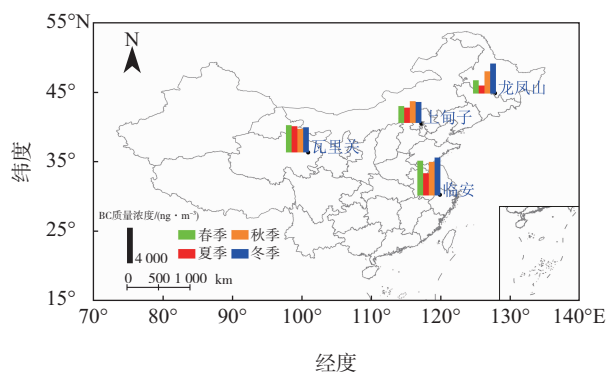
其中: $b_{\text{abs},\lambda}(\text{BC})$ 为波长 λ 下BC的吸收系数, $b_{\text{abs},\lambda}(\text{BC}_{\text{liquid}})$ 和 $b_{\text{abs},\lambda}(\text{BC}_{\text{solid}})$ 分别为波长 λ 下液体燃料和固体燃料燃烧产生BC的吸收系数, $\rho(\text{BC})_{\lambda}$ 为波长 λ 下BC的质量浓度,波长370、880 nm对应的质量吸收截面(mass absorption cross section, MAC)的值 $V_{\text{MAC}}(370 \text{ nm}) = 18.47 \text{ m}^2 \cdot \text{g}^{-1}$, $V_{\text{MAC}}(880 \text{ nm}) = 7.77 \text{ m}^2 \cdot \text{g}^{-1}$,即

$$\frac{b_{\text{abs},370}(\text{BC}_{\text{source}})}{b_{\text{abs},880}(\text{BC}_{\text{source}})} = \left(\frac{370}{880}\right)^{-\alpha_{\text{source}}}, \quad (3)$$

$$P = \frac{\rho(\text{BC})_{880} - \left(\frac{370}{880}\right)^2 \times \left(\frac{18.47}{7.77}\right) \times \rho(\text{BC})_{370}}{\rho(\text{BC})_{880} \times \left(\frac{510}{880}\right)}, \quad (4)$$

$$\approx \frac{\rho(\text{BC})_{880} - 0.42 \times \rho(\text{BC})_{370}}{0.58 \times \rho(\text{BC})_{880}}$$

其中: $b_{\text{abs},370}(\text{BC}_{\text{source}})$ 和 $b_{\text{abs},880}(\text{BC}_{\text{source}})$ 分别为波长370、880 nm下不同来源(液体燃料源和固体燃料源)产生BC的吸收系数, α_{source} 为不同来源产生BC的吸收系数的Ångström指数, $\rho(\text{BC})_{370}$ 和 $\rho(\text{BC})_{880}$ 分别为波长370、880 nm下BC的质量浓度, P 为液体燃料产生的BC质量浓度在BC总质量浓度的占比。



图中瓦里关 BC 质量浓度—实测 BC 质量浓度 $\times 5$ 。

图1 观测的大气本底站位置和2007—2018年四季的BC质量浓度

Fig.1 Location of baseline stations in the study and mean black carbon (BC) mass concentrations in 4 seasons from 2007 to 2018

1.4 后向轨迹模式

利用单质点拉格朗日集成轨迹模型(Hybrid Single-Particle Lagrangian Integrated Trajectory, HYSPLIT-4)后向轨迹模式对各站点每日00:00、06:00、12:00、18:00(UTC)的气团轨迹进行后向72 h模拟,设置距地高度为500 m。使用的气象数据是由美国国家环境预测中心(National Centers for Environmental Prediction, NCEP)提供的全球资料同化系统(Global Data Assimilation System, GDAS)数据,时间分辨率为6 h,水平分辨率为 $1^\circ \times 1^\circ$ 。

1.5 浓度权重轨迹分析

浓度权重轨迹(concentration weighted trajectory, CWT)分析是一种研究污染物潜在源区及其贡献大小的方法,主要通过计算不同轨迹的浓度权重来量化各网格的污染程度^[27]。本次研究设置的网格精度为 $1^\circ \times 1^\circ$,权重浓度 C_{ij} 的计算公式如下:

$$C_{ij} = \frac{\sum_{l=1}^M C_l \tau_{ijl}}{\sum_{l=1}^M \tau_{ijl}}, \quad (5)$$

其中: C_{ij} 为网格(i, j)上的BC平均权重浓度, l 为气团轨迹, M 为气团轨迹总数, C_l 为轨迹 l 经过网格(i, j)时所对应的BC质量浓度, τ_{ijl} 为轨迹 l 在网格(i, j)的停留时间。当网格内的所有轨迹端点数 n_{ij} 较小时,需要引入权重函数 W_{ij} 以减少误差。

$$W_{ij} = \begin{cases} 1.00, & 4n_{\text{ave}} < n_{ij} \\ 0.70, & n_{\text{ave}} < n_{ij} \leq 4n_{\text{ave}} \\ 0.42, & 0.5n_{\text{ave}} < n_{ij} \leq n_{\text{ave}} \\ 0.05, & n_{ij} \leq 0.5n_{\text{ave}} \end{cases}, \quad (6)$$

其中: n_{ij} 为经过网格(i, j)的所有轨迹端点数, n_{ave} 为研究区内平均轨迹端点数。

2 结果与讨论

2.1 黑碳空间分布及季节变化特征

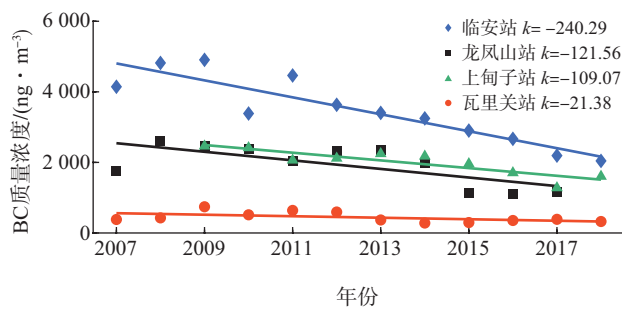
由图1可见,2007—2018年BC质量浓度的空间分布呈现出“东高西低”的特点。BC年均质量浓度的高值区集中在东部和东北地区站点:长三角的临安站 $[(3\ 553 \pm 2\ 336) \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}]$ 、京津冀的上甸子站 $[(2\ 045 \pm 1\ 918) \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}]$ 和黑龙江的龙凤山站 $[(1\ 966 \pm 2\ 104) \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}]$;而低值区则处于西部站点:青海东部的瓦里关站 $[(455 \pm 380) \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}]$,这与中国BC质量浓度的区域分布情况大致相同^[28]。

瓦里关站作为中国唯一的全球大气本底站,其BC质量浓度仍远远高于大多数全球站的背景值(20~70 ng·m⁻³)^[15],这表明即使是偏远地区,也受到了日益加剧的人类活动的影响。因此,中国减少BC排放的必要性不言而喻。

同时,图1中各站点存在明显的季节变化特征。中国东部BC的质量浓度大多在冬季最高,春秋季节次之,夏季显著下降。平均而言,春、夏、秋和冬季BC质量浓度分别为2 434、1 715、2 909和3 333 ng·m⁻³,值得关注的是上甸子站秋季BC质量浓度略高于冬季,可能是因为该站秋季静风频率较高,BC不易扩散稀释。而西部瓦里关站的季节变化特征略有差异,呈现为491 ng·m⁻³(春季)>470 ng·m⁻³(夏季)>451 ng·m⁻³(冬季)>423 ng·m⁻³(秋季)。对比BC质量浓度的季节变化,发现中国东西部夏、冬季差异较大。因此,后文将重点对比夏、冬季的BC质量浓度特征及其来源。

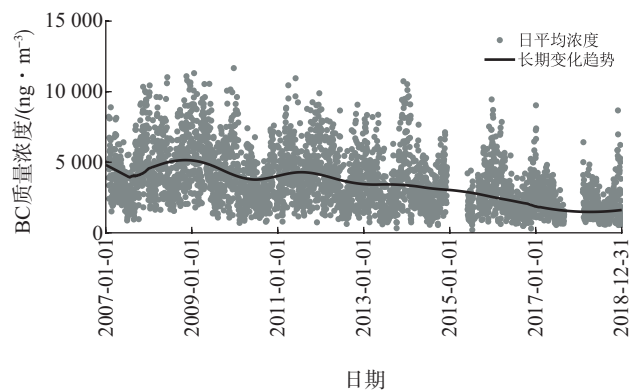
2.2 年际变化及长期趋势

图2a为4个本底站年平均质量浓度的年际变化及趋势,发现东部各站点呈现出较为明显的逐年下降趋势(通过Mann-Kendall趋势检验和Daniel显著性检验,如表2所示)。临安站的BC质量浓度下降幅度最大,每年下降约240 ng·m⁻³,龙凤山站和上甸子站次之。西部瓦里关站因本底质量浓度相对较低,下降趋势不太显著(通过信度为95%的Daniel检验,但未通过信度为95%的Mann-Kendall趋势检验)。由于临安站BC质量浓度最高且变化幅度最大,图2b给出了基于临安站2007—2018年BC质量浓度逐日数据,运用滑动平均滤波法所得的过去12 a长期演变趋势。由图2b可以看出,自2012年起,BC质量浓度呈现较明显的下降趋势,表明近年来,临安周边地区大气污染防治措施成效显著。中国在大力发展经济建设的同时,也没有忽视空气质量的问题,正积极地改善大气环境。



k —斜率,其绝对值为BC质量浓度每年减少的量。

(a) 4个观测站点年际变化



(b) 临安站长期变化趋势

图2 2007—2018年BC质量浓度时间序列

Fig.2 Time series of BC mass concentrations from 2007 to 2018

表2 2007—2018年观测站点BC质量浓度趋势检验

Table 2 Trend test of BC mass concentrations at observation sites from 2007 to 2018

| 检验方法 | 临安站 | 上甸子站 | 龙凤山站 | 瓦里关站 |
|-------------------|------------|------------|-----------|-----------|
| Mann-Kendall 趋势检验 | -3.497 2** | -2.862 2** | -2.335 5* | -1.577 2 |
| Daniel 检验 | -0.902 1** | -0.878 8** | -0.681 8* | -0.587 4* |

注:“**”表示通过99%显著性检验,“*”表示通过95%显著性检验。

2.3 月际变化及日变化特征

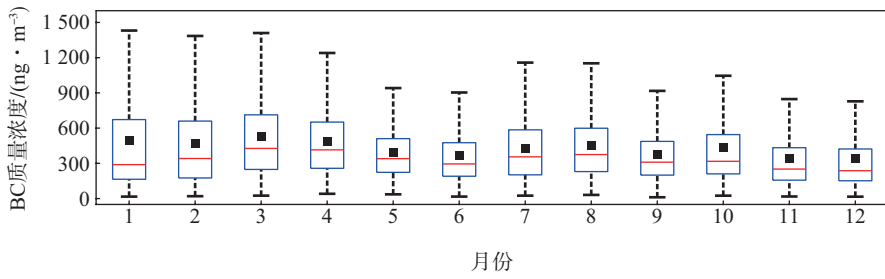
图3显示的是各本底站的月均BC质量浓度箱线图。值得关注的是,东部龙凤山站表现出最为明显的月变化特征,BC月平均质量浓度在1月达到峰值4 160 ng·m⁻³,而在8月达到最低值798 ng·m⁻³。临安站和上甸子站BC分别在12月和10月达到最大质量

浓度4 973 ng·m⁻³和2 819 ng·m⁻³;月均质量浓度最低值均出现在7月,分别达到2 254 ng·m⁻³和1 748 ng·m⁻³。而西部瓦里关站仅发生了轻微的月偏差,谷值出现在11月(365 ng·m⁻³),峰值出现在1月(559 ng·m⁻³)。东部站点低值集中在7、8月,归因于东亚夏季季风带来高温、湿润气流,降水对BC的湿清除作用较

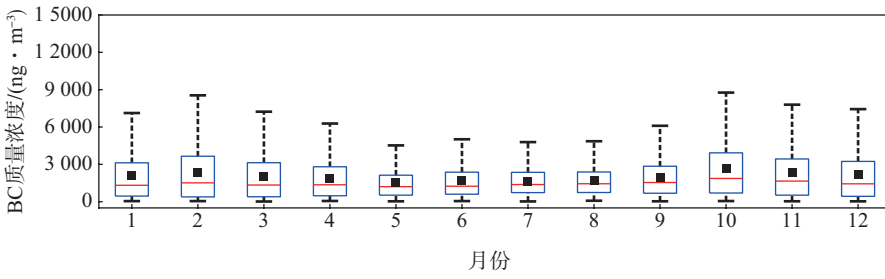
强;同时夏季太阳辐射增强,导致边界层高度增加,更有利于BC的扩散,从而减少近地面BC的质量浓度。

由2007—2018年各本底站多年的日变化(图4)可知,东部本底站的BC质量浓度均呈现出明显的“双峰型”变化特征,峰值通常出现在日出和日落前后,即早上06:00—08:00和晚上18:00—20:00,而低值时间出现在午后14:00左右和午夜。这一日变化

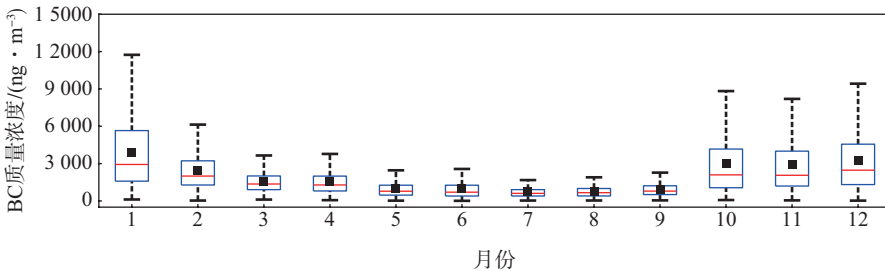
特征与局地人类活动和大气边界层的日变化有关。第一个峰值出现在日出后,这一时段恰逢出行早高峰;正午,随着太阳辐射增强,从近地面向上加热导致大气湍流逐渐增强,有利于BC向上混合和稀释,致使近地面BC质量浓度达到谷值。日落后,一方面由于出行晚高峰,另一方面由于近地面辐射冷却形成逆温层,BC在稳定边界层内堆积,形成第二个峰值。



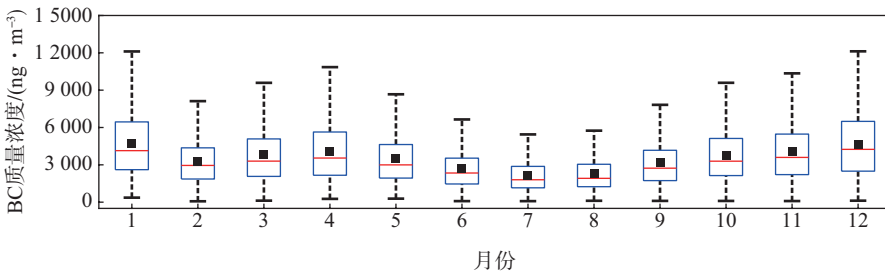
(a) 瓦里关站



(b) 上甸子站



(c) 龙凤山站



(d) 临安站

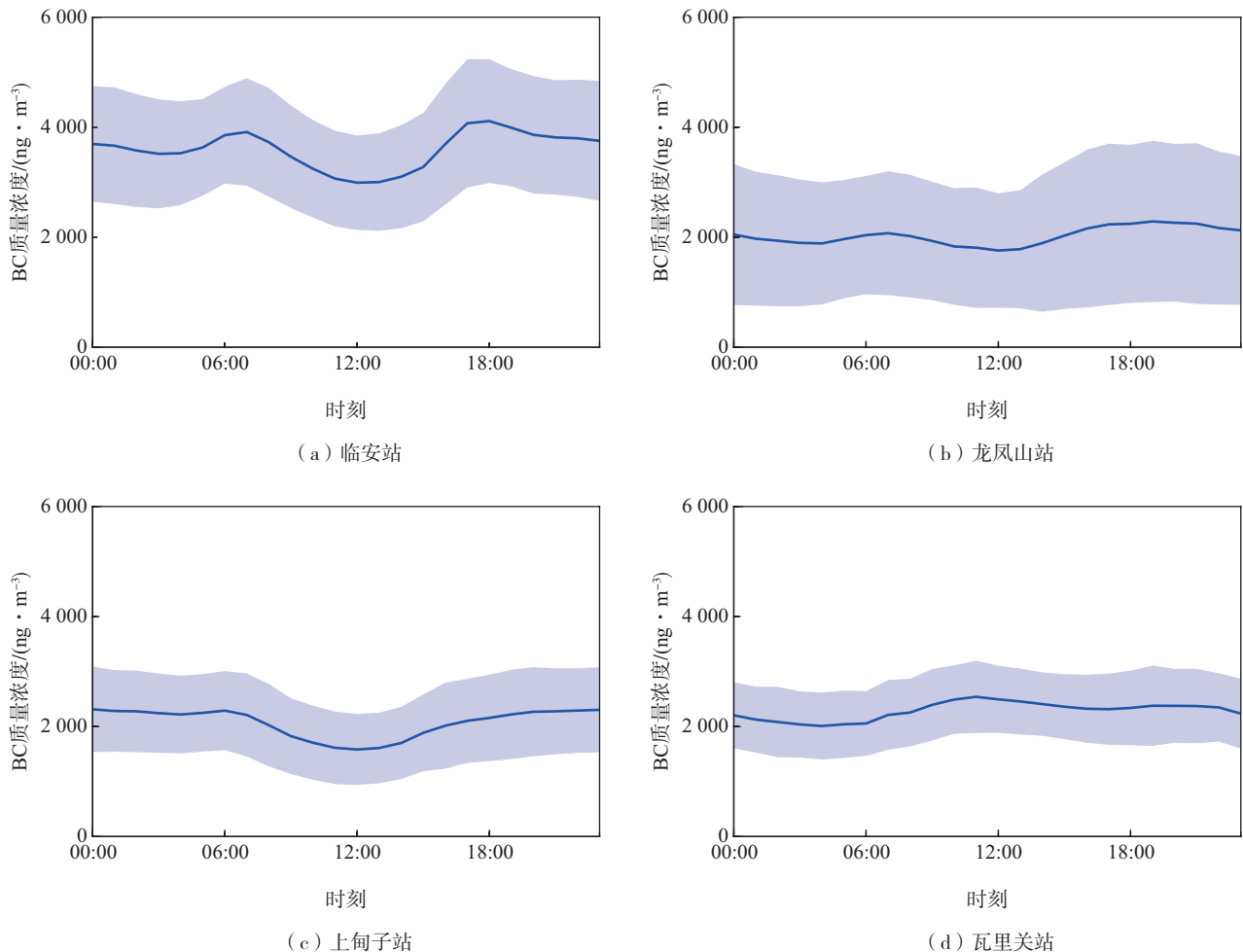
红色水平线—中位数值;黑色实心方形—平均值;蓝色矩形—第25至75百分位数;黑色短线—第10至90百分位数。

图3 2007—2018年4个本底站BC质量浓度月际变化箱线图

Fig.3 Intermonthly variation of BC mass concentrations at 4 baseline stations from 2007 to 2018

而西部瓦里关站位于青藏高原东北缘海拔 3 816 m 的瓦里关山上,受人为局地污染源直接影响小,BC 质量浓度日变化幅度也较小,平均质量浓度稳定在 $400 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$ 左右。但呈现出“昼高夜低”的

特点,这可能是由白天边界层向上发展以及谷风将较低海拔地区(人类活动更多)的 BC 输送、扩散至山顶所致,体现了高山站的特征^[29],也表明瓦里关站附近仍有少量 BC 源区。



蓝线—多年平均质量浓度;浅蓝色区域—标准差;图中瓦里关 BC 质量浓度—实测 BC 质量浓度 $\times 5$ 。

图 4 2007—2018 年 4 个本底站 BC 质量浓度日变化

Fig.4 Diurnal variation of BC mass concentrations at 4 baseline stations from 2007 to 2018

2.4 近地面风场对 BC 的影响

大气输送过程不仅可以清除本地污染物,也可以将外源污染物输入,其中污染物质量浓度变化与近地面风场的关系很大。利用 ERA5 地面 10 m 风场的同期逐小时 u 、 v 风速资料,进一步分析各本底站 BC 的季节变化特征及其可能来源。由于东部站点受东亚季风影响,夏季风从洋面吹向大陆,盛行风为偏南—东南风;冬季风相反,为偏北—西北风。因此,以下研究中东部站点对比了南、北风向下的 BC 质量浓度差异。西部瓦里关站冬季主要盛行偏西风,春、夏季受东亚夏季风和青藏高原热力环流影

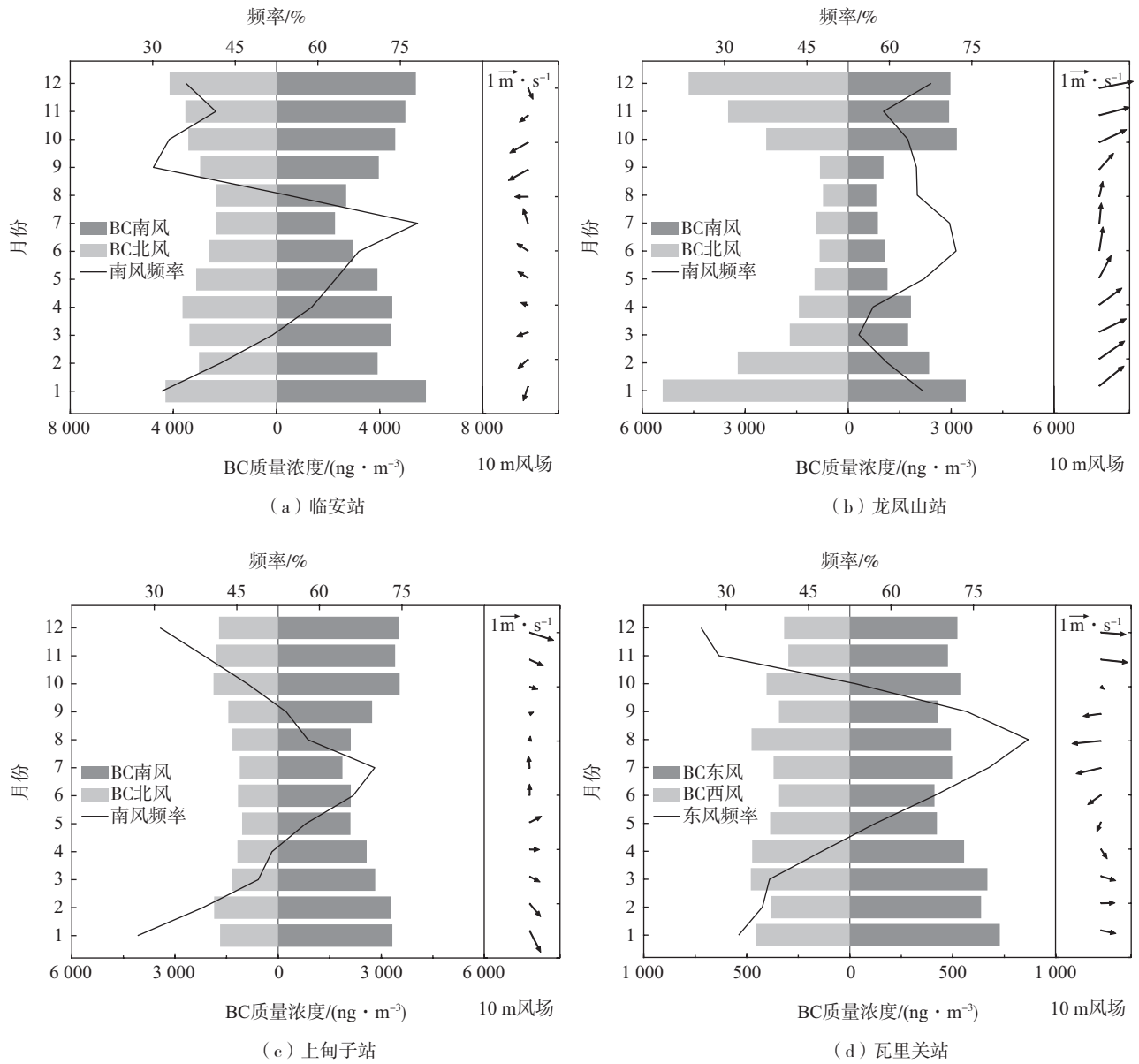
响,偏东气流频率明显增加,因此比较东、西风向下的 BC 质量浓度差异能够更好地对比出瓦里关站受近地面风场的影响。

由图 5 可见,东部临安站秋、冬季的主导风向为偏东北风,但偏南风向下 BC 质量浓度略大于偏北风,这是由于该站北—东北部多为农田,黑碳源较少;而西南部约 7 km 处为临安主城区,存在 BC 人为排放。夏季,南风分量显著增多,南、北风向下的同期 BC 质量浓度相差无几,说明临安站周边城市群对 BC 质量浓度影响差异不大,地面风分析不能很好地解释该站 BC 来源,将在 2.6 节进一步分析。

龙凤山站秋、冬季盛行风向为偏西南风,夏季盛行风为南风且平均风速最小,其他季节平均风速较大,同时偏北风下冬季 BC 质量浓度明显偏高。考虑到哈尔滨城区位于该站点的北部,冬季偏北气流携带重工业区的污染气体影响龙凤山站 BC 质量浓度。

上甸子站夏秋两季静风频率较高,冬季北风频

率增加,春季从偏西北向偏西南风方向转变。对比南北风分量后,发现偏南风下 BC 质量浓度普遍更高。这是由于在该站点西南方向约 130 km 处为北京市,是上甸子站 BC 的主要来源之一。秋季静风频率高,污染物难以扩散。夏季居民采暖需求减少、降水增多,且太阳辐射增加使大气对流活动较为旺盛,因此偏南风下夏季 BC 质量浓度较低。



a、b、c—东部站点变化;d—西部站点变化;深灰色柱—东部站点南风下/西部站点东风下 BC 月均质量浓度;浅灰色柱—东部站点北风下/西部站点西风下 BC 月均质量浓度;黑色折线—东部站点南风频率/西部站点东风频率。

图5 2007—2018年各本底站10 m风场及不同风向下BC质量浓度的月变化
Fig.5 Monthly variation of 10-m wind field and BC mass concentrations in different wind directions at 4 baseline stations from 2007 to 2018

西部瓦里关站纬向风速远大于经向风速,夏季以东风为主、冬季主导风向为西风,偏东风下 BC 质量浓度普遍高于同期偏西风。这是由于瓦里关东部地区人口较密集、工业较发达,空气污染较为严重;而西部人迹罕至,污染较轻^[28]。同时,瓦里关东风频率变化显著,夏季东风频率增加、风速较大,且偏东风下冬季 BC 质量浓度明显大于夏季。

在对比东西部差异后发现,受亚洲季风影响,各站点在四季的平均风向不同,而各盛行风向下的 BC 质量浓度也不同,说明这可能是中国东西部各本底站 BC 质量浓度的季节变化特征存在差异的原因。

2.5 基于黑碳仪模型的源解析

现有研究^[17,26,29]和拟合数据结果表明了 α (Ångström 指数)与 P (液体燃料源占比)的关系,即:当 $\alpha=1.0$ ($P=1$) 时,表明 BC 来源于液体燃料(交通源);当 $\alpha=2.0$ ($P=0$) 时,BC 来自固体燃料(生物质和煤炭燃烧)。自 2013 年 9 月以来,中国积极推进大气

“国十条”的实施,BC 质量浓度显著降低,来源亦发生变化^[30]。表 3 对比了大气“国十条”实施前、后液体燃料源占比(P)的变化,主要对比了夏、冬季的差异。

由表 3 可知,2007—2018 年 4 个本底站 P 值在 80% 上下变动,说明 BC 主要来源于液态燃料的燃烧。“国十条”实施前后,临安站和瓦里关站 BC 来源变化较小, P 值略微增加,这是由于近年来,中国汽车保有量逐年增加,使得液态燃料对 BC 质量浓度的贡献占比也在增加。而上甸子站和龙凤山站 P 值出现下降,可能与两地能源结构变化有关^[31],有待进一步研究。对比夏、冬季 P 值,发现各本底站存在显著的季节变化特征,夏季 BC_{liquid} 均大于冬季。其中上甸子站和龙凤山站变化最为明显,2014—2018 年夏季两地 P 值分别为 93.1% 和 77.5%,冬季下降至 64.9% 和 71.0%。究其原因,这两个站点地处我国华北和东北地区,冬季干燥寒冷,会消耗大量的煤炭用于采暖,使固态燃料贡献占比增加^[31], P 值下降。

表 3 大气“国十条”实施前后夏、冬季及多年平均 P 值变化

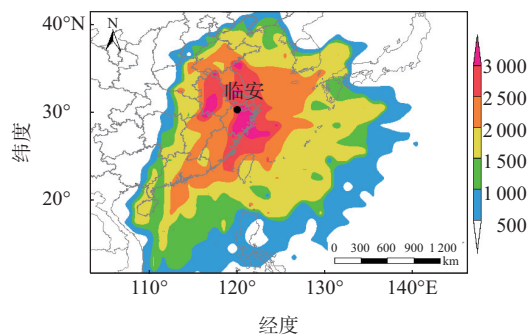
Table 3 Seasonal (summer and winter) and annual mean variation of P before and after the implementation of the “Air Pollution Prevention and Control Action Plan” in 2013

| 站点 | 实施前 P 值 | | | 实施后 P 值 | | |
|-----|-----------|-------|-------|-----------|-------|-------|
| | 夏季 | 冬季 | 多年 | 夏季 | 冬季 | 多年 |
| 临安 | 91.6% | 89.5% | 90.7% | 94.6% | 88.1% | 91.1% |
| 上甸子 | 93.3% | 67.8% | 78.3% | 93.1% | 64.9% | 76.9% |
| 龙凤山 | 83.1% | 70.7% | 73.0% | 77.5% | 71.0% | 68.6% |
| 瓦里关 | 85.4% | 77.0% | 80.2% | 87.7% | 77.1% | 81.2% |

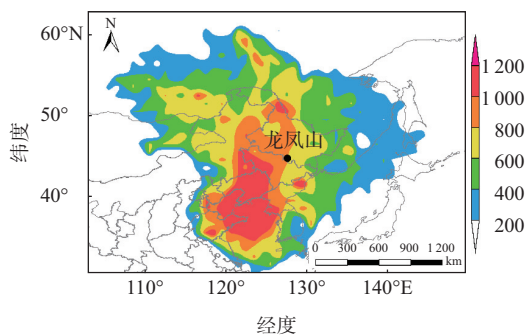
2.6 浓度权重轨迹分析

由于 2.4 节的地面风向季节变化分析不能完全揭示各站 BC 区域来源,本节进一步采用后向轨迹和浓度权重轨迹 (CWT) 方法推断其来源。使用 HYSPLIT 模式对 4 个典型本底站 2007—2018 年夏、冬季 BC 的来源进行 72 h 后向轨迹溯源,由此对比出中国东西部 BC 传输路径的差异。BC 高质量浓

度来源多以短距离输送为主,但受东亚季风影响,不同季节各本底站 BC 的传输路径和潜在源区也存在显著的差异,尤其是冬、夏季差异较大(图略)。在此基础上,为进一步研究区域输送对观测本底站的 BC 质量浓度贡献,使用 CWT 方法计算各网格权重浓度,分别得到图 6 和图 7 所示的夏、冬季各站周边区域 BC 的潜在源区分布情况。



(a) 临安站



(b) 龙凤山站

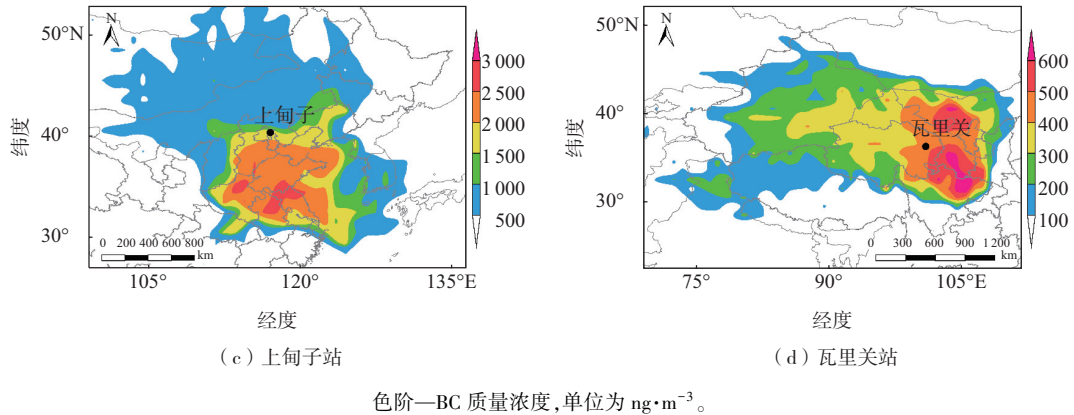


图6 2007—2018年夏季各站点的CWT潜在来源
Fig.6 Potential source areas of BC identified by CWT at 4 baseline stations in summer from 2007 to 2018

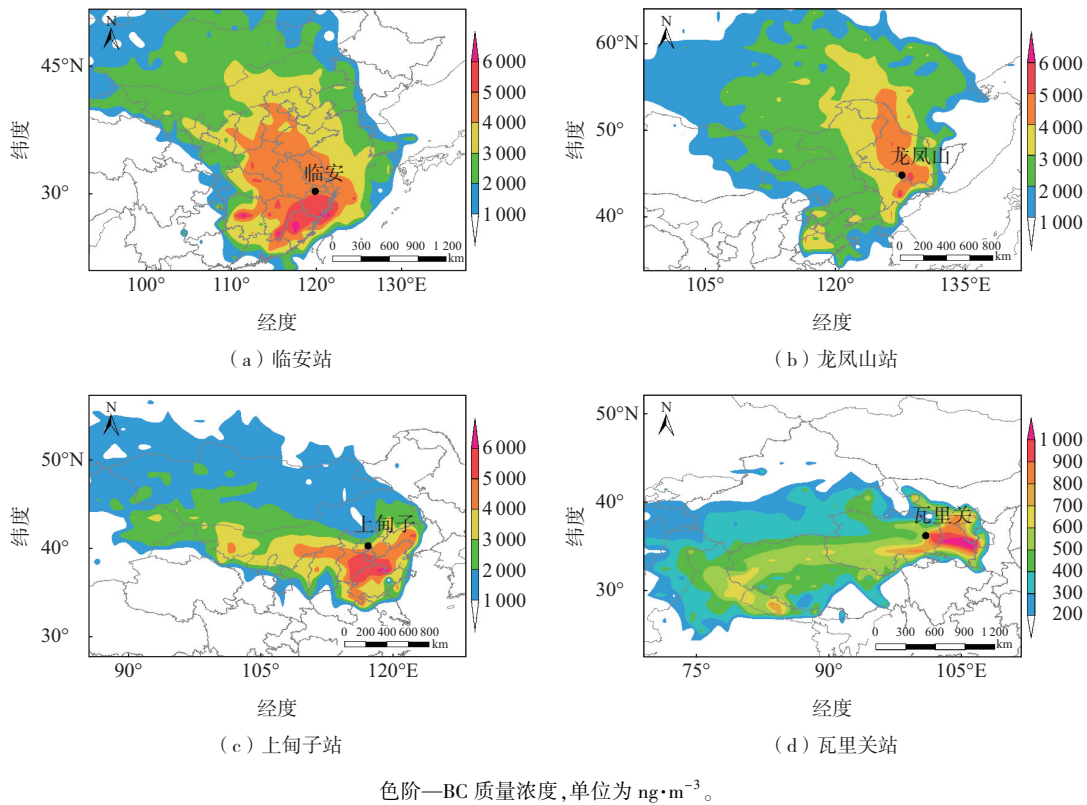


图7 2007—2018年冬季各站点的CWT潜在来源
Fig.7 Potential source areas of BC identified by CWT at 4 baseline stations in winter from 2007 to 2018

夏季,临安站 BC 质量浓度较低,潜在源区主要分布在临安周边的长江三角洲城市群和黄海、东海西部区域,BC 质量浓度在 $3\ 000\ \text{ng}\cdot\text{m}^{-3}$ 左右。龙凤山潜在源区主要分布在该站的西南部,高值中心集中在辽宁和渤海、黄海北部,BC 质量浓度为 $1\ 200\ \text{ng}\cdot\text{m}^{-3}$ 左右。上甸子潜在源区主要分布在该站的南部,高值中心在山东南部、江苏北部和安徽东北部,此外在河南北部也有一高值区,BC 质量浓度为 $2\ 500\sim 3\ 000$

$\text{ng}\cdot\text{m}^{-3}$ 。西部瓦里关在东南和东北方向上有一大范围的潜在源区,高值中心位于四川北部、甘肃南部和内蒙古西部,BC 质量浓度大于 $600\ \text{ng}\cdot\text{m}^{-3}$ 。

冬季,各站 BC 质量浓度较夏季高得多。临安的潜在源区主要在该站的西南和西北方向,西北方向上至北京南部、西南下达广东北部。高值中心分布在浙江南部、福建北部和江西东部,此外,在湖南中部也存在浓度超过 $6\ 000\ \text{ng}\cdot\text{m}^{-3}$ 的污染源。龙凤

山潜在源区主要在该站以北的黑龙江大部分地区、内蒙古东部及其以南的吉林东北部,BC质量浓度超过 $4\ 000\ \text{ng}\cdot\text{m}^{-3}$ 。上甸子的潜在源区主要分布在该站的南部,呈东西走向,高值中心的北部为天津,南部为山东德州、滨州、东营一带,西部为河北保定、衡水等高污染城市群,BC质量浓度大于 $5\ 000\ \text{ng}\cdot\text{m}^{-3}$ 。瓦里关潜在源区呈东西走向的扁平带状分布,主要在印度北部和中国甘肃南部,其中高值中心在兰州及周边,BC质量浓度在 $1\ 000\ \text{ng}\cdot\text{m}^{-3}$ 以上,这与 Dai 等^[28]的研究结论相吻合。

3 结论

(1)2007—2018年临安站、上甸子站、龙凤山站和瓦里关站4个大气本底站的BC质量浓度在空间分布上呈现出“东高西低”的特点,东部站点的均值分别为 $(3\ 553\pm 2\ 336)\ \text{ng}\cdot\text{m}^{-3}$ (临安)、 $(2\ 045\pm 1\ 918)\ \text{ng}\cdot\text{m}^{-3}$ (上甸子)、 $(1\ 966\pm 2\ 104)\ \text{ng}\cdot\text{m}^{-3}$ (龙凤山);西部瓦里关站为 $(455\pm 380)\ \text{ng}\cdot\text{m}^{-3}$ 。在年际变化上,东部站点各站BC呈逐年显著下降的趋势,瓦里关站因其本底浓度较低,下降趋势不明显。在季节变化上,东部为冬季最高、春秋季节次之、夏季最低;而瓦里关站为春季最高、夏季次之、冬季再次之、秋季最低。东部日变化特征为“双峰型”分布,峰值出现在日出和日落,而低值在午后14:00;瓦里关站呈“昼高夜低”的高山站特征。

(2)受亚洲季风影响,不同季节近地面风场对中国东西部站点BC质量浓度的影响不同。东部临安站秋冬季东北风占主导、夏季南风频率增加,但南北风下BC质量浓度差异不大。上甸子站夏秋两季静风频率较高、冬季北风增加,但南风下BC质量浓度更高。龙凤山站冬季多西南风,但偏北风下BC质量浓度更高。西部瓦里关站夏季东风频率增加、冬季西风为主,偏东风下BC质量浓度大于同期偏西风。

(3)对比东西部BC来源时,基于黑碳仪模型,发现BC主要来自液态燃料的燃烧($\text{BC}_{\text{liquid}}$);受冬季采暖影响,夏季 $\text{BC}_{\text{liquid}}$ 占比大于冬季。CWT结果表明,东部站点冬季BC的高值区范围较大,潜在源区以周围高污染城市为主;夏季BC质量浓度骤降,高值范围区变小,潜在源区主要分布在各站偏南方向。西部瓦里关站夏季潜在源区高值中心是四川北部以成都为中心的城市群,冬季为中国兰州附近和

印度北部。

参考文献:

- [1] BOND T C, STREETS D G, YARBER K F, et al. A technology-based global inventory of black and organic carbon emissions from combustion [J]. *J Geophys Res: Atmos*, 2004, 109(D14): D14203.
- [2] 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.
- [3] 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.
- [4] HANSEN A D A, KAPUSTIN V N, KOPEIKIN V M, et al. Optical absorption by aerosol black carbon and dust in a desert region of Central Asia [J]. *Atmos Environ Part A*, 1993, 27(16): 2527-2531.
- [5] MENON S, HANSEN J, NAZARENKO L, et al. Climate effects of black carbon aerosols in China and India [J]. *Science*, 2002, 297(5590): 2250-2253.
- [6] PAN C, ZHU B, FANG C W, et al. The fast response of the atmospheric water cycle to anthropogenic black carbon aerosols during summer in East Asia [J]. *J Climate*, 2021, 34(8): 3049-3065.
- [7] KOCH D. Transport and direct radiative forcing of carbonaceous and sulfate aerosols in the GISSGCM [J]. *J Geophys Res: Atmos*, 2001, 106(D17): 20311-20332.
- [8] HUSSEY S J K, PURVES J, ALLCOCK N, et al. Air pollution alters *Staphylococcus aureus* and *Streptococcus pneumoniae* biofilms, antibiotic tolerance and colonisation [J]. *Environ Microbiol*, 2017, 19(5): 1868-1880.
- [9] BATES T S, HUEBERT B J, GRAS J L, et al. International global atmospheric chemistry (IGAC) project's first aerosol characterization experiment (ACE 1): overview [J]. *J Geophys Res: Atmos*, 1998, 103(D13): 16297-16318.
- [10] ALFARO S C, GOMES L, RAJOT J L, et al. Chemical and optical characterization of aerosols measured in spring 2002 at the ACE-Asia supersite, Zhenbeitai, China [J]. *J Geophys Res: Atmos*, 2003, 108(D23): 8641.
- [11] KOEPKE P. Global aerosol data set [EB/OL]. (1997-01-01) [2023-02-19]. <http://core.ac.uk/display/40581675>.
- [12] MCMEEKING G R, HAMBURGER T, LIU D, et al. Black carbon measurements in the boundary layer over western and northern Europe [J]. *Atmos Chem Phys*,

- 2010, 10(19):9393-9414.
- [13] BOND T C, DOHERTY S J, FAHEY D W, et al. Bounding the role of black carbon in the climate system: a scientific assessment[J]. *J Geophys Res: Atmos*, 2013, 118(11):5380-5552.
- [14] STREETS D G, GUPTA S, WALDHOFF S T, et al. Black carbon emissions in China[J]. *Atmos Environ*, 2001, 35(25):4281-4296.
- [15] ZHANG Y, LI Y N, GUO J P, et al. The climatology and trend of black carbon in China from 12-year ground observations[J]. *Climate Dyn*, 2019, 53(9/10):5881-5892.
- [16] XU X F, YANG X Y, ZHU B, et al. Characteristics of MERRA-2 black carbon variation in East China during 2000–2016[J]. *Atmos Environ*, 2020, 222:117140.
- [17] JING A K, ZHU B, WANG H L, et al. Source apportionment of black carbon in different seasons in the northern suburb of Nanjing, China[J]. *Atmos Environ*, 2019, 201:190-200.
- [18] 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.
- [19] 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.
- [20] KUCBEL M, CORSARO A, ŠVÉDOVÁ B, et al. Temporal and seasonal variations of black carbon in a highly polluted European city: apportionment of potential sources and the effect of meteorological conditions[J]. *J Environ Manage*, 2017, 203:1178-1189.
- [21] 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.
- [22] 吴兑,毛节奏,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.
- [23] HANSEN A D A, ROSEN H, NOVAKOV T. The aethalometer: an instrument for the real-time measurement of optical absorption by aerosol particles [J]. *Sci Total Environ*, 1984, 36:191-196.
- [24] YAO B, TENG S W, LAI R Z, et al. Can atmospheric reanalyses (CRA and ERA5) represent cloud spatiotemporal characteristics? [J]. *Atmos Res*, 2020, 244:105091.
- [25] LIU X H, ZHU B, ZHU T, et al. The seesaw pattern of PM_{2.5} interannual anomalies between Beijing-Tianjin-Hebei and Yangtze River Delta across eastern China in winter [J]. *Geophys Res Lett*, 2022, 49(2):e2021GL095878.
- [26] 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.
- [27] HSU Y K, HOLSEN T M, HOPKE P K. Comparison of hybrid receptor models to locate PCB sources in Chicago [J]. *Atmos Environ*, 2003, 37(4):545-562.
- [28] DAI M M, ZHU B, FANG C W, et al. Long-term variation and source apportionment of black carbon at Mt. Waliguan, China[J]. *J Geophys Res: Atmos*, 2021, 126(21):e2021JD035273.
- [29] SHEN L J, WANG H L, KONG X C, et al. Characterization of black carbon aerosol at the summit of Mount Tai (1 534 m) in central East China: temporal variation, source appointment and transport [J]. *Atmos Environ*, 2021, 246:118152.
- [30] ZHENG B, TONG D, LI M, et al. Trends in China's anthropogenic emissions since 2010 as the consequence of clean air actions[J]. *Atmos Chem Phys*, 2018, 18(19):14095-14111.
- [31] 中国科学院“大气灰霾成因与控制”专项总体组,贺泓,谢品华,等.“大气十条”实施以来京津冀PM_{2.5}控制效果评估报告[J].*中国科学院院刊*, 2015, 30(5):668-678.