

DOI: 10.13671/j.hjkxxb.2018.0354

张昕,李忠勤,明镜,等.2019.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,39(1):212-221

Zhang X, Li Z Q, Ming J, et al. 2019.Characteristics of black carbon aerosol and source apportionment at the headwater of Urumqi River [J].Acta Scientiae Circumstantiae,39(1):212-221

乌鲁木齐河源区黑碳气溶胶浓度特征及其来源分析

张昕¹,李忠勤^{1,2,*},明镜³,王飞腾²

1. 西北师范大学地理与环境科学学院,兰州 730070

2. 中国科学院西北生态环境资源研究院,冰冻圈国家重点实验室,兰州 730000

3. 马克斯·普朗克化学研究所,德国美因茨 55128

摘要:利用七波段黑碳仪对 2016 年 8 月—2017 年 7 月乌鲁木齐河源区大气中黑碳气溶胶进行了实时监测,并结合同时期气象资料对该区域黑碳气溶胶浓度变化特征、影响因子和可能来源进行了分析.结果表明,观测期间乌鲁木齐河源区黑碳浓度在 102~1525 ng·m⁻³之间变化,均值为 520 ng·m⁻³.春季、夏季、秋季和冬季的浓度分别为 425、536、686 和 427 ng·m⁻³,呈秋季最高,夏季次之,冬、春季低的季节变化特点.日内变化具有明显的双峰双谷特征,在当地时间 8:00—9:00(与北京时间的时差为 2 小时,即为北京时间 10:00—11:00,下同)和 16:00—19:00 有两个明显的峰值,可能与当地的排放和气象因素有关.乌鲁木齐河源区黑碳的本底浓度在春季、夏季和秋季分别为 253、271 和 290 ng·m⁻³,而冬季黑碳的本底浓度仅为 162 ng·m⁻³.与其他偏远地区相比,乌鲁木齐河源区因受较多排放源影响,黑碳浓度本底值较高.黑碳气溶胶浓度与气象因素相关性显著,当风速小于 2 m·s⁻¹时,黑碳的平均浓度明显偏高,当相对湿度大于 55%时,黑碳浓度明显偏低.由浓度权重轨迹分析和波长吸收指数(AAE)可知,乌鲁木齐河源区的黑碳浓度,除了受本地化石燃料燃烧和生物质燃烧排放的影响以外,还可能受到中亚地区远距离传输的影响.

关键词:黑碳气溶胶;气象因素;日变化;来源解析;乌鲁木齐河源区

文章编号:0253-2468(2019)01-212-10

中图分类号:X513

文献标识码:A

Characteristics of black carbon aerosol and source apportionment at the headwater of Urumqi River

ZHANG Xin¹, LI Zhongqin^{1,2,*}, MING Jing³, WANG Feiteng²

1. College of Geography and Environmental Sciences, Northwest Normal University, Lanzhou 730070

2. State Key Laboratory of Cryospheric Science, Northwest Institute of Eco-Environment and Resource, Chinese Academy of Sciences, Lanzhou 730000

3. Biogeo/Multiphase Chemistry Department, Max Planck Institute for Chemistry, Mainz 55128

Abstract: Based on one year real-time measurements of seven-wavelength aethalometer and combined with meteorological data during August 2016—July 2017 at the headwater of Urumqi River, the change characteristics, influencing factors and potential sources of black carbon aerosol have been analyzed. The results showed that daily BC concentration during the studied period was 520 ng·m⁻³, fluctuating in the range of 102~1525 ng·m⁻³. The BC concentration was 425, 536, 686 and 427 ng·m⁻³ in spring, summer, autumn and winter. Seasonal BC concentrations were highest in autumn, followed by summer and low in winter and spring. The two peaks in diurnal variations of BC were observed during morning between 8:00 and 9:00 local time (UTC +6) and in the evening around 16:00—19:00 local time, which is strongly related to the local emission sources, and meteorological factors. The BC background concentration was 253, 271, 290 and 162 ng·m⁻³ in the four seasons. By the influence of more emission sources, the BC concentrations at the headwater of Urumqi River are larger than the other remote areas. There was a strong correlation between BC concentration and meteorological factors. The higher BC concentration was more associated with the winds smaller than 2 m·s⁻¹. Meanwhile, the lower BC concentration were more associated with the relative humidity large than 55%. The concentration weighted trajectory (CWT) analysis and AAE showed long-distance from Central Asia could be important contributors to BC concentrations at the headwater of Urumqi River, same as fossil fuel and biomass burning sources from nearby.

Keywords: black carbon aerosol; meteorological factor; diurnal variation; source apportionment; headwater of Urumqi River

收稿日期:2018-06-27

修回日期:2018-09-06

录用日期:2018-09-06

基金项目:国家自然科学基金(No.41471058);中科院重点部署项目(No.KJZD-EW-G03-04)

作者简介:张昕(1988—),男,E-mail:zhangxin8874@163.com; * 责任作者,E-mail:lizq@lzb.ac.cn

1 引言(Introduction)

黑碳气溶胶(Black carbon, 简称 BC) 由生物质燃料和化石燃料的不完全燃烧产生, 其中, 生物质燃料燃烧主要来自于森林火灾、秸秆焚烧等, 而化石燃料燃烧主要包括燃煤和石油燃烧等(Bond *et al.*, 2013; Petzold *et al.*, 2013). 其在大气中的浓度通常受源地的排放、干湿沉降过程、风和大气边界层等气象条件的共同影响(Gong *et al.*, 2010; Zhao *et al.*, 2012). 相关研究表明, 黑碳气溶胶对全球变暖的贡献仅次于 CO₂, 在全球性和区域性的气候变化中有着重要的作用(Ramanathan *et al.*, 2008). 此外, 在降雪、降雨等作用下, 黑碳气溶胶可以通过长距离传输沉降到冰川表面, 造成冰雪反照率降低, 进而造成雪冰的加速消融, 进一步影响到区域乃至全球的气候变化和水安全(Janner *et al.*, 2007; Ramanathan *et al.*, 2013; Qian *et al.*, 2015). 黑碳不仅在大气和雪冰中扮演着重要的角色, 而且对人们的身体健康有很重要的影响. 黑碳易与其他颗粒物发生混合, 并悬浮于大气中, 当人体吸收后会加大呼吸、血液、心脏等发生疾病的风险(Schwartz *et al.*, 2005).

目前, 我国关于黑碳气溶胶的研究主要集中于城市和部分郊区(Zhang *et al.*, 2015; Zhu *et al.*, 2015; 赵淑雨等, 2016; Zhu *et al.*, 2017). 由于电力和人力等因素的限制, 偏远地区黑碳气溶胶的实时在线观测尤为稀缺. 在已有的研究中, 明镜等在 2006 年 7 月—2007 年 1 月期间用传统的采样方法研究了纳木错地区的黑碳气溶胶, 指出纳木错地区的黑碳浓度可以反映出人类排放较弱的情形下的背景浓度(Ming *et al.*, 2016). 赵淑雨等在 2009 年 5 月—2011 年 3 月期间观测了祁连山冰川区大气中的黑碳浓度, 指出该地区黑碳的浓度为 18~72 ng·m⁻³, 处于较低的水平(Zhao *et al.*, 2012). 王荣等在青藏高原原鸟地区开展了黑碳气溶胶的观测研究, 指出该地区 2012 年 11 月—2013 年 2 月黑碳的浓度为 413.2 ng·m⁻³, 而 2013 年 2—6 月黑碳的浓度仅为 139.1 ng·m⁻³(Wang *et al.*, 2012). 这些研究对于了解我国偏远地区黑碳气溶胶的区域污染水平和黑碳气溶胶的空间分布、昼夜变化、主要来源和排放特征等方面有着重要意义. 然而, 在天山山区开展的黑碳气溶胶观测资料一直很稀缺, 尤其是实时在线的观测一直处于空白状态, 同时, 天山山区黑碳气溶

胶的季节变化和日内变化规律尚不清楚.

乌鲁木齐河源区位于东天山中部, 是乌鲁木齐市水资源的重要源地. 近年来, 人为活动加剧对乌鲁木齐河源区产生了重要的影响(李忠勤等, 2010; Ming *et al.*, 2016). 本研究对东天山中部的乌鲁木齐河源区开展黑碳气溶胶在线监测, 并对监测结果进行深入的特征分析和来源解析探讨. 这对于明确天山山区大气中黑碳气溶胶季节变化和日内变化、影响因素有着重要意义, 也可为偏远地区评估黑碳气溶胶的环境和气候影响提供一定的科学依据和理论支撑.

2 材料与方法(Materials and methods)

2.1 观测地点

观测站点设立在乌鲁木齐河源区内的中国科学院天山冰川观测试验站(87.12°E, 43.21°N, 海拔高度为 2130 m), 以下简称天山冰川站(图 1). 观测站点位于东天山中部, 距离乌鲁木齐市约 107 km. 此外, 天山冰川站距离乌鲁木齐河源 1 号冰川约 32 km, 该冰川有长达 50 多年的观测历史, 处于不断退缩状态(李忠勤等, 2010). 天山冰川站距离后峡镇仅 7 km, 该镇分布有化工和能源企业.

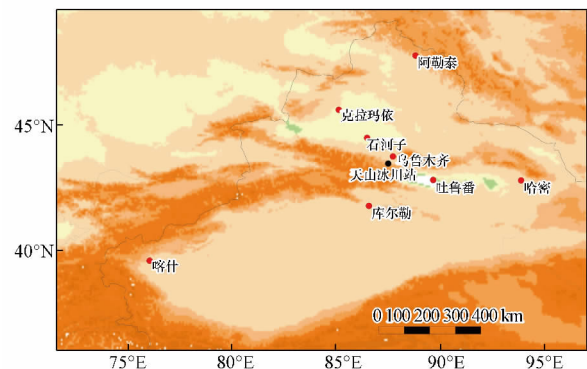


图 1 观测站点及周边地区

Fig.1 Measurement site and the sounding areas

2.2 实验方法

2.2.1 仪器和数据 本研究采用美国 Magee 公司生产的 AE-31 型黑碳测量仪对大气中黑碳的质量浓度进行实时监测. 该仪器有 7 个测量通道, 对应波长分别为 370、470、525、590、660、880 和 940 nm. 其工作原理是利用黑碳气溶胶对紫外—可见光—红外波段有很强吸收作用的特性, 连续测量采集大气气溶胶前、后滤膜对入射光强的衰减, 经过计算得到黑碳气溶胶浓度, 属于光学灰度测量法(Hansen *et al.*,

1984).本研究选择了 880 nm 波段下测得的黑碳浓度为大气中黑碳的真实浓度,选择该波段的原因是黑碳质量浓度在测量过程中容易受到滤膜和其他气溶胶的影响,但这些气溶胶在 880 nm 波段下对黑碳测量结果影响较小,可忽略不计,880 nm 下黑碳的吸收效率系数 k 为 $16.6 \text{ m}^2 \cdot \text{g}^{-1}$.本研究采样时未使用任何切割头,仪器校准后的采样流量为 $3.9 \text{ L} \cdot \text{min}^{-1}$ (Hansen *et al.*, 1990).

原始数据的时间长度为 2016 年 8 月 1 日—2017 年 7 月 31 日.仪器原始采样频率为 5 min,数据处理成 1 h 平均值.在平均过程中,对明显异常值及仪器标记为坏点的值进行剔除,同时保证每小时内

可用数据不少于应测数量的 60%.

地面气象数据来源于天山冰川站内的气象观测场内.图 2 显示了 2016 年 8 月—2017 年 7 月自动气象站记录的气温、降水、风速和相对湿度数据.该地区的气象条件具有明显的季节变化,其中,夏季平均气温最高,达 $13.6 \text{ }^\circ\text{C}$;冬季平均气温最低,为 $-9.8 \text{ }^\circ\text{C}$;春季和秋季的平均气温分别为 $2.5 \text{ }^\circ\text{C}$ 和 $1 \text{ }^\circ\text{C}$.降水主要发生在夏季,占到了全年的 55%,相对湿度也超过 70%.秋季和冬季降水稀少,仅占到全年的 15%,大气环境相对干燥.在整个采样周期,风速从春季到冬季分别为 1.6 、 1.4 、 1.2 和 $0.8 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$.

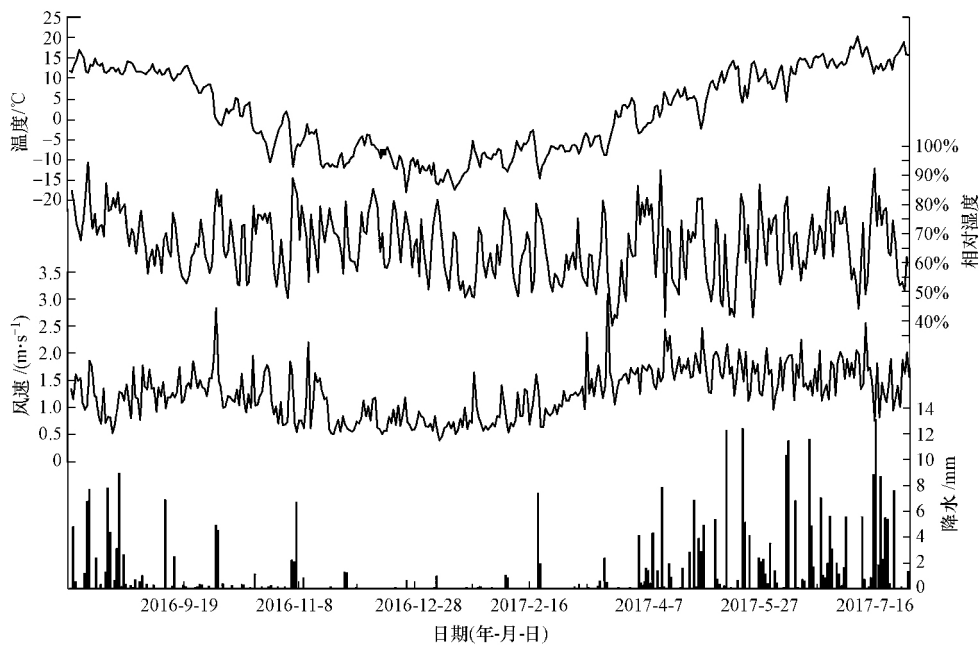


图 2 2016 年 8 月—2017 年 7 月天山冰川站气温、降水、风速、相对湿度

Fig.2 Elementary meteorological observations at the Tianshan Glaciological Station from August 2016 to July 2017, including air temperature, relative humidity, wind speeds, and precipitations

2.2.2 浓度权重轨迹分析法 浓度权重轨迹分析法(CWT)是一种计算潜在源区气流轨迹的权重浓度,反映不同轨迹污染程度的方法.在浓度权重轨迹分析法中,每个网格都有一个权重浓度,通过计算经过该网格的轨迹对应观测点的黑碳质量浓度的平均值来实现(式(1)).

$$C_{ij} = \frac{1}{\sum_{l=1}^M m_{ij}} \sum_{l=1}^M C_l m_{ij} \quad (1)$$

式中, C_{ij} 是网格 (i, j) 上的平均权重浓度; l 是经过网格 (i, j) 的轨迹之一; C_l 是轨迹 l 经过网格 (i, j) 时对应的 BC 质量浓度; m_{ij} 是轨迹 l 在网格 (i, j) 停留的时间.

3 结果与讨论(Results and discussion)

3.1 黑碳气溶胶浓度水平

图 3 显示了 2016 年 8 月—2017 年 7 月黑碳的时间变化特征,在观测期间,乌鲁木齐河源区大气中黑碳气溶胶浓度的变化范围为 $102 \sim 1525 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$,平均值为 $520 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$.最高值($1525 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$)出现在 2016 年 10 月 9 日,主要归因于当地大量的生物质燃烧,以及相对干燥的天气状况.最低值($102 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$)出现在 2015 年 11 月 29 日,归因于降雪事件的发生.大量的降雪对黑碳气溶胶起到了湿清除作用,使得黑碳浓度明显降低.

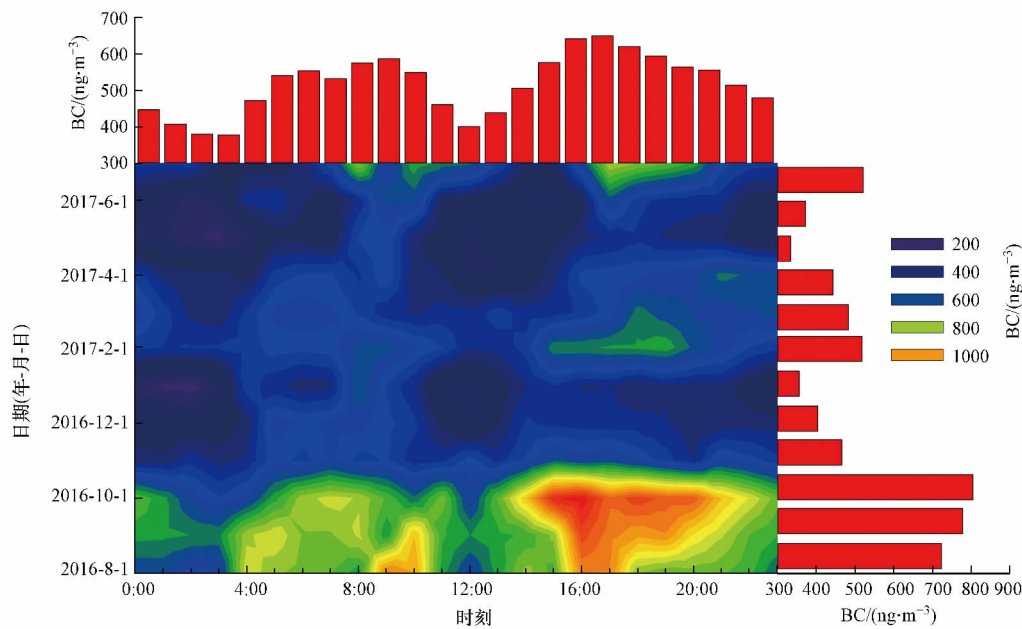


图3 2016年8月—2017年7月黑碳的时间变化特征

Fig.3 Temporal variations of BC during August 2016 to July 2017

黑碳月平均浓度在 $344 \sim 805 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$ 范围内, 最高平均浓度出现在 2016 年 10 月, 最低平均浓度出现在 2017 年 5 月. 最高平均浓度出现在 10 月可能与观测站点周围大量的生物质燃烧有关, 造成了一系列的污染事件. 而最低平均浓度出现在 5 月可能与降水较多、湿沉降量和较高的风速有关. 据统计, 2017 年 5 月的降水天数达到了 18 d, 其中, 2017 年 5 月 12 日和 5 月 19 日的降水量均超过了 12 mm. 而 5 月的平均风速为 $1.7 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$, 仅次于 4 月, 随着风速的增加, 大气中黑碳气溶胶的扩散速度也随之加快, 很难在大气中累积, 稀释了大气中的黑碳浓度. 春季、夏季、秋季和冬季黑碳浓度分别为 425 、 536 、 686 和 $427 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$, 呈秋季最高、夏季次之, 冬、春季较低的特点, 其中, 秋季黑碳浓度约为春季或冬季的 1.6 倍. 出现这种季节变化主要与当地的排放源状况和气象条件有关. 秋季有大量的生物质燃烧, 同时天气状况相对干燥, 降水明显骤减, 对气溶胶的冲刷明显减少, 从而造成了较高的黑碳浓度. 而冬季黑碳浓度较低的主要原因是大量的降雪一方面造成了人为活动的减少及 216 国道的停运, 另一方面降雪本身对黑碳气溶胶具有湿清除作用. 我国其他地区的黑碳气溶胶季节变化也有类似特征, 例如, 瓦里关和慕士塔格 (汤洁等, 1999; Cao *et al.*, 2009). 这些站点都比较偏远, 人类活动较少, 主要的人类活动仍以传统的农业和畜牧业为主, 秋季秸秆的燃

烧成为秋季黑碳浓度高的主要原因. 此外, 黑碳浓度的季节分布也可能与研究区位置有关. 乌鲁木齐河源区的黑碳浓度季节变化与一些北方城市的季节变化明显不同, 主要原因是北方城市的冬天往往是供暖期, 大量燃煤的燃烧使得冬季黑碳浓度往往高于其他季节 (Zhao *et al.*, 2015; Song *et al.*, 2013). 例如, 距离观测站点仅有一百多公里乌鲁木齐市, 冬季的黑碳浓度高达 $12.37 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$, 而夏秋季仅有 $3.84 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ (钟玉婷等, 2011; 刘新春等, 2011). 研究发现, 冬季在海拔 $1000 \sim 2400 \text{ m}$ 处有强烈的逆温层, 阻碍了污染物向更高海拔地区的扩散, 因此, 即便乌鲁木齐市冬季污染情况特别严重, 但乌鲁木齐河源区的大气仍较为清洁 (张寅生等, 1994).

乌鲁木齐河源区黑碳气溶胶的日变化具有明显的双峰双谷特征, 表现为凌晨和中午低、早晚高. 黑碳气溶胶在当地时间 8:00—9:00 和 16:00—19:00 有两个明显的高峰期, 两个谷值分别出现在当地时间 1:00—3:00 和 12:00—13:00. 当地时间 3:00 该地区黑碳浓度开始增大, 次峰值出现在当地时间 8:00—9:00, 然后开始下降, 在 1:00—3:00 达到较低值, 随后从下午开始不断增加, 并在 16:00—19:00 保持在较高值, 最后黑碳浓度从凌晨开始不断降低至谷底. 峰值浓度出现在 8:00—9:00 可能是由于日出时段, 人为活动增加, 黑碳气溶胶排放相对较高, 同时日出后气温升高, 但此时冷的地面还未

来得及升温,造成清晨大气逆温,黑碳气溶胶浓度较高.当地时间 16:00—19:00 的峰值与当地居民的活动和扩散条件有关.夜间风速较低,不利于污染物扩散,导致污染物在近地层不断堆积,所以这一时段黑碳气溶胶质量浓度一般较高.而最低值出现在 1:00—3:00,可能与夜间较少的人为活动有关.在 12:00—13:00 出现谷值,主要原因是较高的风速易于污染物扩散,地面观测的黑碳气溶胶在这一时段往往较低(Babu *et al.*, 2002). 日间(8:00—20:00)黑

碳平均浓度为 $539 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$,略高于夜间(20:00—次日 8:00)的 $496 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$,当地的排放和气象因素共同造成了这种日内变化.

表 1 显示了部分监测站点的黑碳浓度,观测期间乌鲁木齐河源区黑碳气溶胶的浓度明显低于大多数城市和郊区监测站点,也反映了该地区处于相对清洁的大气环境.但与偏远地区的站点相比,乌鲁木齐河源区因受较多排放源影响,黑碳浓度仍处于较高的状态.

表 1 部分监测站的黑碳浓度

Table 1 BC concentration in some regional background monitoring stations

站点	观测点类型	观测时间	仪器	黑碳浓度 / ($\text{ng} \cdot \text{m}^{-3}$)	参考文献
南京北郊	郊区	2015 年 1—10 月	AE-33	2524	肖思晗等, 2016
深圳坝光	郊区	2009 年 10—12 月	AE-31	2300	邓彦阁等, 2012
甘肃榆中	郊区	2007 年 1 月—2009 年 8 月	AE-31	1568	张磊等, 2011
上海外滩	郊区	2007 年 12 月—2008 年 11 月	AE-31	1700	肖秀珠等, 2011
北京上甸子	郊区	2008 年 11 月—2012 年 7 月	AE-31	2200	张骁等, 2015
浙江临安	郊区	2000 年 8 月—2001 年 2 月	AE-31	1440~7510	秦世广等, 2001
青海瓦里关	偏远地区	1996—2000 年	AE-31	56~660	秦世广等, 2001
甘肃敦煌	城市	2006 年 4—5 月	AE-31	1890	高润祥等, 2008
西藏纳木错	偏远地区	2010 年 10 月—2014 年 10 月	AE-31	74	Zhang <i>et al.</i> , 2017
甘肃祁连山西段	偏远地区	2009 年 5 月—2011 年 3 月	AE-31	18~72	Zhao <i>et al.</i> , 2012
新疆慕士塔格	偏远地区	2009 年 11 月—2010 年 9 月	AE-16	133	Zhu <i>et al.</i> , 2017
西藏然乌	偏远地区	2012 年 11 月—2013 年 6 月	AE-31	276	Wang <i>et al.</i> , 2016
西藏北麓河	偏远地区	2012 年 11 月—2013 年 6 月	AE-31	413	Wang <i>et al.</i> , 2012

3.2 黑碳本底浓度

本底浓度是指某地区大气环境中某种物质基本混合均匀后的浓度,能够反映某一尺度区域内处于均匀混合状态的某种成分的大气浓度水平,本文把频率最高的峰值浓度作为该地区的本底浓度(秦世广等, 2001). 图 4 为乌鲁木齐河源区内观测得到的 4 个季节黑碳浓度频率分布图. 观测站点黑碳的本底浓度在春季、夏季和秋季分别为 253 、 271 和 $290 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$,而冬季仅为 $162 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$,与黑碳浓度的季节变化一致,均是夏秋高、冬春低.

3.3 气象因子对黑碳浓度的影响

3.3.1 风向和风速 风速和风向通常是影响黑碳浓度的两个重要因子.图 5 显示了观测期间乌鲁木齐河源区每小时黑碳浓度与每小时风速和风向的关系,其中,气象数据使用自动气象站观测的近地面处风速和风向数据.当风速小于 $2 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ 时,黑碳的平均浓度明显偏高,这与较低风速导致的较差的扩散条件有关.当风速大于 $2 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ 时,黑碳浓度开始降低.当风速大于 $4 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ 时,黑碳浓度容易出现低值,这表明高的风速可以加快黑碳气溶胶的扩

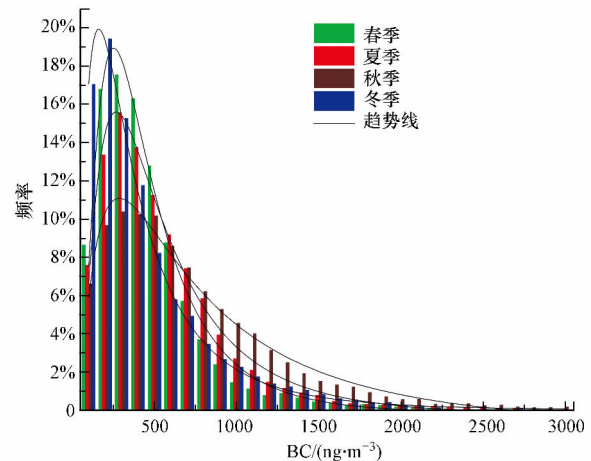


图 4 4 个季节黑碳浓度频率分布

Fig.4 Frequency distributions of BC concentration in the four seasons

散,使得黑碳气溶胶浓度降低.黑碳浓度与风速的这种关系很大程度上反映了短距离排放对于黑碳的影响起到了主导作用,但在夏季和秋季较高的风速也容易输送周边的污染物.黑碳浓度高于 $1000 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$ 时,春季的高频风向为西北、西西北风向,夏

季为北东北风向, 冬季为正东、东东南风向. 秋季整 北东北、南东南风向为高频风向.
体黑碳浓度较高, 黑碳浓度高于 $2000 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$ 时,

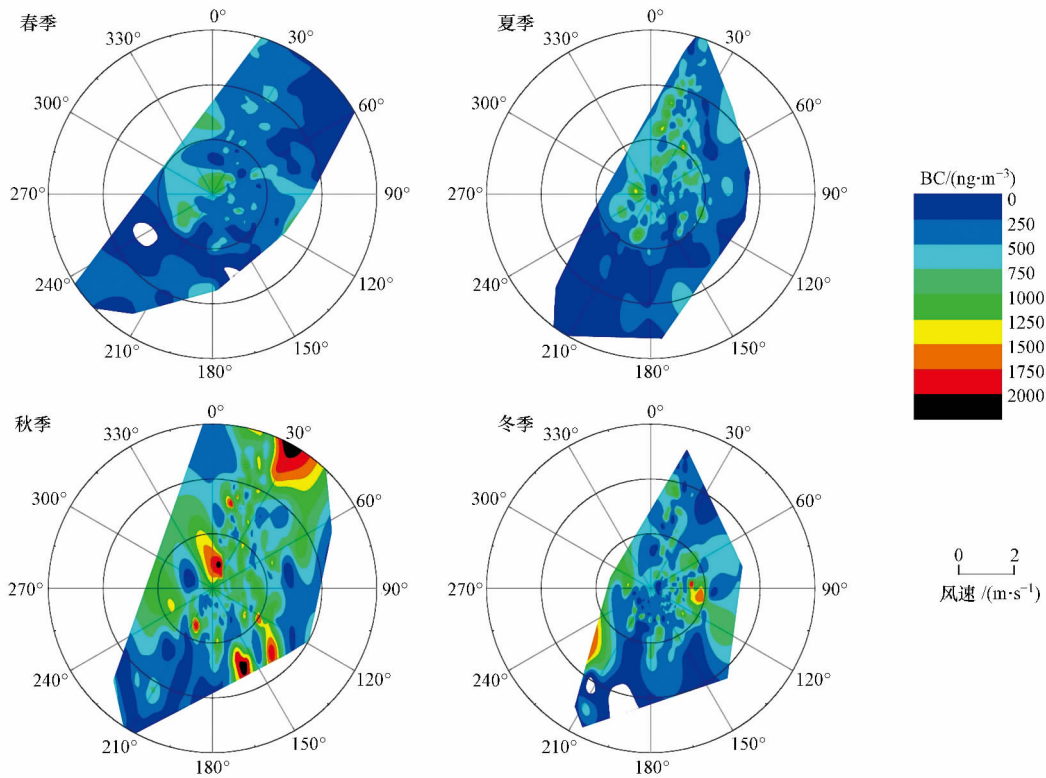


图 5 观测期间黑碳浓度与风速、风向的关系

Fig.5 The relationship of average BC concentration and winds during the study period

3.3.2 降水 与风速/风向一样,降水也是影响黑碳浓度的主要因子之一.图 6 显示了降雨和降雪天气发生时,黑碳浓度的变化情况.降水对黑碳气溶胶具有湿清除作用,极大地降低了黑碳浓度.夏季和秋

季人类活动较多,但与秋季相比,夏季有频繁的降水事件发生,降水占到了全年的 60%,使得夏季的黑碳浓度略低于秋季.降水发生后的 3 d 里,黑碳气溶胶的浓度低于当月的黑碳平均浓度,而这个时间

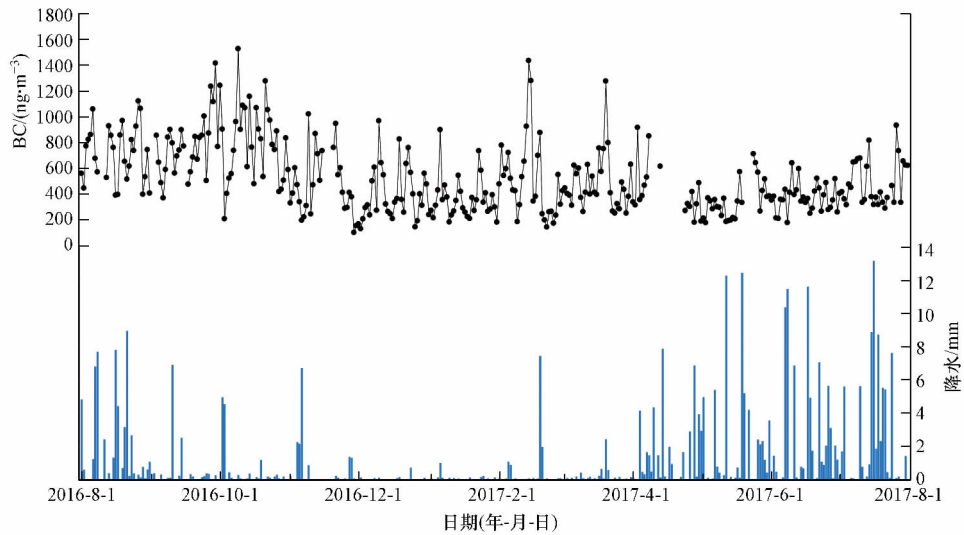


图 6 观测期间黑碳浓度与降水的变化

Fig.6 The variation of BC concentration and precipitations during the study period

段内黑碳浓度的最低值出现在降水的当天;然后随着时间的推移,浓度开始变大,且慢慢接近当月正常天气情况下黑碳的平均浓度.相较于降雨,发生于冬季和春季的降雪对黑碳气溶胶的沉降作用更强,且降雪发生后黑碳浓度恢复到平均浓度时所需要的时间也长于降雨后所需要的时间.

3.3.3 温度和相对湿度 通过分析黑碳浓度与相对湿度的相关性得出(图7),相对湿度和黑碳浓度

呈负相关,相对湿度越大,黑碳浓度越低.当相对湿度大于85%时,黑碳浓度均小于 $1000 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$;当相对湿度大于65%且气温低于 $10 \text{ }^\circ\text{C}$ 时,黑碳浓度通常小于 $600 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$;当相对湿度小于55%时,黑碳浓度明显高于相对湿度大于55%时.温度对于黑碳浓度的影响并不明显,但温度大于 $10 \text{ }^\circ\text{C}$ 时的黑碳浓度明显高于温度小于 $10 \text{ }^\circ\text{C}$ 时的黑碳浓度.

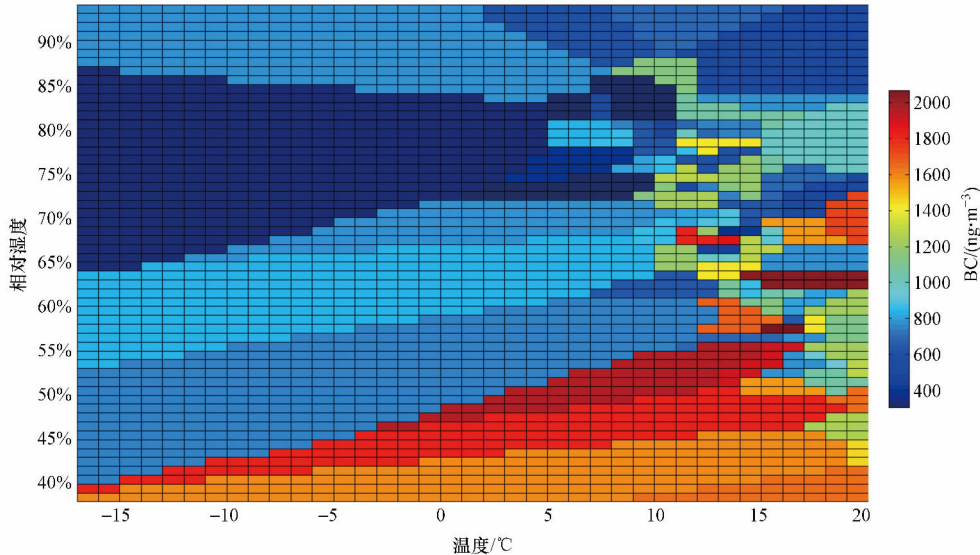


图7 黑碳浓度与温度、湿度的关系

Fig.7 The relationship of BC concentration and temperature, relative humidity

3.4 黑碳的来源解析

AE-31 黑碳仪有7个波段,分别为370、470、520、590、660、880、950 nm,利用各波段所测的黑碳浓度值,结合以下公式可以计算出各波段对应的吸收系数(Coen *et al.*, 2010):

$$\alpha(\lambda) = \frac{[\text{BC}] \times 14625 \times 10^{-3}}{\lambda \times C \times R} \quad (2)$$

式中, [BC]为BC浓度; $\alpha(\lambda)$ 为吸收系数; R 为经验修正系数,用于描述颗粒物荷载量的增加引起的仪器响应,因为该仪器有较大的动态变化,这里假设其为1; C 是由黑碳仪内的光源所决定的,这里取值为2.14(Weingartner *et al.*, 2003).

波长吸收指数(AAE)可以用来分析气溶胶的混合状态,它是指由两个不同波长(λ_1 和 λ_2)的吸收系数的比值和波长比值求出的负指数:

$$\frac{\alpha(\lambda_1)}{\alpha(\lambda_2)} = \frac{\lambda_1^{-\text{AAE}}}{\lambda_2} \quad (3)$$

式中, $\alpha(\lambda)$ 表示吸收系数, λ_1 和 λ_2 表示不同波长,

通过以上公式可得该组波长的AAE值:

$$\text{AAE}(\lambda_1, \lambda_2) = -\frac{\ln \alpha(\lambda_1) - \ln \alpha(\lambda_2)}{\ln \lambda_1 - \ln \lambda_2} \quad (4)$$

有研究表明,当黑碳主要来源于生物质燃烧时,AAE值约为2;而当黑碳主要来源于化石燃料的排放时,AAE值约为1(Russell *et al.*, 2010; Kirchstetter *et al.*, 2004; Sandradewi *et al.*, 2008). 本文用可见光波段470 nm和660 nm两个波长的吸收系数计算了观测站点的日平均AAE值,站点的AAE值变化范围在0.64~1.94之间,平均值为 (1.2 ± 0.26) . 如图8所示,2月的AAE值最高,达到了1.51,8月的AAE值最低,为0.82,仅有8月和9月的AAE低于1.其中,夏季和秋季的AAE值接近1,分别为1.01和1.03;冬季和春季的AAE值高于1,分别为1.44和1.32.因此,夏季和秋季黑碳的来源以化石燃料的燃烧为主,而冬季和春季,生物质燃烧对黑碳总质量贡献率有所上升,同时,黑碳中可能混合了其他气溶胶,如棕碳气溶胶(BrC)、硫酸盐

气溶胶、沙尘气溶胶等,使得 AAE 值增大 (Chung *et al.*, 2012). 从整体上推断,化石燃料的排放是乌鲁木齐河源区黑碳的主要来源,但在冬季和春季生物质燃烧对黑碳的贡献率较高.

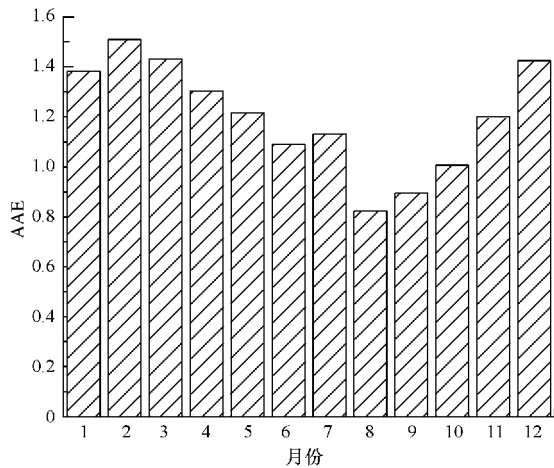


图 8 观测期间 AAE 值的逐月变化

Fig.8 Monthly variation of AAE during the study period

3.5 黑碳潜在来源分析

为了探讨乌鲁木齐河源区黑碳气溶胶的可能传输路径,本文采用 NOAA 提供的 HYSPLIT-4 模式计算了乌鲁木齐河源区采样期间的气团轨迹 (Draxler *et al.*, 1998),该模式可以运用于黑碳的扩散和传输等方面.该轨迹具体包括气团运移路径和

气团的高度变化,气团轨迹的误差约为 20%.计算时所需的气象数据来自于 GDAS (Global Data Assimilation System) 提供的空间分辨率为 $1^\circ \times 1^\circ$ 的格点数据.选取地面高度为 500 m,每天计算一次,并反推 120 h,计算出所有的后向轨迹后进行聚类分析.本研究中根据计算结果将 4 个季节的轨迹都分为 4 类 (T1~T4), 每条聚类对应的百分数表示不同方向的气流比例.同时,结合黑碳浓度,用浓度权重轨迹分析法 (CWT) 计算分析了不同季节黑碳浓度变化的可能潜在源区及其贡献.

图 9 为观测期间乌鲁木齐河源区后向轨迹聚类分析和 CWT 分析结果,其中,春季源于天山周边干旱区局地的近距离气团占到了总条数的 88.1%,源于西部里海和中亚干旱地区的气团占到了总条数的 7.6%,CWT 较大值主要分布在天山周边干旱区.夏季来自中亚传输过来的气流逐步增多,源于天山周边的近距离气团所占比重明显降低,仅为总条数的 43.65%,而源于西北和西南的气团明显开始增多,CWT 的较大值出现在天山西段和中段.秋季源于天山周边的近距离气团所占比重开始增多,占到了 59.3%,CWT 的较大值出现在中亚和天山周边干旱区.冬季源于天山周边的近距离气团所占比重继续增多,占到了总条数的 85.6%,仅有 10%的气团源于乌兹别克斯坦、哈萨克斯坦、塔吉克斯坦等地区,2.2%的气团源于里海附近.

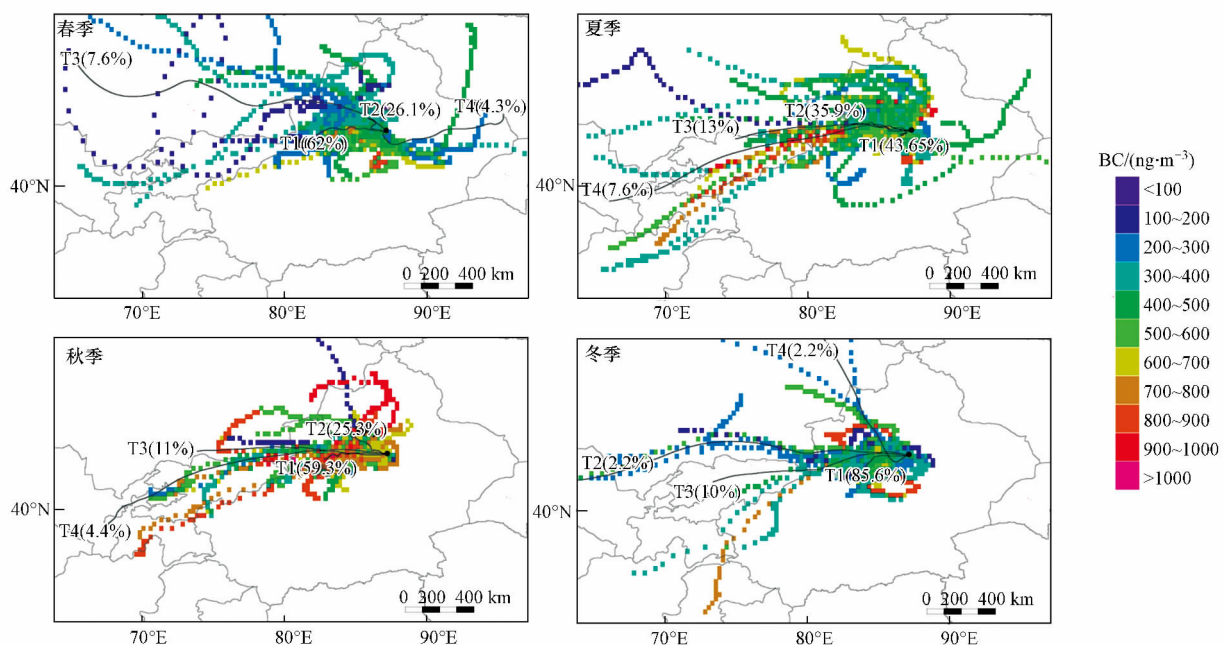


图 9 不同季节 5 d 典型气团后向轨迹聚类分析和 CWT 分析

Fig.9 Cluster-mean 5-day backward air-mass trajectories calculated by the HYSPLIT model including the percentages of each cluster trajectories during spring, summer, autumn and winter

乌鲁木齐河源区主要受到天山周边近距离气团的影响,同时也必然保留了途经的周边市区(如乌鲁木齐等)人类生产生活等造成的污染信号(李忠勤等,2011)。夏季和秋季来自于天山周边干旱区局地的近距离气团所占比例相对较低,分别占到了43.65%和59.3%,更容易受到中亚地区远距离传输的影响。来自于中亚夏、秋季节生物质燃烧的产物可以短期地改变乌鲁木齐河源区黑碳的浓度,如果再考虑到中亚城市群的碳排放情况,黑碳气溶胶的传输量必然更加可观。由此可见,远源的碳排放可以在适宜条件下对乌鲁木齐河源区黑碳气溶胶浓度产生深远的影响(王圣杰等,2012)。

4 结论(Conclusions)

1) 观测期间乌鲁木齐河源区黑碳浓度均值为 $520 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$,春季、夏季、秋季和冬季的浓度分别为425、536、686和427 $\text{ng} \cdot \text{m}^{-3}$,呈秋季最高,夏季次之,冬、春季低的季节变化特点。日内变化具有明显的双峰双谷特征,在当地时间8:00—9:00和16:00—19:00有两个明显的峰值,两个谷值分别出现在当地时间1:00—3:00和12:00—13:00。

2) 乌鲁木齐河源区黑碳的本底浓度在春季、夏季和秋季分别为253、271和290 $\text{ng} \cdot \text{m}^{-3}$,而冬季黑碳的本底浓度仅为162 $\text{ng} \cdot \text{m}^{-3}$ 。与其他偏远地区相比,乌鲁木齐河源区当地排放源较多,且有着较高的黑碳浓度本底值。

3) 当风速小于 $2 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ 时,黑碳的平均浓度明显偏高。当相对湿度大于55%时,黑碳浓度明显偏低。由浓度权重轨迹分析和AAE值可知,乌鲁木齐河源区的黑碳浓度除了受本地化石燃料燃烧和生物质燃烧排放的影响以外,还可能受到中亚地区远距离传输的影响。

参考文献(References):

- Babu S S, Satheesh S K, Moorthy K K. 2002. Aerosol radiative forcing due to enhanced black carbon at an urban site in India [J]. *Geophysical Research Letters*, 29(18): 27-21
- Bond T C, Doherty S J, Fahey D W, et al. 2013. Bounding the role of black carbon in the climate system: A scientific assessment [J]. *Journal of Geophysical Research Atmospheres*, 118(11): 5380-5552
- Cao J J, Xu B Q, He J Q, et al. 2009. Concentrations, seasonal variations, and transport of carbonaceous aerosols at a remote mountainous region in western China [J]. *Atmospheric Environment*, 43(29): 4444-4452
- Chung C E, Kim S W, Lee M, et al. 2012. Carbonaceous aerosol AAE inferred from in-situ aerosol measurements at the Gosan ABC super site, and the implications for brown carbon aerosol [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 12(14): 4507-4539
- Coen M C, Weingartner E, Apituley A, et al. 2010. Minimizing light absorption measurement artifacts of the Aethalometer: evaluation of five correction algorithms [J]. *Atmospheric Measurement Techniques*, 3: 457-474
- 邓彦阁, 孙天乐, 曾立武, 等. 2012. 华南沿海某大气背景点黑碳气溶胶污染特征 [J]. *环境科学与技术*, 35(11): 79-82
- Draxler R R, Hess G D. 1998. An overview of the hysplit-4 modeling system for trajectories [J]. *Australian Meteorological Magazine*, 47(4): 295-308
- Flanner M G, Zender C S, Randerson J T, et al. 2007. Present-day climate forcing and response from black carbon in snow [J]. *Journal of Geophysical Research Atmospheres*, 112(D11): 1-17
- Gong S L, Zhao T L, Sharma S, et al. 2010. Identification of trends and interannual variability of sulfate and black carbon in the Canadian High Arctic: 1981—2007 [J]. *Journal of Geophysical Research Atmospheres*, 115(D7): 1-9
- Hansen A D A, Rosen H, Novakov T. 1984. The aethalometer—An instrument for the real-time measurement of optical absorption by aerosol particles [J]. *Science of the Total Environment*, 36(1): 191-196
- Hansen A D A, Novakov T. 1990. Real-time measurement of aerosol black carbon during the carbonaceous species methods comparison study [J]. *Aerosol Science & Technology*, 12(1): 194-199
- 高润祥, 牛生杰, 张华, 等. 2008. 2006年春季西北地区黑碳气溶胶的观测研究 [J]. *南京气象学院学报*, 31(5): 655-661
- Kirchstetter T W. 2004. Evidence that the spectral dependence of light absorption by aerosols is affected by organic carbon [J]. *Journal of Geophysical Research Atmospheres*, 109(D21): 1-12
- 李忠勤. 2011. 天山乌鲁木齐河源1号冰川近期研究与应用 [M]. 北京: 气象出版社
- 李忠勤, 李开明, 王林. 2010. 新疆冰川近期变化及其对水资源的影响研究 [J]. *第四纪研究*, 30(1): 96-106
- 刘新春, 钟玉婷, 何清, 等. 2011. 2009年冬季乌鲁木齐大气中黑碳气溶胶观测 [J]. *环境化学*, 30(10): 1818-1819
- Ming J, Xiao C D, Wang F, et al. 2016. Grey Tianshan Urumqi Glacier No. 1 and light-absorbing impurities [J]. *Environmental Science & Pollution Research International*, 23(10): 9549-9558
- Petzold A, Ogren J A, Fiebig M, et al. 2013. Recommendations for reporting “black carbon” measurements [J]. *Atmospheric Chemistry & Physics*, 13(16): 8365-8379
- Qian Y, Yasunari T J, Doherty S J, et al. 2015. Light-absorbing particles in snow and ice: Measurement and modeling of climatic and hydrological impact [J]. *Advances in Atmospheric Sciences*, 32(1): 64-91
- 秦世广. 2001. 我国大陆地区大气黑碳气溶胶观测研究 [D]. 北京: 中国气象科学研究院
- Ramanathan V, Carmichael G. 2008. Global and regional climate changes due to black carbon [J]. *Nature Geoscience*, 1(4): 221-227
- Ramanathan V. 2013. Himalayan-Tibetan glaciers and snowpack system:

- multiple destabilizing influences, fate of mountain glaciers in the anthropocene [J]. *Pontifical Academy of the Sciences*, 118: 1-18
- Russell P B, Bergstrom R W, Shinozuka Y, *et al.* 2010. Absorption angstrom exponent in AERONET and related data as an indicator of aerosol composition [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 10 (3): 1155-1169
- Sandradewi J, Prévôt A S, Szidat S, *et al.* 2008. Using aerosol light absorption measurements for the quantitative determination of wood burning and traffic emission contributions to particulate matter [J]. *Environmental Science & Technology*, 42(9): 3316
- Schwartz J, Litonjua A, Suh H, *et al.* 2005. Traffic related pollution and heart rate variability in a panel of elderly subjects [J]. *Thorax*, 60 (6): 455-461
- Song S, Wu Y, Xu J, *et al.* 2013. Black carbon at a roadside site in Beijing: Temporal variations and relationships with carbon monoxide and particle number size distribution [J]. *Atmospheric Environment*, 77(7): 213-221
- 汤洁, 温玉璞, 周凌晔, 等. 1999. 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*, 10(2): 160-170
- Wang M, Xu B Q, Wang N, *et al.* 2012. Two distinct patterns of seasonal variation of airborne black carbon over Tibetan Plateau [J]. *Science of the Total Environment*, 573: 1041-1052
- Weingartner E, Saathoff H, Schnaiter M, *et al.* 2003. Absorption of light by soot particles: determination of the absorption coefficient by means of aethalometers [J]. *Journal of Aerosol Science*, 34 (10): 1445-1463
- 王圣杰, 张明军, 王飞腾, 等. 2012. 天山典型冰川区雪冰中碳质气溶胶浓度特征研究 [J]. *环境科学*, 33(3): 679-686
- 肖思晗, 于兴娜, 朱彬, 等. 2016. 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*, 37(9): 3280-3289
- 肖秀珠, 刘鹏飞, 耿福海, 等. 2011. 上海市区和郊区黑碳气溶胶的观测对比 [J]. *应用气象学报*, 22(2): 158-168
- 张磊, 张镭, 张丁玲, 等. 2011. 兰州远郊区黑碳气溶胶浓度特征 [J]. *中国环境科学*, 31(8): 1248-1255
- 张骁, 汤洁, 武云飞, 等. 2015. 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*, 21(4): 24-29
- Zhang X, Ming J, Li Z Q, *et al.* 2017. The online measured black carbon aerosol and source orientations in the Nam Co region, Tibet [J]. *Environ Sci Pollut Res Int*, 24(32): 25021-25033
- Zhang X, Rao R, Huang Y, *et al.* 2015. Black carbon aerosols in urban central China [J]. *Journal of Quantitative Spectroscopy & Radiative Transfer*, 150: 3-11
- 张寅生, 康尔泗, 刘潮海. 1994. 天山乌鲁木齐河流域山区气候特征分析 [J]. *冰川冻土*, 16(4): 333-341
- 赵淑雨, 铁学熙, 曹军骥. 2016. 2008-2010年冬季关中地区黑碳气溶胶时间变化的成因分析 [J]. *地球环境学报*, 7(6): 598-604
- Zhao S Y, Ming J, Xiao C D, *et al.* 2012. A preliminary study on measurements of black carbon in the atmosphere of northwest Qilian Shan [J]. *Journal of Environmental Sciences*, 24(1): 152-159
- Zhao S Y, Tie X X, Cao J J, *et al.* 2015. Seasonal variation and four-year trend of black carbon in the Mid-west China: The analysis of the ambient measurement and WRF-Chem modeling [J]. *Atmospheric Environment*, 123: 430-439
- Zhao T L, Gong S L, Huang P, *et al.* 2012. Hemispheric transport and influence of meteorology on global aerosol climatology [J]. *Atmospheric Chemistry & Physics*, 12(16): 7609-7624
- 钟玉婷, 刘新春, 何清, 等. 2011. 2009年夏秋季乌鲁木齐黑碳气溶胶观测研究 [J]. *沙漠与绿洲气象*, 5(6): 32-36
- Zhu C S, Cao J J, Ho K F, *et al.* 2015. The optical properties of urban aerosol in northern China: A case study at Xi'an [J]. *Atmospheric Research*, 160(15): 59-67
- Zhu C S, Cao J J, Hu T F, *et al.* 2017. Spectral dependence of aerosol light absorption at an urban and a remote site over the Tibetan Plateau [J]. *Science of the Total Environment*, 590-591: 14-21