

王杰, 刘建国, 陆亦怀等. 合肥地区沙尘暴降尘过程的大气细粒子谱观测研究. 地球物理学报, 2011, 54(5): 1168~1173, DOI: 10.3969/j. issn. 0001-5733. 2011. 05. 004

Wang J., Liu J. G., Lu Y. H., et al. Particle number size distribution of dustfall aerosol in the suburban area of Hefei. *Chinese J. Geophys.* (in Chinese), 2011, 54(5): 1168~1173, DOI: 10.3969/j. issn. 0001-5733. 2011. 05. 004

合肥地区沙尘暴降尘过程的大气细粒子谱观测研究

王杰, 刘建国*, 陆亦怀, 桂华侨, 伍德侠, 程寅

中国科学院安徽光学精密机械研究所, 中国科学院环境光学与技术重点实验室, 合肥 230031

摘要 2010 年 3 月 20 日至 3 月 28 日, 利用大气细粒子谱分析仪对合肥地区大气细粒子谱进行连续在线观测。观测过程涵盖整个沙尘暴降尘期、间歇性降雨期及晴好天气粒子浓度增长期。颗粒物数浓度分析表明, 沙尘暴降尘期内核模态(Nucleation mode, 5~20 nm)、爱根核模态(Aitken mode, 20~100 nm)和积聚模态(Accumulation mode, 100~1000 nm)粒子浓度分别为 898 cm^{-3} 、 3424 cm^{-3} 、 1587 cm^{-3} , 并未明显高于间歇性降雨期(粒子浓度分别为 255 cm^{-3} 、 1509 cm^{-3} 、 1213 cm^{-3})和晴好天气粒子浓度增长期(粒子浓度分别为 706 cm^{-3} 、 4891 cm^{-3} 、 2468 cm^{-3})。沙尘暴降尘期粗粒子模态(Coarse mode, 1~10 μm)粒子值达到 48 cm^{-3} , 浓度远高于其他观测期。粒谱分析表明: 合肥地区大气细粒子谱呈典型双峰结构, 第一峰值出现在 10~20 nm 之间, 第二峰值出现在 100 nm 左右, 而且不同天气条件下细粒子谱峰值位置略有不同; 沙尘暴降尘期, 粒径 10 nm 以下和 400 nm 以上粒子浓度值高于间歇性降雨期和晴好天气粒子浓度增长期, 而并非只有粗粒子模态粒子浓度高于其他时段。

关键词 沙尘暴, 降尘期, 合肥地区, 大气细粒子谱

DOI: 10.3969/j. issn. 0001-5733. 2011. 05. 004

中图分类号 P401

收稿日期 2010-05-05, 2010-09-03 收修定稿

Particle number size distribution of dustfall aerosol in the suburban area of Hefei

WANG Jie, LIU Jian-Guo*, LU Yi-Huai, GUI Hua-Qiao, WU De-Xia, CHENG Yin

Key Laboratory of Environmental Optics and Technology, Anhui Institute of Optics and Fine Mechanics,
Chinese Academy of Sciences, Hefei 230031, China

Abstract The observation of particle number concentration and size distribution was performed from March 20 to 28, 2010 in Hefei suburban area. The observation period includes the entire sequence of dustfall period, intermittent rainy period, and sunny period which is benefit for the formation of new particles. The analysis of particle number concentration shows that the concentration of Nucleation mode (5~20 nm), Aitken mode (20~100 nm) and Accumulation mode (100~1000 nm) particles during dustfall period was 898 cm^{-3} , 3424 cm^{-3} , and 1587 cm^{-3} , respectively, not obviously higher than those of intermittent rainy (255 cm^{-3} , 1509 cm^{-3} , 1213 cm^{-3}) and sunny period (706 cm^{-3} , 4891 cm^{-3} , 2468 cm^{-3}), but the concentration of Coarse mode particles during dustfall period (48 cm^{-3}) was much higher than that in other periods. The observational results also show that the curves of aerosol particle number size distribution of Hefei are in two-peak pattern. The first peak appears between 10~20 nm, while the second peak appears near 100 nm. The peaks appear at slightly different positions under different weather

基金项目 国家 863 计划(2006AA06A302, 2009AA06A311)和中国科学院知识创新工程重要方向项目(KZCX2-YW-Q02-03)资助。

作者简介 王杰, 男, 1982 年生, 博士研究生, 主要从事大气颗粒物污染监测方面的研究. E-mail: wangjie@aiofm.ac.cn

* 通讯作者 刘建国, 男, 1968 年生, 博士生导师, 研究员, 主要从事环境污染光学监测新技术、目标散射特性及遥感监测技术方面的研究。

E-mail: jgliu@aiofm.ac.cn

conditions. During dustfall period, the number concentration of particle with diameter below 10 nm and above 400 nm is higher than those of other period, not just for Coarse mode particles with diameter above 1 μm .

Keywords Sandstorm, Dustfall period, Hefei, Particle number size distribution

1 引言

气溶胶是大气的重要组成部分,在大气循环和大气物理化学过程中发挥着重要作用,并可以直接或间接地改变地气辐射平衡,从而影响整个气候环境。随着国内经济的迅速发展及工业化进程的不断加快,大气污染特别是纳米级超细颗粒物污染越发严重,国内大中型城市由污染气体引起的光化学烟雾事件频频发生。由于纳米颗粒物所具有的小粒径和高浓度特征,使其对整个生态环境更具危害性^[1, 2]。目前,对于城市大气气溶胶细粒子谱的研究,主要围绕颗粒物源解析、数浓度变化特征以及气象条件对粒谱的影响等展开^[3~8]。而沙尘作为一种典型天气条件下的颗粒污染物,可以通过长距离输送对区域甚至全球气候变化产生重大影响^[9, 10]。国内西北部地区,由于过度放牧,地表植被破坏严重,春季较容易发生沙尘暴事件。目前对沙尘气溶胶数浓度的研究也多集中于沙源地地区和距离沙源地较近的城市地区^[11]。

合肥地处中纬度地带,位于江淮之间,属于暖温带向亚热带的过渡带气候类型,为亚热带季风气候。由于春季冷暖空气活动频繁,导致该地区春季以间歇性降雨气候为主。从地理位置上讲,合肥远离内陆沙尘暴高发区,受沙尘暴侵袭相对较少。目前,关于合肥地区大气颗粒物微物理特征及变化过程的研究较少。谢玉静等利用激光粒度仪对合肥市工业区、居民区等典型功能区的日常大气降尘进行了粒度等方面分析^[12]。至今还未见到关于合肥地区沙尘暴降尘过程大气细粒子谱随时间变化特征的报道。本文利用大气细粒子谱分析仪、能见度仪等观测设备对合肥地区进行了为期 9 天的连续在线测量,获得有效细粒子粒谱数据 1957 组,深入分析了合肥地区沙尘暴降尘期不同粒径段内粒子的时间演变特征,并就沙尘暴降尘期与间歇性降雨期和晴好天气粒子浓度增长期内粒子浓度以及数浓度谱的异同点进行了总结,这可为合肥地区本底大气颗粒物污染及地域性气候特征等的研究提供数据帮助。

2 测量方法

2.1 测量仪器

实验过程中利用中国科学院安徽光学精密机械研究所研制的大气细粒子谱分析仪(Fine Particle Meter, FPM-1 型)对颗粒物粒谱特征进行观测。样气进入粒谱仪后,首先被分为两路,一路气体进入光散射粒子计数器系统(Laser Particle Spectrometer, LPS),在鞘气流的保护下,待测气溶胶粒子垂直通过经光束整形后的标准激光光斑,产生的光散射信号汇聚到光电倍增管上,完成实时脉冲记录,并通过后继分析处理软件将脉冲强度转化为粒径信息,而脉冲个数转化为粒子浓度信息。通过 LPS 系统,可得到 0.35~10 μm 粒径范围内的大气细粒子谱。另一路气体经惯性粒子撞击器粗分级并经电荷中和源荷电后,进入差分电迁移(Differential Mobility Analyzer, DMA)系统,根据粒子电迁移率的不同进行粒径分级。由于经 DMA 分级后粒子粒径低于光散射技术的检测下限,故需要借助冷凝粒子计数器(Condensation Particle Counter, CPC)系统。DMA 分级后的粒子经过 CPC 粒子冷凝区时在正丁醇过饱和蒸汽的作用下,粒径瞬间增大至几个甚至几十个微米,并通过光散射粒子计数获得粒子的数浓度。综上,利用大气细粒子谱分析仪,可以实现 5 nm~10 μm 范围内粒子数浓度谱的测量。

2.2 实验地点及时间

观测点位于合肥市西郊董铺岛上,距离市中心直线距离约为 14 km。董铺岛为中国科学院合肥物质科学研究院驻地,岛上植被茂盛,三面环水,空气较为洁净,无明显污染源,平常作为合肥市环境监测中心的空气监测对照点,所测粒谱可以直观反映出合肥本底颗粒物特征。本次实验观测仪器安放在中国科学院安徽光学精密机械研究所 1 号楼(31°54'N, 117°09'E),其中,大气细粒子谱分析仪、能见度仪和气象自动观测站放置于 5 楼楼顶,探头距离地面高度约为 20 m。

2010 年 3 月 19 日,南疆盆地东部、青海中北部局地、甘肃中部、宁夏北部、陕西北部、内蒙古中西部

等地遭遇沙尘天气,局部地区发生沙尘暴。至3月20日,沙尘暴落尘区域已经扩展至合肥。2010年3月20日12:00至3月28日22:00,利用大气细粒子谱分析仪、能见度仪(Vaisala PWD22),对合肥地区大气粒子谱、大气能见度进行连续监测。粒谱仪颗粒物粒径监测范围为5 nm~10 μm ,时间分辨率为6 min;能见度监测上限20 km,时间分辨1 min。同时,利用自动气象站获取观测点温湿度及风速风向信息。

3 实验结果分析

图1给出了整个观测期内大气能见度随时间的变化。结合气象信息,可将整个观测期粗划分为三个典型的天气过程时段,即:(1)3月20日(观测实验自3月20日12:00开始)至22日18:00,合肥地区主要受到北方沙尘暴降尘过程的影响,此过程可称为沙尘暴降尘期。从图1看出,降尘期内大气能见度较低,基本稳定在5 km以下,且随着时间的推移能见度逐渐好转;(2)3月22日18:00至3月24日22:00,合肥地区出现间歇性降雨过程,54 h内降雨量总计为21 mm,此过程可定义为间歇性降雨期。尽管降雨对空气中颗粒物有一定清除作用,但是降雨过程中空气湿度较大,受颗粒物、雨滴、雾气等共同消光作用,该时段大气能见度仍旧较低;(3)3月25日22:00至3月28日22:00,主要以晴好天气为主。降雨过程结束后,颗粒物浓度整体较低。晴好天气下,大气中光化学作用增强,有利于新粒子的形成,故该时段可定义为晴好天气粒子浓度增长期。该时段内大气能见度较好,日均值为10 km,峰值可达

20 km。整个观测期间合肥地区平均温度为10 °C,温度变化范围为5~16 °C。

3.1 大气细粒子数浓度变化

不同粒径大小的颗粒物,其来源、成分、物理化学特性及其在大气中的存在时间不同,受气象因素的影响也不同,按照颗粒物粒径大小,可将颗粒物分为四个模态,即核模态(Nucleation mode, 5~20 nm)、爱根核模态(Aitken mode, 20~100 nm)、积聚模态(Accumulation mode, 100~1000 nm)、粗粒子模态(Coarse mode, 1~10 μm)^[3, 13]。

图2中给出了各模态粒子浓度随时间的变化。对于核模态粒子,其浓度主要受空气中均相和非均相成核过程的影响,可直接反映出大气中新粒子的生成过程;同时,机动车尾气排放也将对其浓度产生影响^[14, 15]。核模态粒子不稳定,可通过碰撞凝并迅速长大到爱根核模态。尽管沙尘暴降尘期近地面太阳辐射相对较弱,大气中光化学反应较低,核模态粒子并未显出明显的日变化特征^[16],但由于沙尘暴之前污染物的积聚,使得核模态粒子浓度总体水平较高。整个沙尘暴降尘期核模态粒子平均浓度为898 cm^{-3} 。间歇性降雨过程中,新粒子的生成速率非常低,且观测点附近交通流量非常小,汽车尾气排放对核模态粒子浓度的贡献也可以忽略,故该时段内核模态粒子浓度值一直稳定在一个较低值附近。降雨过程中平均浓度为255 cm^{-3} ,较沙尘暴降尘期粒子浓度降低71.6%。间歇性降雨过程结束,随着近地面大气太阳辐射的不断增强,核模态粒子浓度迅速增加,但由于雨后粒子背景浓度值较低,其平均浓度仍低于沙尘暴降尘期。对于爱根核模态粒子,在无明显污染源的情况下,浓度受到人为活动和核模态粒子增长

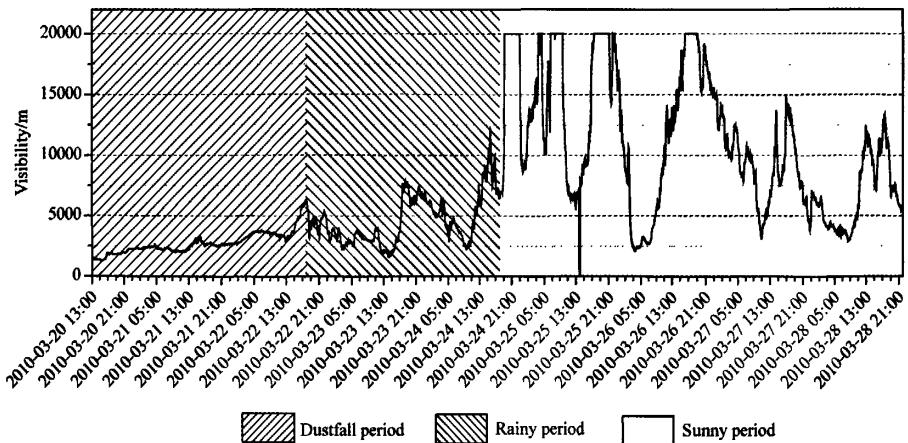


图1 观测期内大气能见度随时间的变化

Fig. 1 The variation of the visibility with time during observation period

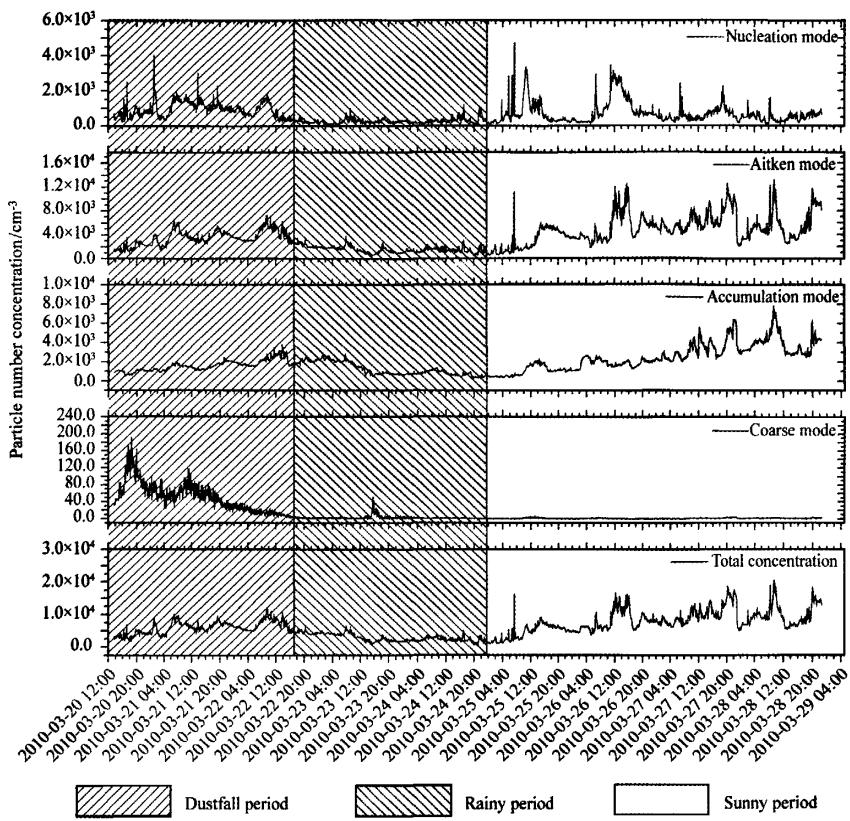


图2 观测期内合肥地区大气细粒子各模态粒子浓度变化趋势图

Fig. 2 Changes of aerosol particle concentration in each mode with time during observation period

的双重作用,数浓度日平均变化曲线通常为三峰值结构^[16]。从表1中可以看出,爱根核模态粒子以晴好天气粒子浓度增长期浓度最高,其次为沙尘暴降尘期,间歇性降雨期最小。降雨过程中,爱根核模态粒子浓度较沙尘暴降尘期下降55.0%。积聚模态粒子在大气中最稳定,停留时间最长,其日平均变化不明显,受大气垂直对流强度和大气边界层高低日变化的影响,基本呈现白天低夜间高的特点。但三个观测时段相比,积聚模态粒子仍旧以晴好天气粒子浓度增长期最高,其次为沙尘暴降尘期,间歇性降雨期最少,间歇性降雨过程前后粒子浓度下降23.6%,这与半干旱区沙尘暴降尘期的分布略有不同^[17]。而对于粒径最大的粗粒子模态,沙尘暴降尘期浓度平均值达到 50 cm^{-3} ,由于粒子粒径较大,粗粒子模态粒子主要通过自身的干湿沉降去除,而在间歇性降雨期和晴好天气粒子浓度增长期,粗粒子模态粒子浓度可以忽略。上述颗粒物数浓度分析表明,与间歇性降雨期和晴好天气粒子浓度增长期相比,沙尘暴降尘期内核模态、爱根核模态和积聚模态粒子浓度并未明显高于其他时段,但粗粒子模态粒子浓度远高

表1 观测期间典型天气条件下各模态粒子

平均浓度(单位: cm^{-3})Table 1 The average number concentrations in each mode under different weather conditions during observation period (unit: cm^{-3})

	核模态	爱根核模态	积聚模态	粗粒子模态	总粒子浓度
沙尘暴降尘期	898	3424	1587	48	5957
间歇性降雨期	255	1509	1213	2	2979
晴好天气粒子浓度增长期	706	4891	2468	1	8067

于其他时段,即沙尘暴降尘期的污染还是以粒径在 $1\text{ }\mu\text{m}$ 以上的颗粒物污染为主。

此外,沙尘暴后的降雨过程中各模态粒子浓度都有不同程度的降低,粗粒子模态浓度降低最为明显,这一方面是由于降雨环境下颗粒物吸湿后自身干湿沉降作用加强,另一方面是雨水直接对大颗粒物的冲刷作用;其次为核模态,主要是由于降雨阶段大气光化学作用较弱,潮湿的环境不利于新颗粒物的生成,同时潮湿的环境又会使核模态粒子迅速长

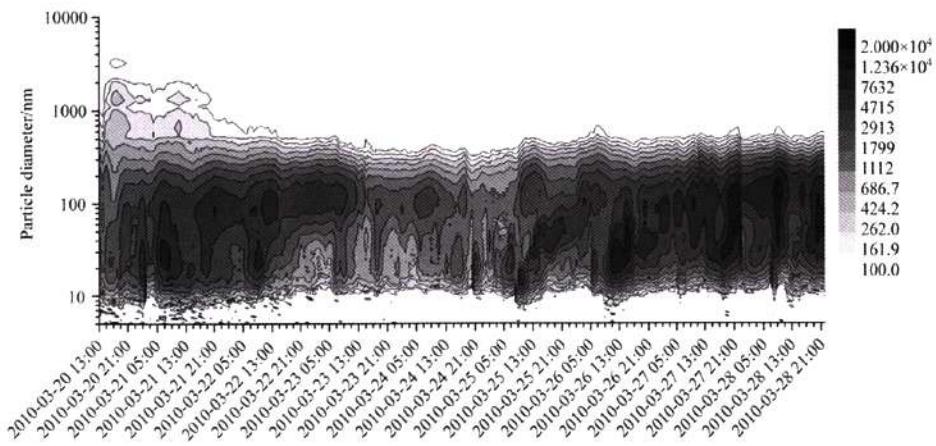


图 3 观测期内合肥地区大气细粒子谱随时间的变化图

Fig. 3 The variation trend of particle number size distribution with time during observation period

大,降低自身浓度;再次为爱根核模态,最后为积聚模态.基于积聚模态粒子特殊的粒径尺度,小粒径粒子浓度增长后对其浓度的贡献可以抵消潮湿环境粒子长大及雨水冲刷引起的自身浓度的降低.

3.2 大气细粒子谱特征

图 3 给出了合肥地区大气细粒子谱随时间的变化.从图中可以看出,整个观测期内合肥地区大气细粒子粒径稳定分布在 10~500 nm 之间,且细粒子数密度谱峰值浓度主要分布在 20~100 nm 以下,由此可以得出,合肥地区大气细粒子本底仍以爱根核模态粒子为主.对于 500 nm 以上的粗颗粒物,沙尘暴降尘期粒子数浓度明显高于其他两个时段,且沙尘暴降尘期内该粒径段内粒子浓度随时间的推移逐渐降低,这主要是颗粒物自身重力沉降的结果.对于 10~500 nm 范围内的颗粒物,晴好时段粒子浓度增长期数密度最高,其次为沙尘暴降尘时段,最低值出现在间歇性降雨时段.降雨过程中,粒子数浓度以及分布范围都有不同程度的降低.

图 4 给出了观测期内三个特征时段大气细粒子平均数浓度谱.从图中可以看出,沙尘暴降尘期、间歇性降雨期、晴好天气粒子浓度增长期大气细粒子数浓度谱均为双峰结构.颗粒物浓度及粒径分布主要受到气象条件、局地污染源、均相及非均相成核作用的影响.图 4 中粒谱第一峰值主要出现在 40 nm 以下,其形成与大气中气相成核过程密切相关,大气中气粒转化的速度将直接影响其生成速率,同时,不同的天气状况也将影响新生成粒子的粒径增长速率;第二峰值主要出现在 100 nm 左右,其形成主要受核模态粒子粒径增长过程及人为活动(如机动车尾气排放、厨房油烟排放等)的影响.

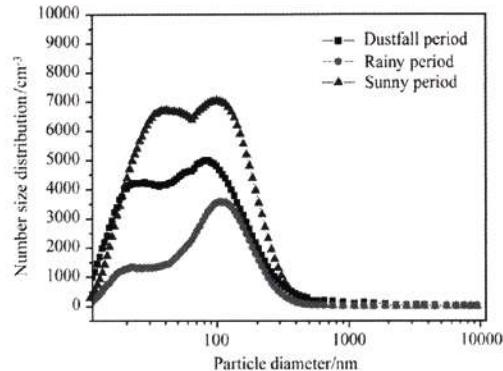


图 4 观测期内合肥地区大气细粒子谱

Fig. 4 The curves of particle number size distribution under different weather conditions during observation period

沙尘暴降尘期,第一峰值位置出现在 10~20 nm 之间,峰值平均浓度为 4200 cm^{-3} ,第二峰值出现在 100 nm 左右,峰值平均浓度为 5000 cm^{-3} .间歇性降雨期,第一峰值位置与沙尘暴降尘期相比无明显变化,仍旧分布在 10~20 nm 之间,但峰值平均浓度远低于沙尘暴降尘期,为 1300 cm^{-3} ,这主要是因为与沙尘暴降尘期相比,间歇性降雨时段近地面大气中用于产生新粒子的光化学作用更低,而此粒径段内的粒子不稳定,可通过碰撞凝并和吸湿作用使自身粒径迅速增大;第二峰值仍旧出现在 100 nm 附近,但峰值粒径略大于沙尘暴降尘期第二峰值粒径,这同样可以理解为颗粒物碰撞凝并和吸湿长大的结果.晴好天气粒子浓度增长期,第一峰值位置较沙尘暴降尘期和间歇性降雨期明显往大粒径方向偏移,峰值位置出现在 20~40 nm 之间,峰值平均浓度达到 6700 cm^{-3} ;第二峰值位置与间歇性降雨期

基本相同,峰值为 7100 cm^{-3} 。从图中还可以看出,沙尘暴降尘期内粒径在 20~400 nm 之间的颗粒物浓度介于间歇性降雨期和晴好天气粒子浓度增长期之间,而粒径 20 nm 以下和 400 nm 以上粒子浓度却明显高于其他时段。

4 结 论

2010 年 3 月 20 日至 3 月 28 日,对合肥地区大气细粒子谱进行了为期 9 天的连续在线观测,共取得粒谱有效数据 1957 组。结合能见度等气象信息,将整个观测过程分为三个典型天气时段,即沙尘暴降尘期、间歇性降雨期及晴好天气粒子浓度增长期。

(1) 颗粒物数浓度分析表明,沙尘暴降尘期核模态、爱根核模态和积聚模态粒子浓度并未明显高于间歇性降雨期和晴好天气粒子增长期,但粗粒子模态($1\sim10 \mu\text{m}$)粒子浓度远高于其他时段。

(2) 粒谱结果分析表明:合肥地区大气细粒子谱呈典型双峰结构,第一峰值出现在 10~20 nm 之间,第二峰值出现在 100 nm 粒径左右,而且不同天气条件下细粒子谱峰值位置略有不同;沙尘暴降尘期,粒径 10 nm 以下和 400 nm 以上粒子浓度值高于间歇性降雨期和晴好天气粒子增长期。

(3) 降雨过程对沙尘暴降尘过程中大气颗粒物的直接或间接清除作用明显,粗粒子模态粒子浓度下降最高,其他依次为核模态、爱根核模态和积聚模态,但降雨过程中各模态粒子浓度降低原因有所不同。

参考文献(References)

- [1] Ibalid-Mulli A, Wichmann H E, Kreyling W, et al. Epidemiological evidence on health effects of ultrafine particles. *Journal of Aerosol Medicine*, 2002, **15**(2): 189~201
- [2] Wichmann H E, Peters A. Epidemiological evidence of the effects of ultrafine particle exposure. *Philos. Trans. R. Soc. Lond.*, 2000, **358**(1775): 2751~2769
- [3] Wu Zh J, Hu M, Lin P, et al. Particle number size distribution in the urban atmosphere of Beijing, China. *Atmospheric Environment*, 2008, **42**: 7967~7980
- [4] Shi Z B, He K L, Yu X Ch, et al. Diurnal variation of number concentration and size distribution of ultrafine particles in the urban atmosphere of Beijing in winter. *Journal of Environmental Science*, 2007, **19**: 933~938
- [5] Liu Sh, Hu M, Wu Zh J, et al. Aerosol number size distribution and new particle formation at a rural/coastal site in Pearl River Delta (PRD) of China. *Atmospheric Environment*, 2008, **42**: 6275~6283
- [6] Gao J, Wang T, Zhou X H, et al. Measurement of aerosol number size distribution in the Yangtze River delta in China: Formation and growth of particles under polluted conditions. *Atmospheric Environment*, 2009, **43**: 829~836
- [7] Wehner B, Wiedensohler A, Tuch T M. Variability of aerosol number size distribution in Beijing, China: New particle formation, dust storms, and high continental background. *Geophysical Research Letters*, 2004, **31**, L22108, doi: 2004GL021596
- [8] Hoffmann C, Funk R, Sommer M, et al. Temporal variations in PM10 and particle size distribution during Asian dust storm in Inner Mongolia. *Atmospheric Environment*, 2008, **42**: 8422~8421
- [9] Lohmann U, Feichter J. Global indirect aerosol effects: a review. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2005, **5**: 715~717
- [10] Shao Y, Dong C H. A review on East Asian dust storm climate, modeling and monitoring. *Global and Planetary Change*, 2006, **52**: 1~22
- [11] Zhang X Y, Gong S L, Shen Z X, et al. Characterization of soil dust aerosol in China and its transport and distribution during 2001 ACE-Asia: 1. Network observations. *Journal of Geophysical Research*, 2003, **108** (D9), 4261, doi: 10.1029/2002JD002632
- [12] 谢玉静, 朱继业, 王腊春. 合肥市大气降尘粒度特征及污染来源. *城市环境与城市生态*, 2008, **21**(1): 30~33
Xie Y J, Zhu J Y, Wang L C. Characteristic of grain size and pollution source apportionment of atmospheric dust of Hefei. *Urban Environment & Urban Ecology* (in Chinese), 2008, **21**(1): 30~33
- [13] Whitey K T. The physical characteristics of sulfur aerosols. *Atmospheric Environment*, 2007, **41**: 25~49
- [14] Wehner B, Birmili W, Gnauk T, et al. Particle number size distributions in a street canyon and their transformation into the urban-air background: measurements and a simple model study. *Atmospheric Environment*, 2002, **36**: 2215~2223
- [15] Wenner B, Philippin S, Wiedensohler A, et al. Variability of non-volatile fractions of atmospheric aerosol particles with traffic influence. *Atmospheric Environment*, 2004, **38**: 6081~6090
- [16] 王杰, 刘建国, 陆亦怀等. 北京奥运期间大气细粒子谱与能见度、PM10 质量浓度对比分析. *光学学报*, 2010, **30**(7): 1931~1937
Wang J, Liu J G, Lu Y H, et al. Analysis of aerosol particle size distribution, visibility and mass concentration of PM10 in Beijing city during Beijing 2008 Olympics. *Acta Optica Sinica* (in Chinese), 2010, **30**(7): 1931~1937
- [17] 邱玉珺, 牛生杰, 岳平等. 半干旱区春季沙尘气溶胶谱分布的观测研究. *中国环境科学*, 2009, **29**(10): 1021~1028
Qiu Y J, Niu Sh J, Yue P, et al. Size distribution of dust aerosol particles in semi-arid region in spring. *China Environmental Science* (in Chinese), 2009, **29**(10): 1021~1028

(本文编辑 何 燕)