

华东高海拔地区夏季气溶胶数浓度及谱分布特征

杨素英^①,张铁凝^{①*},李艳伟^①,赵秀勇^②,余欣洋^①,王启花^①

① 南京信息工程大学 气象灾害教育部重点实验室/气候与环境变化国际合作联合实验室/气象灾害预报预警与评估协同创新中心/中国气象局气溶胶与云降水重点开放实验室,江苏 南京 210044;

② 国家环境保护研究院 国家环境保护大气物理模拟与污染控制重点实验室,江苏 南京 210031

* 联系人, E-mail: ztniris@163.com

2016-06-21 收稿, 2016-10-09 接受

国家自然科学基金资助项目(41575133;41275152);公益性行业(气象)科研专项(GYHY201206004)

摘要 利用2014年7月黄山光明顶观测获得的气溶胶数浓度、气溶胶数谱数据,对黄山夏季气溶胶数浓度及谱分布特征进行分析,并在此基础上对气溶胶数谱进行了对数正态分布拟合。研究表明:黄山夏季气溶胶平均数浓度约为 $3\,518.27\text{ cm}^{-3}$,主要集中在爱根核模态;气溶胶平均数浓度日变化呈双峰分布,峰值浓度的出现伴随着小粒子的增多。气溶胶数浓度与相对湿度和风速成负相关,高浓度的气溶胶多出现在较弱的东南风时;积聚模态气溶胶数浓度受风向影响显著。不同气团背景下气溶胶数谱差异集中在小于 100 nm 和 $500\sim 1\,000\text{ nm}$ 粒径范围。爱根核模态气溶胶在高湿的西南气团影响下数浓度最低、谱较窄,而高温、低湿的东南气团对应的气溶胶数浓度最高、谱最宽,北方气团对应的气溶胶数浓度和谱宽居中; $500\sim 1\,000\text{ nm}$ 粒径范围气溶胶数谱分布特征与之相反。不同背景的气溶胶数谱和体积谱均可采用爱根模态、积聚模态1和积聚模态2三个模态进行对数正态分布拟合,但不同气团背景下的各模态谱型参数差异较大。

关键词

华东;
高海拔地区;
气溶胶;
数谱分布;
对数正态分布

气溶胶谱分布是描述大气气溶胶粒径分布重要的特征函数,是影响气溶胶在大气环境中理化特性的重要参数(Penttinen et al., 2001; Nishita et al., 2007)。气溶胶谱分布记录了气溶胶来源及其在大气中的演化过程,这些信息与气溶胶的光学性质和气候效应密切相关(Bian et al., 2014)。悬浮在大气中的颗粒物通过凝结、碰并和悬浮增长,改变气溶胶消光系数造成大气能见度的降低(Levoni et al., 1997)。此外,气溶胶粒子粒径的变化能够改变其吸收和散射短波辐射的能力,影响辐射平衡造成直接气候效应(Charlson et al., 1992; Haywood and Boucher, 2000)。气溶胶间接气候效应取决于气溶胶活化成核的能力,而粒径是影响气溶胶成核的主导因素(McFiggans et al., 2006; 江琪等, 2014)。气溶胶的粒径变化造成云滴谱分布和云生命时间的变

化,改变云反照率,对环境气候造成影响(Lohmann and Feichter, 2005; Andreae and Rosenfeld, 2008)。伴随着经济的发展,人为气溶胶的增多导致我国近年来雾霾事件的频发(Liu et al., 2013),大量的气溶胶颗粒物不但影响环境质量,更是危害人体健康(Delfino et al., 2005; Rd and Dockery, 2006)。

为深入理解气溶胶在大气中的行为机制,迄今为止很多学者已开展了气溶胶数浓度和谱分布的研究。Hussein et al. (2005)根据实际大气颗粒物的谱分布情况,将大气颗粒物按不同粒径大小分为核模态、爱根核模态、积聚模态和粗粒子模态。Kivekäs et al. (2009)对青海的瓦里关山进行的研究发现大气颗粒物平均数浓度约为 $2\,030\text{ cm}^{-3}$; Birmili et al. (2003)在德国的莱比锡对气溶胶的持续了近10 a的观测。许多研究表明,气溶胶谱分布具有明显的

引用格式: 杨素英,张铁凝,李艳伟,等,2017.华东高海拔地区夏季气溶胶数浓度及谱分布特征[J].大气科学学报,40(3):379-389.

Yang S Y, Zhang T N, Li Y W, et al., 2017. Characteristics of aerosol number concentration and size distribution in summer in high altitude regions of East China[J]. Trans Atmos Sci, 40(3): 379-389. doi: 10.13878/j.cnki.dqkxxb.20160621001. (in Chinese).

季节性特征,且其季节性变化与气团来源和局地天气条件密切相关,春季和夏季的气溶胶生成在频率最高(Guenther et al., 1996; Laakso et al., 2003)。许黎等(2002)使用光学颗粒物计数器针对北京春季和秋季的 $0.3 \sim 10 \mu\text{m}$ 粒径范围内的颗粒物数浓度进行了比较,结果表明颗粒物数浓度与局地气象因素有较大关系。吴志军(2007)等通过分析气团对北京颗粒物数谱分布的影响时发现,当气团来源于清洁地区时,数谱表现以核模态气溶胶为主;而当气团来源是北京附近时,数谱以爱根核模态颗粒物为主。Birmili et al. (2001)通过分析气团来源对欧洲颗粒物数谱分布影响时发现,当气团来源于大西洋时,爱根核模态气溶胶数浓度较高而积聚模态颗粒物数浓度较低;而当气团来源是俄罗斯时,受到途径地区的影响积聚模态数浓度较高。还有研究发现,积聚模态颗粒物受气团传输的影响较大,这是由于积聚模态在大气中有着比爱根核模态和核膜态更长的停留时间(刘婷等, 2013)。近年来,国外的研究者利用多模态对数正态分布对气溶胶数谱进行拟合(Wehner and Wiedensohler, 2002; Hussein et al., 2003; Birmili et al., 2009; Venzac et al., 2009),对气溶胶数浓度谱进行更为深入的分析,为数值模式和空气质量预报提供可靠的气溶胶数谱参数化方案,但类似的研究国内还较少(Wu et al., 2008; Sun et al., 2013),且大部分集中在污染背景下的华北、华东等地(沈小静, 2012; 颜金培等, 2013; 王红磊等, 2014)。

我国区域性污染情况显著,华东地区污染比较严重,黄山地处华东地区,但由于其海拔较高,远离污染源区,使得环境受人为影响较小,气溶胶的采样更具有区域代表性。因此,本文在黄山设立观测点,展开研究工作,利用2014年7月在黄山光明顶宽粒径质谱仪(Wide-range particle Spectrometer 1000XP, WPS)观测获得的气溶胶数浓度及谱分布数据和黄山光明顶气象观测站提供的常规气象要素数据,对影响该地区的气溶胶谱分布特征进行分析,旨在获得区域背景气溶胶的物理特性,并以提供参数化方式为模式提供支撑。

1 观测点和观测仪器

1.1 观测地点

黄山位于安徽省南部山区,地处于亚热带季风气候区。由于山高谷深,气候垂直变化明显。同时由于北坡和南坡受阳光的辐射差大,局部地形对其

气候起主导作用,形成云雾多、湿度大、降水多的气候特点。黄山地区年均气温 7.8°C ,夏季平均温度为 25°C ,夏季最高气温 27°C ,黄山光明顶气象站年降雨量 $2\,369.3\text{ mm}$,其中夏季平均降水量为 $1\,099\text{ mm}$ 。本研究观测点设在黄山光明顶($118^{\circ}09'\text{E}$, $30^{\circ}08'\text{N}$),观测站海拔为 $1\,840\text{ m}$,观测时间为2014年7月7—27日。本文使用的资料包括气溶胶数浓度及数谱分布数据和常规气象要素等观测数据。

1.2 仪器介绍

气溶胶数据使用美国MSP公司生产的宽范围粒径谱仪(WPS)进行测量,仪器由3个部分组成:激光颗粒光谱仪(LPS)、凝结核计数器(CPC)和微分迁移率分析仪(DMA)。测量粒径范围为 $0.01 \sim 10 \mu\text{m}$,本次观测设定了67档,观测时间分辨率为 5 min ,本文使用的数据是 $0.01 \sim 3.24 \mu\text{m}$ 的气溶胶数谱数据。

气象资料由黄山气象站提供,包括温度、压强、湿度、风速风向、天气现象、降水量等数据。观测期间除了7月1—9日、7月11—16日、7月20—21日、7月23—26日有降水过程外,其余时间均为多云或晴好天气。边界层高度(PBL)采用NOAA HYSPLIT model的模式计算结果(Ye et al., 2013)。

2 结果与讨论

2.1 后向轨迹分析

由于不同区域的气溶胶物理化学特征有很大的差异,因此在不同的气团来源影响下的黄山光明顶气溶胶数谱分布特征也会有很大的差异,本文首先应用美国海洋与大气管理署(NOAA)开发的混合型单粒子拉格朗日综合轨迹模式HYSPLIT-4.9 (Hybrid Single-Particle Lagrangian Intergrated Trajectory)对观测期间气溶胶的气团来源进行了分类(图1),气团后向轨迹分析采用单机版HYSPLIT-4.9,使用数据来自美国国家海洋和大气管理局(NOAA, <ftp://arlftp.arlhq.noaa.gov/pub/archives/gdas1>)。模式计算观测期间到达黄山的36 h后向轨迹,轨迹计算的起始高度为距地高度 $1\,500\text{ m AGL}$ (Above Ground Level),对应黄山光明顶高度(文彬等, 2012),根据气团的移动速度和方向对计算得到的后向轨迹进行聚类分析,并对其大量轨迹进行分组,得到不同的轨迹输送组来估计污染物的潜在源区(Draxler and Hess, 1997)。研究表明,影响黄山夏季的主要气团分别起源于湖北地区的近距离气团(北方气团)、来自广东、途经江西地区的气

团(西南气团)、以及来自东部沿海地区的近距离气团和来自南海,途径东海、浙江到达黄山的气团(东南气团)。其中东南方向的气团主要是由边界层低层空气逐渐向高层输送或者是周围气团平流输送而来;西南气流主要来自于低层逐渐向高层的输送作用;北方气团主要来自于高层远距离的输送。由于影响黄山夏季的气团来源不同,会导致不同气团背景的气溶胶理化特征差异较大。

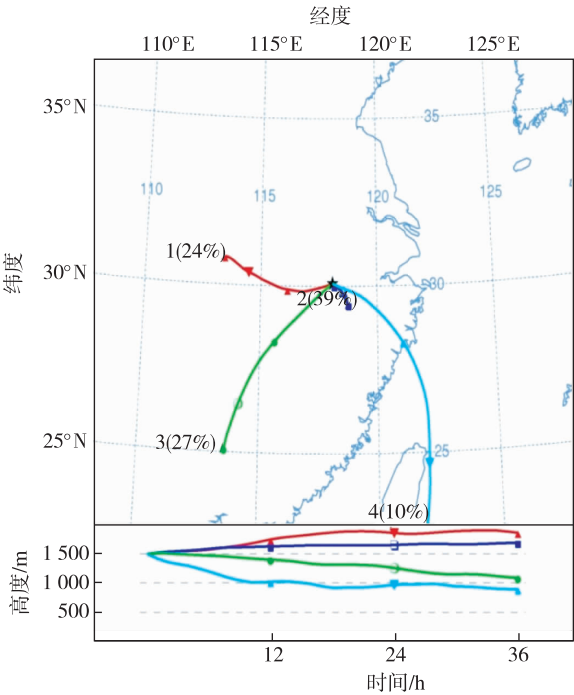


图1 观测点气团轨迹聚类分析
Fig.1 Clustering analysis of air mass trajectories at the observation site

2.2 气溶胶数浓度分布特征

为研究不同粒径颗粒物浓度的特征,按照定义将气溶胶分类为爱根核模态(<100 nm);积聚模态(100~1 000 nm);粗模态(>1 000 nm)。表1为在观测期间气溶胶数浓度分布统计表,黄山地区夏季气溶胶平均数浓度约为3 518.27 cm⁻³,爱根核模态(<100 nm)占56.0%;积聚模态(100~1 000 nm)占44.0%。从表1中可以看出颗粒物主要集中在爱根核模态,其次为积聚模态。这是由于夏季温度高,有利于新粒子生成,爱根核模态粒子较多,且夏季的雨水能有效地清除积聚模态的粒子造成的。表2比较了本研究与国内其他研究的观测结果。对比发现:本研究观测到的黄山夏季爱根核模态和积聚模态的粒子数浓度远低于国内大多数污染背景城市观测结果,而与瓦里关的气溶胶观测结果较为接近。此外,与同为高海拔地区的泰山观测结果进行对比发现,

黄山地区气溶胶数浓度偏小。研究表明,一年之中气溶胶数浓度的最低值往往出现在夏季(Wehner and Wiedensohler,2002;Wu et al.,2008),且由于黄山光明顶观测点海拔高于泰山观测点,山顶大气受到周围环境污染影响较小,导致污染物浓度处于较低水平。

表1 气溶胶数浓度分布统计表

粒径范围/nm	平均数浓度/cm ⁻³	平均值所占百分比/%
<100	1 968.73	56
100~1 000	1 548.98	44
>1 000	0.56	0

表2 不同地区不同粒径范围气溶胶数浓度的观测结果

Table 2 Comparison of number concentrations of particles of different size ranges at different sites

地区	粒径/nm	数浓度/cm ⁻³	参考文献
广州	20~100	21 000	Yue et al.,2013
	100~1 000	6 000	
	3~1 000	27 000	
北京	3~20	9 000	Wu et al.,2008
	20~100	15 900	
	100~1 000	7 800	
济南	3~1 000	32 700	Xu et al.,2011
	10~20	1 125	
	20~100	10 275	
上海	100~2 500	4 313	Gao et al.,2009
	10~2 500	15 725	
	10~20	15 521	
泰山	20~100	12 990	高健,2008
	100~1 000	1 744	
	10~1 000	30 059	
泰山	10~100	5 193	沈小静,2012
	100~500	1 419	
	10~500	6 612	
泰山	3~25	1 950	Kivekäs et al.,2009
	25~100	5 075	
	100~1 000	3 715	
瓦里关	3~1 000	10 740	本研究
	12~21	570	
	21~95	1 060	
瓦里关	95~570	430	本研究
	12~570	2 030	
	10~100	1 968.73	
黄山	100~1 000	1 548.98	本研究
	10~1 000	3 518.27	

分析观测资料可以计算得到10~1 000 nm气

溶胶粒子平均数浓度和数谱分布的日变化,如图2所示。结果表明,黄山地区气溶胶数浓度和数谱分布具有明显的日变化特征。平均数浓度的日变化呈双峰分布,气溶胶数浓度峰值的出现都伴随着小粒子的增多。气溶胶平均数浓度从06时开始升高,11时左右达到一天中的第一个峰值,这里的数谱分布能够看出60 nm以下的小粒子浓度明显上升,意味着可能是新粒子事件造成的;从12时开始,爱根核模态的气溶胶逐渐老化,开始向积聚模态转化,在17时气溶胶达到第一个峰值浓度,之后在20时达到第二个峰值浓度,随后在夜间气溶胶数浓度逐渐降低直至第二天日出前。因观测点位于山顶,气溶胶数浓度会受到气流的平流输送(图1)、边界层高度变化(图3)等因素共同影响。其中观测期间白天边界层高度在日出后逐渐增加,造成黄山周围地区地面污染物被垂直输送到较高高度,然后借助平流作用携带传输路径上的污染物一起到达黄山,或者单纯依靠平流输送作用将沿途的污染物输送至黄山,造成观测点气溶胶数浓度逐渐增加和累积;夜间随着边界层高度逐渐降低,气溶胶数浓度先维持定常,然后逐渐减降低,在下一个日出前达到浓度最低值(图2)。

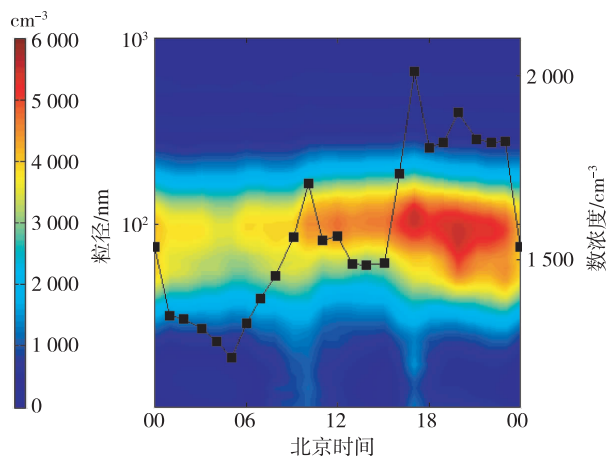


图2 气溶胶平均数浓度和谱分布的日变化分布

Fig.2 Daily variations of average particle number concentration and size distribution

2.3 不同气象要素对气溶胶数浓度的影响

不同的气象条件对气溶胶数浓度都有着重要的影响。温度可从多方面对气溶胶分布产生影响,如温度的垂直变化可以形成对流,使边界层以下的气溶胶混合(Mäkelä et al., 1997)。对流层内的风速和风向是气溶胶数浓度谱分布的重要影响因素,风向与地理位置及气候特征有关,某些特定的风向往往会导致气溶胶浓度上升(章澄昌和周文贤, 1995)。

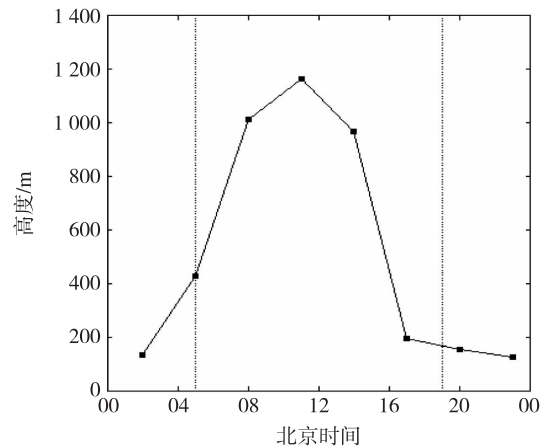


图3 观测期间黄山边界层高度的日变化特征(图中的两条虚线分别为日出、日落时间)

Fig.3 Daily variations of planetary boundary layer height at Mt. Huang during observation time (The two dashed lines denote sunrise time and sunset time respectively.)

相对湿度对吸湿性和溶解性气溶胶粒子的尺度有着重要的影响(银燕等, 2010),随着相对湿度的增大,气溶胶粒子的尺度也随之增加。黄山光明顶海拔高度较高,远离交通排放源,气溶胶数浓度会受到平流输送、山谷风和边界层高度变化等因素的共同影响,而且黄山相对湿度常年较高,因此本文选择相对湿度、风速和风向等气象要素作为研究对象,研究不同气象要素对气溶胶数浓度的影响特征。

观测期间黄山光明顶平均温度约为18℃,日最高温度一般出现在12时,日最低温度一般出现在05时;相对湿度观测值均超过80%,甚至可以达到100%(图4a)。对比相对湿度(图4a)和气溶胶数浓度(图4c)的变化可以发现,气溶胶数浓度和相对湿度呈负相关分布特征,一方面高的相对湿度通常伴随着降水过程,而降水过程能有效地降低气溶胶数浓度;另一方面有相关研究指出高相对湿度有利于气溶胶粒子之间的相互碰撞、聚并,从而导致气溶胶数浓度的减少(Li et al., 2011)。

由采样期间平均风速、风向时间演变特征(图4b)、观测期间不同粒径气溶胶粒子的数浓度与风速、风向的关系分布特征(图5)进行综合分析发现,采样期间光明顶的平均风速为4.9 m/s,主导风向为西北风和偏东风。风速与气溶胶数浓度变化趋势成负相关关系,风速较小时,大气水平扩散能力较弱,能够造成污染物累积,气溶胶数浓度较高,反之当风速较大时,大气水平扩散能力强,进而气溶胶越

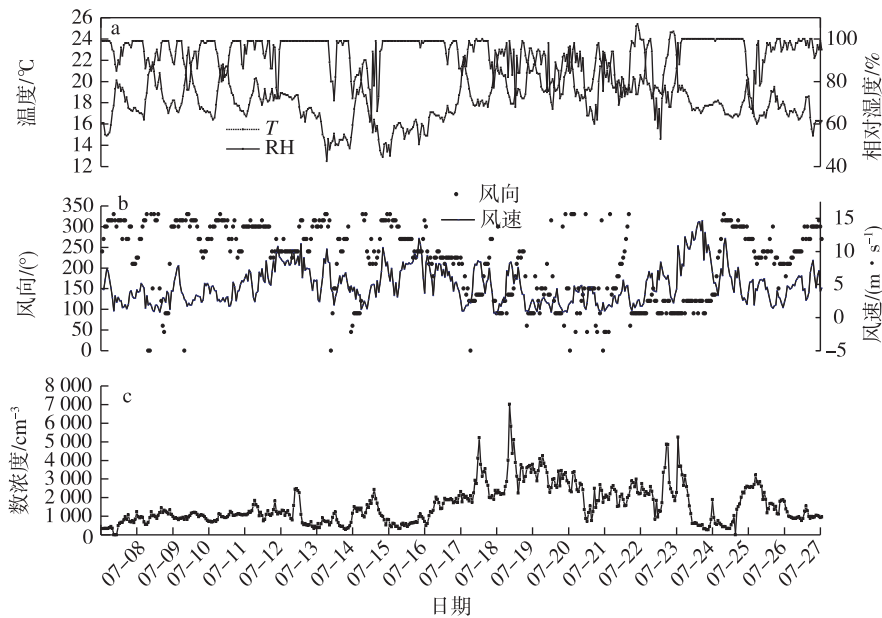


图4 温度、相对湿度(a),风速、风向(b),气溶胶数浓度(c)随时间变化特征

Fig.4 (a) Temperature and relative humidity, (b) wind speed and direction and (c) aerosol number concentration variations with time

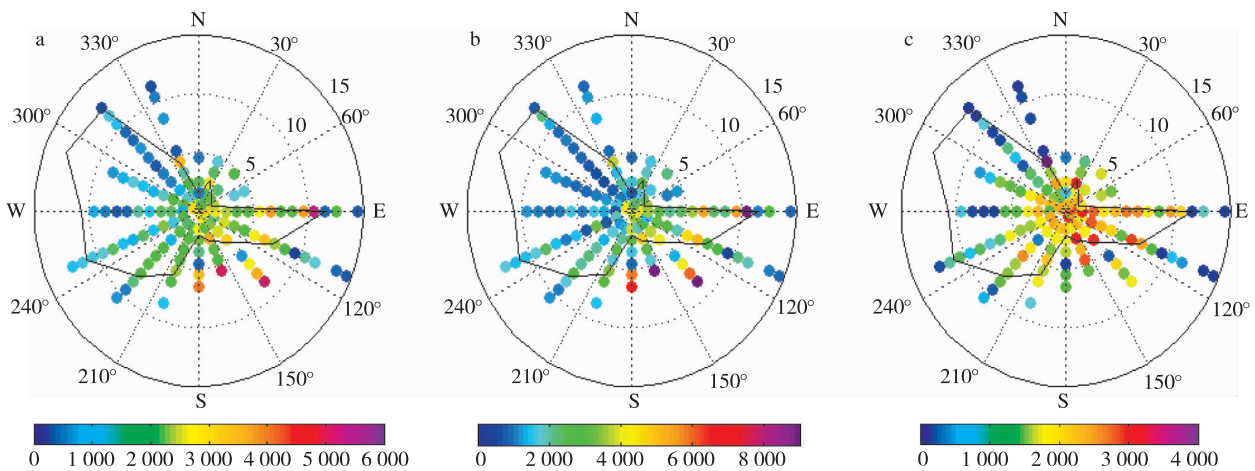


图5 观测期间气溶胶数浓度随风速、风向的分布(角度表示风向,半径表示风速,黑色实线表示风频,彩色散点表示气溶胶数浓度) a.所有粒径;b.粒径小于100 nm;c.粒径大于100 nm小于1 000 nm

Fig.5 Aerosol number concentration variations with wind velocity and direction during observation time (The angle denotes wind direction;the radius indicates wind velocity;solid black line denotes wind frequency;coloured dots indicate aerosol number concentration) a.aerosols of all size;b.aerosols of less than 100 nm;c.aerosols ranging from 100nm to 1 000 nm

容易被稀释,气溶胶数浓度小。由图5可知,在风速较小且风向为东南方向时,气溶胶粒子的总数浓度比其他风向时高,对比图5b、5c发现,爱根模态和积聚模态的气溶胶粒子数浓度受风场影响的特征与气溶胶总数浓度所对应的分布特征相似,但积聚模态气溶胶数浓度受到风向影响更为明显。有研究表明,积聚模态有着比爱根核模态和核膜态更长的生命史,因此其受气团传输的影响较大(刘婷等,2013)。

2.4 不同气团来源的气溶胶数谱分布特征

由于观测期间影响黄山的主要气团不同,进而造成不同风向的气溶胶数浓度不同,在此分析基础上,为了进一步获得不同气团背景下气溶胶数谱分布特征,本文对观测期间影响观测地点的主要气团(北方气团、西南气团和东南气团)背景下的气溶胶数谱特征进行研究。研究结果显示,三种气团背景下气溶胶数谱呈现明显的双峰分布,气溶胶数浓度随着粒径的增加均呈现先增加后减少的分布特征,

其峰值均出现在粒径为 1 00 nm 左右(第一峰值),峰值浓度达到极大值,二粒径在 500~700 nm 范围内则出现第二个峰值,峰值数浓度较低(图 6)。

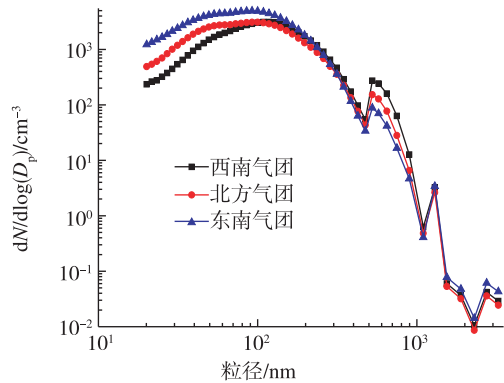


图 6 不同气团来源下气溶胶数谱分布
Fig.6 Aerosol number concentration spectral distribution under different air masses

不同气团背景下气溶胶数谱分布存在明显差异。当气溶胶粒径小于 100 nm 时,西南气团影响下大气中气溶胶数浓度最低,数值为 1 092 cm⁻³,数谱最窄,北方气团背景所对应的气溶胶数浓度较低,数值达到 1 586 cm⁻³,数谱较宽,而受东南气团影响时大气中气溶胶数浓度最高,其数值可以达到 2 776 cm⁻³,此时数谱最宽。从表 3 可以看出,东南气团背景下环境温度较其他两类气团背景下偏高,而此时相对湿度为 3 种气团背景下最低,高温的气象条件有利于新粒子生成,而较低的风速则为气溶胶粒子的累积提供了有利条件,因此在小粒径段该气团背景下气溶胶数浓度要远远超出其他气团背景下的气溶胶数浓度,而此背景下气溶胶数谱增宽主要是由小粒子增多和粒子吸湿增长较弱造成的。当气溶胶粒径在 100~500 nm 范围时,3 种气团背景所对应的气溶胶数谱分布特征差异非常小,数浓度相当。但是气溶胶粒径 500~1 000 nm 时,不同气团背景的气溶胶数谱与粒径小于 100 nm 所对应的气溶胶数谱呈现相反的分布特征,即西南气团对应的数浓度最高,谱最宽,东南气团对应的气溶胶数浓度最低,谱最窄,北方气团对应的气溶胶数浓度居中,谱型居中;对比不同气团背景下的气象条件可以知道,当观测期间受西南气团影响时,环境相对湿度最高,平均相对湿度可以达到 96.67%(表 3),在高湿条件下,更有利于气溶胶粒子增长,而当东南气团影响黄山时,环境相对湿度较低,数值为 88%,在此条件下气溶胶吸湿增长相对较弱,因此造成该粒径范围气溶胶数浓度较低;同时从 430~650 nm 粒径段气溶胶

离子化学组分的组成(图 7)可以看出,水溶性硫酸盐、硝酸盐和铵盐是该粒径主要的离子化学组分,但是在西南背景下,这三种离子成分含量最为丰富,造成该粒径范围气溶胶吸湿能力最强,在高湿的条件下气溶胶吸湿增长迅速,造成该粒径范围的气溶胶数谱最宽,而东南气团背景下硫酸盐、硝酸盐和铵盐的含量最低,气溶胶吸湿能力不足,同时由于该背景相对湿度较低,最终造成气溶胶数谱最窄。

表 3 不同气团背景下气象要素及气溶胶数浓度统计表
Table 3 Meteorological conditions and aerosol number concentration under different air masses

路径	平均温度/℃	平均相对湿度/%	平均风速/直径(小于 100 nm)/ (m·s ⁻¹)	cm ⁻³
北方气团	17.45	94.51	4.78	1 586
西南气团	16.67	96.67	6.41	1 092
东南气团	19.35	88.78	5.78	2 776

2.5 不同气团背景下气溶胶数谱对数正态分布拟合

由于观测获得的气溶胶数谱很难直接应用于模式中,因此本文参考 Whitby(1978)的方法,通过使用对数正态分布模型,利用多个对数正态分布的叠加来重组气溶胶谱。对数正态分布的表达式为:

$$f(D_p) = \sum_{i=1}^n \frac{N_i}{\sqrt{2\pi} \log(\sigma_{g,i})} \cdot \exp\left[-\frac{[\log(D_p) - \log(D_{g,i})]^2}{2\log^2(\sigma_{g,i})}\right] \quad (1)$$

其中:n 为模态的个数;N_i 为每个模态的气溶胶峰值数浓度,单位为 cm⁻³;D_p 为气溶胶粒子直径,单位为 nm;σ_{g,i} 为每个模态的几何标准差;D_{g,i} 是每个模态的峰值平均粒径。本文根据 Whitby 的三模态对数正态分布模型,结合黄山夏季气溶胶数谱的观测结果(图 6),将所观测的气溶胶粒子按直径 D_p 分为 3 个模态(10 nm<D_p≤100 nm、100 nm<D_p≤300 nm 和 D_p>300 nm)进行模拟,即 n=3。在各个模态中 N_i 和 σ_{g,i} 初值为 100、100、100 和 1.3、1.3、1.3。而 D_{g,i} 则根据模态的不同在一定区间内随机取值。这是因为拟合结果对 D_{g,i} 的取值较为敏感,只有少数值能够达到既定的要求。模拟后的模态 1 对应爱根核模,模态 2 和模态 3 分别对应积聚模态 1 和积聚模态 2。

表 4 为不同气团背景下模拟得到的气溶胶数浓度对数谱参数。从表中可以看出,三种气团背景下

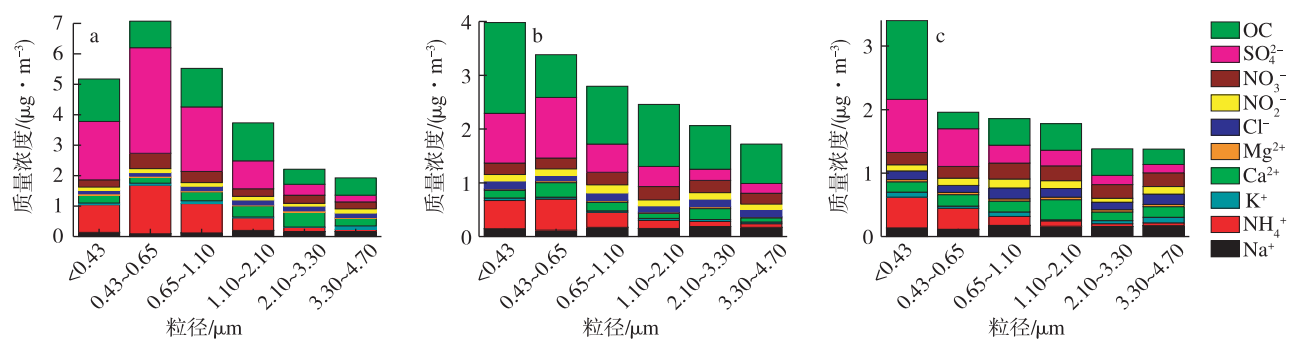


图 7 不同气团背景下气溶胶可溶性离子化学组分和 OC 质量浓度尺度分布 a.西南气团;b.北方气团;c.东南气团
Fig.7 Scale distribution of the dissolvable ions chemical composition concentration and OC mass concentration of aerosol particles under different air masses a.southwest air mass;b.northern air mass;c.southeast air mass

表 4 气溶胶数浓度对数谱拟合的模式参数

Table 4 Parameters of log-normal fitting for aerosol number concentration spectrum

路径	模态 1			模态 2			模态 3		
	N_1/cm^{-3}	$\sigma_{g,1}$	$D_{g,1}/\text{nm}$	N_2/cm^{-3}	$\sigma_{g,2}$	$D_{g,2}/\text{nm}$	N_3/cm^{-3}	$\sigma_{g,3}$	$D_{g,3}/\text{nm}$
西南气团	1 311.5	1.74	81.3	672.3	1.5	151.4	45.5	1.26	645.7
北方气团	1 447.2	1.69	58.9	842.6	1.52	138	28.3	1.33	544.4
东南气团	2 210.4	1.75	51.8	1 500.1	1.54	117.5	39.2	1.56	354.8

爱根模态的峰值数浓度均最高,积聚模态 2 的峰值数浓度均最低,即黄山夏季气溶胶粒子主要集中在小粒径段。不同气团背景影响下,各模态谱型参数有很大的差异。在爱根核模态和积聚模态 1,三个气团背景下的气溶胶谱参数 $\sigma_{g,i}$ 彼此差异较小,但是东南气团影响下的峰值浓度最高,峰值半径数值最小,而西南气团背景所对应的气溶胶谱的峰值浓度最低,模态峰值直径最大,这是由于西南气团的相对湿度较大(表 3),在此气象条件下爱根核模态和较小尺度的积聚模态中的气溶胶粒子增长较快,造成两个模态气溶胶粒子浓度减少,特别是爱根核模态的粒子减少的更为显著。在积聚模态 2,受西南气团影响时的气溶胶对数谱的峰值浓度最高,峰值半径最小,几何标准差最小,而东南气团背景所对应的气溶胶峰值浓度最高,峰值直径最小,几何标准差最大;结合爱根核模态和积聚模态 1 的对数谱参数的分布的成因分析,认为该模态如果观测期间观测点受西南气流影响时,由于该背景处于高湿的环境,造成小粒径的气溶胶吸湿增长并在较大尺度积聚,因此造成该背景下气溶胶数浓度较高,谱较窄,粒子较大,而东南背景下环境相对湿度较低,小粒径的气溶胶粒子增长较弱,在较大尺度的积聚模态累积较弱,因此该背景对应的气溶胶数谱相对较宽,粒子较小,浓度较低。

不同气团背景下对气溶胶数谱(图 8)和体积谱(图 9)进行的三模态对数正态分布的拟合发现,对于三种气团背景下气溶胶数谱而言,爱根核模态的贡献最大,积聚模态 1 次之,积聚模态 2 的贡献最小;而对于气溶胶体积谱而言,积聚模态 2 的贡献可与积聚模态 1 相当,爱根核模态的贡献却微乎其微。这说明爱根核模态的粒子数量大,但积聚模态的粒子对体积浓度的影响更为显著。不同模态的气溶胶数谱和体积谱谱宽在不同气团背景下也有明显差异,其中,爱根核模态和积聚模态 2 的谱宽差异最为明显,爱根核模态气溶胶数谱和体积谱分布均在西南气团影响下最宽,北方气团影响时次之,在东南气团影响时最窄,而积聚模态 2 的气溶胶数谱和体积谱谱宽与爱根核模态的谱宽在不同背景下的分布相反。

3 结论

利用 2014 年 7 月在黄山光明顶观测获得的气溶胶数谱的观测资料,对黄山夏季气溶胶数浓度及谱分布特征进行了研究,并在此基础上对不同气团来源的气溶胶数谱和体积谱进行了三模态对数正态分布拟合分析,具体结论如下:

1) 黄山地区夏季气溶胶平均数浓度约为 $3\,518.27\text{ cm}^{-3}$,爱根核模态占 56.0%;积聚模态占

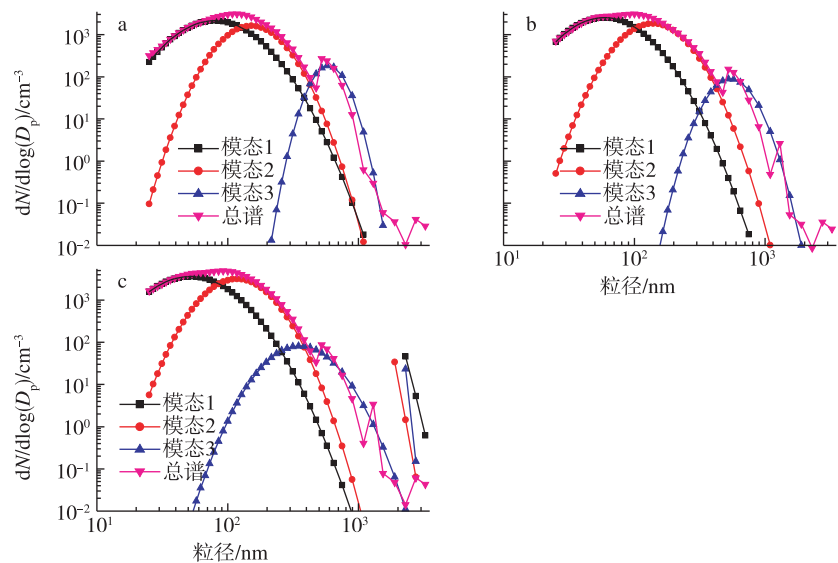


图 8 西南气团(a)、北方气团(b)、东南气团(c)背景下气溶胶数谱对数拟合
Fig.8 The distribution of log-normal fitting aerosol number spectrum in (a) southwest, (b) northern and (c) southeast air masses

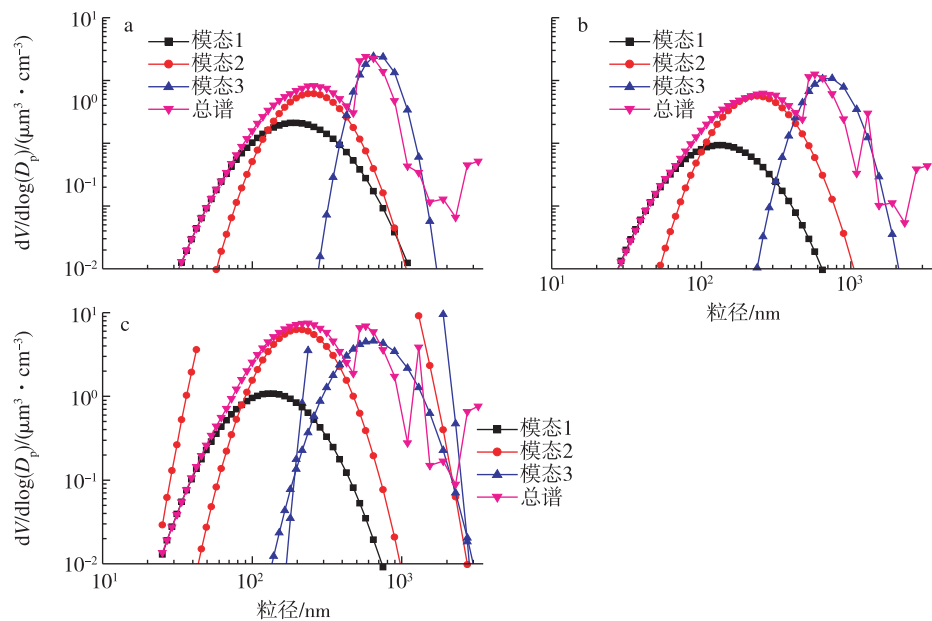


图 9 西南气团(a)、北方气团(b)、东南气团(c)背景下气溶胶体积谱对数拟合
Fig.9 The distribution of log-normal fitting aerosol volume spectrum in (a) southwest, (b) northern and (c) southeast air masses

44.0%。粒子数浓度远低于国内大多数污染背景城市观测结果。气溶胶数浓度及谱分布具有明显的日变化特征,平均数浓度的日变化呈双峰分布,气溶胶数浓度峰值的出现都伴随着小粒子的增多。

2) 观测期间黄山夏季气溶胶数浓度与相对湿度成负相关。黄山光明顶主要受偏西风影响,风速和气溶胶数浓度成负相关关系。在风速较低且风向为东南方向时,气溶胶粒子的总浓度比其他风向高,积聚模态气溶胶数浓度受到风向影响更为明显。

3) 影响黄山夏季的主要气团包括北方气团、西南气团和东南气团。三种气团背景下气溶胶数谱呈双峰分布,数浓度随着粒径的增加呈现先增加后减少的分布特征;不同气团背景下气溶胶数谱分差异主要体现在小于 100 nm 的爱根核模态和 500 ~ 1 000 nm 两个粒径范围。爱根核模态气溶胶在西南气团影响下数浓度最低,北方气团居中,东南气团对应的最高;而在 500 ~ 1 000 nm 粒径范围内,不同气团背景的气溶胶数谱分布特征与爱根核模态的分

布特征相反。

4) 西南气团影响下小于 100 nm 的气溶胶在潮湿的大气环境中通过较显著的吸湿增长,造成数浓度显著降低,谱变窄,在 500~1 000 nm 粒径段吸湿长大的粒子累积,造成该粒径范围粒子数浓度最高、谱最宽;而受高温、相对低湿的东南气团背景时,爱根核模态气溶胶通过新粒子生成和弱吸湿增长,造成了气溶胶数浓度最高,数谱最宽,以及 500~1 000 nm 数浓度最低、谱最窄。

5) 同气团背景下的三个模态对数谱谱型参数差异较大。在爱根核模态和积聚模态 1, $\sigma_{g,i}$ 差异较小,但是东南气团影响下 N_i 最高, $D_{g,i}$ 最小,而西南

气团背景所对应的气溶胶谱的 N_i 最低, $D_{g,i}$ 最大。在积聚模态 2, 受西南气团影响时的气溶胶对数谱的 N_i 最高, $D_{g,i}$ 最小, $\sigma_{g,i}$ 最小,而东南气团背景所对应的气溶胶 N_i 最高, $D_{g,i}$ 最小, $\sigma_{g,i}$ 最大。

6) 气溶胶三模态体积对数谱中,积聚模态 2 与积聚模态 1 的粒子对体积浓度的影响显著。不同模态的气溶胶体积谱谱宽在不同气团背景下存在明显的差异,主要体现在爱根核模态和积聚模态 2, 爱根核模态气溶胶体积谱在西南气团影响下最宽,北方气团影响时次之,受东南气团影响时最窄,而积聚模态 2 的气溶胶体积谱谱宽与爱根核模态的谱宽呈相反的分布特征。

参考文献 (References)

- Andreae M, Rosenfeld D, 2008. Aerosol-cloud-precipitation interactions. Part 1. The nature and sources of cloud-active aerosols [J]. *Earth-Science Reviews*, 89(1): 13-41.
- Bian Q, Huang X H, Yu J Z, et al., 2014. One-year observations of size distribution characteristics of major aerosol constituents at a coastal receptor site in Hong Kong Inorganic and Part 1: Inorganic and oxalate [J]. *Atmos Chem Phys*, 8(14): 9013-9027.
- Birmili W, Wiedensohler A, Heintzenberg J, et al., 2001. Atmospheric particle number size distribution in central Europe: Statistical relations to air masses and meteorology [J]. *J Geophys Res: Atmospheres*, 106: 32005-32018.
- Birmili W, Berresheim H, Plass-Dülmer C, et al., 2003. The hohenpeissenberg aerosol formation experiment (HAFEX): A long-term study including size-resolved aerosol, H₂SO₄, OH, and monoterpenes measurements [J]. *Atmos Chem Phys*, 3(2): 361-376.
- Birmili W, Schwirn K, Nowak A, et al., 2009. Measurements of humidified particle number size distributions in a Finnish boreal forest: Derivation of hygroscopic particle growth factors [J]. *Boreal Env Res*, 14(4): 458-480.
- Charlson R J, Schwartz S E, Hales J M, et al., 1992. Climate forcing by anthropogenic aerosols [J]. *Science*, 255(5043): 423-430.
- Delfino R J, Sioutas C, Malik S, et al., 2005. Potential role of ultrafine particles in associations between airborne particle mass and cardiovascular health [J]. *Environmental health perspectives*, 113(8): 934-946.
- Draxler R R, Hess G D, 1997. Description of the HYSPLIT_4 modeling system [R]. Silver Spring: NOAA Air Resources Laboratory: 1-24.
- 高健, 2008. 大气颗粒物个数浓度、粒径分布及颗粒物生成 [D]. 济南: 山东大学.
- Gao Jian, 2008. Study on aerosol number concentration, size distribution and the particle formation and growth process [D]. Jinan: Shandong University. (in Chinese).
- Gao J, Wang T, Zhou X, et al., 2009. Measurement of aerosol number size distributions in the Yangtze River delta in China: Formation and growth of particles under polluted conditions [J]. *Atmos Environ*, 43(4): 829-836.
- Guenther P L, Lesko J M, Stedman D H, 1996. Cost-effectiveness of emissions reduction through vehicle repair compared to CNG conversion [J]. *Journal of the Air & Waste Management Association*, 46(10): 985-989.
- Haywood J, Boucher O, 2000. Estimates of the direct and indirect radiative forcing due to tropospheric aerosols: A review [J]. *Rev Geophys*, 38(4): 513-543.
- Hussein T, Puustinen A, Aalto P P, et al., 2004. Urban aerosol number size distributions [J]. *Atmos Chem Phys*, 4(2): 391-411.
- Hussein T, Dal Maso M, Petaja T, et al., 2005. Evaluation of an automatic algorithm for fitting the particle number size distributions [J]. *Boreal Env Res*, 10(5): 337-355.
- 江琪, 银燕, 单云鹏, 等, 2014. 人为气溶胶对地形云降水的影响: 以黄山地区为例 [J]. *大气科学学报*, 37(4): 405-413.
- Jiang Q, Yin Y, Shan Y P, et al., 2014. The effect of artificial aerosols on orographic precipitation: A case study over the Yellow Mountain [J]. *Trans Atmos Sci*, 37(4): 405-413. (in Chinese).
- Kivekää N, Sun J, Zhan M, et al., 2009. Long term particle size distribution measurements at Mount Waliguan, a high-altitude site in inland China [J]. *Atmos Chem Phys*, 9: 5461-5474.
- Laakso L, Hussein T, Aarnio P, et al., 2003. Diurnal and annual characteristics of particle mass and number concentrations in urban, rural and Arctic environments in Finland [J]. *Atmos Environ*, 37(19): 2629-2641.
- Levoni C, Cervino M, Guzzi R, et al., 1997. Atmospheric aerosol optical properties: A database of radiative characteristics for different components and classes [J]. *Applied Optics*, 36(30): 8031-8041.
- Li W, Zhang D, Shao L, et al., 2011. Individual particle analysis of aerosols collected under haze and non-haze conditions at a high-elevation mountain

- site in the North China plain[J]. *Atmos Chem Phys*, 11(22):11733-11744.
- 刘婷,黄兴友,高庆先,等,2013.不同气象条件下的气溶胶时空分布特征[J]. *环境科学研究*, 26(2):122-128. Liu T, Huang X Y, Gao Q X, et al., 2013. Research on the temporal and spatial distribution of atmospheric aerosols under different meteorological conditions[J]. *Research of Environmental Sciences*, 26(2):122-128. (in Chinese).
- Liu X G, Li J, Qu Y, et al., 2013. Formation and evolution mechanism of regional haze: A case study in the megacity Beijing, China[J]. *Atmos Chem Phys*, 13(9):4501-4514.
- Lohmann U, Feichter J, 2005. Global indirect aerosol effects: A review[J]. *Atmos Chem Phys*, 5(3):715-737.
- Mäkelä J, Aalto P, Jokinen V, et al., 1997. Observations of ultrafine aerosol particle formation and growth in boreal forest[J]. *Geophys Res Lett*, 24(10):1219-1222.
- Mcfiggans G, Artaxo P, Baltensperger U, et al., 2006. The effect of physical and chemical aerosol properties on warm cloud droplet activation[J]. *Atmos Chem Phys*, 6(9):2593-2649.
- Nishita C, Osada K, Matsunaga K, et al., 2007. Number-size distributions of free tropospheric aerosol particles at Mt. Norikura, Japan: Effects of precipitation and air mass transportation pathways[J]. *J Geophys Res*, 112(D10):185-194.
- Penttinen P, Timonen K L, Tiittanen P, et al., 2001. Number concentration and size of particles in urban air: Effects on spirometric lung function in adult asthmatic subjects[J]. *Environmental Health Perspectives*, 109(4):319.
- Rd P C, Dockery D W, 2006. Health effects of fine particulate air pollution: Lines that connect[J]. *Journal of the Air & Waste Management Association*, 56(6):709-742.
- 沈小静, 2012. 泰山大气气溶胶数谱分布特征及光学特性研究[D]. 北京: 中国科学院. Shen X J, 2012. Characteristics of the particle number size distribution and optical properties at Mt. Tai[D]. Beijing: Chinese Academy of Sciences. (in Chinese).
- Sun X, Yin Y, Sun Y, et al., 2013. Seasonal and vertical variations in aerosol distribution over Shijiazhuang, China[J]. *Atmos Environ*, 81(4):245-252.
- Venzac H, Sellegri K, Villani P, et al., 2009. Seasonal variation of aerosol size distributions in the free troposphere and residual layer at the puy de Dôme station, France[J]. *Atmos Chem Phys*, 9(4):1465-1478.
- 王红磊, 朱彬, 沈利娟, 等, 2014. 春节期间南京市大气气溶胶粒径分布特征[J]. *环境科学*, 35(2):442-450. Wang H L, Zhu B, Shen L J, et al., 2014. Size distributions of aerosol during the spring festival in Nanjing[J]. *Environmental Science*, 35(2):442-450. (in Chinese).
- Wehner B, Wiedensohler A, 2002. Long term measurements of submicrometer urban aerosols: statistical analysis for correlations with meteorological conditions and trace gases[J]. *Atmos Chem Phys Discussions*, 2(5):1699-1733.
- 文彬, 银燕, 秦彦硕, 等, 2012. 2009年夏季黄山云雾水化学特征及来源分析[J]. *中国环境科学*, 32(12):2113-2122. Wen B, Yin Y, Qin Y S, et al., 2012. Analyses of chemical characteristic in fog/cloud water and source at Mount Huangshan in summer 2009[J]. *China Environmental Science*, 32(12):2113-2122. (in Chinese).
- Whitby K T, 1978. The physical characteristics of sulfur aerosols[J]. *Atmos Environ*, 41(1):135-159.
- 吴志军, 2007. 北京城市大气细和超细粒子数谱分布特征及变化规律[D]. 北京: 北京大学. Wu Z J, 2007. Distribution and variation of fine and ultrafine particles in Beijing City[D]. Beijing: Peking University. (in Chinese).
- Wu Z, Hu M, Lin P, et al., 2008. Particle number size distribution in the urban atmosphere of Beijing, China[J]. *Atmos Environ*, 42:7967-7980.
- 许黎, 冈田菊夫, 张鹏, 等, 2002. 北京地区春末-秋初气溶胶理化特性的观测研究[J]. *大气科学*, 26(3):401-411. Xu L, Okada Kikuo, Zhang P, et al., 2002. An observational study of physical and chemical characteristics of atmospheric aerosol particles from late spring to early autumn over Beijing area[J]. *Chin J Atmos Sci*, 26(3):401-411. (in Chinese).
- Xu P, Wang W, Yang L, et al., 2011. Aerosol size distributions in urban Jinan: Seasonal characteristics and variations between weekdays and weekends in a heavily polluted atmosphere[J]. *Environmental Monitoring and Assessment*, 179(1/2/3/4):443-456.
- 颜金培, 陈立奇, 林奇, 等, 2013. 厦门岛南部沿岸大气气溶胶成分谱分布特征[J]. *应用海洋学学报*, 32(4):455-460. Yan J P, Chen L Q, Lin Q, et al., 2013. A study of aerosol chemical compositions and size distribution property on the coastal area of southern Xiamen Island[J]. *Journal of Applied Oceanography*, 32(4):455-460. (in Chinese).
- Ye X, Tang C, Yin Z, et al., 2013. Hygroscopic growth of urban aerosol particles during the 2009 Mirage-Shanghai Campaign[J]. *Atmos Environ*, 64(1):263-269.
- 银燕, 陈晨, 陈魁, 等, 2010. 黄山大气气溶胶微观特性的观测研究[J]. *大气科学学报*, 33(2):129-136. Yin Y, Chen C, Chen K, et al., 2010. An observational study of the microphysical properties of atmospheric aerosol at Mt. Huang[J]. *Trans Atmos Sci*, 33(2):129-136. (in Chinese).
- Yue D, Hu M, Wang Z, et al., 2013. Comparison of particle number size distributions and new particle formation between the urban and rural sites in the PRD region, China[J]. *Atmos Environ*, 76(3):181-188.
- 章澄昌, 周文贤, 1995. 大气气溶胶教程[M]. 北京: 气象出版社. Zhang C C, Zhou W X, 1995. Atmospheric aerosol tutorial[M]. Beijing: China Meteorological Press. (in Chinese).

Characteristics of aerosol number concentration and size distribution in summer in high altitude regions of East China

YANG Suying¹, ZHANG Tiening¹, LI Yanwei¹, ZHAO Xiuyong², YU Xinyang¹, WANG Qihua¹

¹Key Laboratory of Meteorological Disaster, Ministry of Education (KLME)/Joint International Research Laboratory of Climate and Environment Change (ILCEC)/Collaborative Innovation Center on Forecast and Evaluation of Meteorological Disasters (CIC-FEMD)/Key Laboratory for Aerosol-Cloud-Precipitation of China Meteorological Administration, Nanjing 210044, China;

²State Environmental Protection Atmospheric Physics Simulation & Pollution Control Key Laboratory, State Power Environmental Protection Research Institute, Nanjing 210031

By analyzing the aerosol number concentration and the size distribution observed in July 2014 at Mt. Huang, the characteristics of aerosol distribution at Mt. Huang in summer were analyzed. On this basis, log-normal fitting were performed on aerosol size distribution. The results show that the average aerosol number concentration at Mt. Huang is about $3\,518.27\text{ cm}^{-3}$. The aerosol number concentration is mainly concentrated in Aitken mode. The daily variation of aerosol average concentration showed a bimodal distribution, and the peak concentration was accompanied by the increase of small particles. The aerosol number concentration was negatively correlated with relative humidity and wind speed, and high aerosol number concentration usually occurred under weak southeastern wind condition. The aerosol number concentration in the accumulation mode was obviously influenced by wind direction. With the effect of different air masses, the difference of aerosol number distribution mainly existed in the particle size of less than 100 nm and between 500 and 1 000 nm. Under the southwest air mass with high humidity, there appeared the highest aerosol number concentration and the narrowest size distribution in Aitken mode. However, under the southeast air mass with high temperature and low humidity, there appeared the lowest aerosol number concentration and the widest size distribution. Aerosol number concentration and spectral width corresponding to northern air mass were in medium level. The size distribution characteristics of aerosol ranging from 500 to 1 000 nm were contrary to those in Aitken mode. The aerosol size distribution and volume distribution under different backgrounds can all be fitted to a log-normal distribution by using the three modes of Aitken mode, accumulation mode 1 and accumulation mode 2, but the aerosol number concentration spectral parameters under different air masses were quite different.

eastern China; high altitude region; aerosol particle; number size distribution; log-normal fitting

doi: 10. 13878/j.cnki.dqkxxb.20160621001

(责任编辑:张福颖)