

东北地区夏季大气颗粒物数浓度与粒径分布特征的航测研究

牟江山¹, 朱玉姣^{1*}, 单业¹, 李洪勇¹, 陈天舒¹,
文亮¹, 齐彦斌², 胡建华², 綦文龙³, 王新锋¹,
周兴华¹, 张庆竹¹, 王文兴¹, 薛丽坤¹

(1. 山东大学 环境研究院, 山东 青岛 266237; 2. 中国气象局 吉林省人民政府人工影响天气联合开放实验室, 吉林 长春 130062; 3. 吉林省白城人工增雨基地, 吉林 白城 137000)

摘要: 利用飞机航测于 2018 年夏季在东北吉林省用宽范围粒径谱仪对 10 nm~10 μm 大气颗粒物的数浓度谱进行在线监测, 分析大气颗粒物的垂直分布廓线和粒径分布特征。结果表明, 东北地区近地面颗粒物数浓度为 $5.8 \times 10^3 \sim 9.9 \times 10^4 \text{ cm}^{-3}$, 平均值为 $(2.7 \pm 2.2) \times 10^4 \text{ cm}^{-3}$; 垂直方向上颗粒物数浓度随海拔升高整体呈降低趋势, 且垂直廓线存在两种类型: 一种是在边界层附近存在较明显的分界线, 即在边界层下方, 大气颗粒物数浓度随高度升高而显著降低, 在边界层上方, 大气颗粒物数浓度变化随高度变化不明显; 第二种是随高度的升高, 城市上空的大气颗粒物数浓度降低, 且海拔高度与大气颗粒物数浓度呈现近似线性负相关的关系。在观测期间, 颗粒物的粒径大多集中在爱根模态, 其峰值位于 25~30 nm, 后向气流轨迹显示, 气团来源于蒙古及内蒙古地区。在四平城市上空观测到 1 例新粒子生成事件, 其核模态颗粒物数浓度为当日其他地区的 4 倍, 后向气流轨迹显示其气团来源于中国辽宁省且受局地气团影响。

关键词: 大气颗粒物; 垂直廓线; 粒径分布; 新粒子生成; 飞机航测

中图分类号: P593; X513 文献标识码: A 文章编号: 0379-1726(2020)03-0324-10
DOI: 10.19700/j.0379-1726.2020.03.003

Aircraft measurements of summer atmospheric particle number concentration and size distribution in Northeast China

MU Jiang-shan¹, ZHU Yu-jiao^{1*}, SHAN Ye¹, LI Hong-yong¹, CHEN Tian-shu¹,
WEN Liang¹, QI Yan-bin², HU Jian-hua², QI Wen-long³, WANG Xin-feng¹,
ZHOU Xue-hua¹, ZHANG Qing-zhu¹, WANG Wen-xing¹ and XUE Li-kun¹

1. Environment Research Institute, Shandong University, Qingdao 266237, China;
2. Joint Open Laboratory for Weather Modification of China Meteorological Administration, People's Government of Jilin Province (Key Laboratory of Jilin Province), Changchun 130062, China;
3. Jilin Province Baicheng City Artificial Rainfall Base, Baicheng 137000, China

Abstract: In the summer of 2018, particle size distributions from 10 nm to 10 μm were measured by a wide particle spectrometer aboard an aircraft in Jilin Province, China. The results showed that the number concentration of near-surface atmospheric particles ranged from $5.8 \times 10^3 \text{ cm}^{-3}$ to $9.9 \times 10^4 \text{ cm}^{-3}$, with an average value of $(2.7 \pm 2.2) \times 10^4 \text{ cm}^{-3}$. In general, the number concentration of particles decreased with increasing altitude. Two types of vertical profile were observed. For the first type, particle number concentrations decreased sharply with increasing altitude in the boundary layer, whereas, above the boundary layer, particle number concentrations showed little vertical variation. For the second type, particle number concentrations decreased consistently with

收稿日期(Received): 2019-10-11; 改回日期(Revised): 2019-11-16; 接受日期(Accepted): 2019-12-17

基金项目: 国家重点基础研究发展计划(2016YFC0200500); 山东省自然科学基金杰出青年基金(ZR2019JQ09); 国家自然科学基金(41775140)

作者简介: 牟江山(1997-), 男, 硕士研究生, 环境科学与工程专业。E-mail: 201812878@mail.sdu.edu.cn

* 通讯作者(Corresponding author): ZHU Yu-jiao, E-mail: zhuyujiao@sdu.edu.cn; Tel: +86-532-58631961.

increasing altitude, and the two variables were approximately negatively correlated. During the observation, the total particle number was dominated by Aitken mode particles with a peak at 25–30 nm. The backward trajectories indicated that air masses mainly originated from Mongolia and Inner Mongolia. A new particle formation (NPF) event was observed over Siping City. The nucleation mode particle concentration over Siping was four times that of other regions on the NPF event day, and the backward trajectory denoted that the air mass originated from Liaoning Province and was affected by the local air mass. This study provides a basis for exploring regional air pollution and the vertical profile of aerosol particles in Northeast China.

Key words: atmospheric particle; vertical profile; particle size distribution; new particle formation; aircraft measurement

0 引言

目前,气溶胶颗粒物为我国大多数城市的首要污染物,对大气中云和降水、环境及气候变化等都有重要影响^[1]。大气中的颗粒物对可见光的吸收和散射产生的消光效应会造成大气能见度降低^[2],还会通过直接和间接辐射效应影响辐射平衡进而影响全球气候变化^[3-5],此外,粒径较小的超细颗粒物易被人体吸入,引起疾病,影响人体健康。因此,颗粒物研究一直以来都是大气环境化学领域研究的重点和难点。大气颗粒物的环境效应与其化学组成、数浓度以及粒径分布有着密切关系,研究颗粒物数浓度和粒径分布特征对于探究颗粒物的形成机理及其环境气候影响有着重要意义。

与近地面观测不同,飞机航行观测对于研究大气颗粒物的水平和垂直结构有着独特的优势^[6]。利用飞机搭载多种气溶胶观测设备在对流层中低层开展气溶胶空间观测,可获取高分辨率的气溶胶浓度和粒径的空间分布特性^[7-12],是研究气溶胶垂直分布特征的最直接和有效的方式之一^[13-15]。国外利用飞机航测的观测研究始于 20 世纪 70 年代后期,已通过飞机航测在全球不同地区开展了多次航测实验,如 Hasegawa *et al.*^[16]利用飞机航测研究了日本大阪市超细颗粒物的垂直剖面 and 粒径分布; McMeeking *et al.*^[17]在西欧和北欧通过飞机航测研究了当地对流层内的黑碳质量浓度和尺寸分布; Rosenfeld *et al.*^[18]通过飞机观测研究了美国内华达山脉的气溶胶污染对云和降水的影响; Capes *et al.*^[19]通过飞机观测数据探讨了西非地区生物质燃烧的气溶胶物理和化学特性。我国近年来也开展了对颗粒物及各类污染物的飞机航测实验,如 Geng *et al.*^[20]测定了长江三角洲上空 O₃、SO₂ 和 VOCs 等物质的浓度水平;

Xue *et al.*^[21-22]在东北吉林地区通过飞机航测测定了 SO₂、气溶胶散射系数、非甲烷烃和卤代烃等的垂直分布特征;陈鹏飞等^[6]利用飞机航测探究了北京上空的气溶胶浓度垂直廓线;孙玉稳等^[23]利用飞机航测的方法探究了石家庄市秋季大气气溶胶物理特征。

随着经济发展和能源消耗的不断增长,我国东北地区的污染问题,尤其是大气污染日益严重。吉林省作为东北地区重要的以化工、冶金和电力等重污染型企业为主的工业大省^[24],其污染类型开始由煤烟型向复合型转化^[25],大气颗粒物也成为当地空气中一种主要的污染物。在夏季,东北地区主要以南风 and 西南风为主,处于华北平原的下风向^[26]。由于人员、技术和财力等条件有限,目前东北地区大气颗粒物污染的研究相对较少,飞机航测研究则更少。本次工作通过飞机航测,拟探讨吉林西北部地区大气颗粒物数浓度的垂直分布与粒径分布特征,以期认识当地污染、制定合理的大气质量控制措施提供支持。

1 材料与方 法

1.1 仪器与设备

航测实验的飞机是中国哈尔滨飞机制造公司研制的轻型双发多用途运输机“哈飞运-12”,巡航速度约为 288 km/h。颗粒物的观测设备采用美国 MSP 公司生产的宽范围粒径谱仪(WPS),分 48 个通道测量 10 nm~10 μm 颗粒物的数浓度,时间分辨率为 1 min。WPS 仪器包括微分迁移率分析仪(DMA)、凝结核计数器(CPC)以及激光颗粒光谱仪(LPS)^[27],其中,DMA 和 CPC 用于测量 10~500 nm 的颗粒物,共 29 个通道,LPS 用于测量 350 nm~10 μm 的颗粒物,共 19 个通道。需注意的是,以往的仪器对比观测发现,WPS 观测的数浓度较美国 TSI 公司生产的 3081/3085

型气溶胶粒径谱仪(SMPS)偏低^[28-29]。为确保对颗粒物的高效采集,飞机安装有变径进样系统,通过该系统可达到降低气流进入仪器内的流速,使气体流量稳定在约 15 L/min,保证所采集样品的质量。实验前,对DMA进行了流量标定,并用聚苯乙烯(PSL)微球进行了粒径校准。采样时,DMA的采样流量为 0.3 L/min,鞘气流量为 3.0 L/min,工作模式为连续平滑扫描^[28]。此外,飞机上还安装了温度计、气压传感器、湿度仪、GPS及其他测量气体、颗粒物的仪器,能够同时获取温度、湿度、大气压强、海拔和经纬度等资料。本次工作用到的轨迹计算模式为美国国家海洋和大气局(NOAA)提供的后向轨迹模式(HYSPLIT),其中,气象数据基于全球资料同化系统(GDAS, global data assimilation system)。本次工作拟通过 HYSPLIT 模拟研究区域内几个重要城市的 48 h 后向气流轨迹,以期探究研究区域内的气团来源,进而分析颗粒物来源提供依据。

1.2 飞行探测方案

为研究边界层抬升过程中气溶胶颗粒的分布特征和新粒子生成过程,本次工作选择在晴天的上午进行航测实验,共获取了 3 d 的航测实验数据,飞行时间分别为 2018 年 7 月 14 日(07:37~10:19)、7 月 15 日(07:01~11:29)和 7 月 26 日(10:00~12:59)。其中 7 月 14 日和 7 月 15 日 WPS 仪器测得的数据涵盖

整个飞行过程,7 月 26 日由于仪器开机较晚,飞行至 10:10(海拔 4000 m 左右)时开始采集相关数据。航测区域(见图 1)位于吉林省西北部(43.1°~45.7°N, 122.8°~125.1°E),包括白城市、大安市、松原市、四平市和通榆市等地。在 3 d 的航测实验中,为了在空间覆盖的基础上,尽可能研究城市上空颗粒物数浓度和粒径分布的垂直分布特征,探究城市活动对颗粒物数浓度和分布特征的影响,飞行路径均由白城起飞,抵达各城市上空后下降至一定高度,然后螺旋上升,最终降落在白城市。具体方案为:7 月 14 日于白城市起飞,途经松原市,最终返回白城市;7 月 15 日于白城市起飞,途经大安市和松原市,最终返回白城市;7 月 26 日于白城市起飞,途经四平市和通榆市,最终返回白城市(如图 1)。期间,最高探测高度为 3712 m,最低探测高度为 145 m。

2 结果与讨论

2.1 颗粒物粒径谱图与飞行高度

根据大气颗粒物的粒径大小将其分为 4 个模态:核模态(小于 20 nm)、爱根模态(20~100 nm)、积聚模态(100 nm~1 μm)和粗粒子模态(1~10 μm)^[31]。在 3 d 的飞行实验中,大气颗粒物主要集中在小于 200 nm 的核模态、爱根模态和积聚模态,其中,核模态和爱根模态占总数的 97%(见表 1,图 2)。在本次观测中,

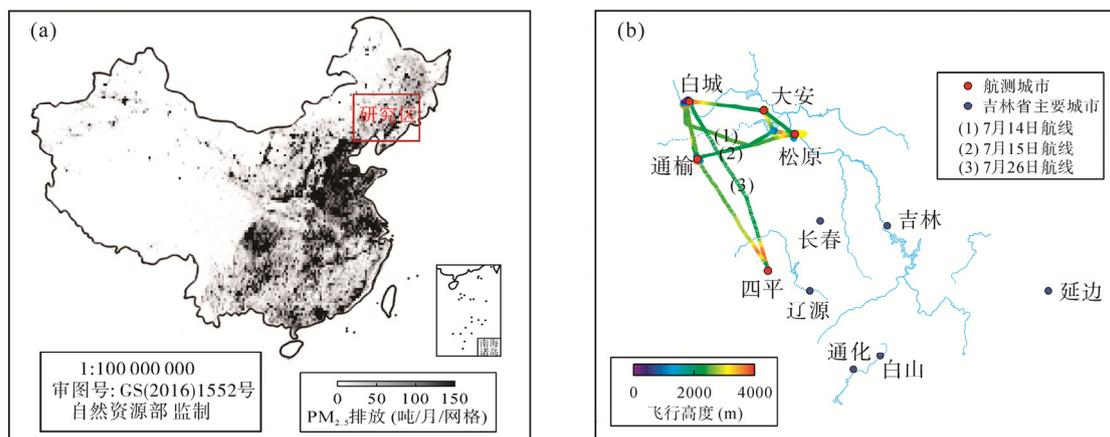


图 1 7 月全国 PM_{2.5} 排放量分布(a)与航测飞行路径(b), PM_{2.5} 排放数据来自更新的亚洲排放清单(据文献[30])

Fig.1 Distribution of national PM_{2.5} emissions in July 2016 (a) and aircraft flight path (b); PM_{2.5} emission data were obtained from reference [30]

表 1 航测期间各模态颗粒物数浓度统计情况(均值±标准偏差)

Table 1 Particle number concentration in four modes during flight (average ± standard deviation)

日期	核模态(cm ⁻³)	爱根模态(cm ⁻³)	积聚模态(cm ⁻³)	粗粒子模态(cm ⁻³)
2018-07-14	9304 ± 13660	15912 ± 16563	618 ± 1618	0
2018-07-15	5871 ± 22481	8994 ± 9124	470 ± 2750	0
2018-07-26	3082 ± 2484	5154 ± 2652	210 ± 821	0

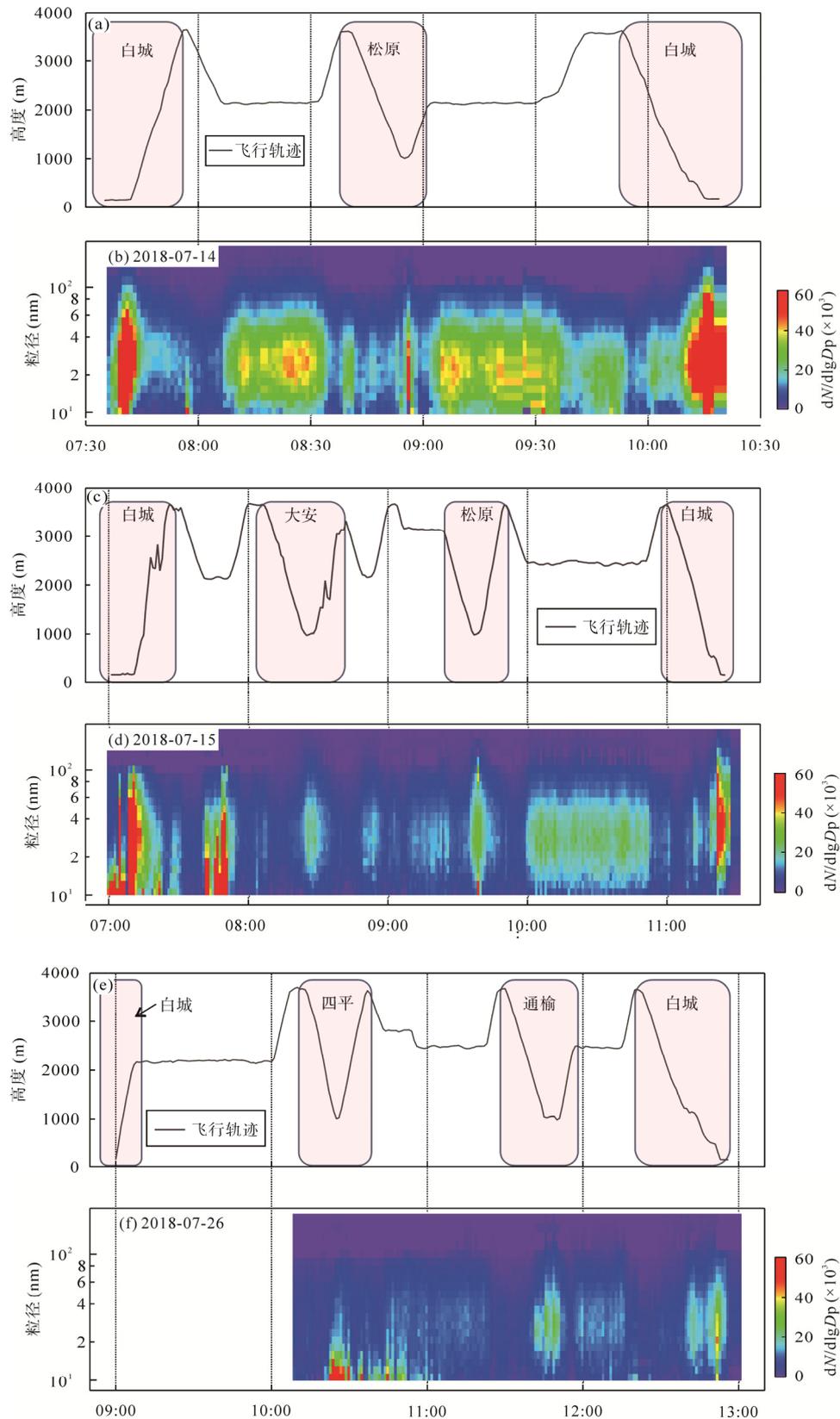


图 2 飞行高度和粒径谱图

Fig. 2 Flight height and particle size spectrum on three days

(a) 7月14日的飞行高度; (b) 7月14日粒径谱图; (c) 7月15日的飞行高度; (d) 7月15日的粒径谱图;

(e) 7月26日的飞行高度; (f) 7月26日的粒径谱图。dN/dlgDp 为颗粒物数浓度

(a) Flight height on July 14; (b) particle size spectrum on July 14; (c) flight height on July 15; (d) particle size spectrum on July 15;

(e) flight height on July 26 and (f) particle size spectrum on July 26. dN/dlgDp is particle number concentration

核模态和爱根模态的数浓度量级与以往地面观测文献相当,而积聚模态则相比之下少了一个数量级^[32-34],主要原因有两个,一是高度差异,受地面污染物排放源的影响,地面观测的颗粒物数浓度会高于相对较清洁的高空;二是测量区域的差异,本次飞行过程主要集中在吉林省西北部,其空气质量相对较好,大气颗粒物数浓度较华北平原、长江三角洲和珠江三角洲等地区低。

2018年7月14日飞行高度范围为145~3634 m,白城市为起止城市,期间在松原市降落至高度1000 m(HYSPLIT模拟的边界层高度约为1000 m)左右后盘旋上升。从粒径分布谱图可以看出,7月14日航测过程中的颗粒物模态主要为爱根模态,颗粒物数浓度的高值出现在飞行海拔较低的白城市和松原市($7.0 \times 10^4 \text{ cm}^{-3}$ 和 $1.3 \times 10^4 \text{ cm}^{-3}$)。这是由于在低海拔的城市地区,污染物来源较多,大气颗粒物数浓度高,且粒径分布较宽(10~200 nm)。相反,在飞行至最高点时,大气较为清洁,颗粒物数浓度低,约为 $8.7 \times 10^3 \text{ cm}^{-3}$,且颗粒物的粒径分布范围较窄(10~80 nm)。实验中,在2000 m左右的高度共飞行了约1 h,在平飞过程(约2000 m)中,大气颗粒物数浓度约为 $2.4 \times 10^4 \text{ cm}^{-3}$,粒径范围为10~80 nm。其颗粒物数浓度低于低海拔的城市地区而高于飞行过程中的高海拔区域。

7月15日的飞行高度范围为155.5~3679.5 m,白城市为起止点,途经大安市和松原市,在两个城市上空最低下降至1000 m(边界层)左右。当日颗粒物的模态也主要为爱根模态,数浓度的高值点出现在航测高度最低点的白城市,约为 $9.9 \times 10^4 \text{ cm}^{-3}$,同时,在白城市的颗粒物粒径范围也较宽,为10~200 nm。在飞行的最高点,大气较为清洁,颗粒物数浓度约为 $3.5 \times 10^3 \text{ cm}^{-3}$ 。实验在2000~2500 m左右共有两个平飞过程,其中白城飞往大安途中数浓度较高,为 $1.8 \times 10^4 \text{ cm}^{-3}$,松原飞往白城途中数浓度略低,为 $1.5 \times 10^4 \text{ cm}^{-3}$,造成两者数浓度相差较大的原因可能有两个,第1个,白城飞往大安途中的平飞时间为07:30~07:40,松原飞往白城途中的平飞时间为10:00~10:50,后者飞行时边界层抬升,污染物的扩散导致颗粒物数浓度降低;第2个,在前者飞行途中有区域性污染事件发生,导致颗粒物数浓度高。

7月26日的飞行高度为148~3712 m,白城市为起止点,途经四平市和通榆市,在两个城市上空最低下降至1000 m(边界层)左右。受地面污染源影响,

在3次下降至最低点的位置也出现了当日较为明显的3个颗粒物数浓度的高值点($2.0 \times 10^4 \text{ cm}^{-3}$ 、 $1.0 \times 10^4 \text{ cm}^{-3}$ 和 $2.9 \times 10^4 \text{ cm}^{-3}$)。在通榆市和白城市上空,颗粒物粒径主要集中在20~40 nm,但在四平市上空,颗粒物粒径主要集中在小于20 nm的核模态。在飞行的最高点,大气较为清洁,颗粒物数浓度约为 $6.3 \times 10^3 \text{ cm}^{-3}$ 。在平飞过程中颗粒物数浓度略有增高,为 $7.7 \times 10^4 \text{ cm}^{-3}$ 。从图2的粒径谱图也可以看出,7月26日观测到的近地面及高空颗粒物数浓度均明显低于前两天,说明7月26日的大气较为清洁。

2.2 颗粒物垂直分布特征

由于气溶胶颗粒物数浓度在垂直方向上的变化明显大于水平方向^[35],为更好地了解气溶胶颗粒物的垂直分布情况,在不考虑水平方向上的变化情况下,途经城市上空的颗粒物垂直廓线如图3所示。

城市大气中,近地面大气颗粒物的主要来源是人为源,如汽车尾气、工业活动和扬尘等,这些颗粒物在湍流的作用下垂直混合,被迅速输送到边界层顶端^[6],但是由于混合层顶端的湍流强度低,阻碍了颗粒物从边界层继续向自由大气层的垂直输送,因此,人为源大气颗粒物主要集中在边界层下。而在高海拔的区域,受地面人为源影响较小,此时,颗粒物的主要来源为气团的远距离输送,易受风速和气团来源的影响。7月14日早上,白城市近地面颗粒物数浓度为 $7 \times 10^4 \text{ cm}^{-3}$,在边界层(约1000 m)以下随高度升高急剧下降至 $5 \times 10^3 \text{ cm}^{-3}$,超过边界层后缓慢下降至 $3 \times 10^3 \text{ cm}^{-3}$ 。接近中午(10:00左右)时,白城市上空颗粒物数浓度的垂直廓线与早上类似,即在边界层以下,颗粒物数浓度由 $1.6 \times 10^5 \text{ cm}^{-3}$ 急剧下降至 $1.2 \times 10^4 \text{ cm}^{-3}$,随后随高度上升浓度变化幅度较小。但垂直方向上的大气颗粒物数浓度均为中午高于早上。当天白城市地面国控站点的 $\text{PM}_{2.5}$ 质量浓度也呈现中午高($14 \mu\text{g}/\text{m}^3$)、早上低($6 \mu\text{g}/\text{m}^3$)的趋势,说明中午有局地污染源的排放,使其颗粒物数浓度和质量浓度均增高。在松原市上空1000~3200 m处,颗粒物数浓度随高度变化不大,平均为 $9.8 \times 10^3 \text{ cm}^{-3}$ 。7月15日和26日的垂直廓线与14日相比略有不同。随高度的升高,城市上空的大气颗粒物数浓度降低,且海拔高度与大气颗粒物数浓度呈现近似线性的负相关关系。例如,在7月15日,白城市地面颗粒物数浓度高达 $1 \times 10^5 \text{ cm}^{-3}$,至3800 m左右下降至 $7 \times 10^3 \text{ cm}^{-3}$ 。在大安市上空1000 m左右,

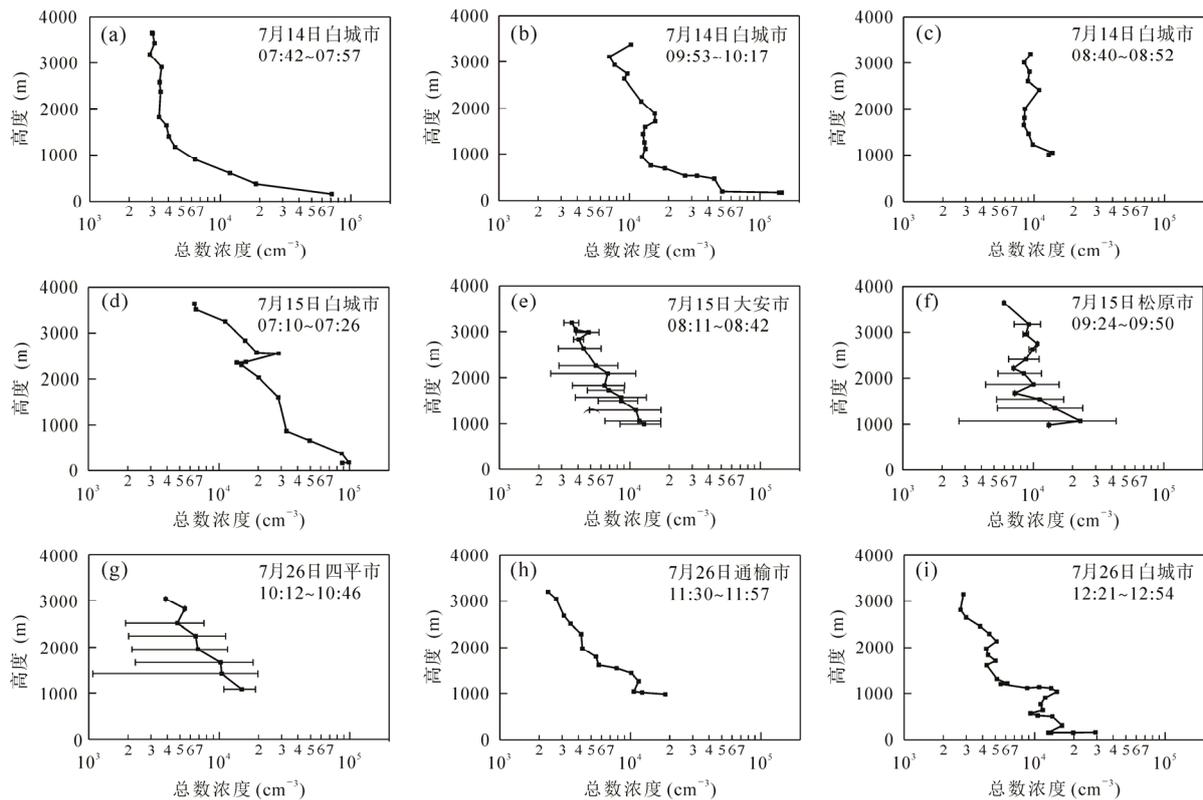


图 3 不同城市上方大气颗粒物数浓度的垂直廓线

Fig.3 Vertical profiles of atmospheric particles in different cities

(a) 7月14日白城市 07:42~07:57; (b) 7月14日白城市 09:53~10:17; (c) 7月14日松原市 08:40~08:52; (d) 7月15日白城市 07:10~07:26; (e) 7月15日大安市 08:11~08:42; (f) 7月15日松原市 09:24~09:50; (g) 7月26日四平市 10:12~10:46; (h) 7月26日通榆市 11:30~11:57; (i) 7月26日白城市 12:21~12:54

(a) Baicheng City, at 07:42~07:57 on July 14; (b) Baicheng City, at 09:53~10:17 on July 14; (c) Songyuan City, at 08:40~08:52 on July 14; (d) Baicheng City, at 07:10~07:26 on July 15; (e) Daan City, at 08:11~08:42 July on 15; (f) Songyuan City, at 09:24~09:50 on July 15; (g) Siping City, at 10:12~10:46 on July 26; (h) Tongyu City, at 11:30~11:57 on July 26; (i) Baicheng City, at 12:21~12:54 on July 26

颗粒物数浓度约为 $1 \times 10^4 \text{ cm}^{-3}$, 随海拔上升至 3000 m, 数浓度下降至 $3 \times 10^3 \text{ cm}^{-3}$ 。在松原市上空的飞行高度为 1000~4000 m, 颗粒物数浓度随海拔升高从 $2 \times 10^4 \text{ cm}^{-3}$ 下降至 $6 \times 10^3 \text{ cm}^{-3}$ 。本次工作得出的两类垂直廓线, 与陈鹏飞等^[6]在北京、胡向峰等^[36]和孙玉稳等^[23]在河北省石家庄地区得出的廓线特征类似。第一类廓线在边界层附近存在较明显的分界线, 即在边界层下方, 大气颗粒物数浓度随高度升高而显著降低, 在边界层上方, 大气颗粒物数浓度变化随高度变化不明显, 其产生原因为气溶胶垂直输送作用受边界层顶的阻挡; 第二类是随高度的升高, 城市上空的大气颗粒物数浓度降低, 且海拔高度与大气颗粒物数浓度呈现近似线性负相关的关系, 其产生原因为气溶胶垂直混合和水平传输能力很强, 故使气溶胶在水平和垂直方向上迅速被传输到其他地方, 导致垂直方向上的梯度变化^[6]。

2.3 颗粒物的数浓度粒径谱分析

颗粒物的粒径大小会影响其物理化学特性和大

气化学寿命, 因此, 颗粒物的数浓度粒径谱分析对于研究颗粒物的化学组成及来源有着重要作用。将 0~1000 m、1000~2000 m、2000~3000 m 和高于 3000 m 的 4 个海拔范围颗粒物数浓度分别做平均, 给出了 3 d 航测的大气颗粒物数浓度粒径谱图, 见图 4。7月14日的大气颗粒物为单峰分布, 各海拔范围均在 25~30 nm 处出现峰值, 其中, 小于 1000 m 的颗粒物峰值粒径的数浓度为 $5.4 \times 10^3 \text{ cm}^{-3}$, 是高于 1000 m 各海拔范围内颗粒物峰值粒径数浓度 ($1.0 \times 10^3 \sim 1.9 \times 10^3 \text{ cm}^{-3}$) 的 3~5 倍。7月15日也为单峰分布, 在不同高度, 峰值均为 25~30 nm, 其中, 在小于 1000 m 的海拔范围内其颗粒物峰值粒径数浓度最高, 达到 $4.3 \times 10^3 \text{ cm}^{-3}$, 随高度升高, 其峰值粒径数浓度降低, 依次为 $1.9 \times 10^3 \text{ cm}^{-3}$ 、 $1.2 \times 10^3 \text{ cm}^{-3}$ 和 $0.9 \times 10^3 \text{ cm}^{-3}$ 。7月26日的粒径分布与前两天有所不同, 在小于 1000 m 时为单峰分布, 峰值在 25~30 nm, 峰值粒径的颗粒物数浓度为 $2.0 \times 10^3 \text{ cm}^{-3}$; 在 1000 m 以上的颗粒物粒径为双峰分布, 峰值分别为 10 nm 和 25~30 nm,

且 10 nm 的颗粒物数浓度最高, 分别为 $2.0 \times 10^3 \text{ cm}^{-3}$ 、 $1.0 \times 10^3 \text{ cm}^{-3}$ 和 $2.2 \times 10^3 \text{ cm}^{-3}$ 。在 25~30 nm 处, 峰值粒径的颗粒物数浓度分别为 $1.2 \times 10^3 \text{ cm}^{-3}$ 、 $0.6 \times 10^3 \text{ cm}^{-3}$ 和 $0.7 \times 10^3 \text{ cm}^{-3}$, 略低于其他两天。对 3 d 航测经过的各城市做 48 h 后向气流轨迹, 如图 5 所示。可以看出, 7 月 14 日和 15 日的气团来源类似, 均来自西北方的蒙古和内蒙古地区。相似的气团来源也可解释相似的颗粒物粒径分布特征。而 7 月 26 日的气团来源则明显区别于其他两天, 这也进一步解释了该日区别于其他两天的颗粒物粒径分布特征。

结合图 2e~图 2f, 对 7 月 26 日航测过程中途经不同城市上空的大气颗粒物粒径分布进行分析, 发

现在四平市上空, 核模态数浓度升高, 而在其他时间的粒径分布与前两天类似。因此, 选取经过四平市上空时的颗粒物数浓度进行分析。如图 4d 所示, 在 1000~2000 m、2000~3000 m 及 3000 m 以上, 颗粒物均在 10 nm 有明显的峰值, 分别为 $5 \times 10^3 \text{ cm}^{-3}$ 、 $3.3 \times 10^3 \text{ cm}^{-3}$ 和 $2 \times 10^3 \text{ cm}^{-3}$, 为其他两天的 2~5 倍, 而爱根模态峰值粒径的颗粒物数浓度分别为 $0.9 \times 10^3 \text{ cm}^{-3}$ 、 $0.7 \times 10^3 \text{ cm}^{-3}$ 和 $0.8 \times 10^3 \text{ cm}^{-3}$, 略低于其他两天。通过图 5c 可以看出, 7 月 26 日四平市的气团来源明显区别于白城市和通榆市, 后者主要来自于内蒙古东南部和黑龙江省西部, 而四平市则主要来自于南部的辽宁省, 3000 m 海拔处的气团则来自于

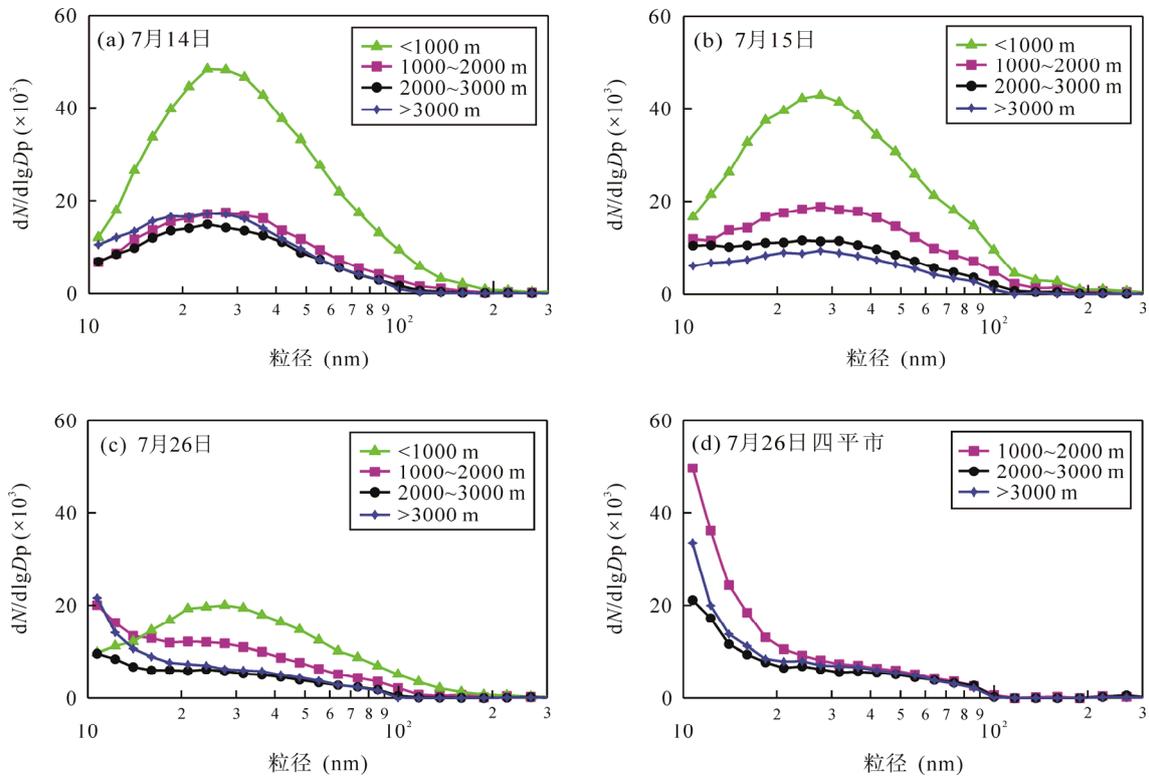


图 4 颗粒物数浓度粒径谱

Fig.4 Particle number size distribution
纵坐标为颗粒物数浓度

Y-axis is the particle number concentration

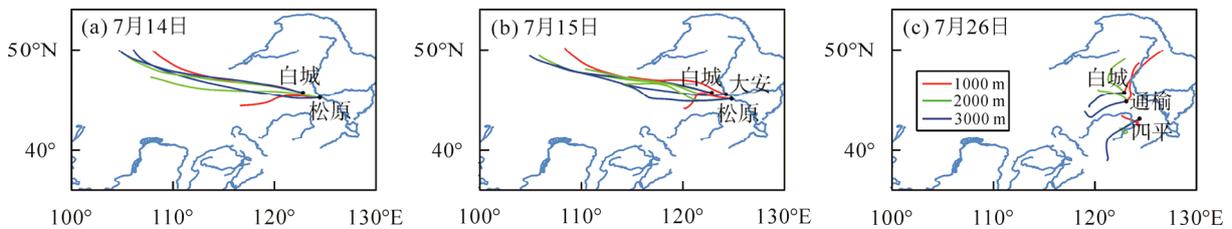


图 5 后向气流轨迹

Fig.5 Air mass backward trajectory

时间为当天 10: 00, 后推时间为 48 h。图中红线、绿线和蓝线分别表示后推起点海拔 1000 m、2000 m 和 3000 m
At 10: 00 that day, and the pushback time is 48 h. The red, green and blue lines indicate that the starting points of the pushback are 1000 m, 2000 m, 3000 m above sea level respectively

更远的华北平原,其远距离传输气团中的气态前体物在高空中的核化可能是在四平市观测到的新粒子生成事件的原因。

综合来看,7月14日与7月15日主要为单峰分布,颗粒物模态主要为爱根核模,7月26日在近地面(小于1000 m)为单峰分布,颗粒物模态主要为爱根核模,而在更高的海拔,核模态数浓度升高。核模态颗粒物通常来源于成核过程,即过饱和气态前体物在大气中形成颗粒物(新粒子生成)或一次排放的高温气体在大气中冷凝形成颗粒物(汽车尾气)^[36-38]。在高空,受燃烧影响较小,且25~30 nm处峰值粒径的数浓度小于其他两天的峰值粒径数浓度,因此,推测7月26日在四平市上空出现高浓度核模态颗粒物的主要原因是新粒子生成事件的发生。

3 结 论

(1) 在本次航测过程中,近地面的大气颗粒物数浓度平均为 $(2.7 \pm 2.2) \times 10^4 \text{ cm}^{-3}$,颗粒物粒径主要分布在核模态、爱根模态和积聚模态。近地面的大气颗粒物粒径分布较宽(10~200 nm),高空大气颗粒物粒径分布较窄(10~80 nm)。

(2) 大气颗粒物数浓度的垂直廓线主要有两种类型。第一种是边界层以下大气颗粒物数浓度垂直梯度变化较大,边界层以上大气颗粒物数浓度的垂直梯度明显减小。第二种是垂直廓线类型,海拔高度与大气颗粒物数浓度呈现近似负相关的线性关系,近地面颗粒物数浓度较高,随着海拔升高,出现垂直递减梯度。航测期间,吉林地区颗粒物浓度廓线以第二种为主。

(3) 观测期间,大气颗粒物数浓度粒径谱主要有两种分布类型。第一种为单峰分布,在25~30 nm出现峰值,后向轨迹显示其气团来源于吉林西部的蒙古和内蒙古地区。第二种分布类型主要出现在四平市的上空,除在25~30 nm之间出现一个峰值之外,核模态颗粒物数浓度增高,推测发生了新粒子生成事件,其后向气流轨迹显示气团来源于辽宁省和华北平原的远距离传输。

本次研究得到了国家重点基础研究发展计划(2016YFC 0200500)、山东省自然科学基金杰出青年基金(ZR2019JQ09)和国家自然科学基金(41775140)的支持,飞机航测实验得到了中国气象局吉林省人

民政府人工影响天气联合开放实验室和吉林省白城人工增雨基地的大力帮助,在此一并致谢。同时也感谢审稿专家对文章提出的修改意见和建议。

参考文献(References):

- [1] 王维佳,郭学良,李宏宇,董晓波. 基于飞机观测的四川盆地初夏云下气溶胶特征[J]. 干旱气象, 2018, 36(2): 167-175. Wang Wei-jia, Guo Xue-liang, Li Hong-yu, Dong Xiao-bo. Aerosols characteristics beneath the clouds based on airborne observation in early summer over Sichuan Basin [J]. J Arid Meteor, 2018, 36(2): 167-175 (in Chinese with English abstract).
- [2] 何稼祺,于兴娜,朱彬,袁亮,马佳,沈丽,朱俊. 南京冬季气溶胶消光特性及霾天气低能见度特征[J]. 中国环境科学, 2016, 36(4): 1645-1653. He Jia-qi, Yu Xing-na, ZHU Bin, Yuan Liang, Ma Jia, Shen Li, Zhu Jun. Characteristics of aerosol extinction and low visibility in haze weather in winter of Nanjing[J]. China Environ Sci, 2016, 36(4): 1645-1653 (in Chinese with English abstract).
- [3] 张小曳. 中国大气气溶胶及其气候效应的研究[J]. 地球科学进展, 2007, 22(1): 12-16. Zhang Xiao-ye. Aerosol over China and their climate effect[J]. Adv Earth Sci, 2007, 22(1): 12-16 (in Chinese).
- [4] Penner J E, Dickinson R E, O'neill C A. Effects of aerosol from biomass burning on the global radiation budget[J]. Science, 1992, 256(5062): 1432-1434.
- [5] Rosenfeld D, Sherwood S, Wood R, Donner L. Climate effects of aerosol-cloud interactions[J]. Science, 2014, 343(6169): 379-380.
- [6] 陈鹏飞,张蕾,权建农,高扬,黄梦宇,赵德龙,孟筠旺. 北京上空气溶胶浓度垂直廓线特征[J]. 环境科学研究, 2012, 25(11): 1215-1221. Chen Peng-fei, Zhang Qiang, Quan Jian-nong, Gao Yang, Huang Meng-yu, Zhao De-long, Meng Yun-wang. Vertical profiles of aerosol concentration in Beijing[J]. Res Environ Sci, 2012, 25(11): 1215-1221 (in Chinese with English abstract).
- [7] Bates T S, Huebert B J, Gras J L, Griffiths F B, Durkee P A. International global atmospheric chemistry (IGAC) project's first aerosol characterization experiment (ACE 1): Overview[J]. J Geophys Res Atmos, 1998, 103(D13): 16297-16318.
- [8] Collins D, Jonsson H, Liao H, Flagan R, Seinfeld J H, Noone K, Hering S. Airborne analysis of the Los Angeles aerosol[J]. Atmos Environ, 2000, 34(24): 4155-4173.
- [9] Collins D R, Johnsson H H, Seinfeld J H, Flagan R C, Gasso S, Hegg D A, Russell P B, Schmid B, Livingston J M, Öström E, Noone K J, Russell L M, Putaud J P. In situ aerosol-size distributions and clear-column radiative closure during ACE-2[J]. Tellus B, 2000, 52(2): 498-525.
- [10] Schmid B, Livingston J M, Russell P B, Durkee P A, Jonsson H H, Collins D R, Flagan R C, Seinfeld J H, Gassó S, Hegg D A, Öström E, Noone K J, Welton E J, Voss K J, Gordon H R, Formenti P, Andreae M O. Clear-sky closure studies of lower tropospheric aerosol and water vapor during ACE-2 using airborne sunphotometer, airborne in-situ, space-borne, and ground-based measurements[J]. Tellus B, 2000, 52(2): 568-593.

- [11] Haywood J, Francis P, Dubovik O, Glew M, Holben B. Comparison of aerosol size distributions, radiative properties, and optical depths determined by aircraft observations and Sun photometers during SAFARI 2000[J]. *J Geophys Res Atmos*, 2003, 108(D13): 8471.
- [12] Anderson T L, Masonis S J, Covert D S, Ahlquist N C, Howell S G, Clarke A D, Mcnaughton C S. Variability of aerosol optical properties derived from in situ aircraft measurements during ACE-Asia[J]. *J Geophys Res Atmos*, 2003, 108(D23): 8647.
- [13] Clarke A D, Uehara T, Porter J N. Atmospheric nuclei and related aerosol fields over the Atlantic: Clean subsiding air and continental pollution during ASTEX[J]. *J Geophys Res Atmos*, 1997, 102(D21): 25281–25292.
- [14] Sheridan P J, Ogren J A. Observations of the vertical and regional variability of aerosol optical properties over central and eastern North America [J]. *J Geophys Res Atmos*, 1999, 104(D14): 16793–16805.
- [15] 孟凡胜, 王飞, 殷宝辉, 耿春梅, 杨文, 李伟, 白志鹏. 京津冀中部夏季大气颗粒物空间分布特征[J]. *环境科学研究*, 2018, 31(5): 814–822.
Meng Fan-sheng, Wang Fei, Yin Bao-hui, Geng Chun-mei, Yang Wen, Li Wei, Bai Zhi-peng. Spatial distribution properties of atmospheric particles over central Beijing-Tianjin-Hebei Region in summer[J]. *Res Environ Sci*, 2018, 31(5): 814–822 (in Chinese with English abstract).
- [16] Hasegawa S, Wakamatsu S, Ohara T, Itano Y, Saitoh K, Hayasaki M, Kobayashi S. Vertical profiles of ultrafine to supermicron particles measured by aircraft over Osaka metropolitan area in Japan[J]. *Atmos Environ*, 2007, 41(4): 717–729.
- [17] McMeeking G R, Hamburger T, Liu D T, Flynn M, Morgan W T, Northway M, Highwood E J, Krejci R, Allan J D, Minikin A, Coe H. Black carbon measurements in the boundary layer over western and northern Europe[J]. *Atmos Chem Phys*, 2010, 10: 9393–9414.
- [18] Rosenfeld D, Woodley W L, Axisa D, Freud E, Hudson J G, Givati A. Aircraft measurements of the impacts of pollution aerosols on clouds and precipitation over the Sierra Nevada[J]. *J Geophys Res Atmos*, 2008, 113(D15203): 1–23.
- [19] Capes G, Johnson B, Mcfiggans G, Williams P I, Haywood J, Coe H. Aging of biomass burning aerosols over West Africa: Aircraft measurements of chemical composition, microphysical properties, and emission ratios[J]. *J Geophys Res Atmos*, 2008, 113(D00C15): 1–13.
- [20] Geng F H, Zhang Q, Tie X X, Huang M Y, Ma X C, Deng Z Z, Yu Q, Quan J N, Zhao C S. Aircraft measurements of O₃, NO_x, CO, VOCs, and SO₂ in the Yangtze River Delta region[J]. *Atmos Environ*, 2009, 43(3): 584–593.
- [21] Xue L K, Ding A J, Gao J, Wang T, Wang W X, Wang X Z, Lei H C, Jin D Z, Qi Y B. Aircraft measurements of the vertical distribution of sulfur dioxide and aerosol scattering coefficient in China[J]. *Atmos Environ*, 2010, 44(2): 278–282.
- [22] Xue L K, Wang T, Simpson I J, Ding A J, Gao J, Blake D R, Wang X Z, Wang W X, Lei H C, Jin D Z. Vertical distributions of non-methane hydrocarbons and halocarbons in the lower troposphere over northeast China[J]. *Atmos Environ*, 2011, 45(36): 6501–6509.
- [23] 孙玉稳, 孙霞, 银燕, 韩洋, 董晓波, 姜岩, 赵志军. 华北地区气溶胶数浓度和尺度分布的航测研究[J]. *中国环境科学*, 2012, 32(10): 1736–1743.
Sun Yu-wen, Sun Xia, Yin Yan, Han Yang, Dong Xiao-bo, Jiang Yan, Zhao Zhi-jun. Aerosol distribution in North China Plain under different weather conditions[J]. *China Environ Sci*, 2012, 32(10): 1736–1743 (in Chinese with English abstract).
- [24] 袁波, 董德明. 可吸入颗粒物造成的健康损失价值核算——以吉林市为例[J]. *四川环境*, 2006, 25(2): 83–86.
Yuan Bo, Dong De-ming. Accounting of health-loss value induced by inhalable particulate matter: A case study of Jilin City[J]. *Sichuan Environ*, 2006, 25(2): 83–86 (in Chinese with English abstract).
- [25] 鲍秋阳, 王毅勇, 张学磊, 张世春. 吉林市大气 PM_{2.5} 污染特征及来源分析[J]. *环境保护科学*, 2018, 44(3): 74–79.
Bao Qiu-yang, Wang Yi-yong, Zhang Xue-lei, Zhang Shi-chun. Analysis of the characteristics and sources of atmospheric PM_{2.5} pollution in Jilin City[J]. *Environ Protect Sci*, 2018, 44(3): 74–79 (in Chinese with English abstract).
- [26] Ding A J, Wang T, Xue L K, Gao J, Stohl A, Lei H C, Jin D Z, Ren Y, Wang X Z, Wei X L, Qi Y B, Liu J, Zhang X Q. Transport of north China air pollution by midlatitude cyclones: Case study of aircraft measurements in summer 2007[J]. *J Geophys Res Atmos*, 2009, 114(D8): 1–16.
- [27] 鄢超, 杨凌霄, 董灿, 袁琦, 高晓梅, 薛丽坤, 王哲, 王文兴. 济南冬季典型商业室内环境颗粒物污染特征[J]. *中国环境科学*, 2012, 32(4): 584–592.
Yan Chao, Yang Ling-xiao, Dong Can, Yuan Qi, Gao Xiao-mei, Xue Li-kun, Wang Zhe, Wang Wen-xing. Indoor particle pollution feature in commercial environment of Jinan, in winter, 2010[J]. *China Environ Sci*, 2012, 32(4): 584–592 (in Chinese with English abstract).
- [28] 王飞, 朱彬, 康汉清, 高晋徽. APS-SMPS-WPS 对南京夏季气溶胶数浓度的对比观测[J]. *中国环境科学*, 2011, 31(9): 1416–1423.
Wang Fei, Zhu Bin, Kang Han-qing, Gao Jin-hui. Comparative observations on summer aerosol number concentration measured by APS-SMPS-WPS in Nanjing area[J]. *China Environ Sci*, 2011, 31(9): 1416–1423 (in Chinese with English abstract).
- [29] Watson J G, Chow J C, Sodeman D A, Lowenthal D H, Chang M C O, Park K, Wang X. Comparison of four scanning mobility particle sizers at the Fresno Supersite[J]. *Particulology*, 2011, 9(3): 204–209.
- [30] Zhang Q, Streets D G, Carmichael G R, He K, Huo H, Kannari A, Klimont Z, Park I, Reddy S, Fu J. Asian emissions in 2006 for the NASA INTEX-B mission[J]. *Atmos Chem Phys*, 2009, 9(14): 5131–5153.
- [31] Hussein T, Dal Maso M, Petaja T, Koponen I K, Paatero P, Aalto P P, Hameri K, Kulmala M. Evaluation of an automatic algorithm for fitting the particle number size distributions[J]. *Boreal Environ Res*, 2005, 10(5): 337.

- [32] Chen Z Y, Zhang J S, Zhang T S, Liu W Q, Liu J G. Haze observations by simultaneous lidar and WPS in Beijing before and during APEC, 2014[J]. *Sci China Chem*, 2015, 58(9): 1385–1392.
- [33] Gao J, Wang T, Zhou X H, Wu W S, Wang W X. Measurement of aerosol number size distributions in the Yangtze River delta in China: Formation and growth of particles under polluted conditions[J]. *Atmos Environ*, 2009, 43(4): 829–836.
- [34] Sun Y W, Zhou X H, Wang W X. Aerosol size distributions during haze episodes in winter in Jinan, China[J]. *Particuology*, 2016, 28: 77–85.
- [35] 杨军, 周德平. 辽宁地区大气气溶胶粒子的垂直分布特征[J]. *南京气象学院学报*, 2000, 23(2): 196–203.
Yang Jun, Zhou De-ping. Vertical distribution of atmospheric aerosol particles over Liaoning province, China[J]. *J Nanjing Inst Meteor*, 2000, 23(2): 196–203 (in Chinese with English abstract).
- [36] 胡向峰, 孙云, 李二杰, 范根昌. 河北中南部不同天气条件下气溶胶的航测研究[J]. *中国环境科学*, 2017, 37(12): 4442–4451.
Hu Xiang-feng, Sun Yun, Li Er-jie, Fan Gen-chang. Observational study of aerosol in central and southern Hebei under different weather conditions[J]. *China Environ Sci*, 2017, 37(12): 4442–4451 (in Chinese with English abstract).
- [37] Kulmala M, Vehkamäki H, Petäjä T, Dal Maso M, Lauri A, Kerminen V M, Birmili W, Mcmurry P H. Formation and growth rates of ultrafine atmospheric particles: A review of observations[J]. *J Aerosol Sci*, 2004, 35(2): 143–176.
- [38] Vu T V, Delgado-Saborit J M, Harrison R M. Reviews: Particle number size distributions from seven major sources and implications for source apportionment studies[J]. *Atmos Environ*, 2015, 122: 114–132.