

## “两湖盆地”秋季黑碳气溶胶的分布及来源特征

朱彬<sup>①\*</sup>, 王媛敏<sup>①</sup>, 高晋徽<sup>②\*\*</sup>, 赵天良<sup>①</sup>, 王伶俐<sup>①</sup>

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/气象灾害教育部重点实验室/国家综合气象观测专项试验外场, 江苏 南京 210044;

② 南方科技大学 海洋科学与工程系, 广东 深圳 518055

\* 联系人, E-mail: binzhu@nuist.edu.cn

\*\* 联系人, E-mail: yawehappy2004@gmail.com

2020-04-22 收稿, 2020-05-03 接受

国家重点研发计划项目(2016YFA0602003); 国家自然科学基金资助项目(41830965); 中国博士后基金面上项目(2019M662169); 国家自然科学基金青年项目(41905114)

**摘要** 应用耦合了黑碳(Black Carbon, BC)区域源追踪方法的中尺度天气-化学模式(WRF-Chem), 对位于长江中游的湖南湖北盆地(以下简称两湖盆地)秋季(2015年10月)黑碳的分布、区域来源和日变化特征进行研究。结果表明, 由于两湖盆地所处地理位置及地形的特殊性, 在不同的风场条件下, 本地源和外来源对两湖盆地BC的贡献占比变化较大。两湖盆地秋季BC的来源主要有3种情形: 1) 北风控制下的传输型: 地面风速大, BC质量浓度相对低, 上风向源对两湖盆地近地面BC的贡献占比达30.6%, 其中汾渭地区的贡献最大, 本地源的贡献占比为61.7%。2) 地面风速小、大气稳定条件下的静稳型: 近地面BC质量浓度高, 本地源的贡献占比高达79.6%。3) 东北风控制下的传输型: 本地源和外来源的贡献共同使得两湖盆地BC维持较高质量浓度, 本地源的贡献占比为64.1%, 外来源的贡献主要包括安徽省、汾渭地区及长江三角洲的输送。在垂直方向上, 传输型的本地源贡献占比仅在300 m以下较高; 静稳型的本地源贡献占比较高, 可延伸到1 500 m以上(本地源的贡献占比在近地面约为75%、至1 500 m约为50%)。在日变化上, 本地源与外来源对两湖盆地BC的贡献占比呈相反变化, 夜间和早间本地源的贡献占比较高而外来源的贡献占比较低, 午后本地源的贡献占比减小而外来源的贡献占比明显增大; 相对静稳型而言, 传输型的这一日变化特征更为显著。

**关键词**

WRF-chem;  
源追踪;  
黑碳气溶胶;  
两湖盆地

环境大气中黑碳气溶胶(Black Carbon, BC)主要来自各种化石燃料和生物质燃料的不完全燃烧, 它是大气细颗粒物PM<sub>2.5</sub>的重要组成部分之一(Penner et al., 1993)。BC在大气气溶胶中的质量占比不大, 在城市大气中的质量比约为5%~15%(Bond, 2004; Yang et al., 2011)。BC对太阳光谱具有强烈的吸收作用, 从而加热大气, 是仅次于二氧化碳的大气增温物质(Chung, 2002; Menon, 2002; Bond et al., 2013), 又由于其对人类健康的危害(Jacobson, 2001; Janssen et al., 2011)和空气质量(Saikawa et

al., 2009)的影响, 使其成为不可忽视的重要大气污染物。中国BC排放量约占全球排放总量的1/4, 是全球主要排放源之一(吴兑, 2012)。BC在大气中的生命周期较短, 一般为7~10 d, 因此, 减少BC在大气中的含量是改善空气质量、调节区域气候行之有效的方法。为了设计有效的BC控制战略并减少其不利影响, 量化每个区域来源对特定目标区的BC贡献是十分重要的。

长江中游的湖南湖北盆地地区覆盖湖南省和湖北省, 以下简称: 两湖, 是长江经济带的重要组成部分

引用格式: 朱彬, 王媛敏, 高晋徽, 等. 2020. “两湖盆地”秋季黑碳气溶胶的分布及来源特征[J]. 大气科学学报, 43(4): 592-602.

Zhu B, Wang Y M, Gao J H et al. 2020. Distribution and source characteristics of Black carbon in autumn over “Hunan-Hubei basin”, China [J]. Trans Atmos Sci 43(4): 592-602. doi: 10.13878/j.cnki.dqkxxb.20200422001. (in Chinese).

分 随着长江经济带的发展和长江中游城市群的建设 城市化快速发展的同时 污染形势也不容乐观, BC 污染问题已经成为该地区不可忽视的环境问题之一(张楠等 2013)。同时两湖盆地地形特征也有利于周边和本地污染物汇聚, 两湖盆地地区是一种“次盆地”地形, 位于中国四个空气污染水平高的区域间(华北平原、长江三角洲地区、珠江三角洲地区、四川盆地), 被认为在东亚季风的影响下是中国地区空气污染物区域传输的中心(Shen et al., 2020)。目前对两湖地区 BC 分布和来源的研究得较少, 以往曾开展过湖北省武汉市 BC 的观测研究。例如, 应用后向轨迹模型发现了武汉的一次重污染过程中, BC 受到本地贡献、北方长距离输送、区域输送等多种来源的影响(张宇尧 2017)。但是基于轨迹模型的上述这类研究无法定量污染物的来源(Stein et al. 2015; Liu et al. 2018)。

化学传输模式由于考虑了大气污染物的平流、扩散、对流、化学反应、干湿沉降、排放源、微物理等完善的物理、化学过程, 其计算结果更具定量性, 不仅可以得到大气成分的三维分布和时间变化, 还可以通过近年来广泛流行的在线源追踪技术得到污染物的特定区域或行业排放来源(Wagstrom and Pandis, 2011; Wu et al., 2013; Bove et al., 2014; Itahashi et al. 2017)。由于在线源追踪技术标记的特征变量同时经历了模式中特定污染物经历的所有相关的化学和物理过程, 因此该技术相比于调整排放源的敏感性实验, 能够更真实地得到污染物的定量来源(Wang et al. 2013; Chen et al. 2017; Qiao et al. 2019)。臭氧是典型的二次污染物, 在区域模式 CAMx、NAQPMS 和 WRF-Chem 中, 已经移植该技术用于研究不同气象和污染条件下的臭氧来源和变化机制(Yarwood et al., 1996; Li et al., 2008; Gao et al. 2016, 2020)。

秋季 BC 质量浓度往往仅次于冬季, 而针对秋季 BC 分布和来源的研究较少, 同时 2015 年 10 月包括与不同天气型结合的污染类型, 既能反映本地主导, 也能反映外来输送。以 2015 年 10 月为例定量解析秋季典型月份不同地理源区对两湖地区 BC 的贡献, 研究包括: 1) 定量分析两湖地区秋季几种地面风场情形下的 BC 的分布和来源贡献; 2) 讨论垂直方向上, 从近地面至边界层中上层, BC 的区域来源特征; 3) 分析 BC 来源的典型日变化特征。

## 1 研究方法和模式评估

### 1.1 模式介绍及 BC 在线追踪方法设计

为了定量分析两湖地区 BC 的来源贡献特征, 基于 WRF-Chem (The Weather Research and Forecasting model with Chemistry) 模式 3.4 版本, 开发并耦合了 BC 源追踪方法。该方法与 CAMx (Yarwood et al., 1996) 和 NAQPMS 模式中的颗粒物来源解析技术 (PSAT) 相似(吴剑斌, 2012)。在预先划分了源区的前提下, 即可定量计算模拟区域内任意格点 BC 质量浓度的各源区贡献及其占比。

BC 源追踪的建立需要以下两个假设成立才可进行, 即: 1) 不同来源的污染物在模拟区域内任意一点上均为充分混合, 且化学性质相同; 2) 模拟区域内每一个格点上的污染物都可以 100% 的分配到所有来源。以此为前提, 将模拟区域划分为若干源区, 将每一个源区的 BC 作为一个独立变量, 因此对于模拟区域内任意一点的 BC 质量浓度  $C$  均等于来自各源区的 BC 质量浓度  $C_i$  之和, 即:

$$C = \sum_{i=1}^n C_i \quad (1)$$

而对于任意源区的 BC 质量浓度在任意时间步长的质量浓度改变量  $\Delta C_i$  均存在:

$$\Delta C_i = \Delta C_{\text{CHEM}_i} + \Delta C_{\text{PHY}_i} + \Delta C_{\text{EMIS}_i} \quad (2)$$

其中:  $\Delta C_{\text{CHEM}_i}$ 、 $\Delta C_{\text{PHY}_i}$ 、 $\Delta C_{\text{EMIS}_i}$  分别表示化学过程、物理过程以及排放过程所产生的 BC 质量浓度改变量。各源区 BC 对应的变量带入模式的理化过程当中进行计算得到对应的  $\Delta C_{\text{CHEM}_i}$  和  $\Delta C_{\text{PHY}_i}$ , 而对于排放过程  $\Delta C_{\text{EMIS}_i}$  进行如下处理:

$$\Delta C_{\text{EMIS}_i}(x, y, z) = \begin{cases} \Delta C_{\text{EMIS}}(x, y, z) & \text{模拟区域 } i \text{ 内;} \\ 0 & \text{模拟区域 } i \text{ 外。} \end{cases} \quad (3)$$

$\Delta C_{\text{EMIS}}$  为单位时间内由于排放所导致的 BC 质量浓度改变量, 当此格点属于源区  $i$  时,  $\Delta C_{\text{EMIS}_i}$  等于  $\Delta C_{\text{EMIS}}$ , 而当格点不属于源区  $i$  时,  $\Delta C_{\text{EMIS}_i}$  等于 0。因此, 每一个源区的 BC 通过模式的计算可以得到其在模拟区域内任意一点上的质量浓度信息, 进而实现 BC 的定量来源解析。相对于敏感性实验方法, 该方法不影响模式本身的模拟计算, 并且遵循质量守恒, 仅通过一次模拟便可计算得到所有源区的质量浓度贡献信息, 在不影响计算精度的前提下, 减少了模式模拟的计算量。

### 1.2 模式设置、数据及源区分

模拟区域(图1)中心为119.0°E、31.5°N。覆盖东亚地区和周边的海域,共包含99×99个网格,水平分辨率为36 km,模式层顶设在50 hPa处,自地表到模式层顶共分为38个不等距层。模式的模拟时间为2015年10月1日00时—31日00时(北京时间,下同),将模拟前24 h设置为spin-up的时间,时间积分步长为180 s,模式结果为逐小时平均量的输出。气相化学机制使用的是CBM-Z机制(Zaveri et al., 2008),而气溶胶方案则选用与之匹配的MOSAIC(Emmons et al., 2010a)机制中的4档方案,即在该方案中气溶胶粒径从0.039 μm到10 μm共分为4个粒径段进行计算。物理参数化方案使用以往模式研究中常用的方案,其中边界层方案使用YSU方案(Hong et al., 2006),陆面过程方案使用Noah方案(Chen and Dudhia, 2001)。以NCEP的FNL(1°×1°)气象场资料作为模式运行的初始和边界条件。人为源选用清华大学提供的MEIC(2016)源清单(<http://www.meicmodel.org/>)和MIX(2010)源清单(Li et al., 2017)。使用全球化学模式MOZART-4(Emmons et al., 2010b)为模式提供化学初始和边界条件。



图1 模式模拟区域及BC排放源区的设置(黑点表示模式评估所选站点,包括武汉、榆社和南京)

Fig.1 Model domains and BC emission source region divisions (Black dots represent selected sites for model evaluations, including Wuhan, Yushu and Nanjing)

源区分上,依据地理位置、经济发展水平和空

气污染情形等因素,将模拟区域划分为18个源区。其中京津冀(BTH)、长三角(YRD)是中国经济最为发达的两个经济区,往往存在着严重空气污染。本文定义汾渭地区包括陕西、山西、河南(SSH)三省,其能源结构以煤为主,工业污染排放量大,机动车排放污染问题亦突出,是中国另一个污染严重的地区;同时地理位置上毗邻本文主要研究的两湖地区。安徽(AH)、山东(SHD)单独标记。对于其余地区,将位置大致相同的省份和地区合并作为源区:东北(NECHN),包括黑龙江、吉林、辽宁;西北(NWCHN),包括内蒙古、宁夏、甘肃、青海部分地区;西南(SWCHN),包括四川、重庆、贵州、云南部分地区;南部(SCHN),包括广州、广西、海南、香港、澳门;东南(SECHN),包括江西、福建、台湾。对模拟区域的中国以外地区,蒙古-俄罗斯(SIB)、朝鲜半岛(KOR)、日本(JPN)、东南亚(SEASIA)、海洋(OCEAN)分别标记以及一个区域外流入。每个区域具体地理覆盖如图1所示。

### 1.3 模式结果评估

为了评估模式对气象要素和BC的模拟性能,将模拟区域内3个代表站点(湖北武汉、山西榆社和江苏南京)的温度( $T$ )、风速( $WS$ )、风向( $WD$ )和BC的模拟和观测结果进行了对比。图2为各个要素模拟值与观测值的时间序列对比。可以看出该模型再现了模拟时间段内各气象要素和BC质量浓度的数值大小和变化特征,其中对所有站点的温度值模拟得最好。观测的风速变化更为剧烈,但是总体上,模式的结果能有效地再现风速的日变化特征。除了个别时段,风向的观测值和模拟值也有较好的一致性。3个站点BC质量浓度的观测值与模拟值的一致性都很好,日际变化和日变化都能较好地模拟。

为了进一步验证模拟效果,分别计算了各要素的几种统计特征量(表1),分别为相关系数( $R$ )、一致性指数( $IOA$ )、平均偏差( $MB$ )、均方根误差( $RMSE$ )、平均分数偏差( $MFB$ )和平均分数误差( $MFE$ )。风向的 $IOA$ 指数( $IOA_{wdir}$ ),是按照Kwok(2009)的方法,根据风的矢量特性单独计算的。表1中所列出气象参数的判断标准阈值参考于Emery et al.(2001),BC的阈值参考U.S.EPA(2013)建议的阈值标准。对于所有的评估站点,温度和风速模拟值与观测值的相关系数分别大于0.72和0.5,并达到显著性水平( $\alpha=0.01$ )。温度、风速、风向的一致性指数分别大于0.82、0.53和0.7。

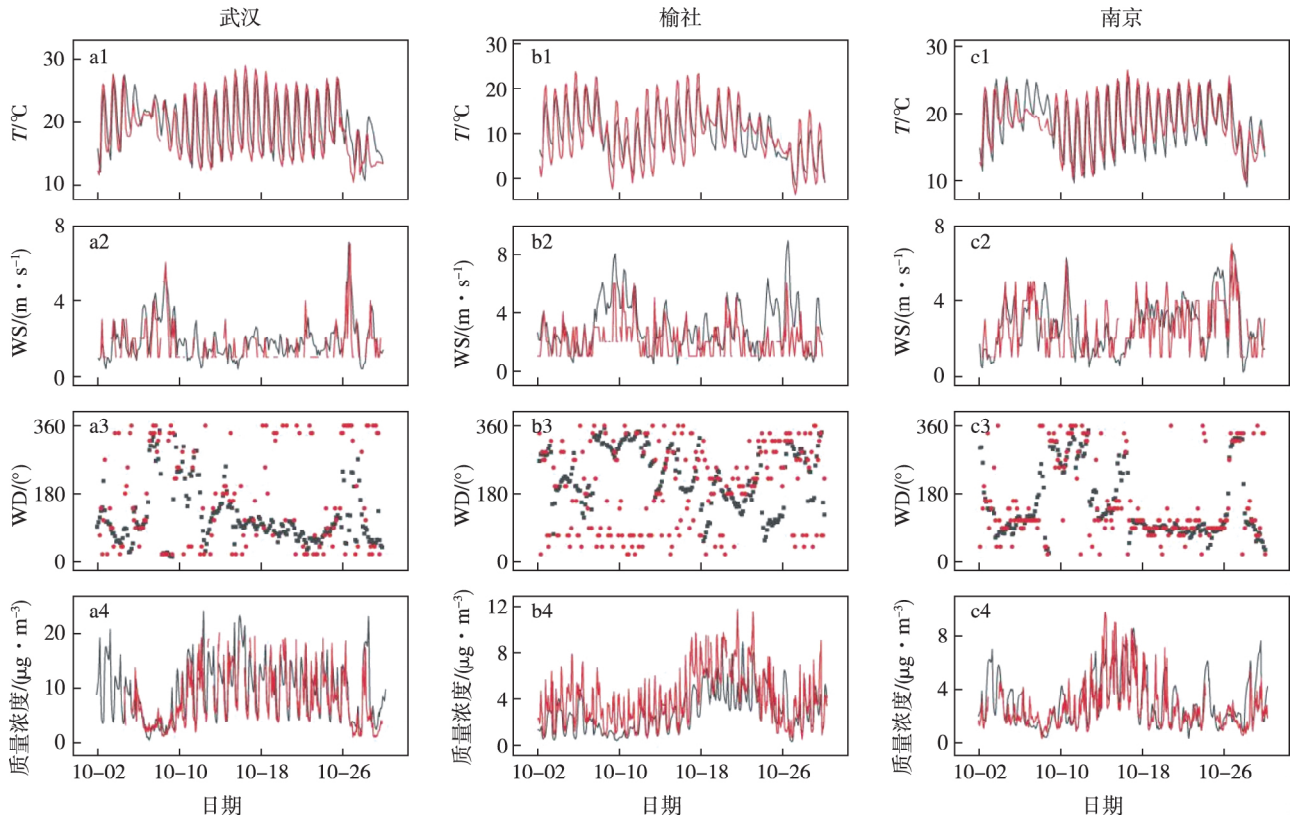


图2 观测(红色)和模拟(黑色)的气象要素(1.温度;2.风速;3.风向)及BC质量浓度(4)的时间序列:(a)武汉;(b)榆社;(c)南京

Fig.2 Time series of observed (red) and simulated (black) meteorological elements (temperature, wind speed and wind direction) and BC mass concentration: (a) Wuhan; (b) Yushu; (c) Nanjing

表1 气象要素(温度、风速、风向)和BC质量浓度的统计特征量及阈值标准

Table 1 Statistical characteristic quantities and threshold standards of meteorological elements (temperature, wind speed and wind direction) and BC mass concentration

变量	站点	R	IOA	MB	RMSE	MFB	MFE
温度/°C	武汉	0.72	0.82	1.01(≤±0.5) <sup>1)</sup>	3.39(≤±2.0) <sup>1)</sup>		
	榆社	0.85	0.91	0.12(≤±0.5)	3.4(≤±2.0) <sup>1)</sup>		
	南京	0.77	0.87	0.13(≤±0.5)	2.55(≤±2.0) <sup>1)</sup>		
风速/(m·s <sup>-1</sup> )	武汉	0.7	0.81	0.37	0.94(≤±2.0)		
	榆社	0.5	0.53	0.99	1.8(≤±2.0)		
	南京	0.65	0.8	0.26	1.15(≤±2.0)		
风向/(°)	武汉		0.84	-58.8	146.01		
	榆社		0.7	31.16	146.33		
	南京		0.92	-12.96	84.71		
BC质量浓度/(μg·m <sup>-3</sup> )	武汉	0.73	0.84	0.9	3.76	0.1(≤±0.6)	0.3(≤0.75)
	榆社	0.72	0.51	-1.93	2.57	-0.3(≤±0.6)	0.4(≤0.75)
	南京	0.77	0.86	0.33	1.32	0.07(≤±0.6)	0.2(≤0.75)

注: 1) 表示超出阈值范围.

榆社和南京温度的MB值符合阈值标准,但在武汉站的MB值大于阈值,说明模式模拟的温度在某些

区域一定程度上被高估了。但所有站点温度的R和IOA均大于0.7以上,总体上认为温度的模拟值



与观测值一致性非常好。3个站点 WS 的 RMSE 均符合阈值,且风向的 IOA 均在 0.7 以上,说明风速风向的模拟值和观测值在变化趋势上有较好吻合。总的来说模式较好地重现了气象要素,尤其是对风速风向的模拟,为研究 BC 的来源提供了良好的基础。本研究主要探讨的 BC 的观测和模拟值的相关系数在各站点均在 0.7 以上。所有站点 BC 的 MFB 和 MFE 符合 U.S.EPA (2013) 建议的 MFB ( $\pm 0.6$ ) 和 MFE (0.75) 阈值标准。整体上说明本次模拟效果良好,基本重现了模拟时间段内两湖本地和两湖以外源区气象要素和 BC 的实际情况,是进一步研究两湖地区 BC 区域来源的基础。

## 2 结果与讨论

### 2.1 近地面 BC 的分布和来源

风速和风向对近地面 BC 的传输有很大的影响。根据两湖地面风场条件及 BC 的质量浓度变化将 2015 年 10 月划分为 3 种情形。对应时间段依次为:10 月 4 日 00 时到 12 日 00 时(北京时,下同;情形 1)、10 月 12 日 00 时到 17 日 00 时(情形 2)、10 月 17 日 00 时到 28 日 00 时(情形 3)。图 3a—c 为三段时间内地面 BC 质量浓度及风场的平均空间分布。情形 1 时,中国中东部整体近地面 BC 质量浓度偏低( $1\sim 3 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ ),河南北部、长三角地区近地面风速较小,有利于污染物的累计,有部分地区 BC 质量浓度  $4\sim 5 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ 。两湖地面主要受北风吹控制,整体风速较大,地面 BC 质量浓度  $1\sim 7$

$\mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ 。地面 BC 高值出现在武汉长沙两个省会城市,其余大部分地区 BC 质量浓度较低。之后的情形 2 中国大部分地区地面 BC 质量浓度相比于情形 1 明显增加,两湖、河南北部、京津冀、山东、长三角大部分地区都有较高质量浓度的 BC 分布区,大于  $5 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ ,出现了大范围区域性 BC 污染。此时两湖地面风速较小,两个省会城市及周边城市呈现高质量浓度 BC 的片状分布。情形 3 时,中国中东部大部分地区主要受来自海洋偏东气流的影响,来自于海洋的洁净空气进入陆地,前一段时间地面高质量浓度 BC 被清除,但两省会城市周边仍维持较高质量浓度。两湖地面风速增大,近地面主要受东北风控制。

图 4a 给出了 2015 年 10 月两湖整体近地面平均风矢量的变化,可以表征两湖近地面风场的主导风向的变化,对应了图 3 的三次风场的转变。图 4b 为 10 月两湖近地面 BC 区域来源贡献情况,两湖近地面平均 BC 质量浓度为  $1\sim 5 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ 。10 月两湖的 BC 主要由本地源(湖北、湖南)贡献,且两个子区域的贡献量相当,这是由于两个省面积相当,且产业结构发展水平类似。除此以外,两湖地区还有外来源的 BC 输送,其中贡献比较明显的源区主要是汾渭(河南、陕西、山西)、安徽、长三角及西南地区。可以发现随风场的转变,这些外来源对两湖的 BC 贡献情况有较大的差异。

情形 1 时,近地面风场以风速较大的北风为主,两湖地面平均风速为  $2.7 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ ,汾渭源区的 BC

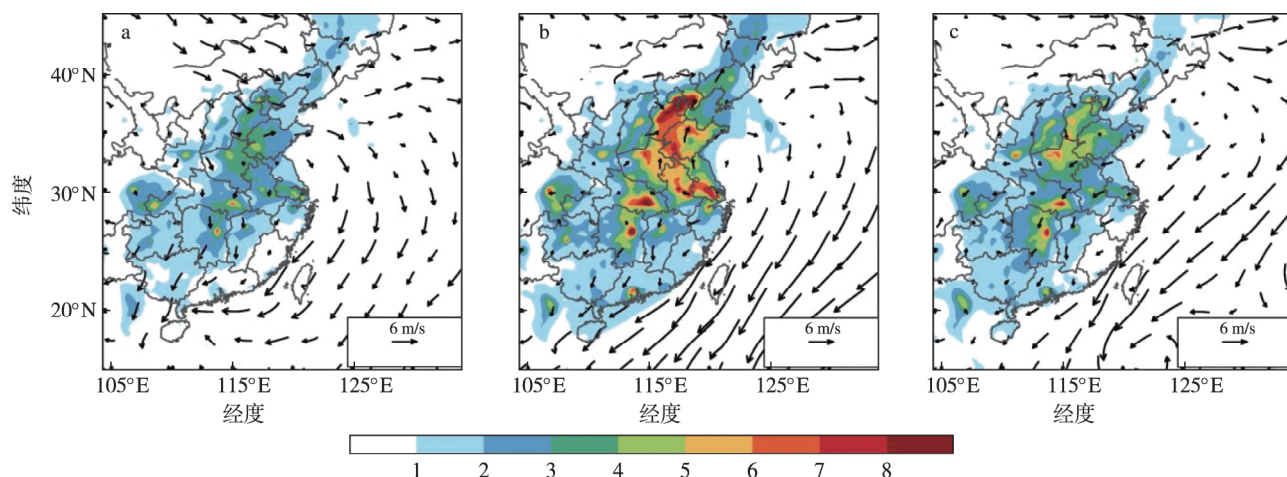


图 3 不同风场情形下近地面 BC 质量浓度分布(单位:  $\mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ ): (a) 10 月 4 日 00 时—12 日 00 时(情形 1); (b) 10 月 12 日 00 时—17 日 00 时(情形 2); (c) 10 月 17 日 00 时—28 日 00 时(情形 3)

Fig.3 Distributions of BC mass concentration (units:  $\mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ ) near surface under different wind fields: (a) from 00:00 BST 4 to 00:00 BST 12 October (episode 1); (b) from 00:00 BST 12 to 00:00 BST 17 October (episode 2); (c) from 00:00 BST 17 to 00:00 BST 28 October (episode 3)

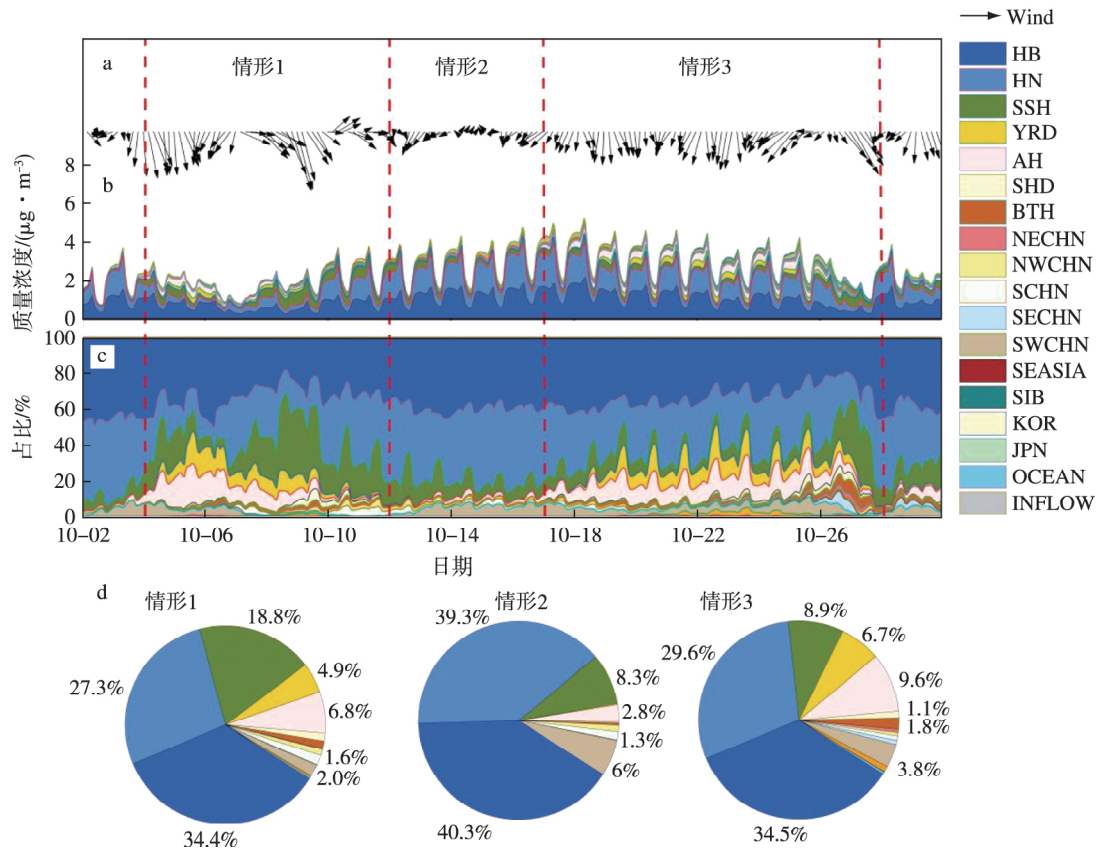


图4 2015年10月两湖盆地近地面平均风矢量(a)、BC区域来源质量浓度贡献(b;单位:  $\mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ )及贡献占比(c;单位:%)的时间序列,以及3种情形下的平均BC来源贡献占比(d)

Fig.4 Time series of (a) near surface mean wind vectors, (b) contributions of BC mass concentration (units:  $\mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ ) and (c) BC contribution ratios (units: %) from different geographical source regions to the Two Lakes Basin in October 2015 and (d) pie charts of average BC contribution ratios (units: %) from different geographical source regions in three episodes

对两湖的贡献明显。尤其是8—9日,由于风速较大、输送扩散条件较好,两湖近地面BC平均质量浓度偏低,最高值约为  $2 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ ,其中约40%的BC来源于汾渭的传输(图4b)。从情形1的平均来源贡献上看,本地源是两湖BC的最大贡献者,平均占比为61.7%。此外上风向源区对两湖近地面BC的贡献也很大,占比达到30.6%,其中汾渭、安徽、长三角对两湖地区的BC贡献比分别为18.8%、6.8%和4.9%。8、9日这两日,两湖BC的外来贡献可达到60%。

情形2时,整个两湖近地面平均风速变小,整个区域处于静稳状态(地面平均风速为  $1.2 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ ),此时本地排放的污染物不容易输送、扩散,导致本地源BC积聚,BC质量浓度相比于情形1时段明显增大(图3),两湖近地面平均质量浓度最高可达到  $4 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ (图4b)。源追踪结果表明,两湖地区近地面的BC主要来自两湖本地源的排放,占比为

79.6% 相比于情形1增加了近20%。此时外来输送作用相较于情形1时段明显减弱,主要是汾渭和西南地区的贡献,占比分别为8.3%、6%。

情形3,两湖近地面主要受东北风控制,平均风速相较于情形2明显增加,但小于情形1风速。两湖平均近地面BC质量浓度最高可达到  $5 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ 。可以看到情形1时较大的风速带来外来输送的BC的同时,也使得整个两湖BC质量浓度有下降。而情形3时,偏大的中等风速(两湖地面平均风速为  $2.2 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ )不仅没有使得两湖变得清洁,还让两湖的BC质量浓度在18日达到最高。这是因为情形2本地高BC还未完全移走,又叠加了东北风将情形2时的上风的高质量浓度BC输入;本地贡献和外来贡献的BC共同使得两湖的BC质量浓度升高。此时本地贡献BC占比64.1%,对两湖贡献最大的外来源是安徽,占比为9.6%,汾渭、长三角的贡献分别为8.9%、6.7%。

除去少数几天,大多数情况下,两湖本地源的贡献都是最大的。但由于两湖地区地理位置特殊,位于中国四个空气污染严重的区域之间,是中国地区大气污染物区域传输的中心。不同的风场条件下,不同外来源区对两湖BC的外来输入的贡献占比变化很大。以上分析的情形1、3就是在风速较大的北风、东北风作用下外来贡献BC较大的情况,定义为外源传输型。其中情形1主要受北风控制,外来源中汾渭的贡献最大;情形3主要受东北风控制,位于两湖东北方向的安徽、长三角对两湖BC的外来输送更强。而情形2近地面风速小、天气静稳,外来输入亦少,BC以本地贡献为主,定义为静稳型。

从两湖的子区域上看,湖北、湖南整个10月BC的质量浓度变化、来源情况(图5)和两湖的平均状态(图4)基本类似,但又同时有自己的特征。具体来说,湖北和湖南两个子区域间存在互相的BC输送,整体上来看湖北对湖南的BC贡献更强,这主要是由于整个10月两湖主要受偏北风控制,湖北处于湖南的上风向。BC的外来输送在两个子区域存在差异性,从安徽、长三角传输来的BC贡献在湖北大于湖南,尤其是近地面为东北风时(情形3)。相比湖北,湖南BC的外来输送还更多地受到西南地区的影响。

### 2.2 垂直方向上BC来源的变化

图6为3种情形下给出的垂直方向上的两湖BC质量浓度变化和不同源区对两湖BC的贡献比,可以看出,静稳阶段(图6b)BC垂直方向上的质量浓度相比于其他两个阶段,在近地面至200m间下

降的最快,这是由于静稳阶段边界层高度偏低,在近地面更易堆积高质量浓度BC,不易向上空扩散。这与一般气溶胶的垂直分布的观测是一致的(许潇锋等,2018;沙桐等,2019)。BC来源上,所有时间段两湖BC的来源变化有一些共同的特征,即本地源(湖北、湖南)的BC贡献随着高度的增加而下降,外来输送BC的占比(汾渭、安徽、长三角、西南地区、南部地区等)随高度增加而增加。在两个传输情形中(情形1、情形3),两湖本地源的BC贡献仅在300m以下占比较高(情形1、情形3的本地源贡献均大于40%),风速较大的情形1相较于风速较小的情形3,其垂直方向上本地贡献占比减小的更为快速(从近地面本地源占比约55%至1000m本地源占比约25%);而风速较小的情形3,本地贡献在垂直方向上减小的相对缓慢(从近地面本地源占比约55%至1000m本地源占比约40%)。这是由于通常越往高层风速越大,高层较高的输送通量将外源BC输入两湖,因此两湖外来源贡献的BC占比随着高度的增加而显著增加。在稳定的大气条件(情形2)下,高层的BC更多的是由两湖本地源BC垂直扩散和对流向上输入的,外来源仍较少,因此BC贡献的本地主导地位可维持到1500m以上(从近地面本地源占比约75%至1500m本地源占比约50%),到1500m以上外来源贡献才变大。

### 2.3 BC来源日变化特征

图7为两湖地区3种情形下BC来源的日变化。所有3种情形,近地面BC质量浓度的最高值都出现在08时(北京时,下同),最低值都出现在午

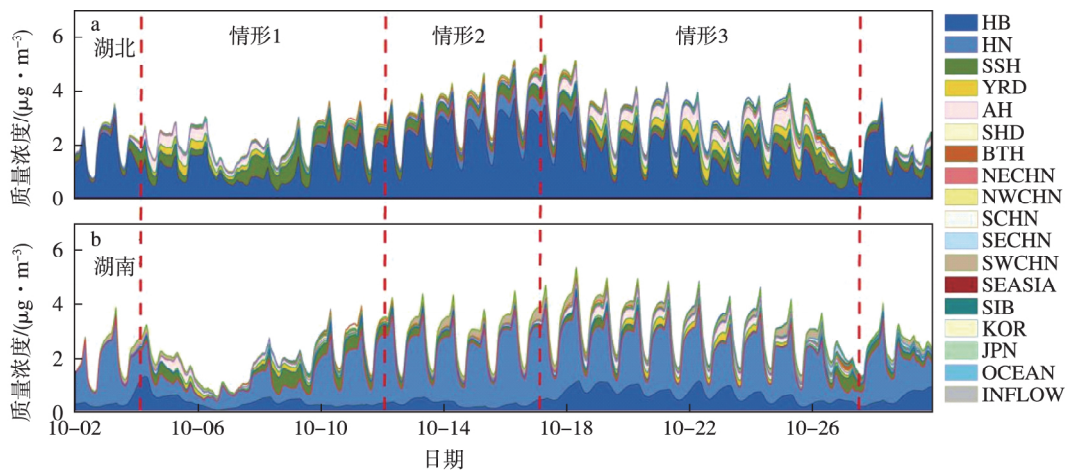


图5 2015年10月两湖盆地子区域BC区域来源质量浓度贡献的时间序列(单位:  $\mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ ): (a) 湖北; (b) 湖南

Fig.5 Time series of BC mass concentration contributions from different geographical source regions to sub-regions of the Two Lakes Basin in October 2015 (units:  $\mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ ): (a) Hunan; (b) Hubei



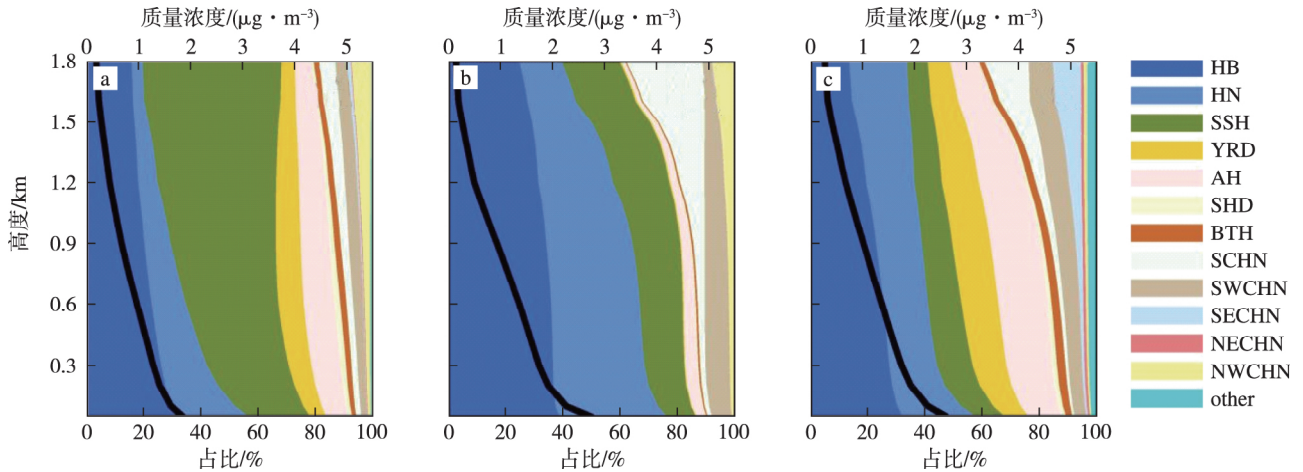


图6 两湖盆地 BC 质量浓度(黑实线;单位:  $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ ) 及区域来源贡献占比(填色部分;单位: %) 的垂直分布: (a) 情形1; (b) 情形2; (c) 情形3

Fig.6 Vertical distributions of BC mass concentration (black solid line; units:  $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ ) and BC contribution ratios (color filling part; units: %) from different geographical source regions to the Two Lakes Basin: (a) episode1; (b) episode 2; (c) episode 3

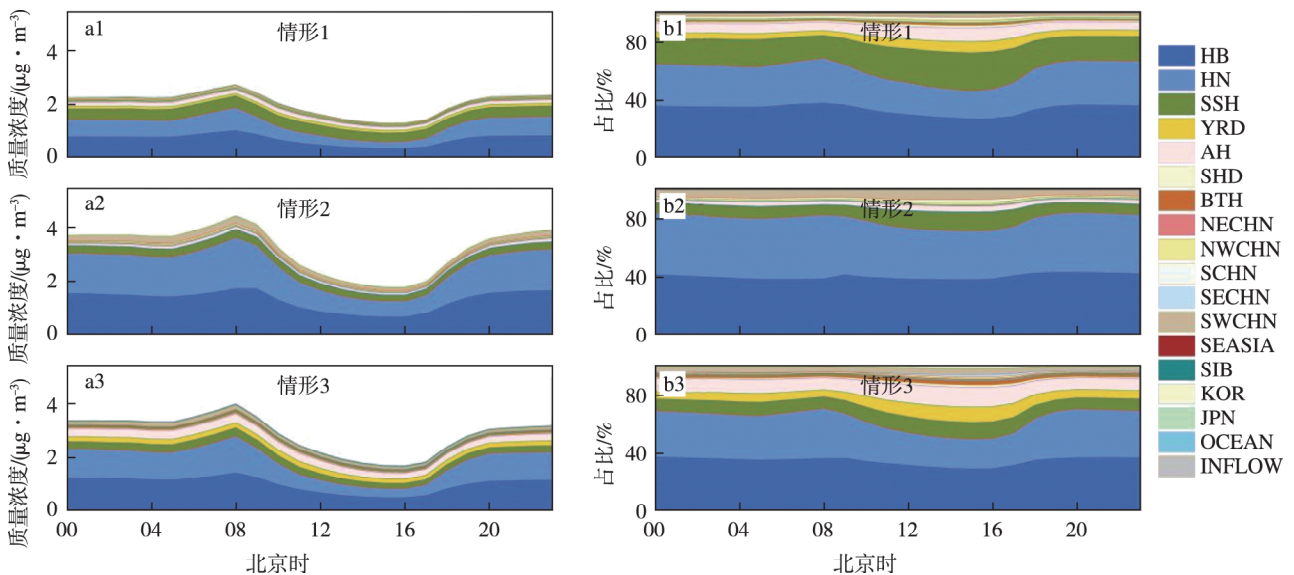


图7 两湖盆地 BC 区域来源质量浓度贡献(a; 单位:  $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ ) 和贡献占比(b; 单位: %) 的平均日变化

Fig.7 Average diurnal variations of (a) contributions of BC mass concentration( units:  $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ ) and (b) BC contribution ratios( units: %) from different geographical source regions to the Two Lakes Basin

后,到14—16时达到最低;BC质量浓度到20时又增加到较高值,并维持到第二天05时左右都变化不大。这是由于BC排放的日变化和边界层日变化的叠加造成的。早晨各类人为活动开始频繁,例如交通、工业、居民等BC排放增加,此时边界层尚未充分发展,边界层高度较低,导致地面BC质量浓度达到全天峰值。随着边界层发展、湍流、对流增强,BC有效地向高空输送、扩散;近地面BC质量浓度在午后会达到一天中的最低值。日落后随着边界层高度的下降,BC又会在近地面不断的累计维持较高的

质量浓度。

BC来源的日变化方面,3种情形下,两湖BC来源有相同的日变化特征,即两湖本地源对两湖BC贡献比的日变化特征与外来源的贡献比的特征相反。具体来说,本地源贡献占比在夜间和早间维持较高水平,在午后明显下降。两湖以外地区输送来的BC主要是由受风场控制,在BC来源日变化中的多数时间占比较小,但在中午至午后时段占比明显增加,特别是对输送型(情形1和3)其占比可达到或超过50%。2.2节分析发现,随着高度的增加,BC外来源占比增



加;中午至午后,边界层高度发展到最高、最旺盛,强烈的湍流交换将边界层上部 BC 夹卷至近地面导致 BC 质量浓度下降,但外来源占比增加。

### 3 结论

本文应用耦合了 BC 区域源追踪方法的中尺度天气-化学模式(WRF-Chem),将模拟区域划分为 18 个地理源区,对长江中游的湖南湖北盆地地区(两湖)秋季(2015 年 10 月)的 BC 分布、区域来源和日变化特征开展研究。

1) 由于两湖所处的地理位置和地形,在不同的风场条件下,本地源和外来源对两湖 BC 的贡献占比变化较大。两湖秋季 BC 主要有 3 种来源情形: a) 北风控制的传输型:近地面风速大,BC 质量浓度相对低,上风向源区对两湖近地面 BC 贡献占比达到 30.6%,主要来自汾渭、安徽、长三角。本地源平均贡献占比为 61.7%。b) 近地面风速小、大气稳定条件下的静稳型:近地面 BC 质量浓度较大,本地源贡献占比为 79.6%,本地源贡献比传输型高 10%~20%。c) 东北风控制的传输型:风速较大,本地源和

外来源贡献共同使得两湖 BC 维持较高质量浓度,本地源贡献占比为 64.1%,外来源主要来自安徽、汾渭和长三角。

2) 垂直方向上,传输型中,两湖本地源的 BC 贡献仅在 300 m 以下占比较高。风速较大的低质量浓度情形与风速较小的高质量浓度情形相比,其垂直方向上外来源 BC 占比增加得更快。静稳型中,高质量浓度 BC 通常与较高的本地贡献有关。本地源为主导可延伸到 1 500 m 以上(从近地面本地源占比约 75%,至 1 500 m 本地源占比约 50%)。

3) 两湖本地源 BC 贡献的质量浓度有明显的日变化,本地源与外部源对两湖 BC 的贡献占比呈相反变化。夜间和早间本地贡献占比维持较高水平而外来源贡献较小,午后随着边界层上部 BC 向近地面夹卷扩散,本地贡献占比减小而外来源占比明显增强。在传输型中,此变化特征更为明显,所有的外来贡献占比达到或超过 50%。本研究结果可为两湖地区环境空气质量评估和污染调控提供科学依据。

### 参考文献(References)

- Bond T C. 2004. A technology-based global inventory of black and organic carbon emissions from combustion [J]. *J Geophys Res*, 109(D14): D14203.
- 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]. *J Geophys Res Atmos*, 118(11): 5380-5552.
- Bove M C, Broto P, Cassola F, et al. 2014. An integrated PM<sub>2.5</sub> source apportionment study: positive matrix factorisation vs. the chemical transport model CAMx [J]. *Atmos Environ*, 94: 274-286.
- Chen D S, Liu X X, Lang J L, et al. 2017. Estimating the contribution of regional transport to PM<sub>2.5</sub> air pollution in a rural area on the North China Plain [J]. *Sci Total Environ*, 583: 280-291.
- Chen F, Dudhia J. 2001. Coupling an advanced land surface-hydrology model with the Penn state-NCAR MM5 modeling system. Part I: model implementation and sensitivity [J]. *Mon Wea Rev*, 129(4): 569-585.
- Chung S H. 2002. Global distribution and climate forcing of carbonaceous aerosols [J]. *J Geophys Res*, 107(D19): 4407.
- Emery C, Tai E, Yarwood G. 2001. Enhanced meteorological modeling and performance evaluation for two Texas ozone episodes [R]. Texas: The Texas Natural Resource Conservation Commission.
- Emmons L K, Apel E C, Lamarque J F, et al. 2010a. Impact of Mexico City emissions on regional air quality from MOZART-4 simulations [J]. *Atmos Chem Phys*, 10(13): 6195-6212.
- Emmons L K, Walters S, Hess P G, et al. 2010b. Description and evaluation of the model for ozone and related chemical tracers, version 4 (MOZART-4) [J]. *Geosci Model Dev*, 3(1): 43-67.
- Gao J H, Zhu B, Xiao H, et al. 2016. A case study of surface ozone source apportionment during a high concentration episode under frequent shifting wind conditions over the Yangtze River Delta, China [J]. *Sci Total Environ*, 544: 853-863.
- Gao M, Gao J H, Zhu B, et al. 2020. Ozone pollution over China and India: seasonality and sources [J]. *Atmos Chem Phys*, 20(7): 4399-4414.
- Hong S Y, Noh Y, Dudhia J. 2006. A new vertical diffusion package with an explicit treatment of entrainment processes [J]. *Mon Wea Rev*, 134(9): 2318-2341.
- Itahashi S, Hayami H, Yumimoto K, et al. 2017. Chinese province-scale source apportionments for sulfate aerosol in 2005 evaluated by the tagged tracer method [J]. *Environ Pollut*, 220: 1366-1375.
- Jacobson M Z. 2001. Strong radiative heating due to the mixing state of black carbon in atmospheric aerosols [J]. *Nature*, 409(6821): 695-697.
- Janssen N A H, Hoek G, Simic-Lawson M, et al. 2011. Black carbon as an additional indicator of the adverse health effects of airborne particles compared with PM<sub>10</sub> and PM<sub>2.5</sub> [J]. *Environ Heal Perspect*, 119(12): 1691-1699.

- Kwok R H F 2009. Numerical study on seasonal variations of gaseous pollutants and particulate matters in Hong Kong/Pearl River Delta region [D]. Hong Kong: The Hong Kong University of Science and Technology Library.
- Li J, Wang Z, Akimoto H et al. 2008. Near-ground ozone source attributions and outflow in central eastern China during MTX2006 [J]. *Atmos Chem Phys* 8(24): 7335-7351.
- Li M, Zhang Q, Kurokawa J I et al. 2017. MIX: a mosaic Asian anthropogenic emission inventory under the international collaboration framework of the MICS-Asia and HTAP [J]. *Atmos Chem Phys* 17(2): 935-963.
- Liu S H, Hua S B, Wang K et al. 2018. Spatial-temporal variation characteristics of air pollution in Henan of China: localized emission inventory, WRF/Chem simulations and potential source contribution analysis [J]. *Sci Total Environ* 624: 396-406.
- Menon S 2002. Climate effects of black carbon aerosols in China and India [J]. *Science* 297(5590): 2250-2253.
- Penner J E, Eddleman H, Novakov T 1993. Towards the development of a global inventory for black carbon emissions [J]. *Atmos Environ Part A Gen Top* 27(8): 1277-1295.
- Qiao X, Guo H, Tang Y et al. 2019. Local and regional contributions to fine particulate matter in the 18 cities of Sichuan Basin, southwestern China [J]. *Atmos Chem Phys* 19(9): 5791-5803.
- Saikawa E, Naik V, Horowitz L W et al. 2009. Present and potential future contributions of sulfate, black and organic carbon aerosols from China to global air quality, premature mortality and radiative forcing [J]. *Atmos Environ* 43(17): 2814-2822.
- 沙桐, 马晓燕, 银燕 等 2019. 石家庄地区气溶胶和 CCN 垂直廓线的飞机观测分析 [J]. *大气科学学报* 42(4): 521-530. Sha T, Ma X Y, Yin Y, et al. 2019. Aircraft measurements and analysis of the vertical distribution of aerosol particles and CCN over the Shijiazhuang area [J]. *Trans Atmos Sci* 42(4): 521-530. (in Chinese).
- Shen L J, Wang H L, Zhao T L et al. 2020. Characterizing regional aerosol pollution in central China based on 19 years of MODIS data: spatiotemporal variation and aerosol type discrimination [J]. *Environ Pollut* 263: 114556.
- Stein A F, Draxler R R, Rolph G D et al. 2015. NOAA's HYSPLIT atmospheric transport and dispersion modeling system [J]. *Bull Amer Meteor Soc*, 96(12): 2059-2077.
- U.S. EPA 2013. Guidance on the use of models and other analyses for demonstrating attainment of air quality goals for ozone, PM<sub>2.5</sub> and regional haze [R]. North Carolina.
- Wagstrom K M, Pandis S N 2011. Contribution of long range transport to local fine particulate matter concerns [J]. *Atmos Environ* 45(16): 2730-2735.
- Wang L T, Wei Z, Yang J et al. 2013. The 2013 severe haze over the southern Hebei, China: model evaluation, source apportionment and policy implications [J]. *Atmos Chem Phys Discuss* 13(11): 28395-28451.
- 吴兑 2012. 近十年中国灰霾天气研究综述 [J]. *环境科学学报* 32(2): 257-269. Wu D 2012. Hazy weather research in China in the last decade: a review [J]. *Acta Sci Circumstantiae* 32(2): 257-269. (in Chinese).
- Wu D W, Fung J C H, Yao T et al. 2013. A study of control policy in the Pearl River Delta region by using the particulate matter source apportionment method [J]. *Atmos Environ* 76: 147-161.
- 吴剑斌 2012. NAQPM 在线源解析模式的发展及应用: 上海市夏季二次污染物的来源研究 [D]. 北京: 中国科学院大学. Wu J B 2012. Development and application of NAQPM online source analysis model: a study on the source of secondary pollutants in summer in Shanghai [D]. Beijing: University of Chinese Academy of Sciences. (in Chinese).
- 许潇锋, 刘晨璇, 唐志伟 等 2018. 基于 CALIPSO 的华北地区气溶胶垂直分布特征 [J]. *大气科学学报* 41(1): 126-134. Xu X F, Liu C X, Tang Z W et al. 2018. Characteristics of aerosol vertical distribution based on CALIPSO over North China [J]. *Trans Atmos Sci* 41(1): 126-134. (in Chinese).
- Yang F, Tan J, Zhao Q et al. 2011. Characteristics of PM<sub>2.5</sub> speciation in representative megacities and across China [J]. *Atmos Chem Phys* 11(11): 5207-5219.
- Yarwood G, Morris R E, Yocke M A et al. 1996. Development of a methodology for source apportionment of ozone concentrations estimates from a photochemical grid model [C]//the 89th Annual Meeting of the Air and Waste Management Association.
- Zaveri R A, Easter R C, Fast J D et al. 2008. Model for simulating aerosol interactions and chemistry (MOSAIC) [J]. *J Geophys Res*, 113(D13): D13204.
- 张楠, 覃栋, 谢绍东 2013. 中国黑碳气溶胶排放量及其空间分布 [J]. *科学通报*, 19: 75-84. Zhang N, Qin Y, Xie S D et al. 2013. Spatial distribution of black carbon emissions in China [J]. *Chin Sci Bull*, 19: 75-84. (in Chinese).
- 张宇尧 2017. 武汉黑碳气溶胶的变化特征及来源分析 [D]. 武汉: 武汉大学. Zhang Y Y 2017. Temporal variation and source analysis of Black Carbon aerosol in Wuhan [D]. Wuhan: WuHan University. (in Chinese).

## Distribution and source characteristics of Black carbon in autumn over “Hunan-Hubei basin”, China

ZHU Bin<sup>1</sup>, WANG Yuanmin<sup>1</sup>, GAO Jinhui<sup>2</sup>, ZHAO Tianliang<sup>1</sup>, WANG Lingrui<sup>1</sup>

<sup>1</sup> Collaborative Innovation Centre on the Forecast and Evaluation of Meteorological Disasters/Key Laboratory of Meteorological Disaster, Ministry of Education (KLME)/Special Test Field of National Integrated Meteorological Observation, Nanjing University of Information Science & Technology, Nanjing 210044, China;

<sup>2</sup> Department of Ocean Science and Engineering, Southern University of Science and Technology, Shenzhen 518055, China

The Weather Research and Forecasting model coupled to Chemistry (WRF-Chem model), coupled with an online BC source-tagging method, was used to study on the distribution, regional sources and diurnal variation of black carbon (BC) in autumn of October 2015 of Hunan and Hubei (Hunan-Hubei) basin in the middle reaches of the Yangtze river. The results show that, the contribution of local source and outside sources to BC at “Hunan-Hubei” varied greatly under different wind field conditions. In this study, there are three main BC source episodes in autumn in “Hunan-Hubei”: (1) The type of import mainly controlled by north wind, with high wind speed and low BC concentration. The contribution to surface BC in “Hunan-Hubei” from upwind regions via transport was approximately 30.6%, and 61.7% from local source regions; (2) The type of stable under the condition of low surface wind speed and stable weather. The contribution of local BC was high, accounting for 79.6%; (3) The type of import mainly controlled by northeasterly wind. A high concentration of BC in “Hunan-Hubei” was maintained by the contributions from local and outside sources together, and the contribution of local sources was 64.1%. The contribution of outside sources mainly included the transport from Anhui, Shanxi-Shaanxi-Henan and Yangtze river delta. In the vertical direction, in the type of import, the local contribution to BC were mainly dominant under 300 m. Under the type of stable, the dominant contribution from local sources can be keep to more than 1 500 m (local source accounts for about 75% on surface and 50% at 1 500 m). In terms of diurnal variation, the change of contribution proportions of local and outside sources to BC in “Hunan-Hubei” was opposite. The proportion of local contribution remained high in the morning and night, while the contribution of external transport was low. In the afternoon, the local contribution decreased, while the contributions from outside was significantly enhanced. In the type of import, this feature of diurnal variation is more obvious.

**WRF-chem; source tagging; black carbon; Hunan-Hubei basin**

doi: 10.13878/j.cnki.dqkxxb.20200422001

(责任编辑: 张福颖)