

湍流对天津颗粒物粒径谱分布的影响¹

丁净¹, 姚青¹, 郝国², 刘敬乐³, 蔡子颖¹, 韩素芹¹

1. 天津市环境气象中心, 中国气象局-南开大学大气环境与健康研究联合实验室, 天津 300074

2. 天津市气象科学研究所, 天津 300074

3. 天津市气象探测中心, 天津 300061

摘要: 大气颗粒物粒径谱分布不仅受到温度、湿度和风等气象因素影响, 也与湍流等边界层特征密切相关。基于 2018 年 11 月同步观测的 14.6~660 nm 颗粒物粒径谱和相关气象数据, 探讨不同气象因子, 特别是湍流对颗粒物粒径谱分布的影响。研究表明: 气温升高有利于促进核模态颗粒物数浓度的增加, 相对湿度升高可减少核模态和爱根模态颗粒物的数浓度, 同时增加积聚模态的颗粒物数浓度。风速、湍流动能、摩擦速度、湍流强度等增加, 对爱根模态和积聚模态的颗粒物起稀释、清除作用, 但可促进核模态颗粒物数浓度的增长。与湍流日变化相反, 爱根模态和积聚模态的颗粒物总数浓度的日变化呈现昼低夜高的变化趋势, 清洁日核模态颗粒物总数浓度在午后持续增加, 并在傍晚前达到峰值。核模态颗粒物数浓度的增加相对于湍流的发展存在时间上的滞后性, 当湍流发展 3~5 h 后, 核模态颗粒物数浓度开始明显增加。风和湍流的稀释作用一方面会减少粒子间的凝聚作用, 同时通过减少大颗粒的汇促进核模态粒子数浓度的增加。

关键词: 颗粒物粒径谱分布; 湍流; 气象因素; 天津

中图分类号: X511 文献标识码: A 文章编号:

Impact of Turbulence on Particle size distribution at Tianjin

DING Jing¹, YAO Qing^{1,*}, HAO Jian², LIU Jing-le³, CAI Zi-ying¹, HAN Su-qin¹

1. Tianjin Environmental Meteorology Center, CMA-NKU Cooperative Laboratory for Atmospheric Environment-Health Research, Tianjin 300074

2. Tianjin Institute of Meteorological Science, Tianjin 300074

Tianjin Meteorological Observation Center, Tianjin 300061

Abstract: The particle size distribution is not only affected by meteorological factors such as temperature, air humidity and wind, but also closely regulated by the boundary layer mixing such as turbulence. Based on the simultaneously observed meteorological factors and particle size distribution in the range of 14.6~660 nm in November 2018, impact of different meteorological factors, especially turbulence, on the particle size distribution were explored, which helps to further understand the roles of meteorological factors in haze development. The results showed that increased relative humidity can reduce the particle number concentration (PNC) in nuclear mode and Aitken mode, but increases the PNC in accumulation mode. Elevated temperature increases the PNC in the nuclear mode. Elevated wind speed, turbulent kinetic energy, frictional velocity and turbulence intensity can dilute and then remove the particles in the Aiken and accumulation mode, but can increase the PNC in the nuclear mode. In contrast to the diurnal variation of turbulence, total PNC in Aitken mode and accumulation mode was low in the day and higher in the nighttime. On clean days, total PNC in the nuclear modal continued to climb in the afternoon and reached a peak at the nightfall. A time lag was found in the nuclear mode PNC increase in contrast to the turbulence development. After the turbulence developed for 3 to 5 hours, the PNC in nuclear mode begins to increase significantly. Enhanced turbulence could enlarge the distance between the newly formed particles and dilute pre-existing particle concentration, which are regarded as the sink of newly formed particles.

Key words: Particle size distribution; turbulence; meteorological factor; Tianjin

¹国家自然科学基金重点项目(No.42130513), 中国气象局创新发展专项(CXFZ2022P063)共同资助

第一作者: 丁净, 主要从事大气物理与大气环境研究, Email: dingjing0824@126.com

通信作者: 姚青, 主要从事大气环境与健康气象研究, Email: yao.qing@163.com

受排放源、气象条件以及气溶胶老化过程的影响,环境大气中颗粒物数浓度的粒径分布差异巨大(Wang et al,2019; Shang et al,2018),这一差异广泛体现在颗粒物的来源(Dai et al,2021; Squizzato et al, 2019)、新粒子生成(Qi et al,2019; Tang et al,2021;Xie et al,2017)、能见度变化(Chen et al,2012; Shen et al,2018)以及气候变化(孙悦等, 2021)等方面的科学问题上,环境大气中不同粒径的颗粒物对人体、环境和气候产生不同的影响。除交通源外,其他污染源排在短期内对颗粒物数浓度粒径分布的影响较为稳定,短时间内气象因素的改变会驱动颗粒物粒径谱分布发生剧烈变化。研究表明,风速、相对湿度、气温、辐射、边界层高度和湍流等是影响颗粒物粒径谱分布变化的主要气象因素(花艳等, 2017; 郎凤玲等, 2013),不同风向、下长距离及区域输送也会对颗粒物粒径谱分布造成重要影响(赵丽娜等, 2020)。

近地层湍流动量通量和热通量是表征地气间相互作用的重要参量(陆宣承等, 2020),对霾的演变(姚青等, 2018)、雾的发展(崔驰满等, 2018)、降水过程(郭丽君等, 2019)和突然增温(罗然等, 2020)等有重要作用。在污染源或气象条件变化较为稳定的情况下,湍流障碍效应和间歇性的湍流增强会导致颗粒物垂直分布发生改变(Ren et al, 2021)。在热不稳定的大气中,随机和突然的垂直混合过程有利于粒子成核,边界层内的湍流可能引起温度和水汽的波动,增加前体物的上升运动,有利于粒子的核化和生长(Bigg,1997; Nilsson et al,2001)。Wu et al(2021)的研究发现,强湍流可降低大气中已存在颗粒物的浓度,增大粒子间的距离,进而减少对新粒子汇的作用,同时湍流的扰动可增大分子簇的粒径,增加成核的源,湍流通过“增源减汇”促进新粒子生成。

天津气象铁塔的湍流观测已有 10 余年,相关资料多应用于雾(吴彬贵等, 2013)、霾(姚青等, 2018)等低能见度天气研究中。本研究基于 2018 年 11 月同步观测的 14.6~660 nm 颗粒物数浓度粒径谱和气象数据,探讨不同气象因子,特别是湍流对不同粒径段颗粒物数浓度的影响,以期进一步认识气象因素在颗粒物生消和发展中的作用,为科学认识大气污染提供技术支撑。

1 资料和方法

2018 年 11 月 1—22 日于天津大气边界层观测站开展了为期 22 d 的颗粒物数浓度粒径谱和气象因素同步观测。该站位于天津市城区南部,海拔高度为 2.2 m,其北边和东边为道路,西边和南边为住宅区,周边无明显工业污染源;其作为天津城区边界层气象和大气环境观测的代表性站点,已开展长达 30 年的持续观测与研究(Wu et al,2015;刘敬乐等, 2020)。表 1 为本研究所用的观测仪器基本信息。

表 1 观测仪器参数

Table 1 Instruments information

观测要素	观测设备	厂家名称(国别)	灵敏度	量程	时间分辨率
PM _{2.5} 浓度	TEOM RP1400a	Thermo-Fisher (美国)	0.01μg·m ⁻³	0~1000μg·m ⁻³	1 h
颗粒物数浓度	SMPS	TSI (美国)		14.6~660 nm	5min
气温	DZZ6 型自动气象站	中环天仪(中国)	0.1℃	-50℃~50℃	1 h
相对湿度	DZZ6 型自动气象站	中环天仪(中国)	1%	0%~100%	1 h
风向(40m)	EL15-2D	中环天仪(中国)	3°	0~360°	1 h
风速(40m)	EL15-1A	中环天仪(中国)	0.1 m s ⁻¹	0.3~60 m s ⁻¹	1 h
u			0.01 m s ⁻¹	±30 m s ⁻¹	
v			0.01 m s ⁻¹	±30 m s ⁻¹	
w	CSAT3 型超声风速仪	Campbell (美国)	0.005 m s ⁻¹	±8 m s ⁻¹	30 min

PM_{2.5} 质量浓度按照《环境空气颗粒物(PM₁₀和PM_{2.5})连续自动监测系统运行和质控技术规范(HJ 817-2018)》(生态环境部, 2018)执行质控。扫描电迁移率粒径谱仪 SMPS(Scanning Mobility Particle Sizer)由 3081 型差分迁移率分析仪 DMA(Differential Mobility Analysers)和 3772 型粒子计数器 CPC(Condensation

Particle Counters) 组成, 测量范围为 14.6~660 nm, 时间分辨率为 5 min。多分散气溶胶通过 DMA 后, 筛选出中心粒径为 D_d 的准单分散气溶胶, 由 CPC 完成计数, CPC 工作液为正丁醇。观测期间样气流量和 DMA 的鞘气流量分别为 0.3 L min^{-1} 和 3 L min^{-1} 。SMPS 装有除湿装置, 保证样气的相对湿度低于 30%。SMPS 采用其自带 AIM 软件 (Aerosol Instrument Manager) 进行控制、采集和数据处理。采样结束后检查 AIM 导出数据的连续性和数值大小, 结合以往研究判断结果是否处于正常范围, 对存疑数据结合 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度进行核实等方法对数据进行质量控制。鉴于本研究使用的 SMPS 测量的最小粒径已接近 15 nm, 因此不讨论新粒子生成事件的特征。为减少观测点周边建筑物 (平均高度为 20~30 m) 对风阻挡造成风速和风向的不确定性, 风速和风向采用气象塔 40 m 高度处的观测值, 气温和相对湿度采用地面自动气象站资料, 以上气象数据均采用气象业务资料质量控制流程进行质控。湍流资料的测量高度为 40 m (超声风速仪在气象塔的最低架设高度), 可测量 u 、 v 、 w 三维风速分量和声速 c , 并由此计算出声学虚温 T_v , 水平方向和垂直方向风速分量的测量误差分别小于 $\pm 0.04 \text{ m s}^{-1}$ 和 $\pm 0.02 \text{ m s}^{-1}$ 。参考 Vickers and Mahrt (1997) 的方法对湍流资料进行处理, 主要包括剔除野点、质量控制、平面拟合、阻尼损失校正和 Webb 校正等步骤, 计算湍流动能、平均动能、动量通量、摩擦速度、感热通量和潜热通量等, 具体计算方法参见李敏娜等(2015)。

2 结果和讨论

2.1 气温、相对湿度和风对颗粒物粒径谱分布特征的影响

观测期间平均气温为 $8.0 \pm 3.5 \text{ }^\circ\text{C}$, 平均相对湿度为 $63 \pm 24 \%$, 40 m 高度处平均风速为 $2.2 \pm 1.2 \text{ m s}^{-1}$, 主导风向为西南风。地面 $\text{PM}_{2.5}$ 质量浓度平均值为 $73 \pm 46 \text{ } \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$, 最大值为 $201 \text{ } \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$, $\text{PM}_{2.5}$ 质量浓度日均值超过 $75 \text{ } \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ 的时长占总观测时长的 60.3%。根据以往研究对颗粒物模态的分类标准(Tang et al, 2021; 赵丽娜等, 2020), 根据粒径 (D_p) 大小将颗粒物划分为核膜态 ($D_p < 25 \text{ nm}$)、爱根模态 ($25 \text{ nm} \leq D_p \leq 100 \text{ nm}$) 和积聚模态 ($D_p > 100 \text{ nm}$)。 $75 \text{ } \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ 为环境保护部和国家质量监督检验检疫总局 (2012) 的《环境空气质量标准》(GB 3095-2012) 24 小时平均值的二级标准。如图 1 所示, 当 $\text{PM}_{2.5}$ 质量浓度低于该值, 即 $\rho < 75 \text{ } \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ 时, 颗粒物数浓度峰值粒径在 90 nm 左右, 峰值的对数浓度约为 $1.5 \times 10^4 \text{ 个 cm}^{-3}$; 当 $75 \text{ } \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3} < \rho < 150 \text{ } \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ 时, 颗粒物粒径谱呈双模态分布, 峰值分别位于爱根模态和积聚模态, 其中积聚模态的峰值粒径在 130 nm 左右, 对数浓度约为 $2.0 \times 10^4 \text{ 个 cm}^{-3}$; 当 $\rho > 150 \text{ } \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ 时, 颗粒物粒径谱呈双模态分布, 峰值分别位于爱根模态和积聚模态, 积聚模态颗粒物数浓度峰值粒径在 160 nm 左右, 对数浓度约为 $1.8 \times 10^4 \text{ 个 cm}^{-3}$ 。随着污染的加重, 颗粒物的粒径逐渐增大, 但 $\rho > 150 \text{ } \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ 条件下颗粒物之间的碰并可能导致颗粒物的数浓度较 $75 \text{ } \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3} < \rho < 150 \text{ } \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ 时低。

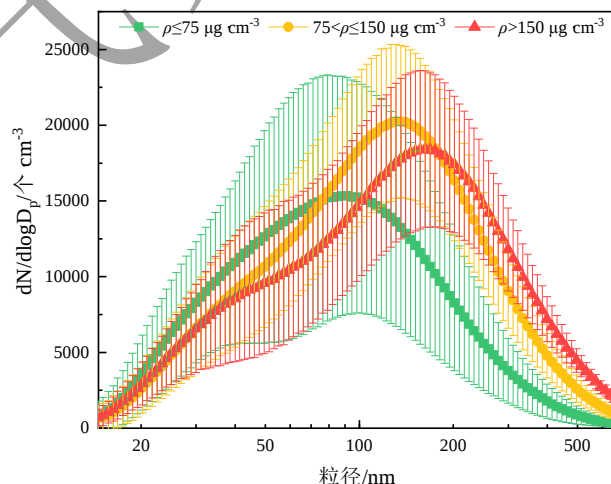


图 1 2018 年 11 月 1—22 日天津不同 $\text{PM}_{2.5}$ 质量浓度水平下颗粒物粒径谱分布

Fig. 1 Average particle size distribution under different $\text{PM}_{2.5}$ mass concentration levels in Tianjin from 1 November to 22 November 2018

气温、相对湿度和风是影响颗粒物粒径谱分布的主要气象因素，图 2 和图 3 给出了不同模态颗粒物的总数浓度随不同气象因子的变化趋势。如图 2 所示，随着环境相对湿度的升高，核模态和爱根模态的颗粒物总数浓度呈下降趋势，而积聚模态则呈现上升趋势，与相对湿度增大诱发粒子吸湿增长（丁净等，2021），同时增加粒子间碰并概率，使得粒子粒径增大有关（李星敏等，2018）。气温增加，核模态颗粒物数浓度增加明显，爱根模态和积聚模态粒子的数浓度变化对气温响应不明显。风速对不同模态颗粒物总数浓度的影响亦有不同，整体而言风速增大促进核模态粒子数浓度的增加，降低了爱根模态和积聚模态颗粒物的数浓度，在我国其他地区及国外的研究中也观测到类似的现象（赵丽娜等，2020；Cugeron et al, 2018）。相较于核模态粒子，爱根模态以及积聚模态颗粒物粒径较大，黏度低，惯性大，风速增大加剧大气流动，有利于降低单位体积大气中爱根模态和积聚模态的颗粒物，起到稀释、清除作用。爱根模态和积聚模态的颗粒物的稀释间接降低了核模态粒子的汇，从而促进核模态粒子数浓度的增加，同时风的稀释作用本身会增大粒子之间的距离，减少凝聚作用的发生。如图 3 所示，核模态颗粒物数浓度的高值区伴随着较大风速的偏北风和偏南风，西风主导下核模态颗粒物数浓度偏低，爱根模态颗粒物数浓度的高值区主要伴随着静风和偏南风，积聚模态颗粒物数浓度的高值区主要伴随着偏西风和西南风，且与 $\text{PM}_{2.5}$ 质量浓度随风向、风速的分布高度一致，高于 2 m s^{-1} 的风速下出现的积聚模态颗粒物高值区说明存在颗粒物输送的贡献，污染物的西南路径输送是导致天津市重污染发生的成因之一（江琪等，2019）。

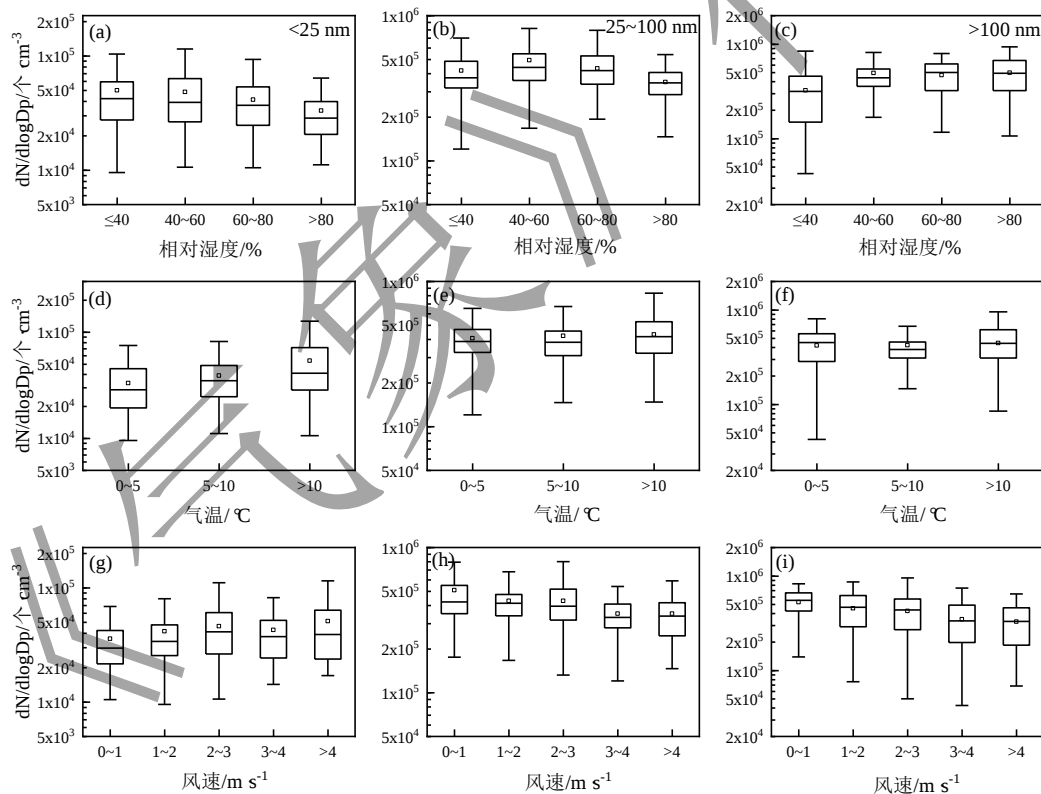


图 2 2018 年 11 月 1—22 日天津 (a,d,g) 核模态、(b,e,h) 爱根模态和 (c, f, i) 积聚模态的颗粒物总数浓度在不同相对湿度、气温以及风速等级下的分布

Fig.2 Distribution of total particle number concentration in different mode with different relative humidity, premature, and wind speed levels in Tianjin from 1 November to 22 November 2018

(a,d,g)Nuclear mode, (b,e, h) Aiken mode, (c, f, i) Accumulation mode

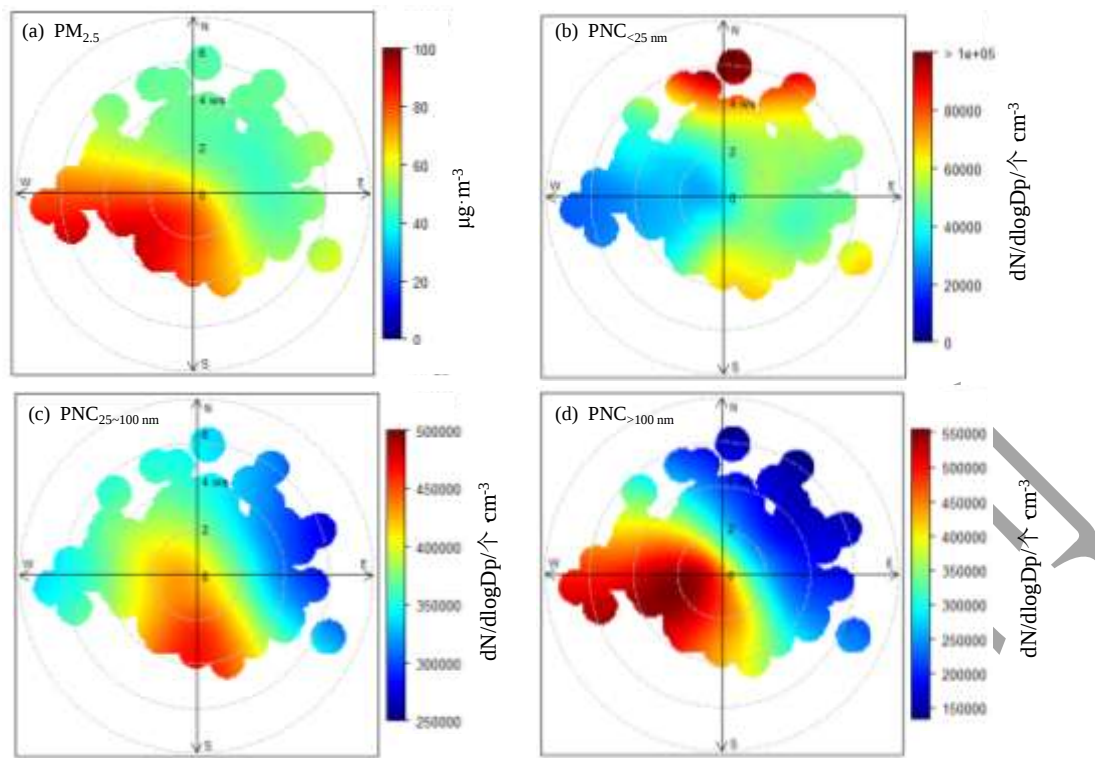


图 3 不同风速和风向下 2018 年 11 月 1—22 日天津 (a) $\text{PM}_{2.5}$ 质量浓度和 (b) 核模态、(c) 爱根模态、(d) 积聚模态颗粒物总数浓度分布 (填色表示在不同风向和风速下相应参数的平均值, 径向灰色同心圆表示风速等级, 数字表示具体风速值, 单位: m s^{-1})

Fig. 3 Wind-dependence map of (a) $\text{PM}_{2.5}$ mass concentration and (b) Nuclear mode, (c) Aiken mode, (d) Accumulation mode total particle number concentration in different modes in Tianjin from 1 November to 22 November 2018

[Shaded contour indicates the mean value of corresponding parameter for varying wind speeds (radial direction) and wind directions (transverse direction)]

2.2 湍流对颗粒物粒径谱分布的影响

近地层湍流动量通量和热通量是表征地气间相互作用的重要参量, 对颗粒物的输送有重要作用, 分析湍流动量、摩擦速度等参数的演变有助于理解湍流输送对颗粒物粒径谱分布的影响(李敏娜等, 2015)。湍流动能是湍流活动强弱的能量的度量, 观测期间垂直方向的湍流动能只占湍流动能的 5% 左右, 水平湍流动能是湍流动能的主要贡献者。湍流强度代表湍流的强弱程度, 可以分为 I_u 、 I_v 、 I_w 3 个方向上的湍流强度, 摩擦速度用来表示机械湍流的强弱。如图 4 所示, 核模态颗粒物数浓度随着湍流动能的增加而略有增长, 爱根模态和积聚模态的颗粒物数浓度则随着湍流动能的增加整体呈下降趋势。摩擦速度、垂直和水平方向的湍流强度对不同模态颗粒物粒径谱分布的影响相似, 与德国和意大利的观测一致 (Weber et al, 2013; Chu et al, 2019)。湍流对颗粒物粒径谱分布的影响与风类似, 湍流活动的增强对爱根模态和积聚模态颗粒物主要起稀释和清除作用, 进而减少对新粒子汇的作用。同时湍流扰动可增大分子簇的粒径, 进而增加成核的源, 因此增加核模态颗粒物的数浓度, Wu et al (2021) 利用分子动力学模型模拟湍流发展对成核过程的影响, 从实验层面证实了上述机制。当垂直方向的湍流强度大于 0.15 时, 爱根模态和积聚模态颗粒物的数浓度也有所增加, 此时所对应的时刻多为 10—14 时, 这与中午时段边界层充分发展, 边界层上层气溶胶向地面传输造成颗粒物数浓度的短时上升有关。

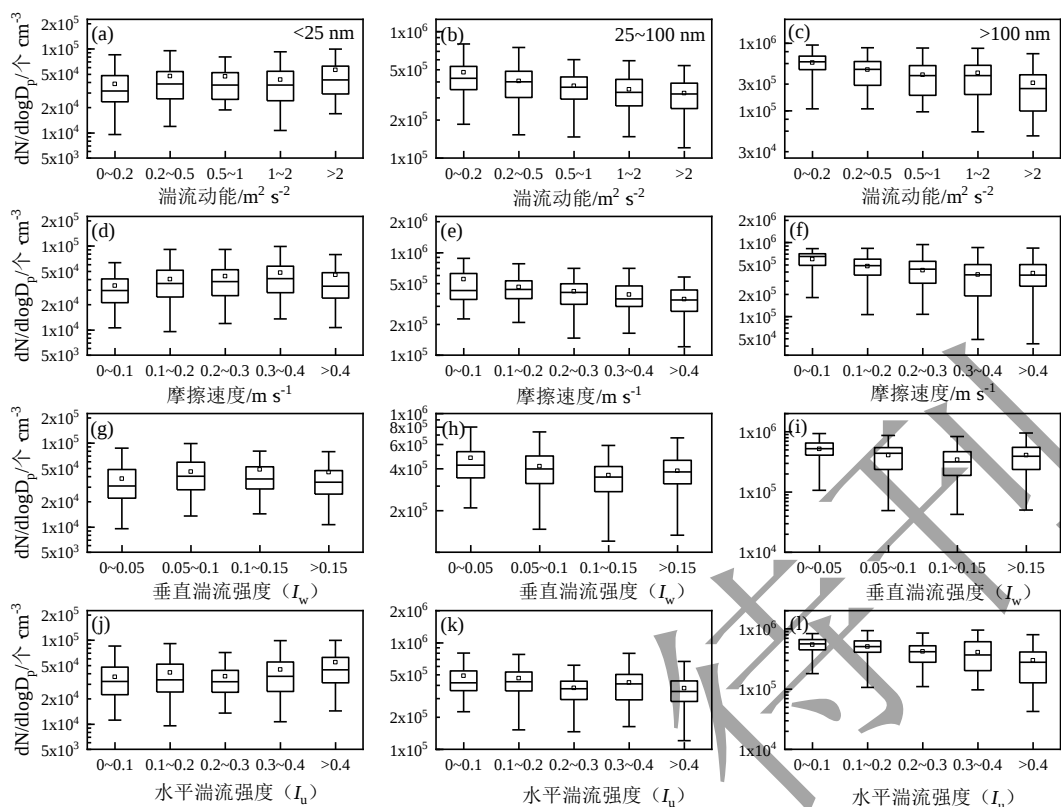


图 4 2018 年 11 月 1—22 日天津 (a,d,g, j) 核模态、(b,e,h, k) 爱根模态和 (c, f, i, l) 积聚模态的颗粒物总数浓度在不同湍流动能、摩擦速度、垂直湍流强度和水平湍流强度等级下的分布

Fig.4 Distribution of total particle number concentration in different mode with different turbulence kinetic energy, friction velocity, vertical turbulence intensity and horizontal turbulence intensity in Tianjin from 1 November to 22 November 2018

(a,d,g, j) Nuclear mode, (b, e, h, k) Aiken mode, (c, f, i, l) Accumulation mode

图 5 给出了不同模态颗粒物总数浓度随基于莫宁—奥布霍夫长度计算的大气稳定参数(Z/L)的分布情况, 负值表示大气不稳定, 正值表示大气稳定, 绝对值表示不稳定或稳定程度的大小, 零值表示中性层结。稳定参数的变化对核模态颗粒物粒径谱分布的影响不大, 而爱根模态和积聚模态颗粒物粒径谱随稳定参数的增加呈“V”型分布, 即中性层结大气条件下, 爱根模态和积聚模态颗粒物数浓度最低, 不稳定层结和稳定层结均会造成爱根模态和积聚模态颗粒物数浓度的增加。如图 5d 所示, 除 $Z/L \leq -1$ 外, 整体上稳定层结下的颗粒物数浓度显著高于不稳定层结的, 其中 $Z/L > 0.2$ 时颗粒物数浓度最高, 数浓度峰值对应粒径为 126 nm; $0 < Z/L \leq 0.2$ 时, 数浓度峰值粒径为 105 nm。稳定大气不利于颗粒物的扩散, 导致爱根模态和积聚模态颗粒物数浓度的不断累积增加。不稳定层结下, $-1 < Z/L \leq -0.2$ 以及 $-0.2 < Z/L \leq 0$ 时数浓度峰值粒径分别为 102 nm 和 110 nm。值得注意的是, $Z/L \leq -1$ 状态下的颗粒物数浓度仅次于 $Z/L > 0.2$ 时, 且数浓度峰值对应粒径较大, 为 118 nm, 即主要是积聚模态的颗粒物。

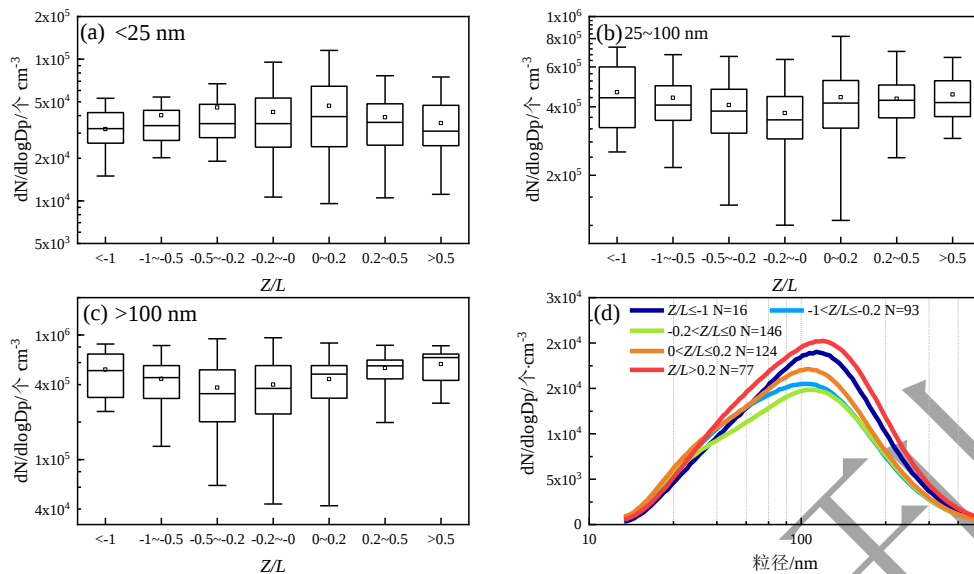


图 5 不同稳定参数下 2018 年 11 月 1—22 日天津 (a) 核模态, (b) 爱根模态, (c) 积聚模态颗粒物总数浓度和 (d) 颗粒物粒径谱分布

Fig. 5 (a) Nuclear mode, (b) Aiken mode, (c) Accumulation mode total particle number concentration and (d) particle size distribution at different stability parameter (Z/L) levels in Tianjin from 1 November to 22 November 2018

根据环境保护部和国家质量监督检验检疫总局 (2012) 的《环境空气质量标准》(GB 3095-2012) 小时值的二级标准, 定义全天 $\text{PM}_{2.5}$ 质量浓度小时值均 $>75 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 的天为污染日, $\text{PM}_{2.5}$ 质量浓度小时值均 $<75 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 的天为清洁日。观测期间污染日占总观测天数的 1/3, 清洁日约占 1/2。图 6 展示了清洁日和污染日颗粒物数浓度和湍流的日变化 (北京时, 下同), 其中大气稳定参数以黄色代表正值, 蓝色代表负值 (下同)。无论清洁日或污染日, 湍流动能和风速均在日出后开始增大, 中午前后发展到最强, 18 时日落处于被抑制状态。污染日湍流动能和风速均明显低于清洁日, 其中湍流动能较清洁日平均低 43%, 风速较清洁日平均低 18%。清洁日大气层结以中性层结和不稳定层结为主, 其中夜间为中性层结, 日出后至午后 16 时大气为不稳定层结。污染日的夜间大气为稳定层结, 日出后至午后 15 时为不稳定层结。

爱根模态和积聚模态颗粒物总数浓度的日变化呈现昼低夜高的变化趋势, 该日变化趋势与气象条件的日变化紧密相关。通常白天边界层高度较高, 风速较大, 有利于颗粒物的垂直和水平扩散, 此外湍流的充分发展也有利于爱根模态和积聚模态颗粒物的稀释和扩散。核模态颗粒物总数浓度的日变化与爱根模态和积聚模态不同, 清洁日核模态颗粒物总数浓度在 12—16 时持续增加, 并在傍晚 17 时和 18 时达到峰值, 在此期间的颗粒物数浓度明显高于污染日。污染日核模态的颗粒物粒径谱分布的日变化与其他 2 种模态相似, 中午前后并没有出现增长, 说明清洁日核模态颗粒物受新粒子生成的影响较大。清洁日午后较强的太阳辐射有利于新粒子生成, 且爱根模态和积聚模态的数浓度也较低 (即汇的浓度较低), 不利于新粒子凝结, 因此有利于核模态颗粒物的持续增加。反之, 污染日太阳辐射被削弱, 新粒子生成较少, 大气中已有的高浓度的颗粒物是新粒子的汇, 因此中午前后核模态颗粒物没有出现明显的增长。爱根模态颗粒物数浓度在污染日和清洁日的日变化非常相似, 峰值浓度出现在傍晚 19 时左右的交通高峰期。与核模态相比, 爱根模态颗粒物数浓度在早晨 06—07 时有显著上升, 此时为交通早高峰时段, 交通排放对爱根模态颗粒物数浓度的影响显著。污染日积聚模态的颗粒物总数浓度显著高于清洁日, 污染日 00—17 时的平均颗粒物数浓度约是清洁日的 1.7 倍, 18—23 时约是清洁日的 1.3 倍。清洁日在上午 10 时后积聚模态颗粒物数浓

度开始下降, 14—15 时达到最低, 此后逐渐上升, 但没有明显的峰值。污染日积聚模态颗粒物数浓度的谷值出现在 17 时, 这是由于污染日边界层发展缓慢所引起的, 污染日不稳定层结开始出现的时间为上午 09 时, 晚于清洁日的 07 时。

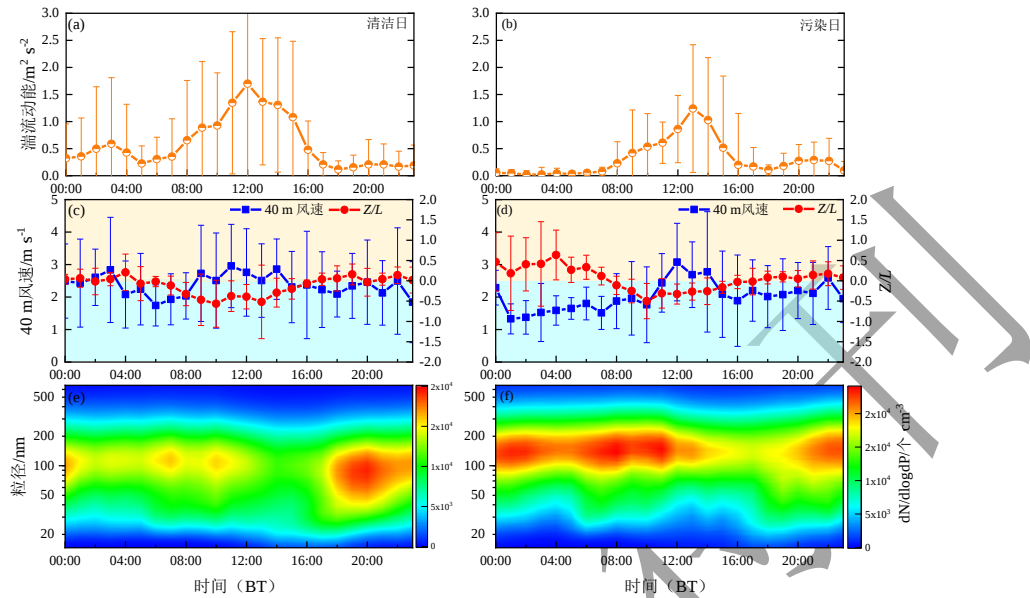


图 6 2018 年 11 月 1—22 日天津 (a,c,e) 清洁日及 (b,d,f) 污染日 (a,b) 湍流动能、(c,d) 稳定参数 (Z/L) 和 40 m 风速以及 (e,f) 颗粒物粒径谱分布的日变化

Fig. 6 Diurnal variation of (a,b) turbulence kinetic energy, (c,d) stability parameter (Z/L) and wind speed at 40 m as well as (e,f) particle size distribution on (a,c,e) clean days and (b,d,f) polluted days in Tianjin from 1 November to 22 November 2018

2.3 典型污染个例分析

选取 2018 年 11 月 16 日至 21 日的污染过程探究湍流的连续变化对颗粒物粒径谱分布的影响, 如图 7 所示, 地面 $PM_{2.5}$ 质量浓度变化存在 3 个明显的峰值, 对应 3 个增长阶段 (分别称为 S1, S2 和 S3)。不同阶段大气的稳定参数 Z/L 和湍流动能存在明显差异, 颗粒物数浓度和地面 $PM_{2.5}$ 质量浓度变化较大。3 个阶段 $PM_{2.5}$ 质量浓度演变趋势和峰值呈现相似特征, 湍流和风速变化特征以及颗粒物数浓度谱分布特征存在显著差异。对重污染过程开展边界层气象条件和微物理特征研究, 有助于深化对其形成和演变规律的认识。

S1 阶段中, 18 日上午边界层极不稳定, 从 06 时到 09 时, 伴随着 Z/L 值的快速下降和湍流动能的迅速增大, 40 m 风速增大, 受此影响积聚模态颗粒物的数浓度和地面 $PM_{2.5}$ 质量浓度快速上升。进一步分析发现垂直动能占比增高, 220 m 处 $PM_{2.5}$ 质量浓度快速下降, 此时段颗粒物质量浓度和数浓度的增加是由于垂直交换剧烈, 边界层上部的气溶胶向地面输送所致。此后尽管湍流减弱、风速降低, 但持续剧烈的垂直交换仍对地面颗粒物起到稀释作用, $PM_{2.5}$ 质量浓度和颗粒物数浓度迅速下降。伴随风速和湍流强度降低, S2 阶段前期大气层结趋于稳定, 18 日夜间至 19 日上午地面 $PM_{2.5}$ 质量浓度和积聚模态的颗粒物数浓度明显增加, 后期随着稳定边界层瓦解, 风速增大, 220 m 和地面的 $PM_{2.5}$ 质量浓度先后上升然后快速下降。较低的 Z/L 值和垂直动能占比表明, 垂直交换较弱, 同时较高的西北风和偏大的颗粒物粒径, 预示着

该阶段 $\text{PM}_{2.5}$ 质量浓度增加，可能与上游水平输送有关。

与 S2 阶段相比，S3 阶段地面 $\text{PM}_{2.5}$ 质量浓度整体较高，但是颗粒物数浓度有所降低。20 日早晨 07 时起，稳定层结瓦解，湍流动能增加，风速增大，220 m 的 $\text{PM}_{2.5}$ 质量浓度从 $76\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 下降到 09 时的 $25\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ ，地面 $\text{PM}_{2.5}$ 质量浓度从 $122\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 上升到 09 时的 $143\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 。在 11 月 16—21 日观测期间，核模态颗粒物数浓度增加前大气总是处于不稳定状态，伴随着较高的风速、湍流动能和摩擦速度。爱根模态和积聚模态颗粒物数浓度与湍流变化的时间一致性较好，说明核模态颗粒物的增加相对于湍流的发展存在时间上的滞后性，当湍流发展 3~5 h 后，核模态颗粒物数浓度开始明显增加，这与 Wu et al(2021)的研究较为一致。

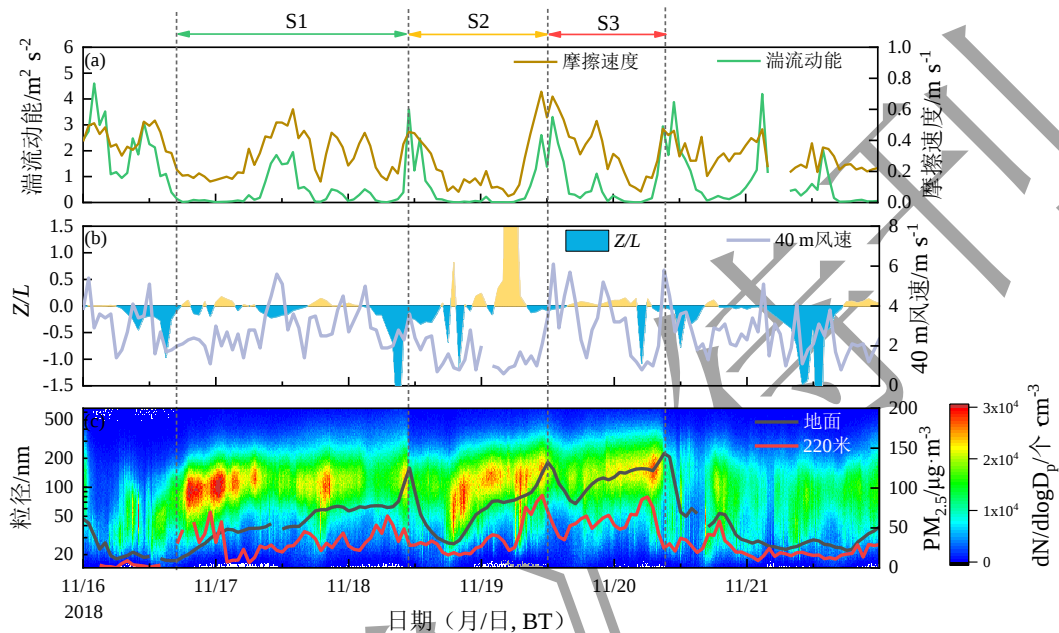


图 7 2018 年 11 月 16—21 日天津 (a) 湍流动能和摩擦速度、(b) 稳定参数 (Z/L) 和 40 m 风速、(c) 地面及 220 m 的 $\text{PM}_{2.5}$ 质量浓度以及颗粒物粒径谱分布的时间序列

Fig. 7 Time series of (a) turbulence kinetic energy and friction velocity, (b) stability parameter (Z/L) and wind speed at 40 m, (c) $\text{PM}_{2.5}$ mass concentration at surface and 220m as well as particle size distribution in Tianjin from 16 November to 21 November

2018

3 结论

气温、相对湿度和风对天津秋季颗粒物的粒径谱分布特征具有明显影响。环境相对湿度升高，大气中核模态和爱根模态的颗粒物总数浓度呈下降趋势，积聚模态的颗粒物总数浓度则呈现上升趋势；气温上升有助于核模态颗粒物数浓度增加，但对爱根模态和积聚模态粒子的浓度影响不明显；偏西风 and 西南风下积聚模态颗粒物数浓度增大，高风速有利于核模态粒子浓度增加，同时降低了爱根模态和积聚模态颗粒物的数浓度。

湍流运动对颗粒物粒径谱分布特征具备一定影响。核模态颗粒物数浓度随着湍流动能的增加而略有增长，爱根模态和积聚模态的颗粒物数浓度则随着湍流动能的增加整体呈下降趋势。爱根模态和积聚模态的

颗粒物总数浓度的日变化呈现昼低夜高的变化趋势,这与湍流的日变化特征相反。清洁日核模态颗粒物数浓度在 12—16 时持续增加,并在傍晚 17 时和 18 时达到峰值,污染日颗粒物浓度较高,中午前后核模态的颗粒物数浓度没有出现增长。典型污染过程分析表明,相对于湍流的发展,核模态颗粒物的增加存在时间上的滞后性,当湍流发展 3~5 h 后,核模态颗粒物数浓度开始明显增加。

参考文献:

- 崔驰满,包云轩,袁成松,等,2018.不同边界层参数化方案对江苏地区一次平流雾过程的模拟影响[J].大气科学,42(6):1344-1362. Cui C X, Bao Y X, Yuan C S, et al, 2018. Influence of different boundary layer parameterization schemes on the simulation of an advection fog process in Jiangsu[J]. Chinese J Atmos Sci, 42(6): 1344-1362 (in Chinese).
- 丁净,张裕芬,郑乃源,等,2021.天津市冬季气溶胶吸湿因子的粒径分布特征[J].环境科学,42(2):574-583. Ding J, Zhang Y F, Zheng N Y, et al,2021. Size distribution of aerosol hygroscopic growth factors in winter inTianjin[J]. Environ Sci, 42(2): 574-583 (in Chinese).
- 环境保护部,国家质量监督检验检疫总局,2012. GB 3095-2012,《环境空气质量标准》[S]. Ministry of Environmental Protection (China), General Administration of Quality Supervision, Inspection and Quarantine.2012.GB 3095-2012,Ambient air quality standards [S]. (in Chinese)
- 郭丽君,郭学良,楼小凤,等,2019.庐山云雾及降水的日、季节变化和宏微观物理特征观测研究[J].气象学报,77(5):923-937. Guo L J, Guo X L, Lou X F, et al, 2019. An observational study of diurnal and seasonal variations, and macroscopic and microphysical properties of clouds and precipitation over Mount Lu, Jiangxi, China[J]. Acta Meteor Sin, 77(5): 923-937 (in Chinese).
- 生态环境部,2018.HJ 817-2018,《环境空气颗粒物(PM₁₀和PM_{2.5})连续自动监测系统运行和质控技术规范》[S]. Ministry of Ecological Environment ,2018. HJ 817-2018,Technical specifications for operation and quality control of ambient air quality automated monitoring system for particulate matter (PM₁₀ and PM_{2.5})[S] (in Chinese)
- 花艳,潘良宝,汤莉莉,等,2017.南京霾天颗粒物数浓度特征及其受气象条件影响分析[J].气象科学,37(3):385-393. Hua Y, Pan L B, Tang L L, et al,2017. Characteristics of the particulate number concentration and association with meteorological conditions during winter haze episode in Nanjing[J]. J Meteor Sci, 37(3): 385-393 (in Chinese). 江琪,王飞,张恒德,等,2019.2016年冬季京津冀豫大气污染的时空分布及影响因子研究[J].气象,45(5):695-704. Jiang Q, Wang F, Zhang H D, et al,2019. Analysis of spatio-temporal distribution and connecting factors of air pollution in Beijing, Tianjin, Shijiazhuang and Zhengzhou in winter of 2016[J]. MeteorMon, 45(5): 695-704 (in Chinese).
- 郎凤玲,闫伟奇,张泉,等,2013.北京大气颗粒物数浓度粒径分布特征及与气象条件的相关性[J].中国环境科学,33(7):1153-1159. Lang F L, Yan W Q, Zhang Q, et al,2013. Size distribution of atmospheric particle number in Beijing and association with meteorological conditions[J]. China Environ Sci, 33(7): 1153-1159 (in Chinese).
- 李敏娜,牛生杰,张舒婷,等,2015.南京雾-霾天气个例湍流运动特征的对比研究[J].气象学报,73(3):593-608. Li M N, Niu S J, Zhang S T, et al,2015. Comparative study of turbulent characteristics between the fog day and haze day in Nanjing[J]. ActaMeteorSin, 73(3): 593-608 (in Chinese).
- 李星敏,陈闯,董自鹏,等,2018.关中颗粒物粒径谱特征及其气象影响因子分析[J].气象,44(7):929-935. Li X M, Chen C, Dong Z P, et al,2018. Analysis of the impact of meteorological factors on particle size distribution and its characteristic over Guanzhong Basin[J]. MeteorMon, 44(7): 929-935 (in Chinese).
- 刘敬乐,姚青,蔡子颖,等,2020.基于天津255m气象塔对近年天津近地面风和气温变化特征的研究[J].气象,46(9):1235-1244. Liu J L, Yao Q, Cai Z Y, et al, 2020. Analysis of temperature and wind variation characteristics based on the 255 m meteorological tower in Tianjin[J]. MeteorMon, 46(9): 1235-1244 (in Chinese).
- 陆宣承,文军,田辉,等,2020.若尔盖高寒湿地-大气间水热交换湍流通量的日变化特征分析[J].高原气象,39(4):719-728. Lu X C, Wen J, Tian H, et al, 2020. Analysis of the turbulent fluxes of water & heat exchange between the Zoige alpine wetland and atmosphere[J]. Plateau Meteor, 39(4): 719-728 (in Chinese).
- 罗然,郑永光,陈敏,2020.北京一次罕见夜间突发性强增温事件成因分析[J].气象,46(4):478-489. Luo R, Zheng Y G, Chen M, 2020. Mechanism of a rare night sudden intense warming event in Beijing and surrounding area[J]. Meteor Mon, 46(4): 478-489 (in Chinese).
- 孙悦,朱玉姣,孟赫,等,2021.青岛沿海地区夏季和冬季新粒子生成特征对比[J].环境科学,42(5):2133-2142. Sun Y, Zhu Y J, Meng H, et al,2021. New

- particle formation events in summer and winter in the coastal atmosphere in Qingdao, China[J]. *Environ Sci*, 42(5): 2133-2142 (in Chinese).
- 吴彬贵, 王兆宇, 解以扬, 等, 2013. 秋季天津城区雾中风速、温度和湿度的湍流统计特征[J]. *高原气象*, 32(5): 1360-1367. Wu B G, Wang Z Y, Xie Y Y, et al, 2013. Turbulent statistic characteristics of wind, temperature and humidity during Autumn fog in urban area of Tianjin[J]. *Plateau Meteor*, 32(5): 1360-1367 (in Chinese).
- 姚青, 刘敬乐, 蔡子颖, 等, 2018. 天津一次雾-霾天气过程的近地层温湿结构和湍流特征分析[J]. *环境科学学报*, 38(10): 3856-3867. Yao Q, Liu J L, Cai Z Y, et al, 2018. Analysis of temperature and moisture structure and turbulence characteristics of a smog and haze weather process in Tianjin[J]. *Acta Sci Circumst*, 38(10): 3856-3867 (in Chinese).
- 赵丽娜, 徐义生, 任丽红, 等, 2020. 武当山夏季颗粒物数浓度谱分布特征及气团来源影响研究[J]. *环境科学研究*, 33(9): 2020-2029. Zhao L N, Xu Y S, Ren L H, et al, 2020. Particle size distribution and air mass transportation pathways at Mountain Wudang in summer[J]. *Res Environ Sci*, 33(9): 2020-2029 (in Chinese).
- Bigg E K, 1997. A mechanism for the formation of new particles in the atmosphere[J]. *Atmos Res*, 43(2): 129-137.
- Chen J, Zhao C S, Ma N, et al, 2012. A parameterization of low visibilities for hazy days in the North China Plain[J]. *Atmos Chem Phys*, 12(11): 4935-4950.
- Chu B W, Kerminen V M, Bianchi F, et al, 2019. Atmospheric new particle formation in China[J]. *Atmos Chem Phys*, 19(1): 115-138.
- Cugeron K, De Michele C, Ghezzi A, et al, 2018. On the functional form of particle number size distributions: Influence of particle source and meteorological variables[J]. *Atmos Chem Phys*, 18(7): 4831-4842.
- Dai Q, Ding J, Song C, et al, 2021. Changes in source contributions to particle number concentrations after the COVID-19 outbreak: Insights from a dispersion normalized PMF[J]. *Sci Total Environ*, 759: 143548.
- Nilsson E D, Rannik Ü, Kumala M, et al, 2001. Effects of continental boundary layer evolution, convection, turbulence and entrainment, on aerosol formation[J]. *Tellus B*, 53(4): 441-461.
- Qi X M, Ding A J, Nie W, et al, 2019. Direct measurement of new particle formation based on tethered airship around the top of the planetary boundary layer in eastern China[J]. *Atmos Environ*, 209: 92-101.
- Ren Y, Zhang H S, Zhang X Y, et al, 2021. Turbulence barrier effect during heavy haze pollution events[J]. *Sci Total Environ*, 753: 142286.
- Shang D J, Hu M, Zheng J, et al, 2018. Particle number size distribution and new particle formation under the influence of biomass burning at a high altitude background site at Mt. Yulong (3410 m), China[J]. *Atmos Chem Phys*, 18(21): 15687-15703.
- Shen Y C, Virkkula A, Ding A J, et al, 2018. Aerosol optical properties at SORPES in Nanjing, East China[J]. *Atmos Chem Phys*, 18(8): 5265-5292.
- Squizzato S, Masiol M, Emami F, et al, 2019. Long-term changes of source apportioned particle number concentrations in a metropolitan area of the Northeastern United States[J]. *Atmosphere*, 10(1): 27.
- Tang L Z, Shang D J, Fang X, et al, 2021. More significant impacts from new particle formation on haze formation during COVID-19 lockdown[J]. *Geophys Res Lett*, 48(8): e2020GL091591.
- Vickers D, Mahrt L, 1997. Quality control and flux sampling problems for tower and aircraft data[J]. *J Atmos Oceanic Technol*, 14(3): 512-526.
- Wang Y Y, Li Z Q, Zhang R Y, et al, 2019. Distinct ultrafine- and accumulation-mode particle properties in clean and polluted urban environments[J]. *Geophys Res Lett*, 46(19): 10918-10925.
- Weber S, Kordowski K, Kuttler W, 2013. Variability of particle number concentration and particle size dynamics in an urban street canyon under different meteorological conditions[J]. *Sci Total Environ*, 449: 102-114.
- Wu H, Zhang Y F, Han S Q, et al, 2015. Vertical characteristics of PM_{2.5} during the heating season in Tianjin, China[J]. *Sci Total Environ*, 523: 152-160.
- Wu H, Li Z Q, Li H Q, et al, 2021. The impact of the atmospheric turbulence-development tendency on new particle formation: a common finding on three continents[J]. *Natl Sci Rev*, 8(3): nwaa157.
- Xie Y Y, Ye X N, Ma Z, et al, 2017. Insight into winter haze formation mechanisms based on aerosol hygroscopicity and effective density measurements[J]. *Atmos Chem Phys*, 17(11): 7277-7290.