

“黑碳的农业与生活源排放对东亚气候、 空气质量的影响及其气候-健康效益评估” 项目中期研究进展

丁德平¹ 孔少飞² 朱彬³ 张小玲⁴ 赵德龙¹ 盛久江¹

(1 北京市人工影响天气办公室, 北京 100089; 2 中国地质大学(武汉), 武汉 430074;
3 南京信息工程大学, 南京 210044; 4 成都信息工程大学, 成都 620225)

摘要: 国家重点研发计划“黑碳的农业与生活源排放对东亚气候、空气质量的影响及其气候-健康效益评估”课题的中期研究进展可归纳如下: 1) 针对观测和实验平台, 课题组进行了针对飞机气路的重新设计和改装, 加装了用于航测的大气黑碳(BC)、气溶胶光学、细颗粒物粒径谱、颗粒物组分及气体组分来源示踪相关仪器, 对飞机设备进行了质量控制, 并设计了针对课题研究的新飞行方案。搭建了多套源排放模拟燃烧实验平台和监测系统。2) 开展了基于飞机和飞艇的针对华北、华中、长三角及山东地区的黑碳垂直廓线观测。通过空地联合观测, 捕捉到了华北和华中中等地跨区域的黑碳大气传输过程, 探讨了传输的机制。3) 组织了多次农村能源消耗调查。基于室内实验初步研究了民用燃料(煤和生物质)排放气溶胶的数浓度和单颗粒气溶胶(包括黑碳)组成、混合状态、实时演化特性。初步构建了中国民用燃煤和生物质燃烧的多污染物(包括黑碳)1 km×1 km排放清单。4) 建立了黑碳的光学特性和混合特性模型。采用在线大气化学耦合模式(WRF-Chem)针对黑碳气溶胶对气象要素和边界层发展的影响进行模拟, 探讨了黑碳-边界层相互作用机制对地面臭氧浓度的影响, 揭示了黑碳对空气污染加剧/减弱影响的物理和化学机制。改进了地球系统模式, 为后期开展黑碳气溶胶辐射效应的研究打下了坚实的技术基础。5) 在北京和成都市开展了黑碳浓度对居民中不同类人群的呼吸及循环系统死亡率的影响研究, 开展了黑碳浓度对居民急诊就诊人数的影响研究, 分析了黑碳的健康效应。

关键词: 垂直分布, 排放清单, 气候效应, 环境效应, 健康效应

DOI: 10.3969/j.issn.2095-1973.2020.01.006

The Mid-Term Research Advances of “The Impact of Black Carbon from Agricultural and Anthropogenic Sources on Climate and Air Quality over East Asia, and the Assessment of Its Effects on Health”

Ding Deping¹, Kong Shaofei², Zhu Bin³, Zhang Xiaoling⁴, Zhao Delong¹, Sheng Jiujiang¹

(1 Beijing Weather Modification Office, Beijing 100089 2 China University of Geosciences (Wuhan), Wuhan 430074
3 Nanjing University of Information Science and Technology, Nanjing 210044 4 Chengdu University of Information
Technology, Chengdu 620225)

Abstract: The mid-term research progress of the project entitled “The Impact of Black Carbon From Agricultural and Anthropogenic Sources on Climate and Air Quality over East Asia, and the Assessment of Its Effects on Health”, which is the 2016 Key Program of Ministry of Science and Technology of the People’s Republic of China, can be summarized as follows: 1) the sample lines of aircraft were redesigned and modified on the observation and experiment platform, and some specific instruments

were equipped and calibrated in the cabin to get the relevant data of black carbon, tracer gas, aerosol’s optical property, size distribution, and chemical composition. The flight plans were newly designed according to the project’s need. Also, several sets of experimental platforms and monitoring systems for simulating combustion of source emissions have been built. 2) The vertical profiles of black carbon in North China, Central

收稿日期: 2019年5月31日; 修回日期: 2019年6月10日
第一作者: 丁德平(1963—), Email: zytdp@vip.sina.com
通信作者: 赵德龙(1984—), Email: 980074@163.com
资助信息: 国家重点研发计划项目(2016YFA0602001);
国家自然科学基金项目(41807313)

China, Yangtze River Delta, and Shandong province were acquired based on aircraft and airships. The inter-regional transport processes of black carbon in North China and Central China were captured, and the associated mechanisms were discussed through the joint observation of aircraft and ground. 3) Several rural energy consumption surveys were organized. Based on laboratory experiments, civil fuels (coal and biomass) emitting characters were preliminarily studied, including aerosol number concentration, single particle (including black carbon) composition, mixing state, and real-time evolution. The aerosol (contain Black Carbon, BC) emission inventory of coal and biomass burning was preliminarily constructed at a resolution of 1 km × 1 km. 4) The BC optical and mixing character models were developed. The impact of BC aerosol on the meteorological factors and boundary development was simulated using the online atmospheric chemistry coupling model (WRF-Chem), and physical and chemical mechanisms of the BC aggravating or lightening the air pollution were discussed. The earth system model was improved, providing a solid technical base for the research of BC radiation effect. 5) Also investigated were the impact of BC concentration on the inspiratory and circulatory system death rates of different people groups, the emergency number of people, and its health effects in Beijing and Chengdu.

Keywords: vertical distribution, emission inventory, climate effect, environment effect, health effect

0 引言

国家重点研发计划“黑碳的农业与生活源排放对东亚气候、空气质量的影响及其气候—健康效益评估”是针对中国黑碳排放、老化、传输、暴露及其可能引起的气候、环境和健康效应开展的综合基础科研项目。目前项目进展顺利，本文详细介绍该项目的研究进展情况，分析了获得的有价值、有影响的研究结果，总结了研究过程中存在的问题，提出了今后更明确的研究方向和目标，为项目更好地服务国家发展与规划提供更多的技术支持。

1 平台建设情况

1.1 飞机平台功能设计与改装达到国际同等水平

黑碳气溶胶的航测是本课题主要任务之一，航测需要特殊的观测平台。为最大化地发挥课题的优势，辅助其他课题组的观测，验证其他课题模式的结果，课题骨干分别对常年用于大气云物理探测和人工影响天气作业的飞机针对新探测功能进行了设计和改装，

增加了大气气溶胶观测平台，在舱内增加了大气气溶胶和大气气体观测系统。对密封舱高性能空中国王飞机重点增加了本课题需要的黑碳、大气光学、大气组分等重要观测设备（图1）。在另外一架非密封飞机中增加了用于VOC测量的质子迁移反应飞行时间质谱仪（PTR-TOF-MS）和用于大气整层消光测量的机载激光雷达等观测设备。

飞机气路的设计和改装。机载设备首先最大的困难在于合理的改装，其次是改装后数据质量的控制，各种粒子的采集损失评估。课题组首先重新设计了气路（图2），优化了粒子转弯和气路过长滞留的问题，在重要流量位置增加了监控，在气体气路中增加了外置泵。

黑碳气溶胶采样设备的设计与改装。为了探测黑碳气溶胶的质量浓度，粒径分布和混合态信息，课题组在原有地面观测基础上增购了一台用于黑碳气溶胶航测的单颗粒黑碳光度计（SP2）。该仪器能够高速测量黑碳气溶胶的质量浓度、粒径和老化特性。在改

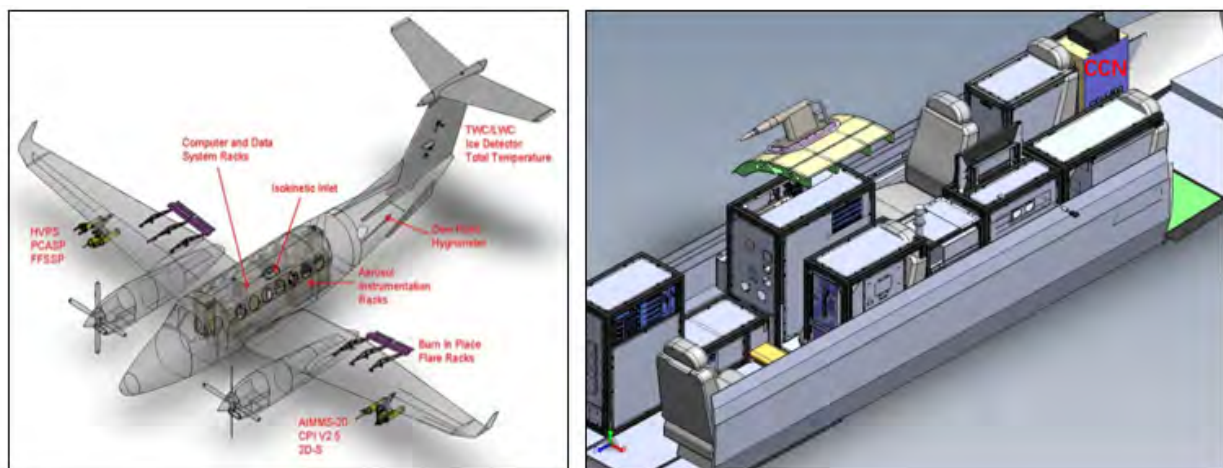


图1 空中国王观测探头示意图
Fig. 1 Detectors on the King Air plane

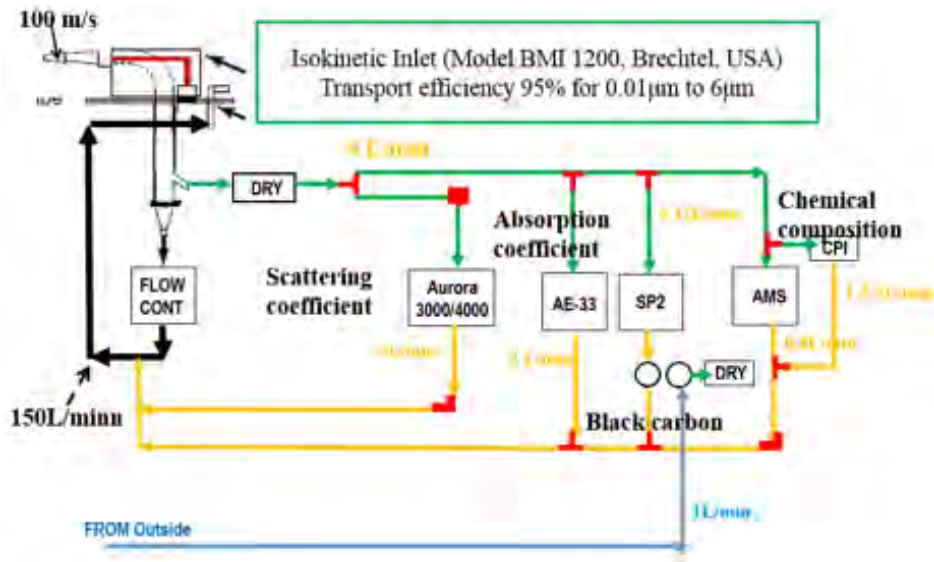


图2 空中国王气溶胶采样气路示意图
Fig. 2 The airflow of aerosol detectors on the King Air plane

装时克服了增压仓气路密封问题；在针对飞机不同飞行姿态对黑碳气溶胶流量影响的问题上，开展了多架次的敏感性飞行试验，获得了最佳的飞行姿态和符合观测要求的飞机参数。这对完成课题任务中黑碳的垂直分布、粒径和老化机制等问题非常关键。

大气颗粒物光学观测设备的改装。黑碳气溶胶是大气中最直接的吸收气溶胶。本项目中第三课题中研究黑碳气溶胶对大气环境的直接、间接等影响，必须同时观测黑碳气溶胶的光学特性，这是利用实测订正第三课题气候模式评估黑碳气候效应与辐射强迫的最重要参数。再结合黑碳的垂直观测数据，能够更加精准地评估黑碳的气候效应。在加装测量散射和吸收观测仪器的过程中，课题组针对流量大、气路过长等问题，拆除了质谱仪和云凝结核计数器设备，调整了之前观测云物理的设备方案，使七波段黑碳仪（AE33）和浊度计能够最大化接近采样头，最大限度减少粒子的损失。

大气细颗粒物粒径谱仪的改装。在研究黑碳的垂直分布和老化机制时，需要配合其他亚微米气溶胶的观测。此先的观测平台，课题组计划以扫描电迁移率颗粒物粒径谱仪（SMPS）作为细粒径颗粒物的采样设备。但是在进行试飞之后，发现SMPS最快的扫描率为2 min，无法满足高速飞行过程中的垂直探测要求，飞机爬升或者下降将引起大量粒子丢失以及采样延迟现象，对数据的实时性影响很大。故此在进行测试之后，课题组用具有更高扫描分辨率的（1 s）的发动机废气排放颗粒物粒径谱仪（EEPS）替代了SMPS，获得了更精准的亚微米气溶胶数据，这对于

黑碳浓度粒径演变和老化机制的研究十分重要。

大气颗粒物组分设备的改装。为了研究黑碳气溶胶的垂直分布特征，配合研究黑碳气溶胶的光学和老化特性，课题组成员设计了不同的观测仪器组合和观测方案。在2016年冬季改装了最新型空中国王飞机，移除了原先云凝结核计数器设备，增加了大气组分的观测，旨在研究黑碳气溶胶老化后包裹组分的比例，以及辨别大气中更利于黑碳老化的组分。此改装的最大问题是电源和气溶胶质谱仪（AMS）体积过大。由于AMS开启高压时功率最高能达到2000 W，飞机整体电源无法达到负载，课题成员在飞机上加装了一个大功率不间断电源（UPS）。在地面起飞之前，仪器预热全部转为使用地面电源，最大化减少机载电源负载，起飞后等高压稳定，功率降低后，再实施UPS电源的切换。关于AMS体积过大的问题，课题组成员拆除了后座仪器操作人员座椅，为AMS腾出了更大的空间，AE33和浊度计改装到前方指挥人员座椅和逃生窗口下方，可使观测获得全方面的数据，即黑碳的质量浓度、粒径、混合态、散射、吸收和大气组分等信息。

针对大气排放源观测设备的改装。课题任务中需要区分黑碳的来源和性质，区分农业源与生活源。课题组成员在另外一架非增压仓飞机上安装了PTR-TOF-MS质谱，通过与第一架飞机的协同配合，区分不同黑碳来源及性质，为第二架飞机的飞行计划以及航路的调整提供科学化的指导。课题组通过连续1个月质谱机载观测，获得典型城市不同物种的来源及空间分布特征。

针对远距离传输观测的改装。黑碳垂直结构变化以及老化机制往往受局地污染传输和不同污染通道贡献的影响,需要及时针对污染的来源和边界层发展来判断黑碳气溶胶的来源及传输特性。课题组在第二架飞机上尝试增加了机载激光雷达的探测。由于机载迷你激光雷达未安装根据飞机姿态调整光路的模块,课题组成员调整了飞行方案,去除了盘旋探测,直接改为平飞探测,发现数据更加科学有效。至此课题组获得了17个架次关于气溶胶远距离传输的数据,其中污染物沿太行山脉传输的探测飞行大约10个架次,为研究北京地区黑碳气溶胶的传输老化特性打下了基础。

至此,课题组飞机平台改装形成了舱内、舱外从气溶胶到云物理降水粒子探头的全套观测系统,涵盖了5类22套仪器。在原有的基础上增加了光学遥感探测,形成了大气云物理、大气光学、大气气溶胶、大气遥感的国际综合观测平台,与美国国家海洋和大气管理局(NOAA)、美国国家大气研究中心(NCAR)、怀俄明大学等的大气科学观测平台和英国的FAMM(Facility for Airborne Atmospheric Measurements)大气观测平台处在了同等水平,甚至在某些方面超越了国外平台(图3)。

1.2 搭建多套源排放模拟燃烧实验平台和监测系统

2017年1月9日,课题组获得批准建设中国地质大学(武汉)燃烧源排放实验室。课题组购置了气溶胶自动换膜颗粒物采样系统、九级气溶胶粒度分布采样器、便携式PM_{1.0}和PM_{2.5}采样器、便携式烟气分析仪、碳气溶胶在线、AE33、微型黑碳仪(AE51)、水溶性离子在线及燃烧室、烟雾箱、稀释采样系统、便携式自动气象站、便携式氧气检测仪等气溶胶源排放和大气环境相关的大型在线/离线膜采样监测仪器35套,已全部到位并投入运行。完成了民用燃料排放因子稀释通道室内模拟燃烧实验和烟羽测试实验,相关设备已调试完毕,将开展中国典型民用煤、生物质以及特色生活源黑碳排放因子及老化特性实验。

2 课题研究结果介绍

2.1 黑碳的空间分布

(1) 华北区域不同季节下黑碳气溶胶垂直分布特征

通过对比北京在春夏季和秋冬季黑碳气溶胶的垂直分布特征发现(图4),在高温季节,BC在边界层内垂直混合均匀,可能是由较高的表面温度引起更强的对流混合作用造成的。此外,南风的主导优势可能会使大部分污染的空气团平流,抵消其稀释效应;而在冬季,来自北方更清洁的空气占主导地位,对当地的空气有很强的稀释作用。由浓度平均值

表明,在炎热季节的低层大气中BC质量浓度较低,但在两个季节的行星边界层(PBL)中质量浓度类似(3.5~4 μg/m³)。高湍流度的空气条件下,如在炎热季节前期,在很大程度上BC质量会稀释到背景水平(0.5 g/m³);而在冬季,西南气流主导下的气团显著地提高了PBL内的BC浓度。

暖季PBL内的BC质量浓度几乎没有垂直梯度。而在寒冷季节,除了受西南气流影响,随着海拔高度的增加,浓度也会降低。不同层的BC质量浓度水平与排放量大体一致,南方空气往往会带来更多的污染物,而北方空气具有稀释效应。但这排除了在晚春时更频繁观测到的湍流状况。对流混合层的升高稀释了BC的质量浓度,在整个大气柱中表现出相对减少但更均匀的质量浓度分布。

(2) 华中区域徐州黑碳气溶胶垂直分布特征

通过分析华中区域徐州的BC连续观测的垂直分布发现,徐州地区的BC质量浓度明显低于北京地区。污染严重时最大浓度仅为1500 ng/m³,而且整体黑碳呈递减趋势,没有明显梯度,不同于北京地区的冬季污染垂直分布,这可能由于观测时间为夏季的原因。另外通过观测发现徐州地区的黑碳粒径基本都在200 nm以下,低于北京地区任何季节的数值。这说明华中区域黑碳的来源特性不同于北京地区。更小的粒径说明黑碳有可能来源于其他工业污染,而非燃煤的排放。

(3) 华中区域武汉黑碳气溶胶垂直分布特征

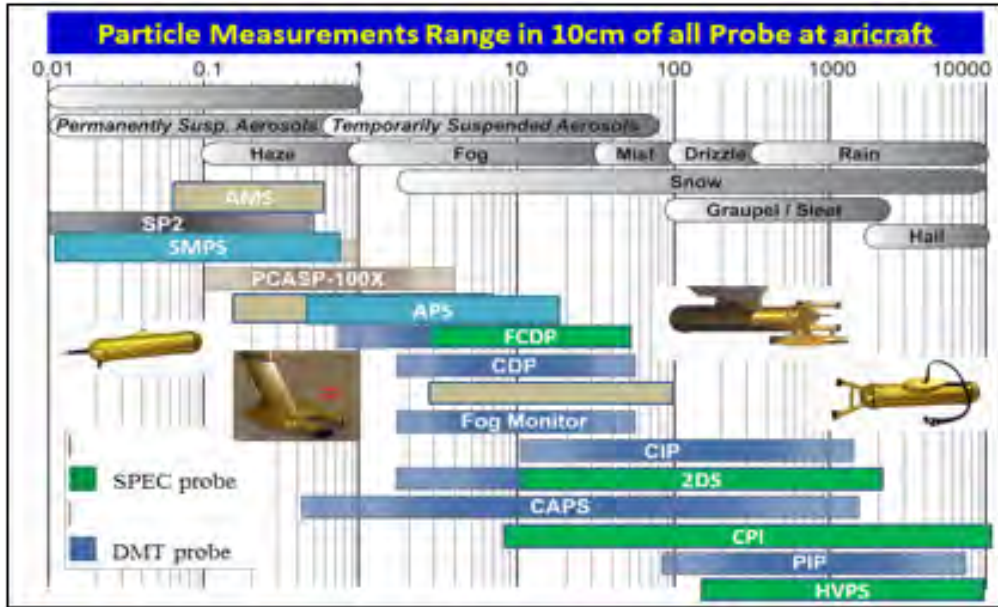
通过对比武汉与北京往返探测的结果发现,两地区同一季节下重污染天气BC浓度相差不大,平均都在2000 ng/m³以上,但是华中地区BC的MMD(平均粒径)与北京清洁天气下的MMD基本一致,都在200 nm左右。而且武汉地区BC的老化包裹厚度反而小于北京地区同样天气下的包裹厚度。

(4) 山东区域黑碳气溶胶垂直分布特征

2018年6月7—12日在山东潍坊地区进行了大约4个架次探测,由于7日SP2故障未获得数据。通过研究发现山东地区BC浓度要高于华中地区但是要低于华北及北京地区,在两者之间。但是在山东地区PBL内的黑碳碳芯浓度大约在200 nm左右,十分接近华北地区中度污染的情况,略高于华中区域徐州地区。BC的包裹厚度平均在1.5,但是有污染天气下,值大于1.5,这与北京地区清洁天气十分接近。说明山东的BC排放源极有可能处于南北地区混合地带,包含燃煤等工业的污染排放。

(5) 长三角地区黑碳气溶胶综合立体观测

利用综合观测资料,获得了长三角地区典型站点



仪器名称	观测内容	观测范围
AIMMS	温度, 相对湿度, 三维风, 湍流	
CAS	云气溶胶探头	0.51-50 μ m
CIP	云滴图像	12.5-1550 μ m
PCASP-100X	气溶胶探头	0.1-3.0 μ m
PIP	降水粒子图像探头	100-6200 μ m
2D-S	粒子谱探头	10-3000 μ m
FCDP	云滴探头	2-50 μ m
HVPS	降水粒子探头	150-20,000 μ m
3V-CPI	云粒子成像和10 μ m-6mm粒子浓度谱	7-3000 μ m

SP2	黑碳气溶胶	0.07-0.5 μ m
AMS	大气组分	亚微米以下
AE33	大气吸收	7波段
Auro3000	大气消光	3波段
Thermo	大气气体	O ₃ , NO _x , CO, SO ₂
Lidar-激光雷达	垂直消光	



图3 空中国王飞机及观测粒径要素与范围
Fig. 3 King Air plane and the sampling elements with measurement extent

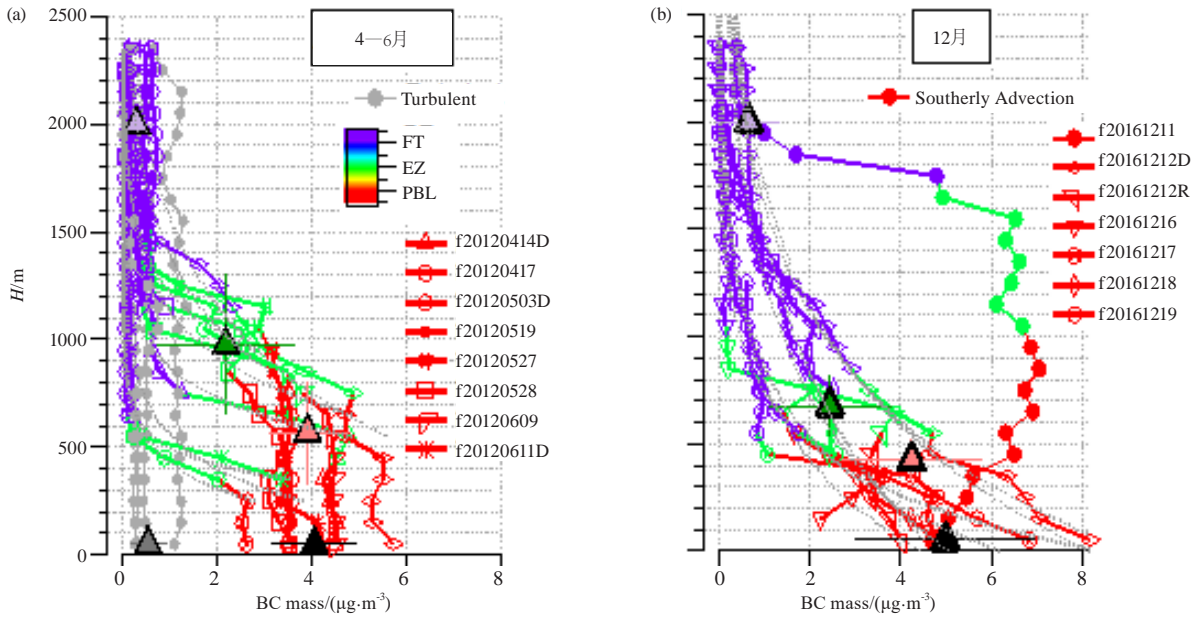


图4 不同季节下黑碳气溶胶的质量浓度的垂直分布
 Fig. 4 Vertical distribution of the BC mass concentration in different seasons

的黑碳气溶胶长时间序列和垂直分布数据。首先对长三角乡村地区的大气边界层结构和黑碳垂直分布特征进行研究。图5给出了观测期间黑碳的4类典型垂直分布特征：1）垂直分布均匀型（38%）；2）下低上高递减型（29%）；3）地面和低空浓度较高的双峰型（17%）；4）低空黑碳浓度较高的单峰型（11%）。黑碳垂直分布的日变化很大程度上遵循边界层的演

变：白天时段，垂直湍流的混合作用致使边界层内黑碳分布均匀；夜间静稳条件下，残留层内污染物基本保持和日落前相似的分布和浓度，并对次日白天污染物垂直分布有明显影响，加之乡村地区居民生活产生的以炊烟为代表的地表排放源排放的污染物堆积在近地面。上述两个因素导致冬季夜间污染物浓度随标准高度 (H_{Nor}) 的增加而线性递减。

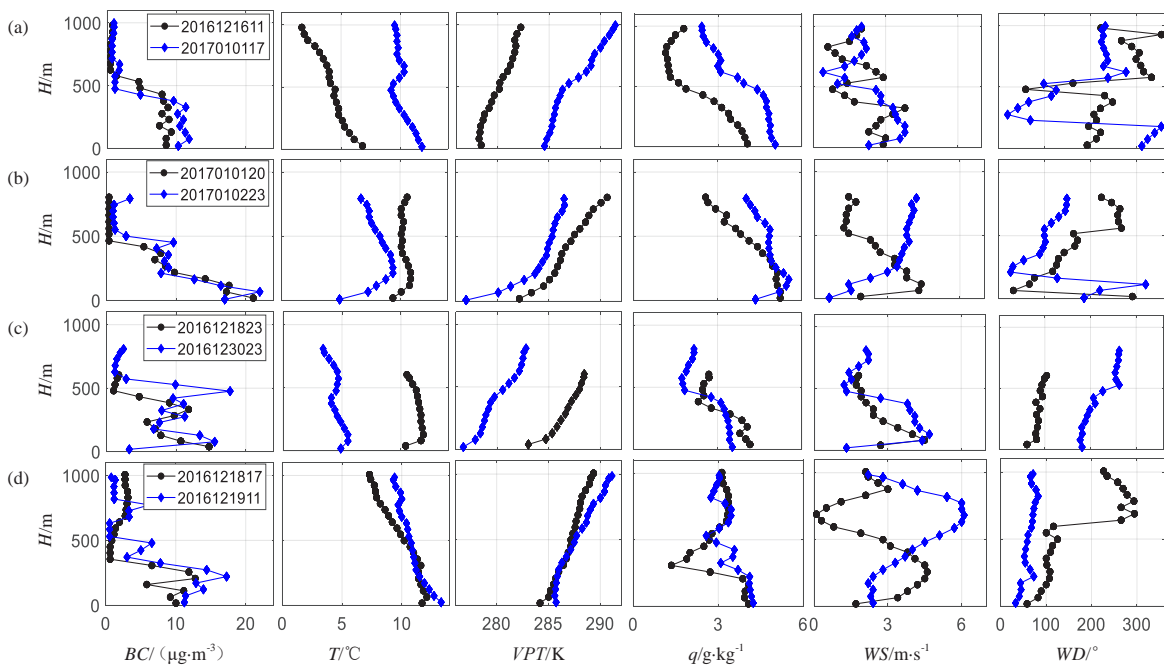


图5 四种类型的黑碳垂直分布廓线及其对应的温度 (T)、虚位温 (VPT)、比湿 (q)、风速 (WS) 和风向 (WD) 的垂直分布
 Fig. 5 Four types of vertical distribution of BC, temperature, virtual potential temperature, specific humidity, wind speed, and wind direction

2.2 黑碳的大气输送特征

(1) 北京地区典型黑碳气溶胶传输特征

2016年12月10—12日，北京市人影办利用空中国王飞机同时观测了北京和保定的黑碳垂直廓线（图6）。这是一次典型的北京污染过程，空气质量从清洁到快速污染，然后到稳定。本次飞机航测持续了三天，分别观测到了清洁、快速污染到稳定三种不同情况下黑碳气溶胶的垂直廓线。此次观测发现：1）黑碳质量浓度和PM_{2.5}质量浓度的垂直变化非常剧烈；2）根据位温确定的边界层高度无论是清洁天还

是污染天，污染物都是主要集中在边界层之下；3）发现12月11日的廓线呈现边界层上部高下部低的特点；4）根据黑碳的垂直分布和化学组分比较稳定的特性，可以初步确定北京市的污染是由传输造成的；5）根据垂直廓线的演变，还发现污染物在上空的传输，这种传输方式在该地区首次被观测到。上层较高的黑碳质量浓度，对边界层高度、辐射强度、以及大气稳定度都有很大的影响^[1-2]。

(2) 冬季灰霾期间黑碳在华北南部和华中地区的跨区域传输

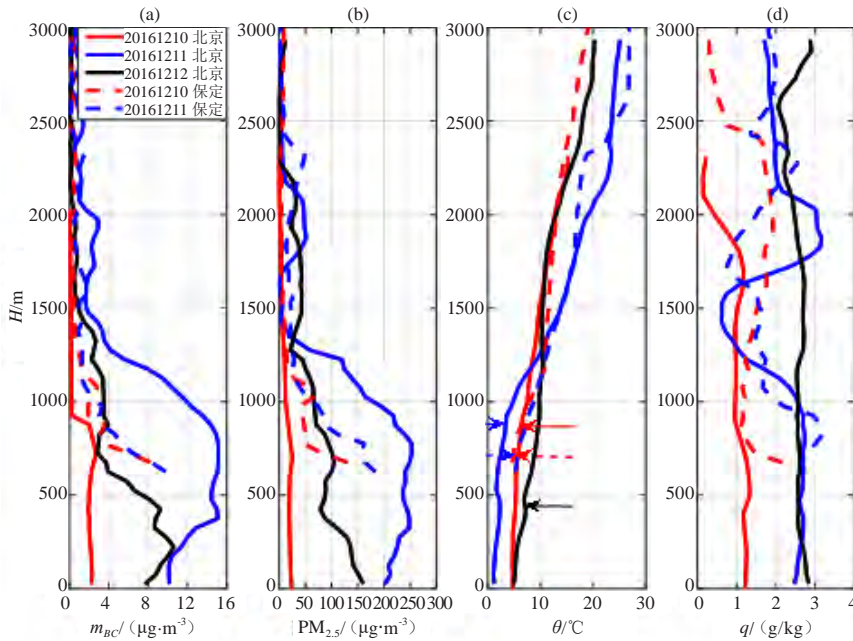


图6 北京和保定大气黑碳(a)和PM_{2.5}质量浓度(b)、位温(c)及比湿(d)垂直廓线的演变

Fig. 6 Variations in the vertical distribution of BC(a) and PM_{2.5}(b) mass concentration, potential temperature(c) and specific humidity(d) in Beijing and Baoding

为探究冬季灰霾期间，黑碳气溶胶在华北和华中这两大环境空气污染严重区域的相互传输影响，在前期历史资料的分析基础上，本研究在华北和华中布置了5个观测点（图7），一个北方城市，三个边界城市、一个南方城市，研究不同区域不同点位类型黑碳气溶胶的分布、相互传输影响及传输过程中的理化性质改变。

相较于清洁天，污染天黑碳的质量浓度和吸收系数分别增加了26.4%~163%和18.2%~236%，主要是由于化石能源燃烧产生的黑碳增加导致的。清洁天与污染天黑碳来源的对比发现：污染天，在武汉（城市点位），来源于生物质燃烧产生的黑碳浓度会降低；而在漯河和红安（北方和郊区点位），生物质燃烧产生的黑碳呈上升趋势。这种城市和郊区，南方和北方的差异可为区域性灰霾期间各地制定精细的污染

减排管控措施提供依据。

此次外场观测中发现黑碳在传输过程中，其质量浓度和吸收系数会增加，而Ångstrom指数会降低，首次从多点位观测的角度说明黑碳在区域传输过程中会发生老化，并影响到下风向黑碳的浓度和性质。本研究还发现：黑碳从北到南的传输过程中，来源于生物质燃烧产生的黑碳的质量浓度会升高；而黑碳从南向北的传输过程中，来源于生物质燃烧产生的黑碳，其质量浓度却降低。在冬季南方地区生物质燃烧排放黑碳气溶胶需引起重视。

3 黑碳排放清单的构建

3.1 组织了多批次农村能源消耗调研

采用多种形式（入户调研、大学生假期老家调研、暑期社会实践、微信调研等），已开展4批次农村能源

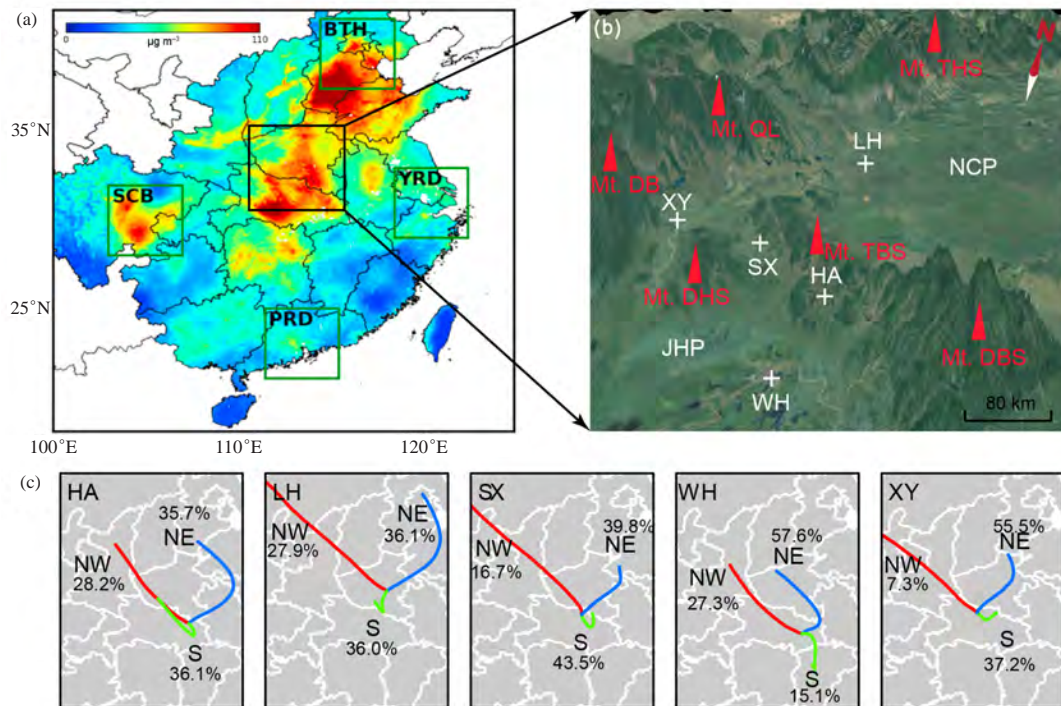


图7 $\text{PM}_{2.5}$ 的空间分布(a)和观测点位置(b)及气团轨迹来源聚类(c, HA: 红安, LH: 漯河, SX: 随县, WH: 武汉, XY: 襄阳)
Fig. 7 The spatial distribution of $\text{PM}_{2.5}$ (a), the position of sampling site(b), and the cluster of the air mass trajectory(c)(HA: Hongan, LH: Luohe, SX: Suixian, WH: Wuhan, XY: Xiangyang)

消耗调研及燃料收集。课题组分别于2016年7月、12月, 2017年7月、12月和2018年7月利用学生放暑假时间, 开展中国典型农村能源消耗入户调查和常用燃料搜集。设计了相应的调查问卷, 获得了调查数据。

3.2 初步研究了民用燃料排放气溶胶的数浓度和单颗粒气溶胶的组成、混合状态及实时演化特性

基于室内模拟燃烧和稀释通道采样系统, 设置两种燃烧状态, 利用SMPS (14.6~667.1 nm) 与单颗粒气溶胶质谱仪 (SPAMS, 0.2~2.0 μm), 对民用蜂窝煤和散煤以及常用生物质排放气溶胶的数浓度和单颗粒气溶胶组成、组分混合状态和实时演化特征开展研究。

民用燃煤种类为淮北蜂窝煤、贵州蜂窝煤、内蒙古蜂窝煤、淮北块煤、贵州块煤及内蒙古块煤; 生物质种类为苹果木、梨木、竹子、松木、柏木、芦苇及玉米杆。实验过程中, 设置5种稀释比, 确定最佳稀释比。民用煤明烧过程中, SMPS测量颗粒物数浓度随粒径呈单峰分布, 主要存在三种燃烧状态: 点火阶段、剧烈燃烧阶段及燃尽阶段。点火阶段, 超细颗粒物数浓度增加; 剧烈燃烧阶段, 颗粒物总数浓度达峰值; 燃尽阶段, 数浓度向小粒径范围偏移, 总数浓度为三阶段最低。与蜂窝煤相比, 块煤燃烧排放颗粒物

粒径偏大, 且第二阶段燃烧时间长。民用煤闷烧过程中, 颗粒物数浓度随粒径呈递减趋势, 排放的颗粒物数浓度主要集中在核模态, 没有明显的状态差异。

3.3 初步构建了中国民用燃煤 (2015年) 和生物质燃烧 (室内燃料燃烧和露天燃烧 2003—2016年) 的黑碳 1 km × 1 km 排放清单

利用Arcgis软件设计了更加精确的城市与农村区域分布, 以1 km × 1 km分辨率的全国人口密度分布栅格数据为基本权重, 设计了城市与农村地区全国人口密度栅格数据, 并以此为权重, 结合研究中计算所得清单数据进行空间插值, 得到2015年全国民用燃煤燃烧排放细粒子中有机碳与元素碳1 km × 1 km分辨率的网格化清单。图8为元素碳 (EC) 单位面积年排放分布情况, 最高排放集中在北京中部可达833.4 kg/a, 远超过EC在北京地区排放强度。其中北京与河北地区、山西大部分地区、山西南部单位面积排放高出5.0 kg/a, 其次则为甘肃与山东地区。与有机碳 (OC) 排放不同, 天津地区元素碳排放量分布不均, 其农村单位面积排放量较高, 城市则排放较低, 高排放点分布于天津外环。元素碳排放在我国南方的空间分布则集中在华东平原与云贵高原地区, 但其排放量仍远小于北方, 华东平原区域单位面积年排放在0.5~1.0 kg范围内, 云贵高原地区排放略高于华东, 其中有部分

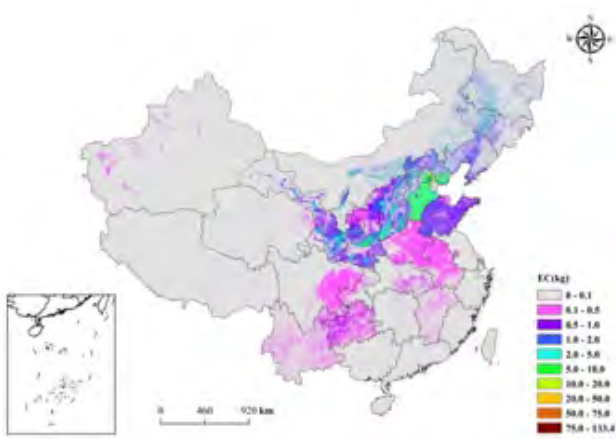


图8 2015年中国民用燃煤排放细颗粒物中元素碳
1 km × 1 km空间分布

Fig. 8 The spatial distribution of the fine particulate element carbon emission from Chinese civil coal combustion at a resolution of 1 km × 1 km in 2015

地区排放量在1.0~2.0 kg范围,且主要集中在贵州地区,西南地区元素碳排放则集中在四川东部与重庆交接区域.华南地区排放量较低,单位面积年排放小于0.1 kg,且分布较分散,未形成连片排放。

全国现有碳组分清单研究中,不同学者对民用燃煤部分排放量开展了定量研究, Klimont等^[3]计算得到2005年中国民用燃煤OC与EC排放为50和37 Gg。Cao等^[4]分别计算了2000年中国民用燃煤城市与农村的碳组分排放,结果表明碳组分排放主要集中在我国北方华北地区,空间分布与本研究相近,其中城市OC排放量433.8 Gg、EC排放量33.7 Gg;农村OC排放量899 Gg、EC排放量487 Gg。OC排放农村贡献率为0.67, EC排放农村贡献率为0.94;本研究中城市OC排放量为68.1 Gg、EC排放量0.9 Gg;农村OC排放量169.0 Gg、EC排放量2.4 Gg。其中OC排放农村贡献率为0.71, EC排放农村贡献率为0.73,与Cao等研究结果具备可比性。本文以更新后的EC排放因子构建清单,所得EC排放量普遍低于已有研究结果。民用燃煤对EC排放的影响仍需持续观测,相关排放因子的补充也亟需进行。

4 黑碳对气候、环境影响的模拟研究

4.1 黑碳光学特性模型的建立以及非球形黑碳混合模型对老化后黑碳光学特性研究的改进

首先从观测数据和经验公式出发,建立了 κ -EC-Mie模型,并对其反演黑碳气溶胶的光学特征进行了验证,力求从最少的观测参数得到更可靠的结果,并在更大的尺度上讨论问题。主要方法为以吸湿性参数、黑碳的体积分数为变量,建立计算气溶胶粒子光

学性质的模型。该研究工作旨在建立更加真实的非球形黑碳模型,将有助于提升当前数值模式的模拟性能,进而得到更加精确的黑碳及其老化后的光学特性。该模型与其他研究相比,改进的最大亮点和特点是:1) 计算结果准确,与观测结果比较后发现比其他方法更符合实际观测结果。2) 计算所需参数少,所有参数能够在常规观测中获得。3) 普遍适用性,在不同地区使用不需要调整系数。目前已经完成了模型的建立和初步的验证工作。当前基于吸湿性参数和元素碳的体积分数构建了一个适用于南京地区的大气消光性质的模型(图9)。结果表明,南京地区消光系数中的81%是由于粒径在0.2~1.0 μm 范围的颗粒物造成的。在干燥条件下,该粒径范围内的颗粒物的质量分数越大,则消光系数越大。当相对湿度增加时,消光系数有显著的增加。

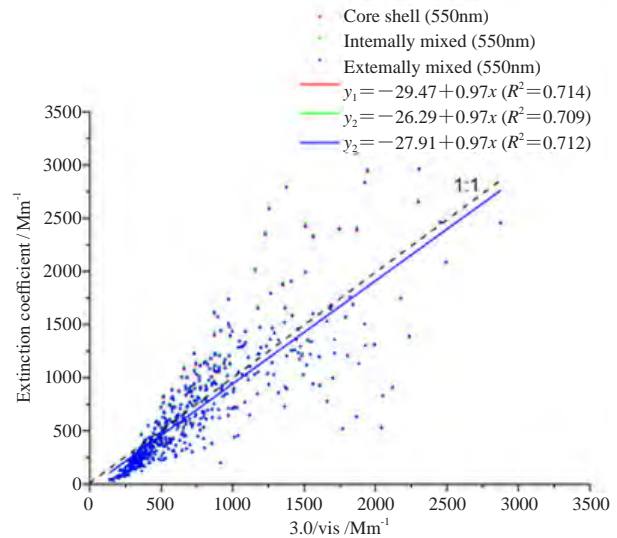


图9 在南京对 κ -EC-Mie模型的验证^[5]

Fig. 9 The κ -EC-Mie model verification for Nanjing data^[5]

4.2 黑碳气溶胶的环境效应模拟研究

采用在线大气化学耦合模式WRF-Chem研究了黑碳气溶胶反馈机制对气象要素和边界层发展的影响,并进一步探讨了黑碳一边界层相互作用的机制对地面臭氧浓度的影响。结果表明,白天边界层开始发展时,由于黑碳气溶胶对太阳短波辐射的吸收作用,会加热边界层以上的大气,其中在边界层顶的加热最显著,从而增加了层结稳定度,这使得此时边界层的发展受到抑制。进而造成臭氧前体物在边界层内大量累积,最终使得臭氧的光化学生成在正午之前有所增加。同时,边界层的抑制造成湍流强度变弱使得高空向地面输送的臭氧明显减少,湍流挟卷减弱,从而导致早晨一中午向下的高浓度挟卷减弱,地面臭氧浓度

降低。午后, 由于边界层的发展迟缓, 臭氧在下午仍然存在较明显的垂直梯度, 因此午后的垂直混合作用仍然能够从高空将臭氧输送到地面, 从而抵消了午前臭氧浓度的减少量。在整个过程中垂直混合作用在影响地面臭氧浓度中起到了关键作用。该研究的结果有一定创新性, 以往的研究都关注于边界层内的光化学反应对臭氧浓度的影响, 而本研究发现黑碳一边界层相互作用的机制对臭氧浓度也起着不可忽视的作用。并且在前人的研究基础上, 为探讨中国高黑碳浓度地区的臭氧形成机制提供新思路。

4.3 黑碳气溶胶的气候效应模拟研究

基于地球系统模式 (CESM) 的物理参数化方案, 成功自主研发了欧拉型大气水成物在线源追踪方法。该方法基于详细的物理参数化方案, 更加适用于大气水分传输的物理机制研究, 是一种精确定量大气水成物来源贡献的方法。本课题的下一步的研究准备将欧拉型大气水成物源追踪方法和黑碳气溶胶的气候效应的敏感性试验相结合, 考察黑碳影响东亚水循环的物理机制。此外, 目前已经基于CESM模式的物理参数化方案初步完成了黑碳的行业源和区域源追踪方法的代码编写。源追踪计算中根据地理位置、排放源类型以及黑碳类型在模式中增加了48 ($4 \times 6 \times 2$) 种黑碳的标记物种。该工作将为定量分析全球黑碳来源提供技术支持。

本课题利用CESM模式针对黑碳辐射效应进行了研究。模拟研究结果表明, 黑碳直接辐射效应的全球平均值为 $0.43 \text{ W} \cdot \text{m}^{-2}$ 。Ramanathan^[8]发现多个观测和模式测定后, 黑碳的直接辐射强迫值为 $0.4 \sim 1.2 \text{ W} \cdot \text{m}^{-2}$, 而大多数的GCMs (全球气候模式) 模拟值会由于模式忽略黑碳与其他气溶胶内混等原因, 导致模拟值低于观测值, 模拟范围大概为 $0.2 \sim 0.4 \text{ W} \cdot \text{m}^{-2}$ 。Bond^[9]统计了大量有关黑碳辐射效应的研究, 认为黑碳辐射强迫值应为 $0.71 \text{ W} \cdot \text{m}^{-2}$ (90%不确定性范围), 模式对黑碳直接辐射效应的最佳模拟范围应在 $0.08 \sim 1.27 \text{ W} \cdot \text{m}^{-2}$ 。因此, 本研究模拟的黑碳直接辐射效应的全球平均值与以往的观测结果一致。

青藏高原是黑碳的冰雪反照率效应的敏感区, 模拟结果表明在该地区黑碳引起的地表辐射强迫为正值, 其值为 $0.8 \sim 12 \text{ W} \cdot \text{m}^{-2}$, 而东亚其他地区黑碳引起的地表辐射强迫往往为负值。黑碳对云滴有效半径和云内液水路径的影响可以分别表征黑碳的第一间接辐射效应和第二间接辐射效应。结果表明, 黑碳使得东亚地区3—6月和12月的云滴有效半径显著减小, 而其他月份云滴有效半径增加。在云内水汽含量不变的情

况下, 云滴数浓度增加, 云滴有效半径减小, 从而导致云反照率增加, 辐射强迫变大。黑碳在不同季节对中国第二间接效应造成的不同影响: 冬季, 黑碳造成中国上空的液水路径增加, 使得第二间接效应增强。夏季, 中国北部和南部地区液水路径增加, 表明黑碳使得该地区第二间接效应增强; 而华北地区的液水路径减少, 第二间接效应减弱。

黑碳通过其一系列的气候效应还会影响到东亚地区的季风和降水。夏季黑碳引起的季风区降水变化出现了明显的南涝北旱现象。长江中下游以南地区 (32°N 以南) 的降水大范围增加 $1 \text{ mm} \cdot \text{d}^{-1}$ 以上, 而华东以北地区, 包括部分华中地区 (32°N 以北) 的降水减少了 $-1.2 \sim -0.4 \text{ mm} \cdot \text{d}^{-1}$, 南北差异较明显。冬季黑碳引起东亚沿岸地区降水增加 (尤其长江中下游地区), 但增加幅度不大, 为 $0.2 \text{ mm} \cdot \text{d}^{-1}$ 左右。除东亚降水受到黑碳的影响, 东亚季风的强度夜有所变化。东亚夏季风在华北减弱, 而在华南增强。这与夏季降水的变化相符 (即南涝北旱)。冬季则出现南上的海上湿润气流, 使得东亚冬季风明显减弱。

进一步的研究还发现, 黑碳对东亚副热带西风急流的位置、强度会产生影响。结果表明, 夏季黑碳浓度增加会加热整层大气, 而在不同纬度的加热效果不同, 从而产生了温度经向梯度的异常, 在急流北侧, 有较强的正温度梯度异常, 减小了负的经向温度梯度。由于高层风速由低层温度梯度所控制, 因此黑碳浓度增加会造成夏季急流减弱。而在冬季, 黑碳浓度越高, 其对大气的加热越强。由于黑碳在纬向的分布不均匀会造成经向温度梯度异常: 急流北侧产生正温度梯度异常, 南侧产生负温度梯度异常, 最终使得冬季急流南移。

5 黑碳的健康效益评估

5.1 北京地区 BC 和 $\text{PM}_{2.5}$ 对居民循环系统死亡率的影响

利用2005—2011年北京地区黑碳浓度和循环系统死亡人数资料, 采用GAM (时间序列的半参数广义相加模型) 模型^[10]进行研究。分析得到, 在实际大气环境下以四分位范围IQR计量 (Inter Quartie Range, IQR), 即IQR为第25百分位数 (P25) ~ 第75百分位数 (P75), 北京 $\text{PM}_{2.5}$ 日均浓度比BC高一个量级。在所有的滞后日, $\text{PM}_{2.5}$ 的超额死亡风险 (ER) 范围为 $1.2 \sim 4.1$, BC为 $1.3 \sim 2.7$, BC的健康效应只是略低于 $\text{PM}_{2.5}$ 。在实际大气环境下, $\text{PM}_{2.5}$ 与BC的浓度很难同时增加 $10 \mu\text{g}/\text{m}^3$, BC浓度的绝对增量远小于 $\text{PM}_{2.5}$, 但是为了方便量化比较, 国际上广泛存在第二种度量方

法以 $10 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 计量在所有的滞后日, $\text{PM}_{2.5}$ 的超额死亡风险范围为 $0.2\sim 0.7$, BC为 $2.3\sim 4.8$, BC的健康效应是 $\text{PM}_{2.5}$ 的6倍以上。

5.2 北京地区 BC 和 $\text{PM}_{2.5}$ 对居民呼吸系统死亡率的影响

在自然滞后日 ($\text{lag}0\sim 4$), $\text{PM}_{2.5}$ 的峰值出现在 $\text{lag}0$, BC的仍出现在 $\text{lag}1$ 。对于 $\text{PM}_{2.5}$, 呼吸系统的ER值大于循环系统的, 对于BC, 呼吸系统与循环系统的ER值差距不大。以IQR计量, 在所有的滞后日, $\text{PM}_{2.5}$ 的超额死亡风险(ER)范围为 $-0.5\sim 4.8$, BC为 $-1.3\sim 2.7$, BC的健康效应略低于 $\text{PM}_{2.5}$ 。以 $10 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 计量, 在所有的滞后日, $\text{PM}_{2.5}$ 的超额死亡风险(ER)范围为 $-0.1\sim 1.0$, BC为 $-2.3\sim 4.7$, BC的健康效应远高于 $\text{PM}_{2.5}$ 。

5.3 北京地区 BC 和 $\text{PM}_{2.5}$ 对不同人群呼吸、循环系统死亡率的影响

$\text{PM}_{2.5}$ 引起的循环系统超额死亡风险均高于BC。对于 $\text{PM}_{2.5}$ 男性的健康风险高于女性, 对于BC女性的健康风险高于男性; 老年人群的超额死亡风险高于较为年轻的人群。在65岁以下的人群中, $\text{PM}_{2.5}$ 与BC引起的超额死亡风险数值比较接近; 受教育程度较低的人群的 $\text{PM}_{2.5}$ 与BC的健康风险较高。 $\text{PM}_{2.5}$ 超额死亡风险的组间差值较大。

$\text{PM}_{2.5}$ 引起的呼吸系统超额死亡风险均高于BC。无论 $\text{PM}_{2.5}$ 或是BC, 男性的健康风险高于女性; 对于老年人群 $\text{PM}_{2.5}$ 呼吸系统健康风险略低于较年轻人群, 而对于老年人群BC呼吸系统健康风险略高于较年轻人群(BC的 $0\sim 64$ 岁组结果未通过显著性检验); 对于受教育程度较低的人群, $\text{PM}_{2.5}$ 与BC的呼吸系统健康风险均较高。

5.4 北京 BC 浓度与气温对疾病急诊就诊人数的影响研究

5.4.1 北京市 BC 和气温单要素对不同人群急诊就诊人数的影响

2009—2011年BC和气温单独作用对北京市不同人群急诊就诊人数的影响差异均较大, 对总急诊就诊人数在当天直到滞后1天的情况下均显著, 对于呼吸系统疾病仅在当天显著, 对心脑血管疾病则在滞后5天的情况下显著。在最佳滞后时间条件下, BC日均浓度每增加 $10 \mu\text{g}/\text{m}^3$, 其总急诊就诊人数、呼吸和心脑血管疾病急诊就诊人数对应的RR(Relative Risk)分别为1.0035、1.0050和1.0057。

5.4.2 北京市 BC 和气温共同作用的健康效应研究

2009—2011年北京市高温与BC协同作用对不同人

群急诊就诊总人数的影响均存在协同作用。气温高于 26°C , BC对总急诊就诊、呼吸和心脑血管疾病急诊就诊人数影响的ER分别为0.85%, 2.46%和0.93%。

5.5 成都市 BC 浓度与气温的健康效应及协同作用研究

1) 成都市BC浓度对呼吸和循环系统死亡人数影响分析

2010—2015年成都市BC对总死亡、呼吸和心脑血管疾病死亡人数的影响存在滞后效应, BC在滞后一天 $\text{Lag}1\text{d}$ 时RR均达到最大, 分别为1.0015%, 1.0019%和1.0012%, BC对呼吸系统疾病死亡的影响相对较高。

2) BC对成都市不同人群死亡人数影响的短期健康效应风险评估

2010—2015年成都市BC累计滞后2d造成的总死亡和呼吸系统疾病死亡人数分别为8494和2200人, 其对应的归因风险(AF: Attributable Fractions)分别为2.29%和2.44%; 累积滞后1d的BC造成2558例心脑血管疾病死亡, 对应AFs为2.19%。

6 结论

通过此项目的开展, 进一步完善了原有的飞机观测平台, 形成了舱内舱外从气溶胶到云物理降水粒子探头的全套观测系统, 涵盖了5类22套仪器, 在原有的基础上增加了光学遥感探测, 形成了先进的大气云物理、大气光学、大气气溶胶和大气遥感的国际综合观测平台, 与美国NOAA、NCAR、怀俄明大学、英国FAMM大气观测平台处在同等水平。通过课题大量的全国飞机航测, 填补了国内黑碳气溶胶的质量浓度、粒径、混合老化特性观测的空白。尤其为气候模式评估中国黑碳气溶胶的正负辐射强迫提供了强大的数据支撑。通过对吸收, 散射, 消光等大气黑碳光学的垂直观测, 可以对气溶胶观测网(AERONET)和MODIS卫星光学特性进行修正。利用大量的黑碳航测数据, 可以验证评估气候模式中BC的辐射强迫及辐射传输模式中奇异谱分析(SSA)的合理性。为评估中国黑碳对气候的影响, 增加我国在国际气候谈判中的话语权。

基于自上而下方法, 构建了中国民用燃煤排放OC和EC高空间分辨率排放清单($1 \text{ km}\times 1 \text{ km}$), 该项工作可为我国民用散煤控制及其导致的污染时空分布格局研究提供基础数据支撑。系统梳理了我国建国以来(1949—2015年)秸秆露天焚烧控制和生物质能源利用的相关政策。基于多卫星数据(MCD14ML和MCD64 AL)及更新的生物质数据(生物量数据、植被区划数据及本地排放因子)。构建了2003—2015年

我国中东部地区长时间尺度的高时空分辨率的生物质露天焚烧(包括森林、灌丛、草类及作物秸秆)排放清单。在上述研究建立的卫星反演数据方法,融合多卫星产品、课题组野外调查、高分辨率植被数据、更新的薪柴数据及更新的历年详细的排放参数,课题组近期建立了中国2003—2016年度的高时空分辨率的生物质露天焚烧及室内燃烧的综合排放清单。

项目针对黑碳排放及其气候环境效应模拟相关的几个关键问题,包括获得了对气候和环境效应评估中亟需的黑碳在大气中老化后的混合状态、光学性质等参数,研究结果可为识别黑碳的高浓度排放特征及其在高浓度排放条件下的老化机制、环境气候效应提供理论依据。此外,黑碳气溶胶对边界层产生作用,进而对地面臭氧浓度产生影响。对其中机理的认识,有助于减少黑碳对大气环境的负面作用。以上对黑碳的环境和气候效应的研究,可提升我国科学家在黑碳领域的话语权。研发的欧拉型大气水成物在线源追踪方法,更加适用于大气水分传输的物理机制研究,将其与黑碳气溶胶的辐射效应相结合可以加深理解黑碳影响水循环的物理机制。基于WRF-Chem和CESM模式研发的黑碳源追踪方法将为我国的黑碳减排提供科学参考。黑碳气溶胶光学性质的研究,有利于改进当前模式中黑碳辐射的参数化方案,进一步提升对黑碳的环境、气候效应的理解。

开展黑碳和人群健康相关资料的补充收集和物质质控,融合地面黑碳浓度观测、卫星资料以及再分析资料,建立全国BC浓度数据集,分析其时空分布特征。结合人口分布等信息,建立黑碳的人口暴露水平评估方法。建立典型城市黑碳—健康暴露反应关系,

开展黑碳对人体肺部细胞的毒理作用实验。开展了黑碳、细颗粒物浓度和气温等因子对人体健康影响的协同效应研究。系统开展不同减排方案和气候情景下黑碳造成的居民健康经济损失评估。根据黑碳气候—健康效应评估及减排策略,与健康损失的经济成本进行综合分析,建立了黑碳气溶胶气候—健康效应评估平台,提出优化的减排方案,未来进一步形成科学咨询报告。

参考文献

- [1] Hua Y, Wang S, Wang J, et al. Investigating the impact of regional transport on PM_{2.5} formation using vertical observation during APEC 2014 Summit in Beijing. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2016, 16: 15451-15460.
- [2] Zhang Q, Ma X, Tie X, et al. Vertical distributions of aerosols under different weather conditions: analysis of in-situ aircraft measurements in Beijing, China. *Atmospheric Environment*, 2009, 43: 5526-5535.
- [3] Klimont Z, Cofala J, Xing J, et al. Projections of SO₂, NO_x and carbonaceous aerosols emissions in Asia. *Tellus Series B-Chemical and Physical*, 2009, 61(4): 602-617.
- [4] Cao G, Zhang X, Zheng F, et al. Inventory of black carbon and organic carbon emissions from China. *Atmospheric Environment*, 2006, 40(34): 6516-6527.
- [5] Zhang L, Zhu B, Gao J, et al. Impact of Taihu Lake on city ozone in the Yangtze River Delta. *Advances in Atmospheric Sciences*, 2017, 34(2): 226-234.
- [6] Jiang L, Zhang Z, Zhu B, et al. Comparison of parameterizations for the atmospheric extinction coefficient in Lin'an, China. *Science of the Total Environment*, 2018, 621: 507-515.
- [7] Gao J, Zhu B, Xiao H, et al. Effects of black carbon and boundary layer interaction on surface ozone in Nanjing, China. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2018, 18: 7081-7094.
- [8] Ramanathan V, Carmichael G. Global and regional climate changes due to black carbon. *Nature Geoscience*, 2008, 1: 221-227.
- [9] Bond T, Doherty S, Fahey D, et al. Bounding the role of black carbon in the climate system: a scientific assessment. *Journal of Geophysical Research-Atmospheres*, 2013, 118(11): 5380-5552.
- [10] Dominici F, Mc Dermott A, Zeger S, et al. On the use of generalized additive models in time-series studies of air pollution and health. *American Journal of Epidemiology*, 2002, 56: 193-203.
- [11] 寒松. 日本静止气象卫星概览. *国际太空*, 2013, (9): 37-39.
- [12] 姜珊, 任湘湘, 夏冬冬. 国外海洋预报动态. *海洋预报*, 2014, 31(12): 86-88.
- [13] 张晓虎, 陆风, 窦芳丽, 等. 国外地球同步轨道气象卫星成像观测模式发展分析. *气象科技进展*, 2016, 6 (1): 124-128.
- [14] Yang J, Zhang Z Q, Wei C, et al. Introducing the New Generation of Chinese Geostationary Weather Satellites, Fengyun-4. *Bull Amer Meteor*, 2017, 98: 1637-1658.
- [15] Lu F, Shou Y. Channel simulation for FY-4 AGRI//Geoscience and Remote Sensing Symposium, IEEE, 2011: 3265-3268.
- [16] 杨军. 气象卫星及其应用. 北京: 气象出版社, 2012.
- [17] 张鹏, 郭强, 陈博洋, 等. 我国风云四号气象卫星与日本 Himawari-8/9卫星比较分析. *气象科技进展*, 2016, 6 (1): 72-75.
- [18] 张志清, 陆风, 方翔, 等. FY-4卫星应用和发展. *上海航天*, 2017, 34(4): 8-19.
- [19] 张志清, 董瑶海, 丁雷, 等. 我国首颗第二代静止气象卫星风云-4 升空. *国际太空*, 2016, (12): 6-12.
- [20] 李卿. 中国静止气象卫星进展. *航天返回与遥感*, 2001, 22(1): 13-19.
- [21] 王淦泉, 陈桂林. 地球同步轨道二维扫描红外成像技术. *红外与激光工程*, 2014, 43(2): 429-433.
- [22] 董瑶海. 风云四号气象卫星及其应用展望. *上海航天*, 2016, 22(2): 1-8.
- [23] 周润松, 葛榜军. 美国新一代气象卫星系统发展综述. *航天器工程*, 2008, 17(4): 91-98.
- [24] 杨军, 许健民, 董超华. 风云气象卫星40年: 国际背景下的发展足迹. *气象科技进展*, 2011, 1(1): 6-13.

(上接29页)