

川渝典型城市夏季气溶胶化学过程特征

赵一凡

重庆三峡学院重庆市三峡库区水环境演变与污染防治重点实验室

DOI:10.12238/eep.v8i4.2658

[摘要] 本研究利用飞行时间气溶胶化学形态监测仪(ToF-ACSM)解析重庆农村夏季PM_{2.5}来源。观测显示非难溶性PM_{2.5}平均浓度为 $17.72 \pm 13.96 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ，通过因子分析识别出两类生物质燃烧有机气溶胶(BBOA)和两类二次有机气溶胶(MO/LO-OOA)。当OA浓度升高时，BBOA贡献率显著增加，确证生物质燃烧是推升污染的关键驱动源。区域传输分析表明，生物质排放物在大气传输中氧化转化，促进LO-OOA生成并加剧污染。本研究揭示了四川盆地夏季高温高湿条件下气溶胶的生成机制。

[关键词] 生物质燃烧；二次有机气溶胶；PSCF

中图分类号：G633.91 文献标识码：A

Characterization of summer aerosol chemical processes in typical urban areas of Sichuan and Chongqing

Yifan Zhao

Key Laboratory of Water Environment Evolution and Pollution Prevention in Chongqing Three Gorges Reservoir Area,

Chongqing Three Gorges University

[Abstract] This study employed a Time-of-Flight Aerosol Chemical Speciation Monitor (ToF-ACSM) to investigate PM_{2.5} sources in rural Chongqing during summer. The average concentration of non-refractory PM_{2.5} was measured at $17.72 \pm 13.96 \mu\text{g}/\text{m}^3$. Factor analysis identified two types of biomass-burning organic aerosols (BBOA) and two types of secondary organic aerosols (more-oxidized OOA, MO-OOA; less-oxidized OOA, LO-OOA). BBOA contributions increased significantly with rising OA concentrations, providing direct evidence that biomass burning serves as the primary driver of pollution enhancement. Regional transport analysis demonstrated that biomass emissions undergo oxidative transformation during atmospheric transport, promoting LO-OOA formation and exacerbating pollution levels. This research elucidates aerosol formation mechanisms under high-temperature and high-humidity conditions in the Sichuan Basin.

[Key words] Biomass burning; Secondary organic aerosols; Potential Source Contribution Function (PSCF)

引言

近年来，中国经济的快速增长和城市扩张在显著提升生活质量的同时，也引发了深刻的生态危机^[1]。工业化和城市扩张增加了能源消耗和交通排放，进一步加剧了大气污染物浓度的上升。PM_{2.5}的高浓度是引发污染事件的关键因素，其形成和消散受气象条件、地形和排放的影响。二次无机气溶胶(SIA)，如硫酸盐、硝酸盐和铵盐，在PM_{2.5}形成中发挥了重要作用。在高相对湿度(RH)和高NO_x水平下，非均相反应对二次气溶胶的形成至关重要，显著增加了颗粒物浓度^[2]。

四川盆地独特的地形和气候特征，如相对较高的湿度和有限的大气扩散能力，加剧了该地区的空气质量问题^[3]。此外，随着工业化和城市化的加速，交通和工业排放的污染物不断积累，导致空气质量恶化和污染事件频发。然而，关于四川盆地大气污染物的产生、转化和相互作用机制的研究仍不足。以往在四川

盆地的研究表明，硝酸盐的形成、生物质燃烧和机动车排放是冬季郊区霾形成的主要驱动因素。研究发现，在荣昌冬季观测点，生物质燃烧、交通排放和煤炭燃烧是一次有机气溶胶的主要来源^[4]。在霾事件期间，生物质燃烧有机气溶胶(BBOA)成为主要贡献者，突显了生物质燃烧对该地区农村冬季霾形成的重大影响。当生物质燃烧排放物从周边地区传输到成都大都市区时，BBOA浓度增加了约三倍，增幅达54%，强调了生物质燃烧在城市霾形成中的重要作用^[5]。夏秋季是作物秸秆燃烧的高峰期，四川盆地的高温高湿条件对生物质燃烧气溶胶的老化和化学转化产生了显著影响。因此，本研究侧重于分析夏秋季生物质燃烧气溶胶的来源、起源和过程，探索其在潮湿条件下的大气命运及其对空气质量的影响。

1 实验与方法

1.1 采样点

2020年8月30日至2020年10月9日,在夏季期间于荣昌(105.37° E, 29.26° N)进行了为期41天的数据收集和观测研究。荣昌是重庆市的一部分,位于重庆主城区西南部。观测点靠近荣昌北站,交通较为频繁。观测点周围有一定数量的村庄,人类活动和燃烧行为可能对区域大气成分产生了贡献。

1.2 ACSM仪器分析

气溶胶化学形态监测仪(ACSM)源自Aerodyne气溶胶质谱仪(AMS),广泛用于亚微米颗粒物的实时化学表征^[6]。主要分析物包括有机气溶胶(OA)、硫酸盐(SO₄²⁻)、硝酸盐(NO₃⁻)、铵盐(NH₄⁺)和氯化物(Cl⁻),能够进行长期连续观测。

1.3 气态污染物和气象参数的测量

NO_x、NO₂、NO、SO₂、CO和O₃的浓度通过Thermo 气体分析仪(42i、43i、48i、49i)连续测量。此外,使用气象分析仪(Luff WS501-UMB)收集温度(Temp)、湿度(RH)、风向(WD)和风速(WS)数据。

1.4 数据分析

ACSM数据使用基于Igor (Wavemetrics, Lake Oswego, OR, USA)的Tofware v2.5.13软件进行分析。校准化学成分的相对电离效率(RIEs)以确保数据准确性。NH₄⁺、Org、NO₃⁻、SO₄²⁻和Cl⁻的RIE值分别为3.6、1.4、1.1、1.2和1.3。

使用PMF结合多线性引擎(ME-2)分析m/z 12-120范围内的高分辨率质谱数据。利用质谱的特征峰(Q/Q_{exp})和日变化来确定四因子解析方案,认为这是最佳结果:BBOA1、BBOA2、MO-OOA和LO-OOA。m/z 60(C₂H₄O₂⁺)和m/z 73(C₃H₅O₂⁺)在BBOA1和BBOA2的时间质谱图中表现出显著的峰。这主要源于植物纤维的不完全燃烧和热解。OOA的特征是m/z 44(CO₂⁺)离子碎片的比例较高,LO-OOA和MO-OOA中m/z 44的比例分别为21.6%和27.3%。

1.5 区域传输分析

利用Meteoinfo软件的trajstat插件,使用潜在源贡献函数(PSCF)进行量化不同区域对观测点污染的贡献,阈值设定为NR-PM_{2.5}成分浓度的第50百分位数。

2 结果与讨论

2.1 PM_{2.5}浓度水平和气象因素

在整个研究期间,温度范围为14.5℃至38.8℃,平均为21.7±3.9℃。相对湿度在35.6%至100%之间变化,平均为89.5±12.8%。风速范围为0.02m/s至1.80m/s,平均为0.62±0.42m/s,主导风向为西南和东北。总体而言,采样期间的气象条件具有高湿度、高温和低风速的特点。NR-PM_{2.5}浓度范围为0.6至111.9μg/m³,平均为17.7±13.96μg/m³。NR-PM_{2.5}的主要成分包括OA、SO₄²⁻、NO₃⁻、NH₄⁺和Cl⁻,平均浓度分别为8.6±9.4μg/m³、3.9±2.6μg/m³、2.1±2.1μg/m³、2.7±3.1μg/m³和0.24±0.31μg/m³。

2.2 OA来源解析

观测期间POA的平均浓度分别为0.73μg/m³和1.98μg/m³。可以从图1看出,BBOA浓度在16:00LT左右开始快速上升,在19:00LT达到峰值,可能源于周围农村地区的烹饪活动。POA的总体贡献为30%,当OA浓度达到90μg/m³时,POA贡献增加到58%。说

明BBOA对夏季污染物浓度的升高具有极其显著的正相关关系,是导致污染加剧的主要驱动因素之一。LO-OOA和MO-OOA的平均浓度分别为2.09μg/m³和4.06μg/m³。OOA浓度在13:00LT达到峰值,表明夏季白天的光化学反应是其形成的主要驱动力。夜间MO-OOA浓度通常高于白天水平,与夜间较高的相对湿度一致,这些结果与北京的研究结果一致^[7]。从而为液相氧化在增强夜间OOA形成中所起的重要作用提供了额外证据。MO-OOA的平均贡献为46%,但其浓度和比例随着OA浓度的增加而降低,表明其在污染物形成中的作用有限。相比之下,LO-OOA的浓度和比例随着OA水平的升高而迅速增加。当OA浓度达到90μg/m³时,LO-OOA占OA的35%,突显了其在污染物形成中的重要作用。

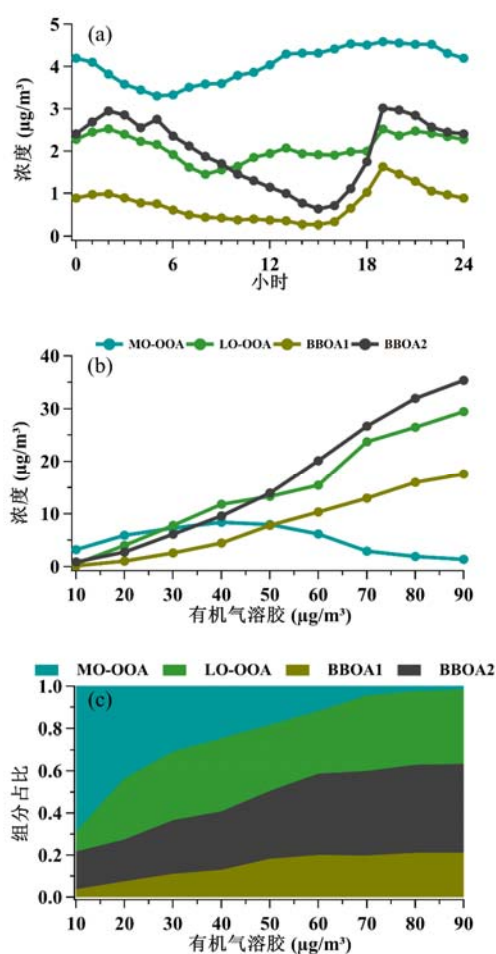


图1 不同OA组分(MO-OOA、LO-OOA、BBOA1、BBOA2)在研究期间的日变化:(a)日变化,(b)各组分浓度与OA质量浓度的关系,(c)各组分的贡献率。

2.3 潜在污染源分析

PSCF用于进一步分析荣昌夏季期间NR-PM_{2.5}组分的潜在源区,如图2所示。四川中部和重庆南部的WPSCF值较高(WPSCF>0.7),表明这些地区是SIA的重要贡献者。BBOA1和BBOA2的潜在源区相似,主要位于四川中部和重庆北部,距离观测点较远。这

与源自这些地区的气团中POA对PM_{2.5}的贡献较高的观察结果一致。MO-OOA的分布强烈受到来自邻近地区的气团传输的影响,特别是重庆中部和南部以及四川中部,WPSCF值高达0.9。相比之下,LO-OOA的空间分布与生物质燃烧源的分布密切相关,表明生物质燃烧在LO-OOA的形成中发挥了重要作用。同样,Cl⁻的潜在源区也反映了生物质燃烧活动的影响,四川中部的WPSCF值较高。

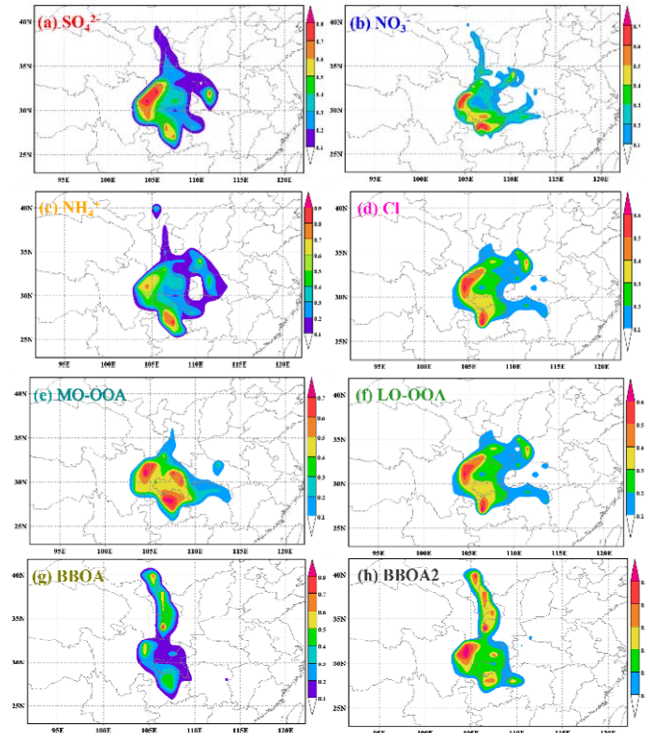


图2 (a)SO₄²⁻, (b)NO₃⁻, (c)NH₄⁺, (d)Cl⁻, (e)MO-OOA, (f)LO-OOA, (g) BBOA1, (h)BBOA2空间分布区域的模拟结果。

3 结论

本研究调查了夏季重庆荣昌PM_{2.5}的来源和形成机制。使用

ToF-ACSM获得PM_{2.5}组分数据,并使用PMF分析进一步探索源解析。结果表明,夏季PM_{2.5}主要由OA组成,其次是硫酸盐、硝酸盐、铵和氯离子。本研究揭示了来自重庆西部和北部地区的BBOA对荣昌夏季空气污染的重大贡献。这些发现强调了在制定缓解措施时考虑季节性污染的必要性。

[参考文献]

- [1]WANG X,TIAN G,YANG D,et al.Responses of PM_{2.5} pollution to urbanization in China[J].Energy Policy,2018,123:602-10.
- [2]PATHAK R K,WU W S,WANG T.Summer PM_{2.5} ionic species in four major cities of China: nitrate formation in an ammonia-deficient atmosphere[J].Atmospheric Chemistry and Physics,2009,9(5):1711-22.
- [3]李培荣,肖天贵.成都地区秋冬季污染天气形势下PM_{2.5}的扩散与输送[J].中国环境科学,2020,40(1):63-75.
- [4]张欣怡.西南典型地区二次有机气溶胶的污染特征及来源解析[D].重庆三峡学院,2023.
- [5]BAOZ,LIUY, MENG L,et al.Evaluating the Effects of Biomass Burning on Severe Haze Formation in a Megacity of Sichuan Basin, Southwestern China [J]. Journal of Geophysical Research: Atmospheres,2025,130(2):e2024JD042516.
- [6]江琪,孙业乐,王自发,etal.应用颗粒物化学组分监测仪(ACSM)实时在线测定致霾细粒子无机和有机组分[J].科学通报,2013,58(36):3818-28.
- [7]XU Q, WANG S,JIANG J,et al.Nitrate dominates the chemical composition of PM_{2.5} during haze event in Beijing, China [J].Science of The Total Environment,2019,689:1293-303.

作者简介:

赵一凡(1998--),男,汉族,山西长治人,在读硕士研究生,研究方向: 大气环境。