

图 6. 黄山站能见度、相对湿度和干消光系数散点图(2000-2009)

Fig6. Scatter plots between visibility, relative humidity and API in Huangshan sites (2000-2009)

3 结论

(1)长三角地区灰霾日主要集中在南京、合肥、杭州、衢州和上海(龙华).1990~1999 年灰霾日数变化不大,2005 年开始灰霾范围逐渐扩大.在所选取的长三角的 38 个观测站中有 72%个站点灰霾日的年平均增长率大于 0,南京、杭州和合肥灰霾日年平均增长率分别为 4.05%、2.95%、5.25%.

(2)从订正后的消光系数的年平均和季平均图来看,其分布与灰霾日的分布基本一致.灰霾日数高的区域,订正后的消光系数的均值也高,并且存在明显的季节变化特征,冬季>秋季>春季>夏季.

(3)选取的三个典型的站点灰霾日和干消光系数呈增加趋势,其变化趋势一致,能见度呈下降趋势.黄山背景站的能见度年平均下降率为 0.6%,能见度从 1988 年开始显著下降.南京和杭州的灰霾日数和干消光系数在 20 世纪 90 年代增长迅速,而合肥的灰霾日和干消光系数则是在 21 世纪初明显增长.黄山背景站在同一干消光系数下,相对湿度越大,能见度越低.杭州、南京和合肥在灰霾日,随着相对湿度的增加,能见度与 API 的相关性越强,因此需针对不同的相对湿度对 API 进行控制来提高能见度,改善灰霾天.

参考文献:

中央气象局. 地面气象观测规范 [M]. 北京:气象出版社, 2003:21-27.

Goldberg MS, Burnett RT, et al. The association between daily mortality and ambient air particle pollution in Montreal, Quebec. 1. Nonaccidental mortality [J]. Environmental Research, 2001, 86(1):12-25.

吴兑, 毕雪岩, 邓雪娇, 等. 珠江三角洲大气灰霾导致能见度下降问题研究 [J]. 气象学报, 2006, 64(4):510-517.

牛戣文, 顾俊强, 浦静姣, 等. 浙江城市区域灰霾天气的长期变化 [J]. 热带气象学报, 2010, 26(6):807-812.

Schichtel, B. A., Husar, R. B., Falke, S. R., Wilson, W. E., Haze trends over the United States, 1980 - 1995 [J]. Atmospheric Environment, 2001, 35(30):5205-5210.

Husar, R. B., Husar, J. D., Martin L, et al. Distribution of continental surface aerosol extinction based on visual range data [J]. Atmospheric Environment, 2000, 34(29-30): 5067-5078.

- Young Sung Ghim , Kil-Choo Moon et al. Visibility Trends in Korea during the Past Two Decades [J]. Air & Waste Management Association, .2005, 55(1):73-82.
- 范引琪, 李二杰, 范增禄. 河北省 1960~2002 年城市大气能见度的变化趋势 [J]. 大气科学, 2005, 29(4):526-535.
- Gao Lina, Gensuo Jia, Renjian Zhang, Huizheng Che et al. Visual Range Trends in the Yangtze River Delta Region of China, 1981 - 2005 [J]. Air & Waste Management Association , 2011, 61(8) :843-849.
- 高歌. 1961~2005 年中国霾日气候特征及变化分析 [J]. 地理学报, 2008, 63(7):761-768.
- 吴兑, 毕雪岩, 邓雪娇, 等. 珠江三角洲气溶胶云造成的严重灰霾天气 [J]. 自然灾害学报, 2006, 15(6), 77-83.
- Cao Junji, Qi-yun Wang et al. Impacts of aerosol compositions on visibility impairment in Xi ' an, China [J]. Atmospheric Environment, 2012, 59:559-566.
- 朱彬, 苏继峰, 韩志伟, 尹聪, 王体健. 秸秆焚烧导致南京及周边地区一次严重空气污染过程的分析 [J]. 中国环境科学, 2010, 30(5):585-592.
- 任雅武, 苏继峰, 朱彬, 周韬, 来志刚. 南京市一次连续空气污染过程的气象条件分析 [J]. 环境监控与预警, 2012, 4(1):6-10.
- Kang Hanqing, Bin Zhu et al. Analysis of a long-lasting haze episode in Nanjing, China [J]. Atmospheric Research , 2013, 120-121:78-87
- 童尧青, 银 燕, 钱 凌, 安俊琳. 南京地区霾天气特征分析 [J]. 中国环境科学, 2007, 27(5):584-588.
- 朱佳雷, 王体健, 刑莉, 穆青等. 江苏省一次重霾污染天气的特征和机理分析 [J]. 中国环境科学, 2011, 31(12):1943-1950.
- Fu qingyan, Zhuang guoshun et al. Mechanism of formation of the heaviest pollution episode ever recorded in the Yangtze River Delta, China [J]. Atmospheric Environment, 2008 , 42(9): 2023-2036.
- Doyle M. and Dorling S, Visibility trends in the UK 1950 - 1997 [J]. Atmospheric Environment, 2002, 36(19):3161-3172.
- 吴兑, 吴晓京, 朱小祥. 雾和霾 [M]. 北京:气象出版社, 2009:53-56.
- 刘新罡, 张远航. 大气气溶胶吸湿性质国内外研究进展 [J]. 气候与环境研究, 2010, 15(6):806-816.
- Husar, R. B., and J. M. Holloway, The properties and climate of atmospheric haze [J]. Hygroscopic Aerosols, 1984: 129-170.
- Che Huizheng, Zhang Xiaoye, Li Yang et al. Horizontal visibility trends in China 1981- 2005 [J]. Geophysical Research Letter, 2007, 34(24):L24706.
- Griffing, G. W., Relationships between the prevailing visibility, nephelometer scattering coefficient, and sunphotometer turbidity coefficient [J]. Atmospheric Environment, 1980, 14(5):577-584.
- 史军, 吴蔚. 上海霾气候数据序列重建及其时空特征 [J]. 长江流域资源与环境, 2010, 19(9):1029-1036.
- 张秋晨, 朱彬, 苏继峰, 王红磊. 南京 3 类不同大气污染过程下气溶胶水溶性无机离子的特征研究 [J] 环境科学, 2012, 33(6):1944-1951.

臺中市政府清潔隊柴油車輛裝置濾煙器試範運行成果

(劉邦裕¹)

1 臺中市政府環境保護局, 臺中市, 40301

摘 要:臺中縣市合併後成為臺灣新興都會區, 發展時間僅次於臺北市與高雄市, 人口達 2,675,939 人, 由於車輛眾多污染排放嚴重, 因此臺中市政府環境保護局於 2009 年執行『臺中市清潔隊車輛裝置濾煙器示範運行計畫』, 選擇 15 輛柴油車輛進行清潔隊柴油車輛裝置濾煙器的示範運行, 評估柴油車輛裝置濾煙器對於柴油車輛污染減量的效益, 特別是粒狀污染物的減量效益。為延續 2009 年示範運行計畫的成果, 於 2010 年執行「清潔車輛裝置濾煙器設備採購暨 2009 年濾煙器維修再生計畫」, 再選擇 15 輛柴油車輛進行清潔隊柴油車輛裝置濾煙器的示範運行, 並於 2012 年持續進行柴油車輛已裝置濾煙器之維護保養相關工作。2009 年執行『臺中市清潔隊車輛裝置濾煙器示範運行計畫』, 選擇出廠年份介於 1997 年至 2003 年的 15 輛柴油車輛進行清潔隊柴油車輛裝置濾煙器的示範運行, 評估柴油車輛裝置濾煙器對於柴油車輛污染減量的效益, 該計畫進行柴油車輛於安裝濾煙器前後粒狀污染物 (PM)、氣狀污染物 (CO 及 HC) 及多環芳香烴化合物 (PAHs) 的污染減量效益。其中該年度粒狀污染物 (PM) 平均去除效益為 90%, 一氧化碳 (CO) 及碳氫化合物 (HC) 則無明顯去除效益, 而多環芳香烴化合物 (PAHs) 的濃度平均去除效益為 24%。而 2010 年執行「清潔車輛裝置濾煙器設備採購暨 2009 年濾煙器維修再生計畫」, 選擇出廠年份介於 2001 年至 2005 年的 15 輛柴油車輛進行清潔隊柴油車輛裝置濾煙器的示範運行, 該年度則針對粒狀污染物 (PM) 進行濾煙器安裝前後及該柴油車輛行駛 1 年後之效益評估, 其中安裝前後之粒狀污染物 (PM) 平均去除效益為 86%, 而行駛 1 年後之粒狀污染物 (PM) 平均去除效益為 60%。由於 2009 年執行『臺中市清潔隊車輛裝置濾煙器示範運行計畫』所選擇的清潔隊柴油車輛皆為較為老舊之車輛, 經過臺中市政府環境保護局針對清潔隊車輛進行汰舊換新的過程後, 都已經報廢並將濾煙器拆下待安裝至其他清潔隊車輛, 而 2010 年所安裝濾煙器之 15 輛柴油車輛也有 3 輛已經報廢。因此於 2012 年重新選擇 4 輛出廠年份於 2001 年至 2005 年之柴油車輛安裝自報廢車輛拆卸下來之濾煙器, 其安裝前後之粒狀污染物 (PM) 平均去除效益為 98%。臺中市政府環境保護局自 2009 年開始, 進行清潔隊柴油車輛安裝濾煙器之污染減量效益評估, 在粒狀污染物 (PM) 的污染減量效益良好, 未來亦可針對老舊清潔隊柴油車輛在屆齡報廢前 3 至 5 年安裝濾煙器, 以達到污染減量效益, 也可以讓市民感受到環保局對所屬柴油車輛管理的用心。

关键字: 濾煙器, 狀污染物, 氣狀污染物, 多環芳香烴化合物排放量

二行程機車青白煙檢測與改善成效探討

(劉邦裕¹, 江嘉凌², 鐘文舜³, 姜禹丞³, 盧昭暉³)

1 臺中市政府環境保護局, 臺中

2 思維環境科技有限公司, 臺中

3 國立中興大學機械工程研究所, 臺中

摘要:二行程機車的機油經由曲軸箱隨燃料進入燃燒室中一起燃燒, 因為機油不易揮發, 油滴顆粒較大, 在引擎燃燒室內無法迅速燃燒, 經由排氣系統排放出來, 即形成青白煙。這種青白煙是粒狀污染物的一種, 由於可用肉眼明顯的分辨出來, 為一般民眾所厭惡, 環保署自1999年實施「鼓勵民眾檢舉高污染烏賊車」活動以來, 各地環保局的檢舉信件都以機車為主, 可見機車所排放的青白煙最為一般民眾所關切。

臺中市二行程機車約有 38 萬輛, 佔機車總數 22%, 本研究針對 2011 年曾遭民眾檢舉至少 1 次以上, 且經目測判煙判定為有污染之虞之機車, 列為青白煙通知檢測對象。本研究採實驗方式進行, 直接以惰轉急加速的方式來執行檢測, 並以 Berkeley 300 型不透光率分析儀來進行量測, 機車轉速控制條件為 $5,500 \pm 500 \text{ rpm}$, 主要是量測排氣中的不透光率。本研究共檢測 543 輛遭檢舉烏賊車, 其中粒狀污染物檢驗不合格共 154 輛, 佔 28.4%, 平均不透光率為 21.5%。更換排氣管、機油泵等老舊零件對二行程機車的不透光率有較明顯的改善, 可使平均不透光率降為 15%。

關鍵字: 二行程機車、不透光率、Berkeley 300

1 前言

機車排放主要的污染物為 CO、HC 及粒狀污染物。臺灣對機車污染排放的管制相當嚴格, 目前已實施第五期排放標準。隨著機車污染控制技術的改進, 不論新車或舊車的 CO 與 HC 排放都有改善, 但在粒狀污染物方面則成效較不明顯。雖然在車輛污染排放法規中也有針對機車的粒狀污染物設定排放標準, 但由於國家標準 CNS12299「機器腳踏車無負載急加速排煙試驗法」所規定的測試程序相當繁複, 執行不易, 故過去一直都沒有實施, 以致近十年來機車粒狀污染物管制工作無法落實。

早期的二行程引擎使用噴合油, 目前的二行程機車已可直接加無鉛汽油, 但仍需在進入曲軸箱前將機油與汽油混合好, 才可潤滑軸承及活塞。機油會隨著汽油進入氣缸內燃燒, 但因機油的分子量遠高於汽油, 不容易裂解, 燃燒速度慢, 沒有燃燒或燃燒不完全的機油顆粒會隨排氣一起排出, 形成了二行程機車特有的青白煙。Sakai 等人曾對二行程機車所排放的粒狀污染物以濾紙秤重法進行粒狀污染物成分分析, 該研究發現濾紙上的粒狀污染物在電子顯微鏡下顯示僅有少數的碳粒, 而濾紙呈現淡棕色, 其主要成分為未燃機油所組成, 可溶性有機物質 (SOF) 佔了濾紙上粒狀污染物成分的 98%[1]。

過去有關白煙的研究資料並不多, 洪榮芳曾經以機車的 oil/fuel ratio 對機車白煙的影響進行專門的探討, 發現 oil/fuel ratio 越高機車所產生的白煙越濃, 當機車的 oil/fuel ratio 為 2%, 機車排煙不透光率遠低於機車的 oil/fuel ratio 在 4%以上者, oil/fuel ratio 達 6%時, 排煙不透光率

皆在 85%以上，機車怠速運轉呈現不穩現象，而當 oil/fuel ratio 達 8%即很難發動，甚至無怠速[2]。Patschull 和 Roth 則曾經探討二行程機車排氣出口與排氣管排氣出口兩個位置 PM 的數目與粒徑分佈，發現當引擎轉速越高，汽缸排氣出口的 PM 粒徑較小，當轉速為 3000rpm 時 PM 的粒徑為 150nm，當轉速為 8000rpm 時 PM 粒徑為 90nm，轉速越高粒徑越小。此外引擎負載會影響 PM 的數目，負載提高時汽缸排放的 PM 數目會增加，但 PM 的粒徑並不受負載的影響，粒徑主要分佈在 100 nm 左右[3]。林仁智等人也曾探討機車粒狀污染物的數目與粒徑分佈，發現粒狀污染物的數目與引擎轉速，機油品牌，及 oil/fuel ratio 有關。該研究使用掃描式移動度粒徑分析儀(SMPS)分析不同轉速下 PM 的粒徑分佈與數目，發現各轉速 PM 的粒徑差異並不大，主要分佈在 130 nm 左右，而當轉速增加時引擎排放的 PM 也會增加，整體上當轉速越高引擎所排放的 PM 數目越多，粒徑相對較小。此外當機車的油/fuel ratio 越低，引擎所排放的 PM 數目相對的也會降低，當 oil/fuel ratio 為 6.25%時，PM 的粒徑眾數的相對數目為 $1.7 \times 10^6 \#/\text{cm}^3$ ，而當 oil/fuel ratio 為 1.64%時，PM 的粒徑眾數的相對數目為 $1.1 \times 10^6 \#/\text{cm}^3$ [4]。在 Carroll 等人也曾使用 SMPS 來探討改變引擎運轉條件對 PM 的數目與粒徑分佈的影響，發現引擎在 Part-load 下引擎燃燒較不完全而產生較多的 PM。由於使用的引擎是 500c.c. 二行程 Snowmobile 引擎，當引擎的轉速越高 PM 的粒徑會比較小，在各種負載與轉速下 PM 的粒徑大小都在 100nm 以內，在 33%的負載下 PM 產生數目最大，粒徑為 35nm，PM 數目是全負載時的 36 倍，無負載時的 24 倍，而無負載下 PM 的粒徑為 81nm，此外也發現機油並不會對引擎所排放的氣狀污染物有所影響[5]。

由以上的探討可知 PM 的主要為燃燒不完全的機油，當 oil/fuel ratio 越高會產生越多的 PM，而白煙也越多，因此 PM 數目與白煙濃度為正相關。尤其引擎在 Part-load 下易產生較多的 PM，而轉速越高 PM 粒徑越小，PM 粒徑在 100nm 左右。排氣管有使 PM 顆粒凝結成更大顆粒的作用。

Kagaya和Ishimaru也曾探討機油成分與機車白煙的關係，發現在機車急加速測試時，使用添加高分子量聚異丁烯的機油較不會產生白煙，主要是高分子量的聚異丁烯非常黏不容易與廢氣混合，而殘存在汽缸、活塞與排氣管中[6]。在檢測方面陳重修、張蕙珍等人發現機車出廠年份與煙度並無明顯相關性，顯示機車車況受個人維護保養習慣不同所造成影響較為明顯[7]。

2 機車不透光率檢驗方法

目前機車白煙量測主要是根據 CNS12299 來實施，主要量測機車排氣管所排出的粒狀物質或焦油狀物質。機車排放出的白煙濃度以不透光率來表示，採用的是光透過法，如圖 1 所示。這是指一束光線由發射器發出後，穿過機車排煙到達接收器的比例，此為透光率，而不透光率與透光率的和為 100%。透光率與排氣中所含懸浮微粒的吸收，反射及折射等光學性質有關，也與光線穿過排煙的路徑長度有關，其關係可用 Beer-Lambert Law 來表示。

$$I = I_0 e^{-kL}$$

其中 I 為透射光強度， I_0 為入射光強度， L 為光學路徑長度， k 為吸收係數。光透過法主要以可見光範圍的吸光度來量測，能夠對冷引擎起動所產生的白煙與藍煙進行量測，反應快、能作瞬態循環

連續測試是其特點。

本研究所使用的不透光分析儀為 Berkeley 300 型，如圖 2 所示。其反應時間為 0.01sec，可將排氣中瞬時的煙度變化紀錄下來。Berkeley 300 的採樣方式是將所有排氣由後端風扇直接抽入探測端，氣流流過感測頭後儀器能夠迅速的即時反應出排氣的不透光率。

本研究所使用的採樣系統如圖 3 所示，這是依據 CNS12299 的規範所設計，一共包括三部份。前段為利用矽膠管連接排氣導管導引機車廢氣，長度約為一公尺使導管內的排氣可以均勻分布於管內不受管徑改變而使白煙分布不均影響量測結果，中段則是不透光率量測位置，將柏克萊 300 型的感測頭置於排氣導管的尾端進行檢測分析並將檢測結果顯示於主機螢幕上，尾端則是有抽風機以及排氣風管輔助排氣流出，避免廢氣囤積於排氣導管中使得檢測結果高居不下影響檢測結果。

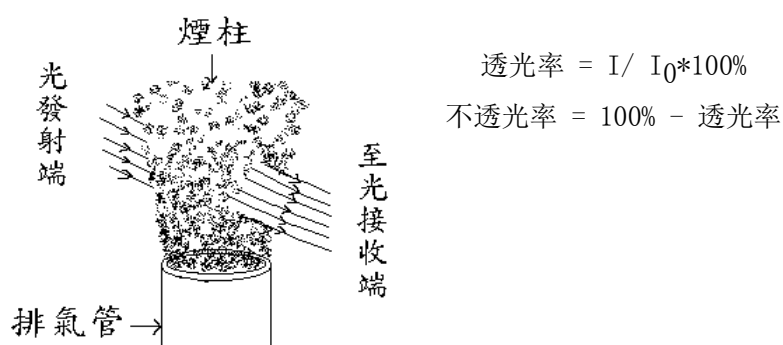


圖 1：不透光式煙度計的量測原理



圖2 Berkeley 300實際照片

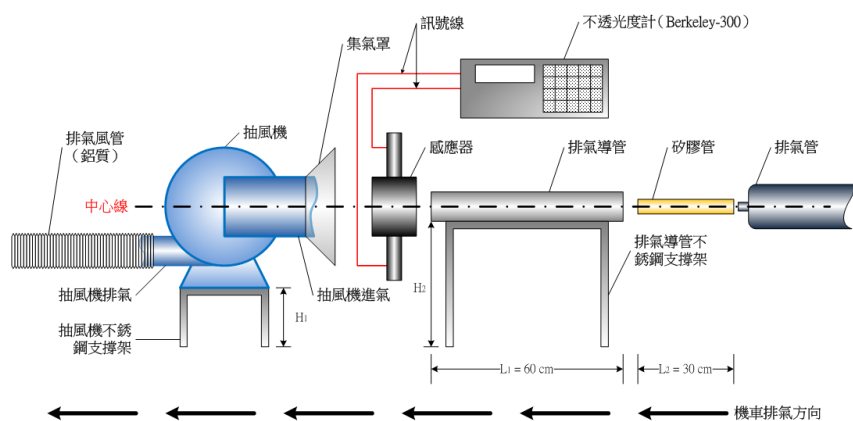


圖 3 採樣系統安裝方式示意圖

測試過程是修正 CNS12299 的規範來實施，把機車在原地固定，後輪懸空，發動引擎，使後輪空轉，先讓引擎到達工作溫度，然後操作人員逐漸加大油門，使後輪加速，直到引擎轉速達到 5000rpm 以上，立刻鬆開油門降低至惰轉狀態。此加速檢測兩階段各為 5 秒，然後保持惰轉狀態 15 秒。上述過程即為一循環測試。圖 4 所示即為測試過程的引擎轉速變化，待車輛煙度值趨於穩定，然後重覆前述循環至少 5 次，讀取測量值其平均值即為該機械腳踏車之煙度值，而取樣過程中若引擎轉速無法控制在 $5500 \pm 500\text{rpm}$ 以內者，則該循環判定為無效測試。

圖5為實際不透光率檢測的照片，檢測地點為臺中市大里運動公園旁的人行道上，在檢測過程中需要兩名檢測人員同時進行，其中一名檢測人員負責測試操作，控制油門開度並持引擎轉速計確定引擎轉速在檢測規範之內，另一人則負責操作不透光分析儀，紀錄檢測過程中的5次不透光率，並同時記錄檢測時間以及協助測試人員進行轉速控制。

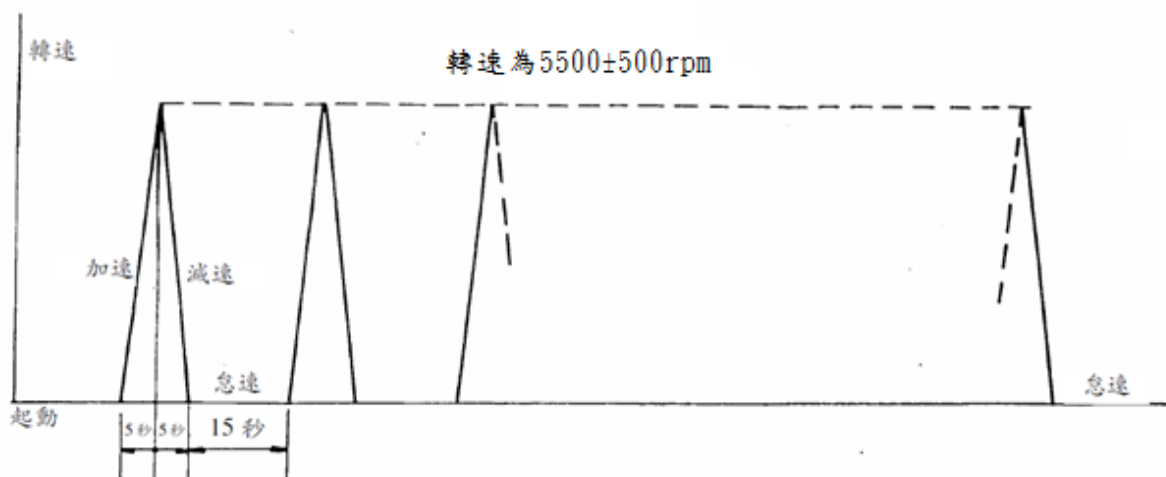


圖4 測試過程的引擎轉速變化規範



圖5 實際不透光率檢測照片

3 檢測數據分析

測試車輛來源為在臺中市遭民眾檢舉一次以上的烏賊機車，因為目前的機車定檢站無不透光率分析儀，故臺中市政府環境保護局在臺中市各區輪流設置臨時檢驗站，並發函通知遭檢舉的車主前往進行機車排氣的不透光率檢測，共檢測 543 輛遭檢舉的車輛。

3.1 檢測車輛之不透光率分布探討

圖6是單一輛機車在檢測過程的不透光率紀錄，從圖中可以看到剛啟動後，二行程機車的不透光率從0%開始逐漸上升，第一次加速時，不透光率可高達100%，顯示此時有非常濃的青白煙從排氣管排出。油門放開後，不透光率下降為60%，第二次加油門，不透光率又上升至95%，然後又隨著油門關閉而下降。這樣反覆加速減速共15次，可明顯看出15個不透光率的峰值。而這15個峰值的數值也由剛開始的100%逐漸降為30%，然後又上升至60%。整個測試時間為420秒，測試結果則是取後五次檢測的最高不透光率的平均值作為該車輛的檢測結果。以圖6所示的不透光率變化來看，該車的檢測值為45.4%，最大值62.0%，最小值31.0%，標準偏差11.1%。

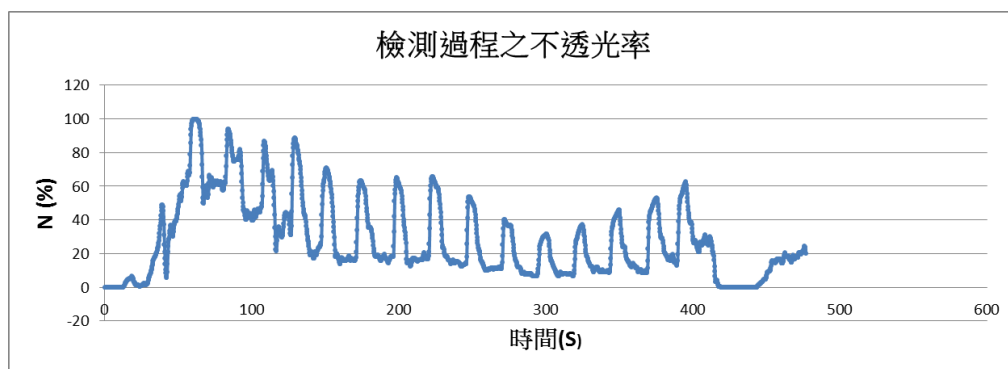


圖6檢驗過程的不透光率

本研究共進行543輛機車的不透光率檢測，其中平均不透光率低於30%的車輛共389輛，測試合格率為71.6%，平均不透光率為21.5%。圖7為檢測結果的累進百分率圖，從圖中可以發現在低不透光率的範圍內，車輛數目累積的相當地快速，顯示大部分機車的排煙情況都良好，超過30%以後的累進率漸漸趨緩，60%以上的累進率變化更緩，顯示正污染嚴重的車輛並不多。

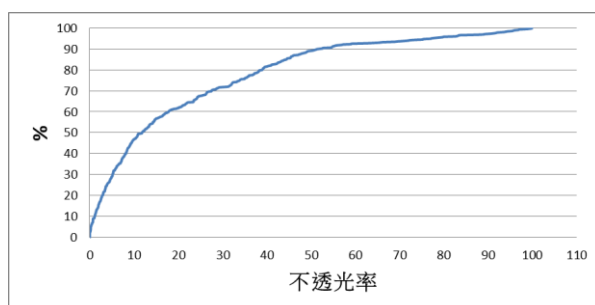


圖7檢測機車不透光率累進百分率圖

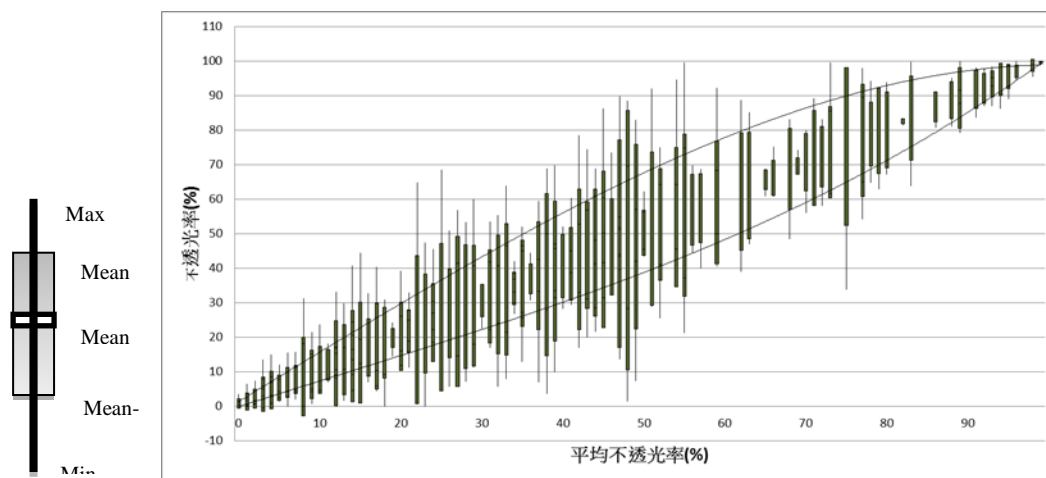


圖8 機車不透光率檢測值的變異

本文並利用五筆數據中峰值的最大值(Max)、最小值(Min)、平均值減標準差與平均值加標準差繪成盒鬚圖，如圖8所示。其中橫軸代表平均不透光率，縱軸代表不透光率的變異。觀察圖中趨勢可發現，不透光率的變異呈現紡錘狀分布，平均不透光率低於20%的數據都很集中，變異範圍小，表示乾淨的車輛都很穩定，這是車況相對較好，所以檢測經過較穩定，每一次的不透光率測值都很低。而平均不透光率高於70%的數據也很集中，變異範圍也很小，表示污染嚴重的車輛也都很穩定，這是因為部分零件損壞，機由泵調整不當，或排氣管內積油很多，導致白煙過多，每一次的不透光率測值都很高。至於平均不透光率在20%~70%的數據則變異範圍較大，最大值與最小值差異大，代表機車的機油供應狀況不穩定，進入燃燒室的機油數量有時候多，有時候少，或是燃燒的情況不穩定，有時候有燃燒，有時候沒有燃燒，以致排出的機油變化大。

3.2 不透光率與氣狀污染物之相關性

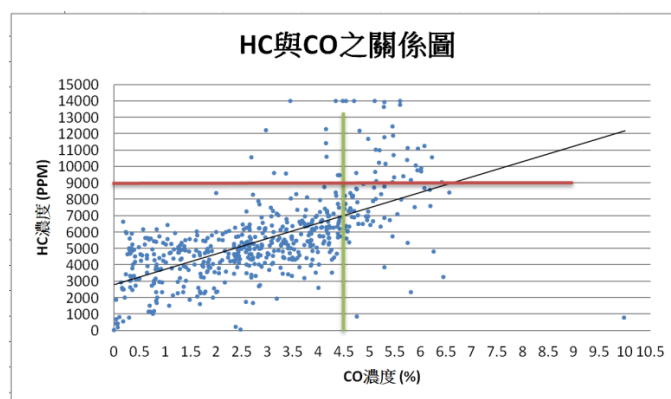


圖9 二行程機車排放 HC 與 CO 檢測結果

本研究所進行的543輛機車檢測，除了排氣不透光率檢測外，也同時執行氣狀污染物檢測，包括CO，HC，與CO₂三種氣體的濃度。所使用的儀器為Horiba 441GE排氣分析儀。圖9為檢測結果，其中紅線及綠線分別為三期機車氣狀污染物的排放標準，為CO \leq 4.5%；HC \leq 9000PPM。從圖中可以看到HC的不合格率有8.5%，CO的不合格率有17.1%，而HC與CO都不合格的比率則為6.3%。與不透光率比較，HC與CO的不合格率均較低，顯示這些被檢舉的機車主要都是因為青白煙的問題，而不是氣狀污染物的問題。另外，由圖可看出HC與CO的濃度呈正向相關，也就是HC濃度高的機車其CO濃度也高。

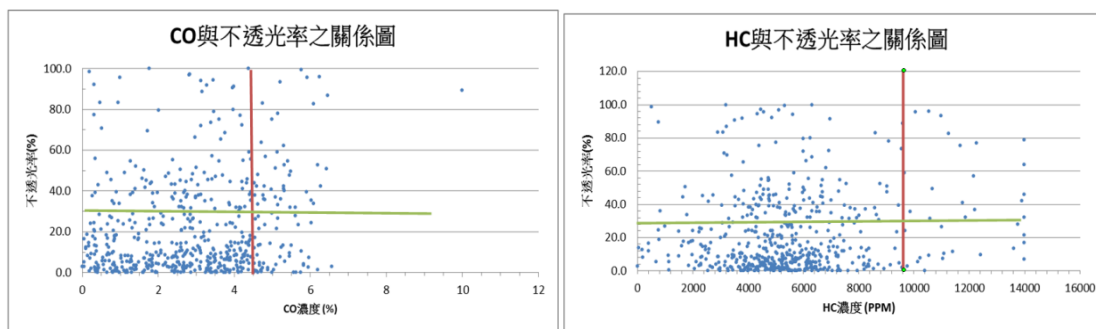


圖 10 排放 HC 濃度與不透光率關係圖 圖 11 排放 CO 濃度與不透光率關係圖

圖10所示為HC與不透光率之關係，可以看到HC和不透光率的相關性相當薄弱，在各種不同的HC都有可能出現相同的不透光率。本研究所檢測的543輛機車中，HC不合格但是不透光率合格的機車有21輛，HC合格但是不透光率不合格的機車有129輛，HC與不透光率都不合格的機車有25輛，HC與不透光率都合格的機車有368輛。故很難由HC的排放濃度來預測其不透光率是不合格。圖11所示為CO與不透光率之關係，可以看到CO和不透光率的相關性也是相當薄弱，在各種不同的CO下都有可能出現相同的不透光率。本研究所檢測的543輛機車中，CO不合格但是不透光率合格的機車有111輛，CO合格但是不透光率不合格的機車有50輛，CO與不透光率都不合格的機車有43輛，CO與不透光率都合格的機車有339輛。

表1所示為HC檢測與不透光率檢測以及CO檢測與不透光率檢測的關係。若兩種檢測都合格或都不合格，則兩種檢測的結果一致。若兩種檢測有一種合格而另一種不合格，則兩種檢測的結果不一致。由表可看出HC與不透光率不一致的比例為27.7%，CO與不透光率不一致的比例為29.6%，從這個現象也可以解釋為何於以往有部分的二行程機車會出現CO、HC檢驗合格，卻因持續有青白煙排放的狀況，而遭重複檢舉的問題。

表1氣狀污染物與不透光率兩者合格率之關係

		HC		CO	
		合格	不合格	合格	不合格
不透光率	合格	0.678	0.039	0.624	0.204
	不合格	0.238	0.046	0.092	0.079

3.3 二行程機車改善粒狀污染物成效之討論

在本次不透光率檢測過程中，因為國內少有不透光率的檢測，故有不少的車主為了避免可能遭到罰鍰，選擇先行到車行維修，或自行調整等方式來改善車輛的白煙情形。本研究透過問卷調查的方式來統計車主們進行的各種不同的維修項目，並透過這份資料分析比較不同的維修對二行程機車不透光率的改善程度，整理出能有效改善不透光率的方法。

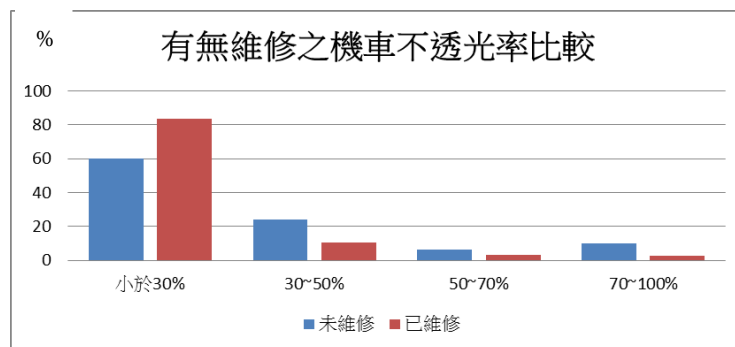


圖12 有無維修之機車不透光率比較

本研究所檢測的543輛機車中，有277輛機車的車主事先到車行維修，佔全部檢測車輛的51%。圖12為有無維修之二行程機車不透光率比較，經過維修後的機車在粒狀污染物檢驗中合格率为83.8%遠高於未經維修機車的59.9%，而未經維修機車的不透光率平均值為27.8%也高於經維修機車的不透光率平均值14.9%，顯示維修確實能改善二行程機車的白煙排放。

二行程機車產生白煙的因素有很多，除了設計本身引擎設計上的原因之外，多以零件老舊損換或積碳為主，容易造成二行程機車暖車後依然有很高的粒狀污染物的原因有以下四點：

空氣濾清器積碳髒污或劣化破損而降低過濾之效率。

(二) 因長期黏附機油與積碳，導致汽油燃燒排放時產生青白煙，需更換排氣管。

(三) 幫浦內軸油封硬化導致過多的機油進到曲軸室導致供油過多。

(四) 汽缸壓縮比差，導致燃燒不完全產生青白煙。

本文統計民眾將機車送去車行維修保養或汰換掉老舊零件等維修項目次數將其整理如下圖所示：

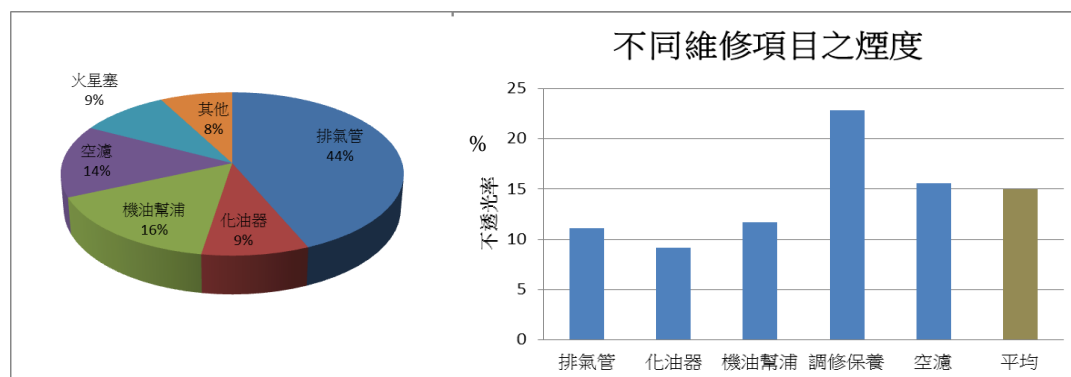


圖13不同維修項目對不透光率之影響

上圖13中可得知民眾針對粒狀污染物所做的改善中，更換排氣管的比率最高有四成四，再來是機油幫浦一成六及空氣過濾器一成四，最低的是更換機油或是添加機油精等項目，在成效方面有更換過排氣管後的車輛其平均的不透光率為11.1%，機油幫浦為11.7%而空氣過濾器略高為15.6%，而只做簡單的保養調修其平均的不透光率高達22.9%，遠高於有做過維修車輛平均煙度的15%，在有維修過卻不合格43臺車中，有30臺機車只經過手動調整（調整機油幫浦的流量等）或更換機油等維修，可以得知更換排氣管、機油幫浦等老舊零件對二行程機車的不透光率有較明顯的改善，一般的調整則成效不大。

4 機車白煙管制建議

在2012年臺中市一共有85661輛車遭民眾檢舉，其中有77618輛為二行程機車，占全部遭到檢舉機車數量的91%。而臺中市二行程機車約有38萬輛，只佔機車總數22%。除此之外，有30517輛二行程機車曾被民眾多次檢舉，占全部遭檢舉的二行程機車中的57.4%，顯示部分二行程機車排放惱人的青白煙，不斷地遭到民眾檢舉，卻依然能夠在路上行駛。

這些遭檢舉的二行程機車有10400輛前往定檢站進行檢測，由於一般定檢站只能執行氣狀污染物(CO與HC)檢測，無法執行不透光率檢測，其中不合格的車輛只有387輛，不合格率為3.7%。而本研究通知其中543輛遭重複檢舉的二行程機車前來進行不透光率檢測，其中有154輛不合格，不合格率為28.4%，顯示不透光率檢測才能真正找出高污染的烏賊車。

被通知檢測的民眾有51%進行事先調修，本研究發現維修過的車輛確實不合格率較低，平均不透光率也較低，顯示維修有效果。故未來針對遭民眾檢舉的二行程機車，執行不透光率檢測會比執行氣狀污染物檢測更有效。同時要求被檢舉的二行程機車應事先調修，則效果更顯著。如此才可以有效地將這些車輛篩選出來，並加以改善或淘汰，能有效降低道路上惱人白煙的比例，提升民眾的生活品質。

5 結論

臺中市測試車輛數共543輛，其中不透光率低於30%的車輛共389輛，測試合格率为71.6%。不透光率變異呈現紡錘狀，在高不透光率與低不透光率的數值較穩定，而在中間部分變動則較大。

氣狀污染物(CO及HC)和不透光率的相關性都相當低，顯示目前只量測氣狀污染物的檢測方式對改善粒狀污染並無明顯的幫助。

維修或更換堆積碳粒的零件對不透光率有明顯的改善。

未來針對遭民眾檢舉的二行程機車，執行不透光率檢測較有效。同時要求被檢舉的二行程機車事先調修，則效果更顯著。

參考文獻：

- [1] Sakai, T., (1999), "O-PM / Emitted Matters Caused by Two-Stroke Engine Oil and Its Reduction", JSAE 9938015.
- [2] 洪榮芳, 盧昭暉, (2001), "二行程機車引擎藍白煙排放特性研究", 第十屆燃燒應用科技研討會。
- [3] Patschull, J., and P. Roth, (1995), "Measurement and Reduction of Particles Emitted from A Two-Stroke Engine", J. Aerosol Sci, Vol.26, No.6, p.979-987.
- [4] 林仁智等, (2000), "利用引擎動力計進行機車排氣特性建立之研究", 第十七屆空氣污染控制技術研討會。
- [5] Carroll, J. N., etc., (2000), "Characterization of Snowmobile Particulate Emissions", SAE Paper 2000-01-2003.
- [6] Mineo Kagaya, and Mitsuaki Ishimaru, (1988), "A New Challenge for High Performance Two-Cycle Engine Oils", SAE Paper 881619.
- [7] 陳重修、張蕙珍、朱若君、陳世偉, (2011), "機車煙度檢測探討分析", 區域與環境資源永續發展研討會, 臺灣環境資源永續發展協會, 2011 年

臺中市清潔隊柴油車輛加裝濾煙器試範運行成效探討

(劉邦裕¹，余忠賢²，游雲欽²，陳以松³，盧昭暉³)

1 臺中市政府環境保護局，臺中市，403

2 瑩諮科技股份有限公司，臺中市，407

3 國立中興大學機械工程研究所，臺中市，402

摘要：清潔隊柴油車輛是指垃圾車與資源回收車，這些車輛每天在大街小巷中穿梭往返，負責收集市民所產生的生活垃圾，集中載運至焚化廠處理。由於這些車輛每天都與民眾進行近距離的接觸，其污染排放對民眾的健康影響非常大。臺中市政府環境保護局為減少垃圾車的排煙污染，已擬定計畫，針對污染嚴重的車輛加裝濾煙器。本研究即是進行此做法的成效評估，以引擎動力計檢測及車輛排煙檢測兩種方式進行。

引擎動力計檢測是以一具 6000c. c. 的重型柴油引擎進行，依據五種不同的轉速與負載組合，比較加裝濾煙器後的粒狀污染物排放量以及排氣中的不透光率變化，測試結果發現粒狀污染物排放量可達到 80% 的減量效果，而不透光率則由 30% 降為 2%。

車輛排煙檢測是在臺中市柴油車動力站進行，以全負載定轉速及無負載急加速測試來進行檢測，量測排氣中的黑煙污染度，同時量測後軸輸出馬力。測試結果顯示，加裝濾煙器後煙度可減量 90%。但隨著濾煙器使用時數增加，效率會逐漸下降。馬力測試結果顯示安裝濾煙器後，後輪輸出馬力無明顯差異。但在排氣量較大的車輛，持續使用車輛馬力呈現下降趨勢。

但因使用者須在使用一段期間後將濾煙器再生，否則會影響車輛性能，造成使用者負擔，進而降低使用意願。故如何降低再生的不便利性，是未來推廣濾煙器的關鍵。

關鍵字：柴油車，濾煙器，再生技術，黑煙污染度。

1 前言

柴油引擎功率大，且具省油、高扭力及高經濟性等優點，長久以來被廣泛的應用於農業機械、交通運輸、工業機械作為動力。由於柴油成分與其在引擎汽缸內燃燒特性的關係，所排放粒狀污染物（PM）、氮氧化合物（NO_x）、一氧化碳（CO）及碳氫化合物（HC）等危害環境之空氣污染物卻明顯高於汽油引擎。近年來相關研究指出，柴油車所排放的微粒是造成空氣品質日益惡化主因之一，亦有導致呼吸道病變及癌症增加之虞。改善柴油引擎排放污染的方法，一開始著重於設計引擎適合的燃燒條件及控制運轉狀況，然而引擎發展已趨技術極限，遂逐漸開始透過後處理裝置來改善柴油引擎污染排放狀況。

為改善柴油車廢氣排放污染問題，行政院環境保護署參考歐美日等先進國家移動污染源管制策略，訂定廢氣排放標準及相關罰則。自 1987 至 2013 年已訂定一至五期黑煙排放標準，係依據 CNS 9845「柴油車排氣煙度測定用反射式煙度計（柴油汽車排氣煙度試驗方法及程序）」執行黑煙污染度（%）

檢測。現今最新柴油車五期（2012 年 1 月 1 日以後出廠者）黑煙污染度排放標準為 20%。為有效改善臺中市老舊柴油清潔隊車輛黑煙污染度排放情形，自 2009 年起率先將濾煙器加裝於老舊的清潔隊柴油車輛，迄今已連續執行濾煙器安裝及相關維護工作近四年有餘，為全臺灣唯一長期推廣與實際示範運行的縣市。

老舊柴油車在排氣處加裝濾煙器可有效捕集約 85% 的微粒，但是因為微粒被捕集而累積在濾煙器上，長時間堆積會造成引擎排氣背壓增加，引擎馬力輸出降低，甚至造成引擎過熱現象。此種情形必須藉由濾煙器之再生，將附著在濾煙器上的微粒以燃燒的方式去除，稱之為濾煙器再生（Regeneration）。而濾煙器再生溫度（微粒的點燃溫度）約 500 至 600℃ 為最佳。因此必須定期地除去粒狀物，使濾煙器恢復到原來的工作狀況。

柴油車輛加裝濾煙器的效果過去已有相當多文獻，黃景良曾探討濾煙器對柴油車排放空氣污染物之影響，該研究比較六部裝設濾煙器的垃圾清潔車輛，發現測試車輛使用 DPF 後，黑煙、CO、HC、及 NO 較未裝設 DPF 前分別降低 85.8%、75.0% 及 80.9%。PAHs 排放也降低 83%，達到約 100 g/m³ 的水準[1]。黃慶祥等人則評估將濾煙器加裝於柴油農業機械的效果，發現當農用曳引機以每小時 2.8 及 3.4 公里的速度進行田間作業時濾煙器沒有發生阻塞的問題，不須使用再生裝置，但濾煙效率較低[2]，同時也發現裝配觸媒濾煙器可有效降低排煙，其濾煙效果在 70% 以上[3]。

由於濾煙器再生處理的有效性為影響後續濾煙器使用效果的主要因素之一，張耀升等人曾設計半球型擴散器裝置在濾煙器中，改善過去柴油車廢氣排放碳粒無法均勻分佈在濾煙器裡的情況，讓碳粒均勻分佈在濾煙器中，可使濾煙器再生燃燒完整，提高濾煙器整體的使用效果[4]。莊志偉等人曾將國產之觸媒濾煙器加裝於重型柴油引擎及公車上，發現引擎馬力輸出雖略有變動，但影響程度約在 3% 以內。而加裝觸媒濾煙器對 THC 及 CO 之污染排放均有顯著之抑制效果，且在引擎重負載運轉條件下效果較為顯著；另外觸媒濾煙器的轉化效率會隨著溫度而變化，如能將排氣溫度控制於 350℃ 以上，將有助觸媒濾煙器發揮較佳除污性能。在實車測試方面，莊志偉等人發現經過 10,000 公里耐久之觸媒濾煙器，與加裝前之性能比較其效果只剩下 50%。實驗證實引擎排氣溫度與再生溫度時間長短為影響濾煙器內部碳粒去除主要因素。由於燃燒時間不足造成碳粒累積數量逐漸增加，毒化物質覆蓋觸媒表面，濾煙器漸失去原有之功效[5]。Tsuneyoshi 及 Yamamoto 等人的研究中顯示濾煙器內部的再生溫度若低於 510℃ 時再生效率會低於 5%，當再生溫度為 550℃ 時則有 20% 之再生效率，若當溫度高至 590℃，此時之在生效能會達到 90%。也就是說碳粒清除過程中可能只有濾煙器表面碳粒被清除，而濾煙器內部深層所累積的碳粒因再生溫度不足而無法被清除，使得再生效率偏低[6]。

本文主要目的為探討臺中市政府環境保護局清潔隊柴油車輛加裝濾煙器試範運行的成效，針對車輛在濾煙器安裝前、安裝後及持續使用時之全負載 100%、60% 及 40% 黑煙排放污染度與馬力比分布情形進行探討。

2. 引擎動力計測試實驗

本研究使用 Hino 公司所生產的 W06E 柴油引擎進行測試，透過實際引擎運轉所排放的碳粒以及搭配濾煙器 (DPF) 進行再生試驗，以作為實車試驗之前導測試，各項實驗設備規格說明如下：

日野(HINO)公司所生產的 W06E 柴油引擎為一期管制標準之重型柴油引擎，屬自然進氣式六缸直列引擎，排氣量 6014 c. c.，最大馬力 165 ps，其規格如表 1 所示。在進行污染及再生實驗測試時是採用德國 SCHENCK W230 渦電流式引擎動力計，型式及規格如表 2 所示，最大吸收馬力 230 kW，最高轉速 7500 rpm，可有效吸收測試引擎的馬力，以使引擎執行穩態測試程序。

表 1 引擎規格

項目	規格	
引擎廠牌	Hino	
引擎型式	W06E	
氣缸體型態	直列六缸	
循環數	4 行程	
進氣方式	自然進氣	
總排氣量	6014 c.c.	
最大額定馬力	165 Ps @ 3000 rpm	
最大額定扭力	42 kg · m @ 1800 rpm	

表 2 引擎動力計規格

渦電流式馬力試驗機				
名 稱	規 格	名 稱	規 格	
製造廠商	SCHENCK	最大轉速	7500 rpm	
動力計型式	W230	最大吸收馬力	230 kW	
淨重	472 kg	最大扭力		

2.1 引擎測試之操作條件

本研究所採用的引擎測試方式為穩態測試，測試程序參考歐盟穩態測試(ESC)的規定，如圖 1 所示，ESC 13 Mode 是以 3 種不同引擎轉速，4 種不同引擎負載，共 12 種不同操作狀況，再加上怠速來進行測試，其中 3 種轉速的計算方式如下：

$$A = n_{10} + 0.25(n_{hi} - n_{10})$$

$$B = n_{10} + 0.50(n_{hi} - n_{10})$$

$$C = n_{10} + 0.75(n_{hi} - n_{10})$$

其中 n_{hi} 為最大馬力轉速的 70%， n_{10} 為最大馬力轉速的 50%。由於本計畫所使用引擎的最大馬力轉速為 3000 rpm，依據此定義可獲得 n_{hi} 為 2100 rpm， n_{10} 為 1500 rpm，而 A，B，與 C 之轉速分別為 1650 rpm，1800rpm，與 1950rpm。

13 Mode 的測試程序是在這三種轉速下再區分成 25 %，50 %，75 %，與 100 %等四種負載，共有 12 種轉速與負載組合，再加上在怠速上進行測試，共有 13 個測試點。

本研究共挑選 5 個操作條件執行採樣分析，分別為 Mode1(idle)，Mode2(1650rpm, 360Nm)，Mode7(1650rpm, 90Nm)，Mode10(1950rpm, 360Nm)與 Mode11(1950rpm, 96.2Nm)。其中 Mode1 為怠速，是 ESC 所有測試點中權重最高的一點、Mode2 為低轉速，高負載的測試點、Mode7 為低轉速，低負載的測試點、Mode10 為高轉速，高負載的測試點、Mode11 為高轉速，低負載的測試點。挑選這 5 個操作點的目的是比較轉速與負載個別參數對微粒污染排放的影響。Mode2 與 Mode7 的轉速相同，但負載不一樣，可進行負載的影響比較。Mode7 與 Mode11 的負載相同，但轉速不一樣，可進行轉速的影響比較。

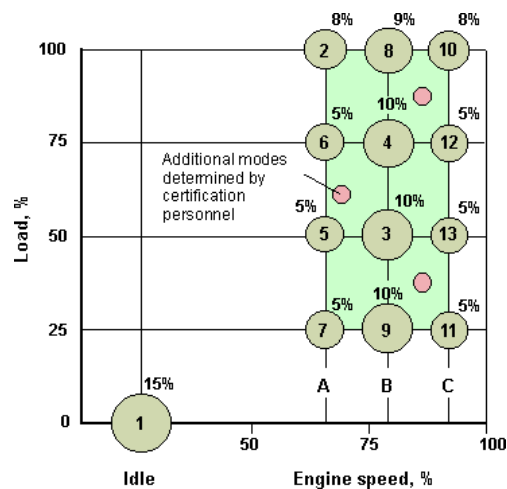


圖 1 13 Mode 測試程序

2.2 不透光率與微粒質量濃度分析

不透光率(opacity)分析是使用 MA-200A 光學式煙度計來測量，該煙度計係利用廢氣中之碳微粒吸收光之特性來量測排煙濃度，計量測光強度之光電管 (Photocell) 輸出，與光強度衰減程度成正比，通常以百分率表示，一般稱為不透光率(%)，其值愈大，表示排煙濃度愈高。採樣系統示意圖如圖 2 所示

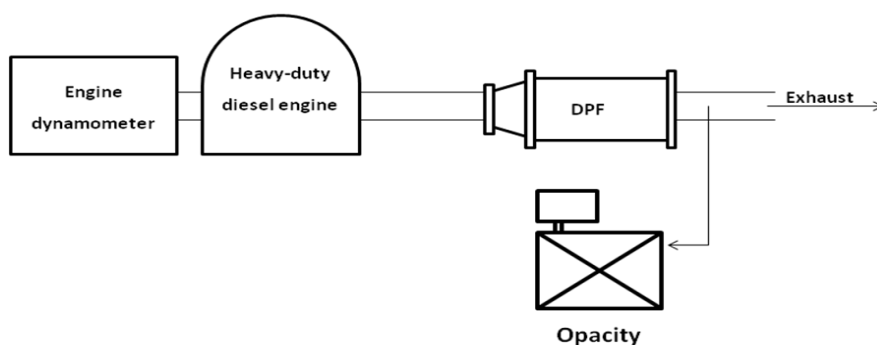


圖 2 微粒不透光率分析實驗裝置和採樣系統示意圖

微粒質量濃度的污染排放量分析是由該測試點的污染排放濃度，引擎排氣流量，及輸出馬力計算而得。由於粒狀污染物的量測不可直接從排氣管直接採樣，故需進行外加稀釋。本研究採樣所使用的稀釋系統為連續式高流量之稀釋系統，其稀釋比例為 1:20；該稀釋系統如圖 3 所示，稀釋系統從排氣管抽引 2.5L/min 之引擎廢氣，並利用空壓機提供 47.5L/min 之乾淨空氣與引擎廢氣混合並除去尾氣高溫高濕之影響。

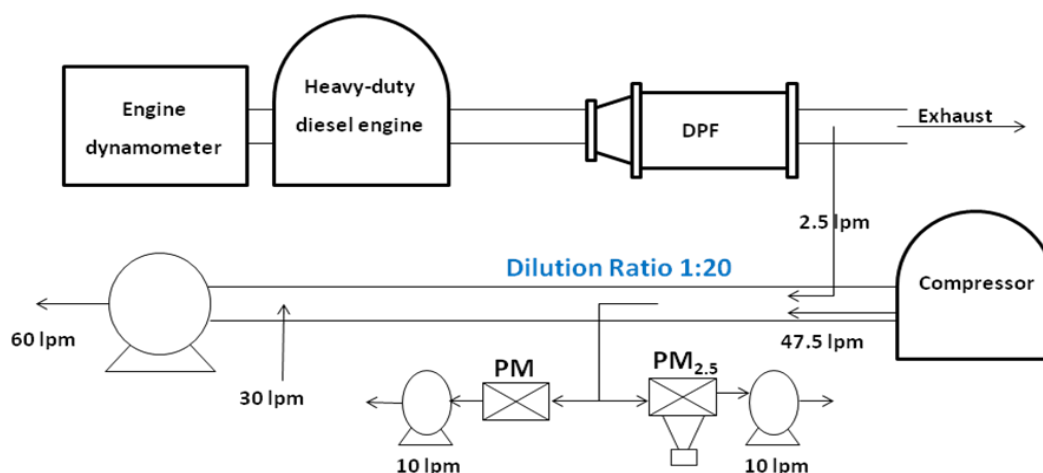


圖 3 粒狀污染物採樣系統

2.3 濾煙器再生系統

本研究為驗證後處理器之工作能效及配合車上直接進行再生作業，因此將車上之再生系統於引擎動力實驗室進行前導性試驗，以做為實車試驗之比較參照。

再生過程是利用高溫的排氣將堆積在濾煙器內的碳粒氧化，由於碳粒的氧化溫度高，通常必須將排氣溫度提高到 $500^{\circ}\text{C} \sim 600^{\circ}\text{C}$ [7]，再生過程才能展開。但一般柴油引擎的排氣溫度都不高，無法達到再生所需的溫度，故必須在排氣進入濾煙器前，先以外加燃料來加熱排氣以獲得燒除碳粒之能量。圖 4 為本研究所使用之再生系統，該再生系統的再生方式係利用高壓油泵將油箱中之汽油透過噴嘴霧化噴入燃燒室中，並使用高壓點火裝置將油氣點燃，利用此燃燒所產生的熱量來加熱排氣。排氣溫度提高後，再流入濾煙器，繼續與濾煙器內堆積的碳粒反應，將碳粒氧化移除。

再生系統效能驗證方式是比較濾煙器再生前與再生後碳粒的清除效率，透過實際量測濾煙器重量、觀察表面碳粒清除面積以及再生後系統濾煙效能是否衰減之方式來判斷再生系統的效能好壞。濾煙器再生效果的好壞除了溫度是否達到再生要求外，若再生系統中擴散器對濾煙器的擴散效果不佳時，除了碳粒無法均勻分布在濾煙器上，再生時更無法將碳粒燃燒乾淨，甚至導致濾煙器局部過載使得在再生時容易讓濾煙器燒毀損壞而失去濾煙功能。再生效率的計算方式如式 1 所示。其中 M_0 為再生前濾煙器重量(g)， M_1 為再生後濾煙器重量(g)。

$$\text{再生效率 \%} = \frac{M_1}{M_0} \dots\dots\dots (1)$$

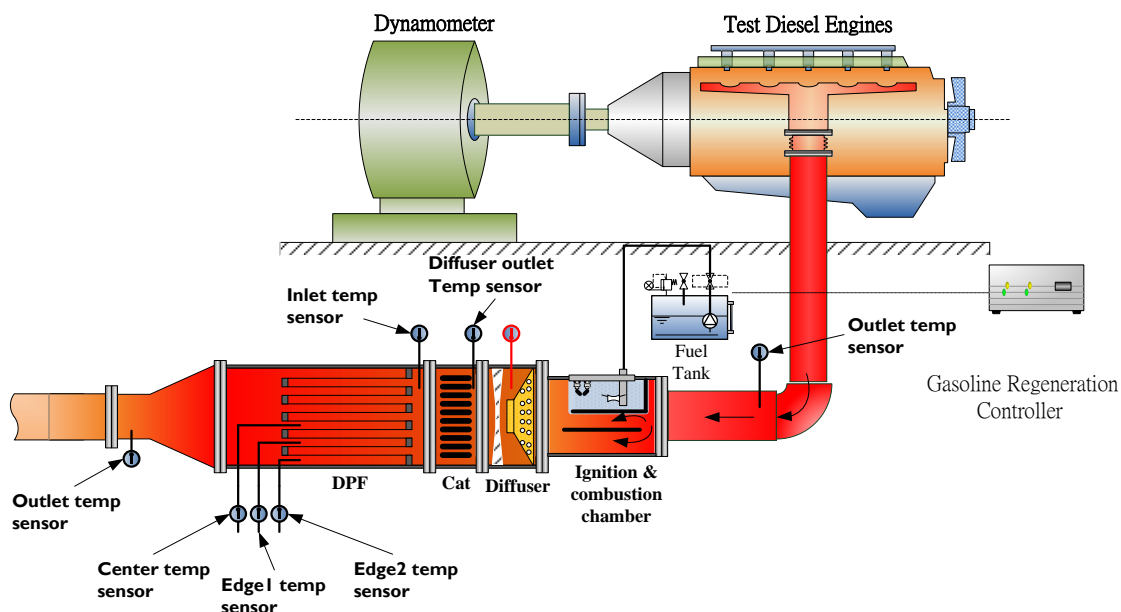


圖 4 汽油再生系統

3車體動力計實車排煙檢測

經由 2009 年統計臺中市垃圾清潔車共計有 318 輛，其中以 1993 年 7 月至 2006 年 10 月間柴油車輛比例較高，佔動力柴油垃圾車整體比率 70%，本研究選取 34 輛出產於 2002 年至 2005 年期間柴油車輛，於排氣管末端裝設濾煙器，如圖 5 所示。因車輛汰舊報廢，故 2013 年所剩實際示範運行車輛剩 12 輛，煙度標準為 35%，其排氣量範圍 4000c. c. ~8000c. c. 。



圖 5 加裝濾煙器情形

車輛裝設濾煙器前與裝設後，依據環保署公告之「柴油汽車排氣煙度試驗方法及程序」進行全負載定轉速及無負載急加速排氣煙度試驗法，分別測試 3 回取平均值後，比較安裝前與安裝濾煙器後馬力與煙度差異。圖 6 所示即為柴油車進行排煙檢測的實況。

全負載定轉速測試方法說明如下：檢測柴油車輛在車體動力計上依車廠規定之方式暖車至正常引擎工作溫度後，利用煙度計開始進行煙度試驗。將油門踏板踩到底，依照引擎最大額定馬力之轉速，測試當轉速為 100%、60% 及 40% 的操作條件，分別模擬在平面路面、稍有坡度路面以及坡度較險峻路面狀況。調整動力計負載以達到設定轉速，每一試驗點連續取樣至相鄰兩次記錄之煙度值相差不超過 3%（污染度）為止。記錄各試驗點之車體動力計吸收馬力。若柴油車輛檢驗時，檢測車輛在車體動力計上於 100%最大額定馬力轉速之試驗點，其實測馬力不得低於最大額馬力之 35%，以防止檢測車輛刻意調小馬力降低煙度。



圖 6 全負載檢測執行情形

3 結果與討論

3.1 引擎動力計結果

圖 7 所示為不透光率檢測結果，由圖可看出不透光率皆隨著轉速與扭力的增加而增高，其中以扭力增加所導致的增量最為顯著。因為在全負載時，氣缸內會噴入更多的燃油來燃燒，不完全燃燒比例增加，因此黑煙明顯的增加。在 Mode2 (1650rpm, 360Nm) 的操作條件下，排氣不透光率可高達 30%，此時目視都可以看出明顯黑煙。但加裝濾煙器後在所有引擎操作條件下，黑煙的排放均明顯的降低，全部排氣不透光率都低於 3%，即使在 Mode2 的操作條件下，目視也無法看到任何黑煙。其減量效率在四種操作條件下，分別為 100 %、85.7 %、90.3%、93.5%。因此加裝濾煙器 (DPF) 後對不透光率皆有 85%以上的降低效果。Tente 等人在 Portugal 進行柴油車的實車測試，發現使用濾煙器對對於不透光率之降低效率可高達 92%[8]，與本研究所獲得的結果很接近。

引擎排放 $PM_{2.5}$ 微粒質量濃度與減量效率結果如圖 8 所示，於怠速、低轉速、高轉速與全負載之質量濃度分別為 $45mg/m^3$ 、 $70 mg/m^3$ 、 $95 mg/m^3$ 、 $107 mg/m^3$ 與 $143 mg/m^3$ 。在質量濃度的部分，在相同負載下可看出由低轉速到高轉速有明顯的上升，引擎為了維持相同負載，轉速變大會增加燃油消耗量，

因此有更多的燃油燃燒產生黑煙；接著在不同負載相同轉速下，可看出質量濃度會因負載的增加而上升，其負載的提升與微粒的排放有相關連性。

加裝尾氣後處理設備濾煙器後，微粒質量濃度都低於 $40\text{mg}/\text{m}^3$ 。於怠速、低轉速、高轉速與全負載之減量效率分別為 86.6 %、78.5 %、88.4%、79.4 %與 74.1%。若各測試條件的權重都相同，則微粒質量平均削減率為 81.4%，若以圖 1 所示 13 Mode 測試程序中各測試點的權重來計算，則微粒質量平均削減率為 82.0%。故加裝濾煙器後，使引擎於不同操作條件下，對於尾氣排放 $\text{PM}_{2.5}$ 微粒質量皆有 80 %以上的減量效果。

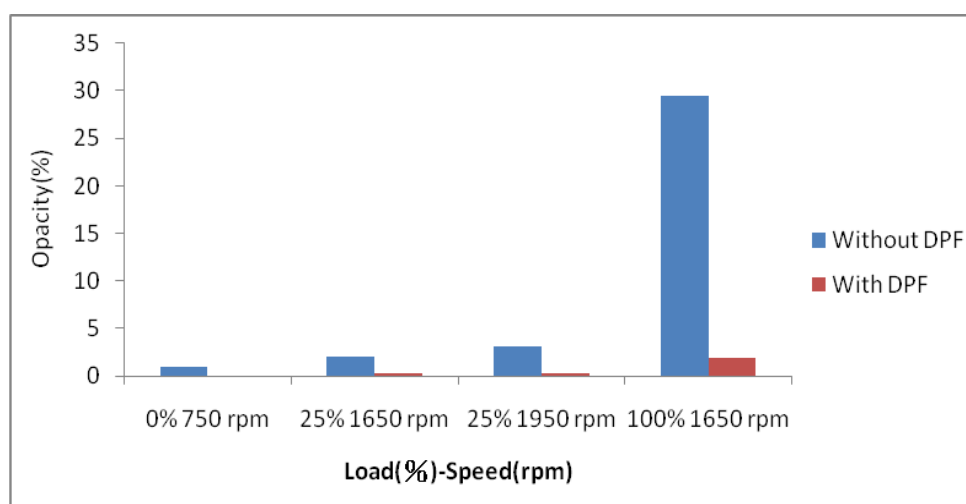


圖 7 加裝濾煙器對排氣不透光率的影響

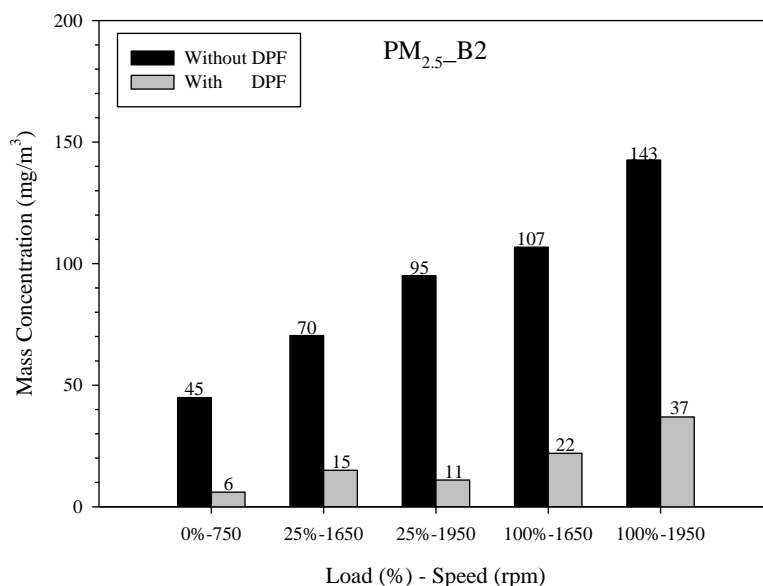


圖 8 加裝濾煙器的 $\text{PM}_{2.5}$ 濃度與減量效果

粒狀物質量濃度量測所使用的單位為單位體積的重量 (mg/m^3)，但真正要評估改善的成效，則必須轉換為單位輸出功的排放量 ($\text{g}/\text{bhp}\cdot\text{hr}$)，才能與法規排放標準做比較。已知引擎排氣量與引

擎運轉轉速，及各污染物的濃度，即可進行轉換如何進行。經過轉換的 $PM_{2.5}$ 排放係數與減量效率結果如圖 9 所示，其中 Mode1 為怠速，引擎沒有輸出馬力，故無法轉換成單位輸出功的排放量，其他四種運轉條件的排放量約為 0.7~2.0 g/bhp-hr，高於二期車(1993 年)的排放標準 0.7 g/bhp-hr。由圖 9 可看出，雖然單位體積的重量在相同轉速下會因負載的增加而上升，但轉換成單位輸出功的排放量，其排放量下會因負載的增加而下降，主要原因歸於隨著負載的增加，馬力也跟著變大，燃燒溫度也隨之增加，因此微粒的排放降低。至於相同負載下，不同轉速的影響則仍有上升的趨勢。加裝濾煙器後，粒狀物的排放量降為 0.15~0.3 g/bhp-hr，平均減量效果為 82%，其中在 mode11 的減量效率最高，達到 88%；在其它模式下，也都有 70%以上之減量效果。

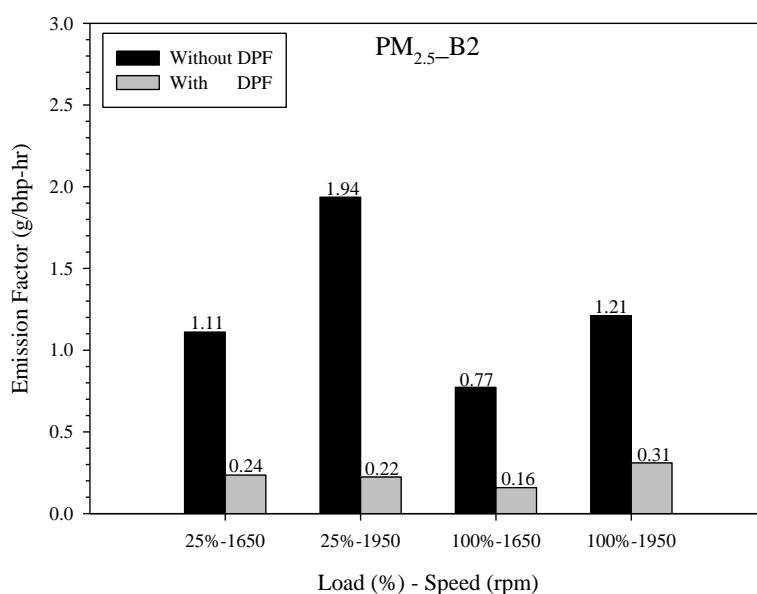


圖 9 加裝濾煙器的 $PM_{2.5}$ 排放係數與減量效果

3.2 實車測試結果

實車測試主要關注的重點有四項，分別為污染減量效果，馬力減損程度，使用耐久性，以及使用方便性。其中污染減量效果與馬力減損程度是在柴油車動力站上進行安裝前與安裝後的比較，而使用耐久性與使用方便性的評估則是進行長期的比較，平均來說，每台柴油車輛安裝濾煙器後約行駛 20,103 公里。

污染度與馬力比

在全負載定轉速測試中，濾煙器設置與否與黑煙污染度關係如圖 10 至圖 13 所示。這是四個測試點的結果，再依排氣量分為六個範圍。在全負載定轉速 100% 的測試點，安裝前平均污染度為 8.17%，使用濾煙器過濾後下降至 0.5%，減量約 93.9%，大大降低污染程度。7545 c.c 車輛安裝前平均污染度為 11.5%，加裝濾煙器後降為 0.75%。在全負載定轉速 60%，平均煙度為 5.17%，使用濾煙器過濾後下降至 0.5%，減量約 90.3%，以排氣量 3907 c.c 污染度最高為 8%，加裝濾煙器後平均污染度為 0.5%。全負載定轉速 40% 顯示，平均污染度為 10.33%，使用濾煙器過濾後下降至 0.42

％，減量約 95.9％，以排氣量 7545 c.c 污染度最高為 20.25％，使用濾煙器後下降至 0.75％。在無負載及加速測試中，無加裝濾煙器污染度約為 15.5％，加裝後污染度減少至 2.2％，約可減量 85.8％。

由示範運行結果顯示，濾煙器可有效降低粒狀污染物，減少人體健康危害及環境之重大傷害。但是持續一年以上使用濾煙器，其污染度會逐漸上升，雖然仍較安裝前低，但已高於剛安裝後的效果。推測可能因老舊車輛持續使用，粒狀污染物產生較多，以及濾煙器在每次行駛前、後未確實再生濾煙器原故，導致效能逐年下降。為確保濾煙器使用上功能正常，目前在安裝濾煙器清潔車輛每月有兩次的維護保養及再生濾煙器作業，同時進行濾煙器後續效能追蹤。

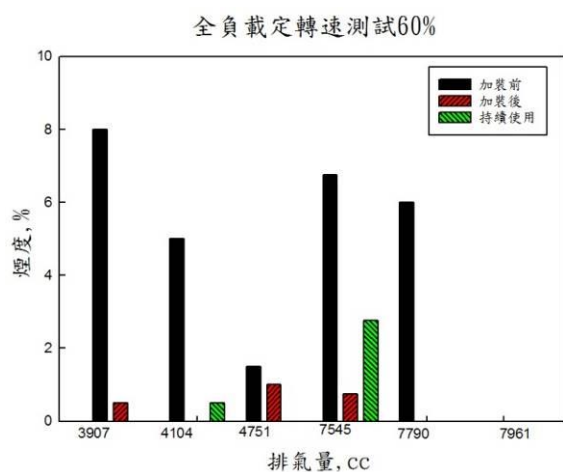
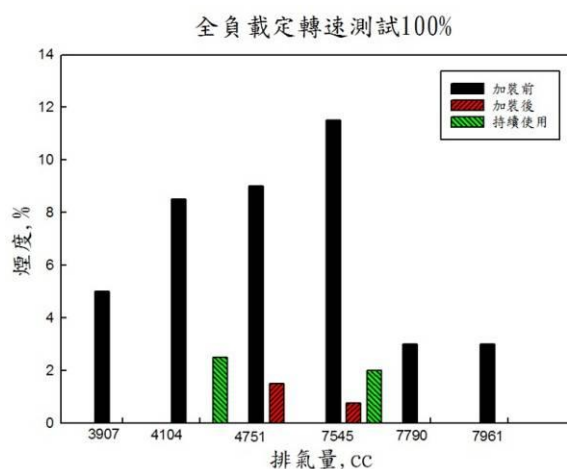


圖 10 全負載定轉速 100%測試

圖 11 全負載定轉速 60

%測試

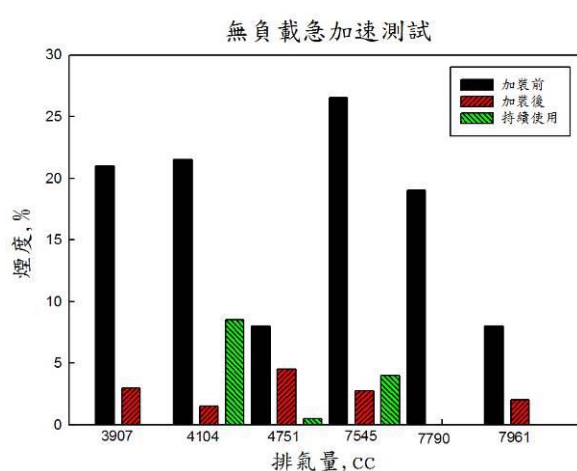
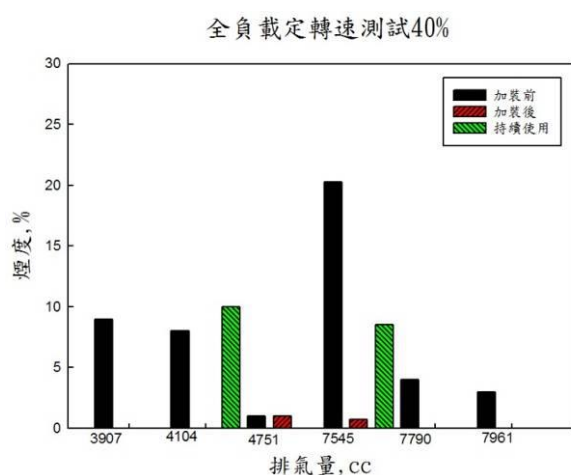


圖 12 全負載定轉速 40%測試

圖 13 無負載急加速測

試

安裝濾煙器之後是否會造成馬力減損，一直都是使用者最關心的議題。圖 14 所示為濾煙器安裝前後在臺中市柴油車動力站上進行後輪輸出馬力量測的結果比較，由圖可看出，剛安裝時，安裝前後馬力比較無明顯差異。但持續使用後，車輛馬力比呈現下降，可能為使用時數長，導致濾煙器效能下降，以及使用者維護保養習慣有關。理論上，當安裝濾煙器後，馬力會稍有下降，當本研究結果卻有數筆資料顯示上升，可能原因為垃圾清潔車於定期保養時，有調修部分元件，使車輛使用上較為順暢。

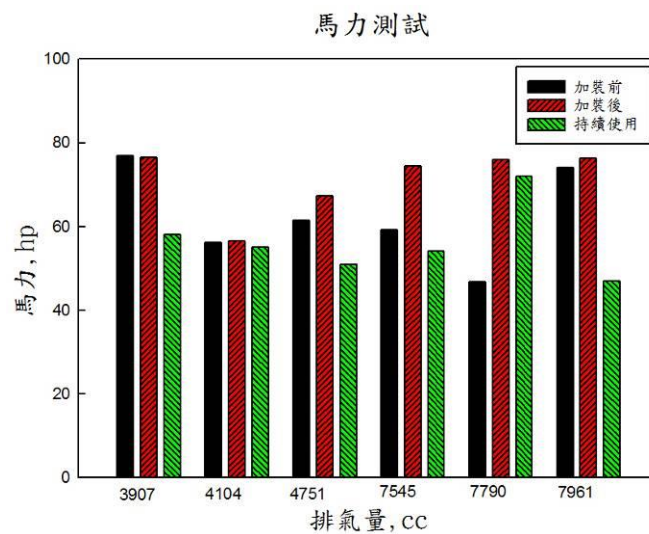


圖 14 馬力測試結果

車上再生情形

本研究將對車上之再生過程及車上再生運行期間之執行困難點予以討論，以作為日後可行性評估及執行上之參考。首先對車上再生過程之情況說明。車上之再生是以引擎怠速下進行再生，而本次測試碳粒之累積是經清潔隊車輛連續出勤一週後所累積，在再生前濾煙器經秤重後內部所累積之碳粒約 58.6g，由圖 15 可看出再生後邊緣部分並未清除乾淨，但經實際秤重後淨濾煙器內部一共燒除碳粒約 35.8g，內部殘留碳粒量約 22.8g，再生效率為 61%。



圖 15 再生後濾煙器表面情形

圖 16 所示為車上再生溫度變化，圖中橙色線為引擎怠速時之排氣溫度約 80℃，紅色線所示為汽油噴注燃燒後對濾煙器間歇性加熱之溫度變化從 200℃~1000℃左右並持續加熱 8 分鐘。綠色線所示在噴入汽油 20 秒後濾煙器入口溫度開始上升，到 300 秒左右溫度超過碳粒燃燒溫度約 550℃。紫色

線所示為濾煙器中心溫度在 510 秒至 650 秒，此段時間為碳粒開始大量燒除之時間，當中心溫度被加熱超過 550℃約在 510 秒左右碳粒開始燃燒，在 556 秒時達到碳粒最高之燃燒溫度 885℃。粉色線所示為濾煙器邊緣之溫度變化，其最高溫度只有 470℃左右，由此可說明濾煙器邊緣因溫度未到達碳粒燃燒溫度，使得濾煙器邊緣部分仍殘留有碳粒未清除之故。藍色線所示為濾煙器出口之溫度其溫度變化最高達 580℃，此溫度與濾煙器入口溫度比較相差約有 70℃之溫差主原因是因熱傳損失所影響。

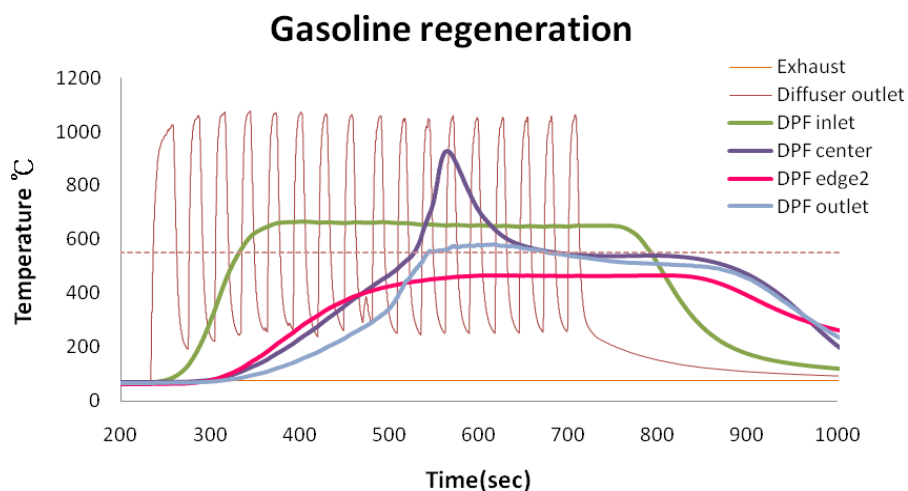


圖 16 車上再生溫度變化

由於本研究所測試的車上再生系統仍須由裝配在駕駛座中之控制器來提示駕駛員再生，因此經常因駕駛人員疏忽、車輛出勤調度等情況使得執行過程中遇到的幾個相關問題歸納如下：

加裝濾煙器之車輛每行駛八小時後須執行濾煙器再生，再生過程需耗時八分鐘，而再生系統所使用的燃料為汽油，因此在管理上增加了不便力性及使用者之使用意願。

濾煙器再生須額外再花費時間與再生燃料費，車上再生溫度需控制得宜，避免過高或過低，影響濾煙器品質與濾煙效果。

濾煙器使用後會額外增加燃料費（暖車燃料費用）。

車輛駕駛人員未依照再生作業規範定期再生，因而使濾煙器可能因粒狀污染物累積過多，造成排氣阻塞，馬力降低及產生二次污染等問題發生。

4 結論

臺中市垃圾清潔車選取 12 輛車輛加裝濾煙器，探討其煙度污染度、馬力比及推估污染排放量。以煙度而言，在全負載定轉速 100%、60% 及 40% 使用濾煙器過濾後平均減量效果約 90% 以上。在無負載急加速測試中，無加裝濾煙器煙度約為 15.5%，於加裝後濾煙器煙度減少至 2.2%，煙度約可減量 85.8%。

裝設濾煙器前後比較馬力比差異，發現馬力與安裝濾煙器與否相關性不大，但使用一段時間會有馬力下降的情形，可能為使用者維護保養習慣及濾煙器元件使用時數有關。濾煙器雖可有效減少煙度，

降低粒狀污染物之排放，惟仍須定期維護保養濾煙器，避免濾煙器之濾網因碳粒堵塞造成排氣背壓過大導致的引擎過熱損害車輛，且可以增加濾煙器之使用年限。

排氣管末段加裝濾煙器對煙度之削減有極佳的去處率，且車輛安裝後對於車況及馬力並無影響，但因使用者須在使用後將濾煙器再生，降低使用者的意願。

清潔隊柴油車輛加裝濾煙器示範，因取樣對象為老舊車輛，加上運行期間較長，許多車輛在當中便因不符使用而淘汰，故取樣樣本數較少，未來建議可增加示範運行車輛數，且可做加裝濾煙器前後使用者問卷調查，以利日後推動柴油車輛加裝濾煙器的政策。

參考文獻

黃景良,「加裝濾煙器對柴油車排放空氣污染物影響研究」,朝陽科技大學環境工程與管理系碩士學位論文,2010年。

黃慶祥、周瑞仁、朱建松,「柴油農機使用濾煙器之性能效益評估」,行政院國家科學委員會專題研究 NSC87-EPA-P-021-001,1998年。

黃慶祥、朱建松、周瑞仁,使用觸媒濾煙器對農用柴油引擎性能及污染物排放之影響,農業機械學刊,第11卷第2期,2002年6月。

張耀升,「柴油車濾煙器中擴散器設計對碳粒累積與再生效果之影響」,國立中興大學機械工程學系所碩士學位論文,2010年。

莊志偉,「柴油車輛搭載觸媒濾煙器效能探討」,國立中興大學機械工程學系所碩士學位論文,2004年。

Koji Tsuneyoshi, and Kazuhiro Yamamoto,(2012). "A study on the cell structure and the performances of wall-flow diesel particulate filter",Energy48(2012)492-499.

Satoshi Hiranuma, Yoshinaka Takeda, Toru Kawatani, Reiko Doumeki, Kazuhiro Nagasaki, and Tatsuya Ikeda, (2003). "Development of DPF System for Commercial Vehicle - Basic Characteristic and Active Regenerating Performance", SAE Paper 2003-01-3182.

H. Tente , P. Gomes , F. Ferreira , J.H. Amorim , P. Cascão , A.I. Miranda , L. Nogueira ,and S. Sousa, (2011) "Evaluating the efficiency of Diesel Particulate Filters in high-duty vehicles: Field operational testing in Portugal" Atmospheric Environment 45, (2011), p623~629.

自動貝他計和手動採樣器之 PM_{2.5} 量測結果差異探討

(劉俊男¹, 亞瓦希 阿米¹, 洪毅弘¹, 蔡春進^{1,*}, 巫月春², 陳重方²)

1 國立交通大學環境工程研究所, 臺灣, 30010;

2 行政院環境保護署環境檢驗所, 臺灣, 32024

摘要: 本研究以一部雙通道採樣器(Dichotomous sampler, Dichot, Model SA241, Andersen Inc., Georgia, USA)及一部貝他計(beta attenuation monitor, BAM, Model 1020, Met One Instruments Inc., Washington, USA)在台灣北部的新莊及竹東空氣品質監測站進行大氣 PM_{2.5} 質量濃度的比對採樣。採樣結果顯示, 貝他計在新莊及竹東測站的 PM_{2.5} 濃度監測值(PM_{2.5,B})會分別較雙通道採樣器所量測到的 PM_{2.5} 濃度(PM_{2.5,D})高出 29.78 及 28.42 %。本研究另外以兩部分別放置玻璃纖維及鐵氟龍濾紙的 Dichots 在交通大學校園進行採樣比對, 結果顯示前者所測得的 PM_{2.5} 濃度(PM_{2.5,DG})高出後者(PM_{2.5,DT})約 24.3 % 此誤差也和上述在新莊及竹東測站 PM_{2.5,B} 和 PM_{2.5,D} 之間的誤差相近。PM_{2.5,DG} 和 PM_{2.5,DT} 樣本的化學分析結果則顯示, PM_{2.5,DG} 較 PM_{2.5,DT} 高出的總無機離子濃度和兩者之間的質量濃度差異相近, 且這些額外多出的離子中又以硫酸根及硝酸根為主。由上述實驗結果可知, BAM 和 Dichot 之間的採樣誤差主要係由 BAM 所使用之玻璃纖維濾紙吸附酸性氣體所造成, 其中又以二氧化硫及硝酸為主要的吸附氣體。本研究也另外估算了採樣期間的大氣含水量以及 BAM 和 Dichot 於採樣過程中樣本上揮發性硝酸銨的揮發量, 結果顯示兩者對 PM_{2.5,B} 和 PM_{2.5,D} 之間採樣誤差並無顯著的影響。

關鍵字: 貝他計, 雙通道採樣器, PM_{2.5} 採樣誤差, 玻璃纖維濾紙。

1. 前言

雙通道採樣器(dichotomous sampler, Dichot)及貝他計(Beta attenuation mass monitor, BAM)在台灣常被用來量測環境中的大氣細微粒質量濃度(PM_{2.5})。Dichot 是 PM₁₀ FRM 手動採樣器, 該儀器時是利用濾紙採樣採集 24 小時的微粒樣本, 再由秤重分析決定樣本質量並推算 PM_{2.5} 的日平均濃度。這些樣本也可做後續的化學成分分析, 供相關的 PM_{2.5} 來源推估研究。此外, 除了 PM_{2.5} 樣本之外, Dichot 也可同時採集粗微粒(PM_{10-2.5})樣本, 因此該儀器在台灣常被用來做大氣微粒(particulate matter, PM)的相關研究(Tsai and Perng, 1998; Chen et al. 2010; Zhu et al. 2010; Liu et al. 2011; Gugamsetty et al. 2012)。BAM 是一部可每小時提供 PM_{2.5} 平均濃度的連續自動監測器, 該儀器也被台灣空氣品質監測站用來監控大氣 PM_{2.5} 濃度。BAM 主要是利用貝他射線的強度在通過有負荷微粒之濾紙後會衰減的原理來推算 PM_{2.5} 的質量濃度, 貝他射線強度和微粒收集質量之間的關係可由以下公式表示(Jaklevic et al. 1981):

$$I = I_0 e^{-\mu x}$$

(1)

其中 I 及 I_0 分別為強度衰減前後的被計強度 (counts/s), μ 為質量吸收係數, x 則為濾紙上微粒的質量面積密度 (kg/m^2)。

過去有許多文獻均顯示手動採樣所測得的 PM 濃度和 BAM 的量測結果有相當程度的差異, 且此差異在高濕度的環境下會更為嚴重。過去有學者發現當環境相對濕度 (relative humidity, RH) 大於 85 % 時, Wedding 貝他計 (USEPA FEM, EQPM-0391-081) 所測得的 PM_{10} 濃度會因微粒吸水的影響造成其測值高於高流量 PM_{10} 手動採樣器 (Sierra-Andersen Model SA1200) 所量測的結果 (Chang et al. 2001; Tsai et al., 2006)。Chang and Tsai (2003) 更進一步地建立了一套模式來評估 RH 對 PM_{10} 被他計測值的影響, 結果顯示當 RH 高於 85 % 時, 微粒中所吸附的水分無法完全揮發, 進而造成貝他計測值高於高流量 PM_{10} 手動採樣器的量測結果。其他許多相關研究也顯示 BAM 的 PM_{10} 或 $\text{PM}_{2.5}$ 測值和手動採樣結果有相當程度之差異 (Arends et al., 2000; Hauck et al., 2004; Huang and Tai, 2008; Salminen and Karlsson, 2003; Shin et al. 2011; Takahashi et al., 2008; Watanabe et al., 2000)。為解決此問題, 由 MetOne 公司在其所生產的 BAM (Model 1020, Met One Instruments Inc., Washington, USA, 後續以 "BAM-1020" 表示) 上加裝一個智慧型加熱器 (smart heater), 將進入儀器內的氣流相對濕度降至 35 % 或更低, 以降低微粒含水量對監測結果造成的正向干擾 (positive artifact)。

Gobeli et al. (2008) 發現較早生產的 BAM-1020 即使有使用 smart heater, 其測值仍有約高估手動採樣結果約 10-15 % 的情形。造成此情況的可能原因為 BAM-1020 所使用的濾紙為玻璃纖維濾紙, 該種濾紙在採樣過程會吸收 HNO_3 及 SO_2 等酸性氣體進而形成 NO_3^- 及 SO_4^{2-} 微粒而造成正向干擾 (Coutant, 1977; Liberti et al. 1978; Appel et al. 1984; Lipfert, 1994; Hsu et al. 2007), 然而一般手動採樣器所使用的鐵氟龍濾紙則不易吸附這些氣體。因此 MetOne 也進一步對較新版本的 BAM-1020 做控制修正, 推測該修正應是調整內部用來轉換 $\text{PM}_{2.5}$ 濃度的 μ 讓上述 BAM-1020 和手動採樣器之間的差異降低, 而該儀器也於 2008 年進一步地獲得美國聯邦等似方法 (federal equivalent method, FEM) 的認證 (EQPM-0308-170)。此新版本的 BAM-1020 和裝有 VSCC 旋風器 FRM 手動採樣器 (BGI Model PQ-200) 的現場比對的結果也符合美國 EPA 的比對標準, 其比對結果的線性斜率介於 0.94 至 1.02, 截距則介於 -0.96 至 0.56 (Gobeli et al., 2008)。然而由 (Gobeli et al., 2008) 報告中的圖 1 至圖 4 仍可看出儘管比對的線性斜率介於 0.94 至 1.02, 兩者之間仍有些量測差距, 應是不同採樣地點的酸性氣體濃度不同進而導致不同的正向干擾所致。

目前台灣空氣品質監測站 (Taiwan air monitoring stations, TAMS) 總共有 74 部未經過 FEM 認證的 BAM, 其中一半是較早期生產的 BAM-1020 而另一半為 VEREWA 公司生產的 BAM (Model F701, VEREWA, Germany, 後續以 "VEREWA-F701" 表示)。在 TAMS 中所使用的 BAM-1020 為 2005 年所購入未通過 FEM 認證之舊機種, 因此其測值也預期和手動採樣器的量測結果有差異。

除了上述的影響因子之外, 收集在樣本上的微粒於採樣過程中的揮發量也可能造成 BAM 和 Dichot 量測結果的誤差。半揮發性物質如 NH_4Cl 及 NH_4NO_3 可能因採樣過程中環境溫壓或通過濾紙壓損的改變而有揮發的情形 (Wang and John 1988; Zhang and McMurry, 1987, 1992; Cheng and Tsai,

1997)。由於 BAM 與手動採樣器所使用的濾紙材質及過濾面速度不同，因此也可能造成不同程度的揮發量。

本研究以 Dichot 和 BAM 於台灣三個空品測站進行現場比對測試以探討兩者之間量測結果的差異，並探討造成此差異的主要原因。探討的影響因子包括有微粒含水量、採樣過程中半揮發性微粒的損失量以及玻璃纖維濾紙上因吸附酸性氣體而產生的正向干擾。

2. 實驗方法

本研究於 2011 年 5 月至 2012 年 12 月至台灣北部三個空品測站進行採樣，如圖 1 所示，分別為新莊(25° 02' N, 121° 25' E)、中山(25° 03' N, 121° 31' E)及竹東測站(24° 44' N, 121° 05' E)。這段期間內在這三個測站總共採集了 108 組 24-h 的 Dichot 樣本以及 BAM 的連續監測數據(新莊：34；中山：36；竹東：36)。新莊及竹東測站所使用的貝他計為 BAM-1020 而中山站則是使用 VEREWA-F701。空品測站內所安裝的 BAM 是由台灣 EPA 負責操作，本研究則是在不同的採樣日期將一台 Dichot 移至各個測站進行採樣。BAM-1020 內有安裝一台智慧型加熱器(Model BX-827, Met One Instruments Inc., Washington, USA)，可將採樣氣流的 RH 降低至 35 %甚至更低。此智慧型加熱器裝有濕度感測器，當採樣氣流的 RH 超過設定的 35 %時，此加熱器會開始加溫，直到氣流的 RH 降低至 35 %以下為止。VEREWA-F701 則是裝有類似可對氣流除溼效果的配有濕度感測器之加熱線圈。所有的儀器的操作流量均為 16.7 L/min，在採樣前也均會以泡沫流量計(Gilibrator-2 system, Sensidyne, USA)對流量加以校正。BAMs 所使用的濾紙為玻璃纖維濾紙帶(BAM-1020: Code 400-80021, Hario sci.; VEREWA-F701: BF703GF45, VEREWA)而 Dichot 所使用的濾紙為鐵氟龍濾紙(Teflo R2PL037, Pall Corp., New York, USA)。Dichot 的採樣時間由每天下午 4 點開始至隔天下午 4 點。BAMs 的每小時自動監測數據由台灣 EPA 提供，本研究取 Dichot 採樣期間內的 24 筆 BAM 的每小時監測值做平均，以便後續和 Dichot 數據的分析比對。

為了對 BAM 所使用之玻璃纖維濾紙上可能因吸附酸氣而產生之正向誤差作量化，本研究也於 2013 年 1 月至 3 月，於台灣交通大學校園內使用兩部 Dichot 進行 24 小時的並列採樣。其中一部 Dichot 放置平常採樣所使用的鐵氟龍濾紙，而另一部 Dichot 則放置由 BAM-1020 所使用之濾紙帶所剪下的玻璃纖維濾紙。採樣期間內共採集了 17 筆比對數據。

所有的濾紙樣本在採樣前後均會放置在環境溫溼度分別控制在的 40 ± 2 %及 21 ± 1 °C 調理室內調理 24 小時，再以微量天平(Model CP2P-F, Sartorius, Germany)進行秤重。鐵氟龍濾紙在秤重之前還會額外使用靜電消除風扇(Model CSD-0911, MELSEI, Japan)去除濾紙上的靜電，使秤重結果更為穩定。每片濾紙至少會進行五次秤重，精確度控制在 $2 \mu\text{g}$ 。秤重分析後，再以離子層析儀分析樣本上的 F^- 、 Cl^- 、 NO_3^- 、 SO_4^{2-} 、 NH_4^+ 、 Na^+ 、 K^+ 、 Mg^{2+} 及 Ca^{2+} 等無機離子成分。

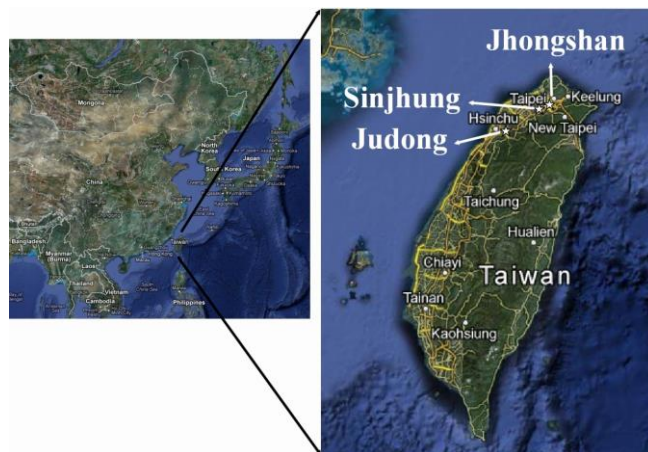
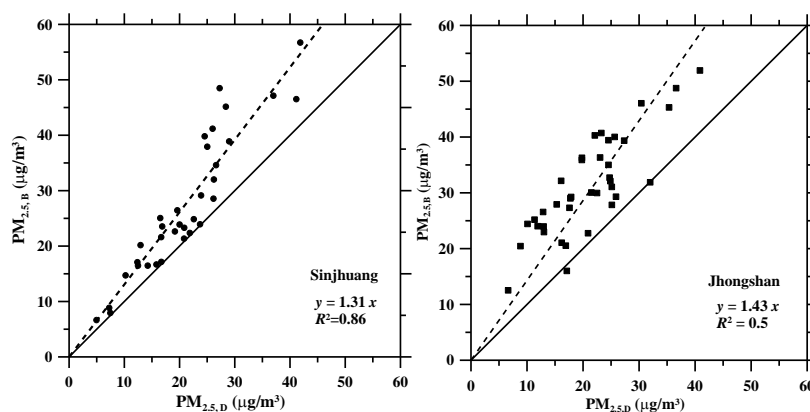


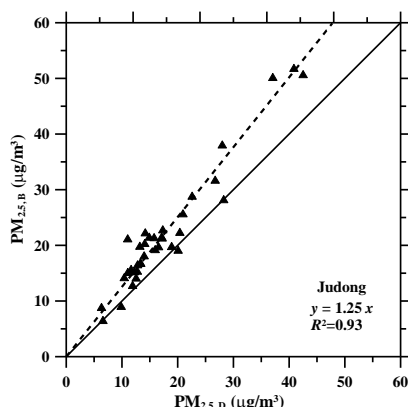
圖 1 採樣點位置圖。

3. 結果與討論

圖 2 (a)–(c) 分別為在新莊、中山及竹東測站 BAM ($PM_{2.5,B}$) 和 Dichot ($PM_{2.5,D}$) 的 $PM_{2.5}$ 量測結果比對圖。由圖可看出在新莊及竹東測站, $PM_{2.5,B}$ 和 $PM_{2.5,D}$ 的線性關係良好, 斜率分別為 1.31 及 1.25 (截距為 $0.0 \mu g/m^3$), 相關係數 (R^2) 分別為 0.86 及 0.93。且 $PM_{2.5,B}$ 均有高於 $PM_{2.5,D}$ 的情況, 在新莊及竹東測站分別高出 29.8 ± 20.2 及 28.4 ± 19.0 %。然而在中山測站, $PM_{2.5,B}$ 和 $PM_{2.5,D}$ 之間的線性關係較低 ($R^2 = 0.50$), 且兩者間的差異較大 (58.4 ± 37.4 %)。此差異可能係因儀器廠牌不同所導致, 其中新莊及竹東所使用的為 BAM-1020, 中山則是使用 VEREWA-F701。

可能造成此量測誤差的主因包括微粒含水量、無機鹽類的揮發以及玻璃纖維濾紙吸附酸氣造成的正向干擾將在以下進行討論。另外由於 VEREWA-F701 至今仍未獲得 FEM 認證, 且其和 Dichot 之間的差異也較 BAM-1020 大上許多, 因此後續將不針對中山測站的數據作探討。





(a)

(b)

(c)

圖 2 $PM_{2.5,B}$ 和 $PM_{2.5,D}$ 在 (a) 新莊 (樣本數: 34)、(b) 中山 (樣本數: 38) 及 (c) 竹東測站 (樣本數: 36) 的比對結果。

3.1 氣膠含水量的影響

過去即有研究指出當環境的潮解點過高時，BAM 的測值會因無機微粒吸水收水分而受到影響 (Pilinis et al., 1989; Lee et al., 2001; Chang et al., 2001; Khlystov et al., 2005)。為了檢驗此影響因素，本研究也利用 ISORROPIA II (Fountoukis et al., 2007) (W_{ISO} , $\mu g/m^3$) 及 E-AIM 模式 (Wexler and clegg, 2002) (W_{AIM} , $\mu g/m^3$) 計算 $PM_{2.5,D}$ 中的微粒含水量 (W , $\mu g/m^3$)。 W 主要受到氣膠中無機鹽類的影響，當環境 RH 低於 50 % 時，部分的水溶性無機物 (water-soluble organic carbon, WSOC) 也會影響 W 。然而大部分台灣大氣的 RH 均高於 60 % (如圖 3 所示)，因此本研究僅考慮無機鹽類對 W 的貢獻。

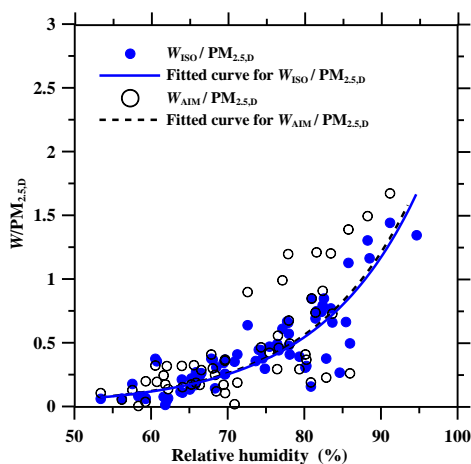


圖 3 以新莊及竹東站之採樣數據所計算出之微粒含水量和 RH 間之關係。

圖 3 為 W 跟 $PM_{2.5,D}$ 之比例和 RH 的關係。由圖可看出幾乎所有的採樣日內 RH 都高於 60 % 且 $W/PM_{2.5,D}$ 值也相當高，顯示台灣的氣候相當潮濕。另外也可看出 $W/PM_{2.5,D}$ 會隨著 RH 的增加而呈指數增加的趨

勢，當 RH 高於 80–85 % 時，該比值也會高於 0.5。由於在這些採樣日內，本研究並未對 BAM 內被加熱器除溼過後之氣流的 RH 做監測，因此無法估算有多少微粒含水量被去除，因此本研究也直接將估算出來的 W 直接加入 $PM_{2.5,D}$ 內和 $PM_{2.5,B}$ 作比對。圖 4(a) 及 (b) 分別為 $PM_{2.5,B}$ 和 $PM_{2.5,D} + W_{ISO}$ 及 $PM_{2.5,D} + W_{AIM}$ 於新莊及中山測站的比對結果，另外也加入 $PM_{2.5,B}$ 和 $PM_{2.5,D}$ 的比對結果做對照。結果顯示， $PM_{2.5,B}$ 在這兩測站平均高出 $PM_{2.5,D}$ 約 $28.96 \pm 19.46 \%$ ，且 R^2 為 0.90。把 W_{ISO} 或 W_{AIM} 加入 $PM_{2.5,D}$ 之後，雖然 BAM-1020 和 Dichot 之間的量測差異會分別降低至 7.0 ± 22.6 或 $8.3 \pm 26.5 \%$ ，但原本良好的相關性也消失了， R^2 會由 0.90 分別降低至 0.62 或 0.56。此結果顯示氣膠含水量並非影響 $PM_{2.5,B}$ 與 $PM_{2.5,D}$ 之間差異的主要因素，需針對其他可能的因素作進一步地探討。加入 W 後，BAM 和 Dichot 之間量測誤差的降低也僅是巧合。

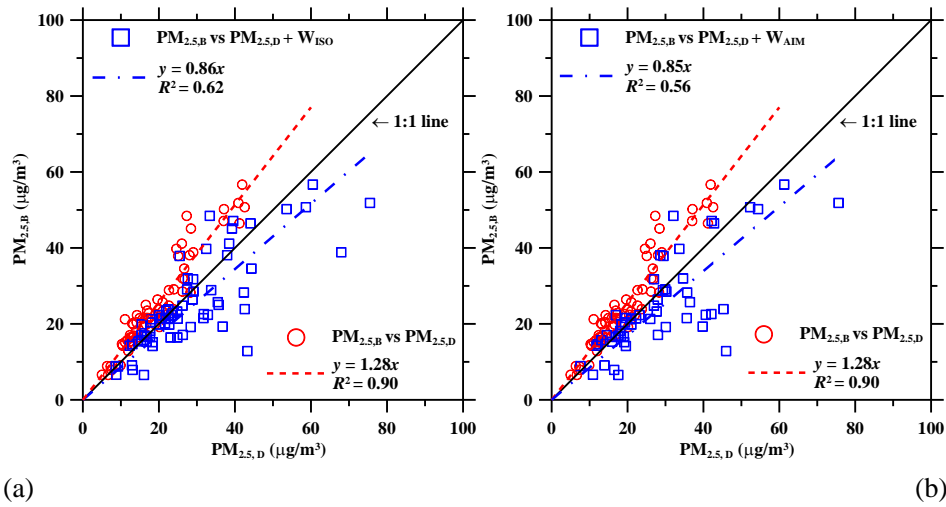


圖 4 新莊及竹東測站之 $PM_{2.5,B}$ 和 (a) $PM_{2.5,D} + W_{ISO}$ 及 (b) $PM_{2.5,D} + W_{AIM}$ 之間的關係。

3.2 無機微粒揮發的影響

揮發性物質如硝酸銨及氯化銨於採樣過程中容易有揮發的情況發生。為了檢驗此因素對 $PM_{2.5,B}$ 與 $PM_{2.5,D}$ 之間差異的影響，本研究也利用 Zhang and McMurry (1991) 的模式來推算 BAM-1020 及 Dichot 內於採樣過程中無機鹽類的揮發量。半揮發性物質的採樣效率 (η_e) 可定義為：

$$\eta_e = \frac{1}{1 + \xi \left[\frac{\rho_0}{\rho_e} + \left(\eta_e - \frac{\rho_0}{\rho_e} \right) / \delta \right] \rho_e / C_m} \quad (2)$$

其中 ρ_0 為揮發性微粒的在採樣進口的氣相濃度； ρ_e 為大氣平衡狀態下的氣體濃度； ξ 和 δ 則為無因次壓降，分別定義為 $\Delta P / (P_0 - \Delta P)$ 和 $\Delta P / P_0$ 。 P_0 為採樣器進口端的大氣壓力而 ΔP 則為通過濾紙的壓損； C_m 為被收集在濾紙上之微粒內的無機鹽類濃度，詳細的計算過程可參閱 Liu et al.

(2013)。表 1 為新莊及竹東測站在採樣期間樣本上所分析出的無機鹽類濃度。由該表可看出 NH_4^+ 及 NO_3^- 為主要的半揮發成分，因此本研究僅針對硝酸銨的揮發作探討。

圖 5 為硝酸銨的在 BAM 內揮發濃度 (EM_b) 佔 $\text{PM}_{2.5,B}$ 的比例和硝酸銨的在 Dichot 內揮發濃度 (EM_D) 佔 $\text{PM}_{2.5,D}$ 的比例之間的關係圖。結果可看出大部分的數據均顯示 BAM-1020 內的揮發量較 Dichot 多，造成此情況之主因為 BAM-1020 內的壓損較大所致。然而 EM_b 及 EM_D 均非常低，兩者分別介於 0.06 至 1.04 及 0.001 至 1.06 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ，平均僅分別佔 $\text{PM}_{2.5,B}$ 的 1.16 % 及 $\text{PM}_{2.5,D}$ 的 0.34 %。此結果也顯示違例的揮發對 $\text{PM}_{2.5,B}$ 與 $\text{PM}_{2.5,D}$ 之間的差異並無太大之影響。

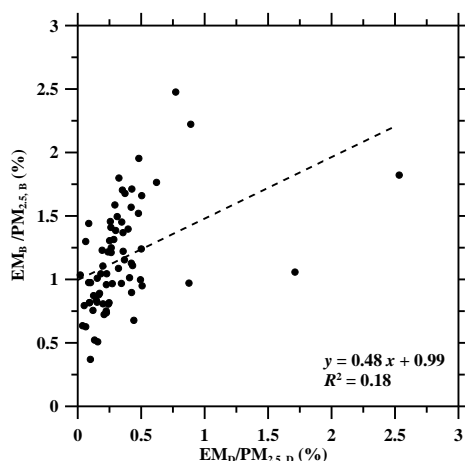


圖 5 在新莊及竹東測站之 EM_D 佔 $\text{PM}_{2.5,D}$ 之比例和 EM_b 佔 $\text{PM}_{2.5,B}$ 之比例的比對圖 (EM_D 及 EM_b 分別為 $\text{PM}_{2.5,D}$ 及 $\text{PM}_{2.5,B}$ 內所揮發出之硝酸銨濃度)。

3.3 玻璃纖維濾紙吸附酸性氣體的影響

圖 6 為裝有鐵氟龍濾紙之 Dichot 所測得之 $\text{PM}_{2.5}$ 濃度 ($\text{PM}_{2.5,DT}$ ，範圍：5.2 – 68.0 $\mu\text{g}/\text{m}^3$) 與裝有玻璃纖維濾紙之 Dichot 所測得 $\text{PM}_{2.5}$ 濃度 ($\text{PM}_{2.5,DG}$ ，範圍：6.7 – 83.3 $\mu\text{g}/\text{m}^3$) 的比對結果，鐵氟龍及玻璃纖維濾紙樣本上的平均無機鹽類濃度也整理在表 2 中。由表 2 可知，玻璃纖維濾紙上多採集到的離子濃度平均值 (average ion_{G-T}) 為 $3.15 \pm 2.88 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ，該數值係由計算玻璃纖維及鐵氟龍濾紙上所分析到的總離子濃度差異而得。 $\text{PM}_{2.5,DG}$ 濃度減去玻璃纖維濾紙上多採集到之離子濃度 ($\text{PM}_{2.5,DG} - \text{ion}_{G-T}$) 的數據也呈現在圖 6 中作比對。結果顯示 $\text{PM}_{2.5,DT}$ 和 $\text{PM}_{2.5,DG}$ 兩者間呈相當良好的線性關係，斜率為 1.17 (截距為 0.0 $\mu\text{g}/\text{m}^3$)， R^2 為 0.99。 $\text{PM}_{2.5,DG}$ 較 $\text{PM}_{2.5,DT}$ 高出 $21.2 \pm 9.8 \%$ ，此高估量略低於在新莊及中山站 $\text{PM}_{2.5,B}$ 及 $\text{PM}_{2.5,D}$ 之間的差異但仍然十分相近。其中後者分別為 29.8 ± 20.2 及 $28.4 \pm 19.0 \%$ 。另外結果也顯示將 $\text{PM}_{2.5,DG}$ 減去玻璃纖維濾紙上多採集到的離子濃度後的質量濃度 ($\text{PM}_{2.5,DG} - \text{ion}_{G-T}$) 和 $\text{PM}_{2.5,DT}$ 相近，兩者間的平均差異低於 3.8 %。另外由表 2 也可看出許多離子在玻璃纖維濾紙中的空白濃度均高於鐵氟龍濾紙，兩者的總濃度分別為 7.16 ± 0.96 及 $0.07 \pm 0.05 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 。Waston et al. (2012) 也發現許多元素濃度在 BAM 所使用的玻璃纖維濾紙中也有類似高空白值的情形。在玻璃纖維濾紙多採集到的成分中係以 Cl^- 、 NO_3^- 及 SO_4^{2-} 三種酸性離子為主，在所有多採集到的離子濃度中三者總和約佔 70.16 %。

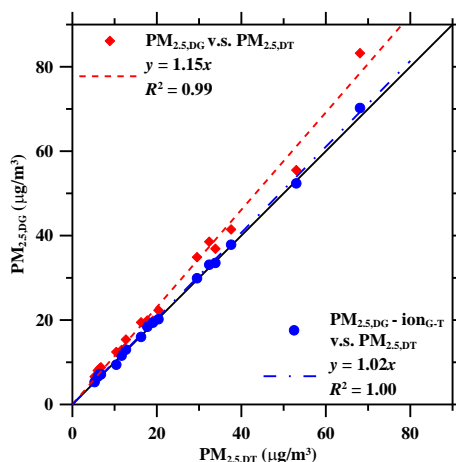


圖 6 $PM_{2.5,DT}$ 和 $PM_{2.5,DG}$ 在 NCTU 校園內的比對結果(樣本數：17)。

由上述結果可推論 造成在新莊及竹東測站以未獲 FEM 認證之 BAM-1020 測出較高的 $PM_{2.5}$ 濃度的主要因素為 BAM-1020 所使用的玻璃纖維濾紙帶吸附酸氣進而造成正向干擾。

4. 結論

本研究在三個使用未獲 FEM 認證之 BAM 的空品測站採樣的結果顯示， $PM_{2.5,B}$ 均會高於 $PM_{2.5,D}$ 。在使用 VEREWA-F701 的中山測站，BAM 的較 Dichot 的量測結果高估了 $58.4 \pm 37.4\%$ 。在使用 BAM-1020 的新莊及竹東測站，BAM 的高估量較低，分別為 29.8 ± 20.2 and $28.4 \pm 19.0\%$ 。本研究也進一步探討各種不同因素對此量測差異的探討，包括微粒含水量、無機鹽類揮發量以及玻璃纖維濾紙吸附酸性氣體造成之正向干擾三個因素。

研究結果顯示，BAM-1020 所使用之玻璃纖維濾紙帶吸附酸性氣體所造成的正向干擾(高估量： $21.2 \pm 9.8\%$)為造成 $PM_{2.5,B}$ 及 $PM_{2.5,D}$ 之間差異的主要因素。相較於 Dichot，本研究估算出在 BAM-1020 中有較多的無機鹽類揮發量，但此揮發量平均僅佔 $PM_{2.5,B}$ 的 1.16% 。加入微粒含水量至 $PM_{2.5,D}$ 後，Dichot 和 BAM 之間的平均測值差異會碰巧地由 28.96% 降至 $7.0-8.3\%$ ，但 R^2 會由 0.90 降至 $0.62-0.56$ ，此結果顯示微粒含水量並無法解釋 BAM-1020 和 Dichot 之間量測差異。此外，由於 BAM-1020 並無針對智慧型加熱器控制後的加熱溫度進行監測，一些可能因為加熱而造成更多揮發性物質揮發的議題值得在未來做進一步地探討。

未來台灣空品測站所使用的儀器建議須更換為已獲 FEM 認證之相關監測器，如 2008 年後生產之 BAM-1020，裝配有濾紙動態量測系統的錐形元件震盪微量天平 (Model 1405-DF, Thermo, designation number: EQPM-0609-182)、連續環境微粒監測器 (Model 5040i, Thermo, designation number: EQPM-0609-183) 以及貝他微粒量測系統 (Model 602, Teledyne, designation number: EQPM-0912-204) 等儀器。預期換上這些儀器後，自動監測值和手動採樣結果間的差異會減小。此外，由於已獲 FEM 認證之 BAM-1020 仍然使用玻璃纖維濾紙帶作為其採樣濾紙，在台灣這種酸性氣體濃度較高的環境之下，它們的量測結果可能跟手動 FRM 採樣器仍會有些許差異，因此本研究也建議可將

BAM-1020 所使用的玻璃纖維濾紙更換成塗敷鐵氟龍的玻璃纖維濾紙或是由其他較不易吸附酸性氣體之材料所製成的濾紙，以根本解決濾紙吸附酸性氣體形成正向干擾進而造成 BAM-1020 測值高估的問題。

參考文獻：

- Aggarwal, S.G., Mochida, M., Kitamori, Y., Kawamura, K., 2007. Chemical closure study on hygroscopic properties of urban aerosol particle in Sapporo, Japan. *Environment Science and Technology* 41, 6920–6925.
- Appel, B.R., Tokiwa, Y., Haik, M., Kothny, E.L., 1984. Artifact particulate sulfate and nitrate formation on filter media. *Atmospheric Environment* 18, 409–416.
- Arends, B.G., Nell, J., Rutten, S.M., 2000. Field comparison of four PM₁₀ samplers in a polluted area in the Netherlands. *Journal of Aerosol Science* 31, 512–513.
- Chang, C.T., Tsai, C.J., Lee, C.T., Chang, S.Y., Cheng, M.T., Chein, H.M., 2001. Differences in PM₁₀ concentrations measured by β -gauge monitor and Hi-vol Sampler. *Atmospheric Environment* 35, 5741–5748.
- Chang, C.T., Tsai, C.J., 2003. A model for the relative humidity effect on the readings of the PM₁₀ beta-gauge monitor. *Journal of Aerosol Science* 34, 1685–1697.
- Cheng, Y.H., Tsai, C.J., 1997. Evaporation loss of ammonium nitrate during filter sampling. *Journal of Aerosol Science* 28, 1553–1567.
- Chen, S.C., Tsai, C.J., Huang, C.Y., Chen, H.D., Chen, S.J., Lin, C.C., Tsai, J.H., Chou, C.C.K., Lung, C., Huang, W.R., Roam, G.D., Wu, W.Y., Smolik, J., Dzumbova, L., 2010. Chemical Mass Closure and Chemical Characteristic of Ambient Ultrafine Particles and other PM Fractions. *Aerosol Science and Technology* 44, 713–723.
- Coutant, R.W., 1977. Effect of environmental variables on collection of atmospheric sulfate. *Environmental Science and Technology* 11, 873–878.
- Fountoukis, C., Nenes, A., 2007. ISORROPIA II: a computationally efficient thermodynamic equilibrium model for K⁺ - Ca²⁺ - Mg²⁺ - NH₄⁺ - Na⁺ - SO₄²⁻ - NO₃⁻ - Cl⁻ - H₂O aerosols. *Atmospheric Chemistry and Physics* 7, 4539–4659.
- Gobeli, D., Schloesser, H., PottbergMet T., 2008. Met one instruments BAM-1020 beta attenuation mass monitor US-EPA PM_{2.5} Federal equivalent method field test results, Paper # 2008-A-485-AWMA.
- Gugamsetty, B., Wei, H., Liu, C.N., Awasthi, A., Chen, S.C., Tsai, C.J., Roam, G.D., Wu, Y.C., Chen, C.F., 2012. Source characterization and apportionment of PM₁₀, PM_{2.5}, PM_{0.1} using positive matrix factorization in Shinjung Station, Taiwan. *Aerosol and Air Quality Research* 12, 472–491.
- Hauck, H., Berner, A., Gomiscek, B., Stopper, S., Puxbaum, H., Preining, O., Kundi, M., 2004. On the equivalence of gravimetric PM data with TEOM and beta-attenuation measurements. *Journal of Aerosol Science* 35, 1135–1149.
- Hsu, Y.M., Kollett, J., Wysocki, K., Wu, C.Y., Lundgren, D.A., Birky, B.K., 2007. Positive artifact sulfate formation from SO₂ adsorption in the silica gel sampler used in NIOSH method 7903. *Environmental Science and Technology* 41, 6205–6209.
- Huang, C.H., Tai, C.Y., 2008. Relative humidity effect on PM_{2.5} reading recorded by collocated beta attenuation monitors. *Environmental Engineering Science* 25, 1079–1089.

- Jaklevic, J.M., Gatti, R.C., Goulding, F.S., Loo, B.W., 1981. A β -gauge method applied to aerosol samples. *Environmental Science and Technology* 15, 680–686.
- Khlystov, A., Stanier, C.O., Takahama, S., Pandis, S., 2005. Water content of ambient aerosol sampling during the Pittsburgh air quality study. *Journal of Geophysical Research* 110, D07S10.1–D07S10.10.
- Lee, W.M.G., Huang, W.M., Chen, Y.Y., 2001. Effect of relative humidity on mixed aerosols in atmosphere. *Journal of Environmental Science Health Part A* 36, 533–544.
- Liberti, A., Brocco, D., Possanzini, M., 1978. Adsorption and oxidation of sulfur dioxide on particles. *Atmosphere Environment* 12, 255–261.
- Lipfert, F.W., 1994. Filter artifacts associated with particulate measurements: Recent evidence and effects on statistical relationships. *Atmospheric Environment* 28, 3233–3249.
- Liu, C.N., Chen, S.C., Tsai, C.J., 2011. A novel multi-filter PM₁₀–PM_{2.5} sampler (MFPPS). *Aerosol Science and Technology* 45, 1480–1487.
- Pilinis, C., Seinfeld, J.H., Grosjean, D., 1989. Water content of atmospheric aerosols. *Atmospheric Environment* 23, 1601–1606.
- Salminen, K., Karlsson, V., 2003. Comparability of low-volume PM₁₀ sampler with β -attenuation monitor in background air. *Atmospheric Environment* 37, 3707–3712.
- Shin, S.E., Jung, C.H., Kim, Y.P., 2011. Analysis of the measurement difference for the PM₁₀ concentrations between beta-ray absorption and gravimetric methods at Gosan. *Aerosol and Air Quality Research* 11, 846–853.
- Tsai, C.J., Perng, S.N., 1998. Artifacts of ionic species for Hi-vol PM₁₀ Dichot samplers. *Atmospheric Environment* 32, 1605–1613.
- Tsai, C.J., Chang, C.T., Huang, C.H., 2006. Direct field observation of the relative humidity effect on the β -gauge readings. *Journal of the Air and Waste Management Association* 56, 834–840.
- Takahashi, K., Minoura, H., Sakamoto, K., 2008. Examination of discrepancies between beta-attenuation and gravimetric methods for the monitoring of particulate matter. *Atmospheric Environment* 42, 5232–5240.
- Wang, H.C., John, W., 1988. Characteristics of the Berner impactor for sampling inorganic ions. *Aerosol Science and Technology* 8, 157–172.
- Waston, J.G., Chow, J.C., Chen, L.W.A., Kohl, S.D., Casuccio, G.S., Lersch, T.L., Langston, R., 2012. Elemental and morphological analyses of filter tape deposits from a beta attenuation monitor. *Atmospheric Environment* 106, 181–189.
- Watanabe, I., Endo, O., Goto, S., Tanabe, K., Mizoguchi, T., Matsushita, H., 2000. A comparison study of measured values for ambient suspended particulate matter using β attenuation method and gravimetric high-volume method. From intermittent monitoring data at two sites in Tokyo for a decade. *Journal of Environmental Chemistry* 10, 557–572.
- Wexler, A.S., Clegg, S.L., 2002. Atmospheric aerosol models for systems including the ions H⁺, NH₄⁺, Na⁺, SO₄²⁻, NO₃⁻, Cl⁻, Br⁻ and H₂O. *Journal of Geophysical Research* 107, No. D14, art. no. 4207.
- Zhang, X.Q., McMurtry, P.H., 1987. Theoretical analysis of evaporative losses from impactor and filter deposits. *Atmospheric Environment* 21, 1779–1789.

- Zhang, X.Q., McMurry, P.H., 1991. Theoretical analysis of evaporative losses of adsorbed or absorbed species during atmospheric aerosol sampling. *Environmental Science and Technology* 25, 456–459.
- Zhang, X.Q., McMurry, P.H., 1992. Evaporative losses of fine particulate nitrates during sampling. *Atmospheric Environment* 26, 3305–3312.
- Zhu, C.S., Chen, C.C., Cao, J.J., Tsai, C.J., Chou, C.C.K., Liu, S.C., Roam, G.D., 2010. Characterization of carbon fractions for atmospheric fine particles and nanoparticles in a highway tunnel. *Atmospheric Environment* 44, 2668–2673.

福建省大气污染物排放清单的初步估算研究

(鲁斯唯¹, 吴水平¹, 陈晓秋²)

1 厦门大学环境与生态学院, 厦门, 361102;

2 福建省环境监测中心站, 福州, 350003

摘要: 本研究在 2007 年污染源普查数据基础上, 结合统计年鉴中工业消耗数据进行动态更新, 以 2009 年为基准年, 从工业活动、居民生活等多个方面对福建省大气污染物 SO₂、NO_x、PM_{2.5}、VOC_s 和 NH₃ 在内的大气污染物的排放量进行估算, 建立了福建省大气污染物排放清单。结果显示, 污染物排放较高的地区主要集中在沿海区域, 如福州、泉州和漳州, 而植被覆盖率高南平和三明的 VOC_s 排放量也较高。工业排放是 SO₂ 的主要污染源, 占 SO₂ 排放总量的 63.6%, 电厂排放是 NO_x 和 PM_{2.5} 的主要排放源, 机动车是 NO_x 最主要污染源, 占排放总量的 34.11%, 机动车污染应引起重视。

近 50 年中国气溶胶光学厚度反演及长期变化特征的分析

(罗建国 吴润)

(云南大学资源环境和地球科学学院, 昆明, 650091)

摘 要: 本文选用了中国 1960–2009 年的逐日平均水汽压和水平能见度资料, 在已有的利用能见度反演光学厚度方法的基础上, 以 2001–2009 年卫星资料 MISR level3 逐月气溶胶光学厚度为标准, 利用多元非线性回归方法订正了反演方案中的参数, 对比了订正参数后与原方案的反演结果。此后, 利用订正后的参数反演了 1960–2009 年中国地区逐日气溶胶光学厚度, 分析了我国气溶胶光学厚度时空分布与季节特征。结果表明: 2001–2009 年间订正参数后的反演方案在空间分布与气溶胶光学厚度值的大小上更加接近 MISR 观测值, 同时能够较好的反映光学厚度的极值情况, 改进后反演方案平均相对误差均在 20% 以内。中国地区气溶胶光学厚度近 50 年总体呈增加趋势, 其中 1960–1978 年增加率较 1978–1999 年快, 而 2000–2007 年增加率更快, 2008 年后气溶胶光学厚度开始下降。近 50 年夏季气溶胶光学厚度最高, 最高值出现在 2003 年, 年平均值为 0.32–0.34。春秋两季次之, 最低的是冬季。春秋两季气溶胶光学厚度空间分布相似, 大值区出现在四川盆地、长江中下游、两广地区以及新疆南部, 夏季大值区出现在北方、冬季大值区出现在南方。2000 年前大城市气溶胶光学厚度增长速度较小城市快, 2000 年后相反。

关键词 能见度, 气溶胶, 光学厚度, 反演

利用影像處理技術評估大氣能見度與 PM2.5 之關係

(羅金翔¹、楊心豪^{2*}、黃筱茜²、王嗣涵¹)

1 弘光科技大學環境工程研究所、臺灣

2 稻江科技暨管理學院通識教育中心、臺灣

摘要：本研究建立能見度與影像監測之中尺度即時測系統，同時評估懸浮微粒 PM2.5、能見度與大氣影像指標之關係。分別於中科四期二林園區及沙鹿地區進行手動 PM2.5 採樣、擷取能見度及影像指標數值，並將手動 PM2.5 採樣數據與鄰近環保署測站 PM2.5 數值進行回歸分析，研究成果發現，懸浮微粒 PM2.5 與能見為負相關之關係，與影像指標值呈現正相關，顯示當能見度越高時懸浮微粒濃度為越低的，影像指標之處理結果亦同；梧棲氣象站之能見度與沙鹿監測站資料分析之結果，顯示能見度與 PM2.5 呈現負相關趨勢，顯示當能見度越高時 PM2.5 為越低的；手動採樣與自動測站採樣資料之關係，其結果為兩地區懸浮微粒濃度，都為自動測站值較手動採樣值為高。

關鍵字：能見度，PM2.5，影像處理

1 計畫概述

1.1 研究背景

懸浮微粒對環境的衝擊及人體健康的效應是廣受重視的，我國環保署於 101 年度修正空氣品質標準，增訂 PM_{2.5} 空氣品質標準，並依據國內健康影響研究結果，以健康影響為優先考量，將 PM_{2.5} 24 小時值訂為 35 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、年平均值訂為 15 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ，該標準與美、日一致，為國際間已納入國家法規標準中最嚴格者。初步訂於 109 年達成全國細懸浮微粒濃度年平均值 15 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 的目標，同時將依國際管制趨勢發展，逐期檢討我國 PM_{2.5} 空氣品質標準，並朝達成 WHO 提出之空氣品質準則。

大氣能見度(atmospheric visibility)係表示離海平面 2 km 近地面大氣層環境清濁程度的綜合性指標，也是影響景觀、視覺感受的最重要環境因子，尤其在都市或觀光地區，能見度良窳除了反映空氣品質之外，更顯景觀美學意義；但是相對其他化學污染因子，能見度受到關注程度並不明顯，推究其原因，大氣能見度是一個由多重因素混成交錯的結果，受到地域、區域氣候、micro-climate、污染物濃度與種類的影響[1-6]，雖然很多地區已將大氣能見度列入例行監測項目，其紀錄卻無法與視覺圖像有直接關聯，積極維護視覺品質的對應作為更為缺乏，如果將能見度提升到視覺美學以及增進環境溝通效益[7]，並將視覺圖像即時傳輸與演算分析，則能符合中尺度遙測對於區域災變(人為或是天然)與土地景觀變化的協助功能，可讓能見度成為更受關注焦點，進而提高保護能見度資源之動力。

自 1980 年代始國外學者開始利用影像處理(image processing)技術研究大氣能見度問題，IMPROVE(interagency monitoring of protected visual environments)提出兩個傳統能見度的監測方法：人眼目測視程(visual range)與光消散(light extinction)物理定義，也前瞻性構思將環境影像(environmental images)導入大氣能見度偵測[8]，提出 PVAQ(perceived visual air quality)概念，認為透過研發量化指標以評估視覺品質，但受限於當年資訊與取像硬體以及軟體工具之支援能力，沒有針對影像本身所指涉或可被定量的內容加以演算，因此數位能見度指標(digital visibility index)沒有出現在後續研發成果中。

數位影像(digital image)提供時空再現功能，針對大氣能見度影像之像素資訊予以運算處理，可進行直接數位量化環境全景，成為能見度研究的重要發展主題。數位影像處理技術隨著電腦資訊化之普及與軟、硬體快速進步，已廣泛應用於影像識別（如紋理與指紋自動鑑識），神經網路、影像神態學以及基於知識的影像分析系統（例如天文學、氣象學、航空與衛星科技、生物科學、醫學分析顯像、國防科技、刑事犯罪鑑識、工業設計與應用等等）[9]。利用環境目標物與背景的影像色階差異[10, 11]，依循 IMPROVE 演算原理[8]，定義了數位能見度 dV (deci-view) 指標，並據此落實到監測設備系統的研發；接著應用三種影像高頻篩分法(high frequency filters)開發全影像分析程序，擺脫對於理想目標物的依賴，將都市大氣能見度予以數位指標化[12, 13]，並與人眼視程觀測做線性比對，讓能見度即時(online)機械自動監測的學術原理得以建構完成，計算能見度受到各環境因素（如光徑距離、背景輻射等），其數位影像亮度(brightness)的消滅關係，建立大氣環境影像與人類視覺之間的關聯性，國外學者也開始了相關對應研究[14]；接著透過影像退化(image degradation)工具結合中尺度遙測(remote sensing)，讓能見度全景分析進化為不需設定任何目標物，甚至可應用在地表粗糙度很低的郊區，進行能見度監測[15]，本研究將上述成果予以彙整並提出區域網格概念，延伸數位能見度監測技術為區域環境視覺品質的觀測之工具。

1.2 研究目的

本計畫主要的研究目的包括：

將影像紋理頻譜分析（高頻處理）技術，加上視差比對、退化/復原運算，配合空間定位，建構中尺度環境影像的分析技術與系統設計，應用於大氣能見度的自動觀測領域。

針對能見度與大氣影像擷取之採樣點進行手動懸浮微粒 $PM_{2.5}$ 之採樣，進以評估 $PM_{2.5}$ 與能見度與大氣影像指標之關係。

彙整採樣點周邊環保署測站 $PM_{2.5}$ 濃度，進以建立能見度、影像指標與測站 $PM_{2.5}$ 濃度之關係。

評估微粒監測特性時間分佈序列之變化。

2 研究方法

2.1 監測網絡與能見度觀測

環境影像觀測與自動取像分析連線系統之設備組件包含經過色差校正之規格化 CCD (Charged Coupled Devices，為一電荷耦合元件，為矽基固態影像感測元件，在擷取影像時，有類似傳統相機底片的感光作用)、支撐轉軸、訊號傳輸線路以及小型中央處理器（含驅動程式）。

依前述單元可以成為一個獨立單元，使用圖像感測器、同步掃描系統、定時電路、視頻放大和處理電路、視頻信號同步電路、用來生成複合視頻信號的合成電路等，鏡頭在感測器上形成一個焦距圖像，電子束穿過真空管感測器的操作被稱作線性掃描，讓場景變化時提供有意義的圖像，據此擴展到一個無線傳輸空間網格，利用此網格可以將區域納入系統管控，成為一個中尺度環境影像監測 (environmental image monitoring, EMI) 系統。

整體能見度觀測系統是採用 LPV-3 長距式能見度監測系統 (Air Resource Specialists Inc., USA)，進行量測。本設備是符合符合美國環保署對於能見度監測之標準，同時是具有長距離觀測能見度之設備，適用於 20 km 距離內之能見度量測。

2.2 手動式 $PM_{2.5}$ 採樣

本計畫採用 Model 300 系列泛用型採樣器(UAS™)作為 PM_{2.5}之採樣器，設定流量以 300 Lpm 進入採樣器，經由虛擬衝擊分徑器將微粒分徑，所採集的粒徑 2.5~10 μ m 範圍間之微粒，可收集在 2.5"×6.5" 之濾紙上，而小於 2.5 μ m 之微粒，則收集在 8"×10" 之濾紙上，使用之濾紙為 PALL TISSUQUARTZ2500QAT-UP 石英濾紙。圖 1 為 Model 310 UAS™之示意圖。

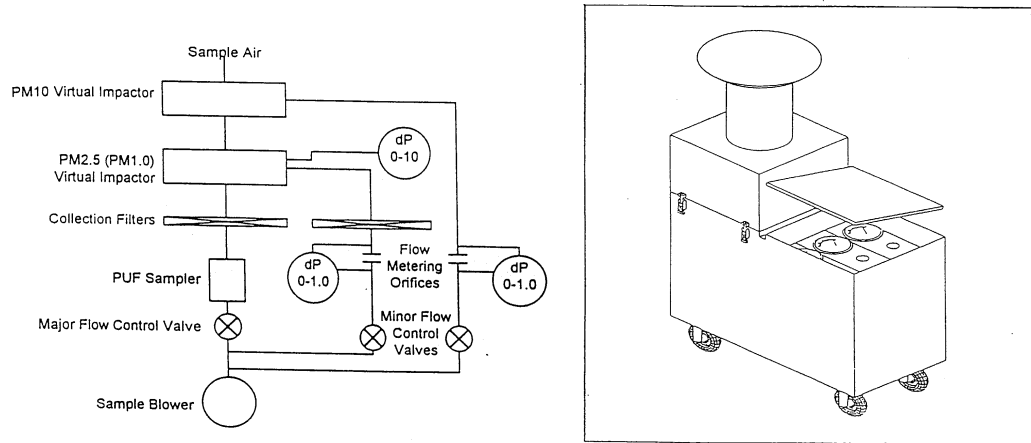


圖 1 Model 310 UAS™之示意圖

2.3 採樣規劃

本研究之採樣策略規劃，主要利用 Model 300 系列泛用型採樣器(UAS™)作為懸浮微粒之採樣器，能見度觀測則是採用 LPV-3 長距式能見度監測系統(Air Resource Specialists Inc., USA)進行量測，二林地區於四月至五月進行採樣，沙鹿地區則於九月至十月進行採樣，每次採樣泛用型採樣器為 24 小時連續式採樣，LPV-3 長距式能見度監測系統為 24 小時連續自動監測，能見度但晚上時段為無效值，故本計畫取樣時段為每日 8 點至 17 點，每小時之平均值，影像指標部分利用 CCD 攝影機擷取畫面，拍攝時段為每日 8 點至 17 點，拍攝頻率為每小時一張圖片，能見度與影像指標值除了與懸浮微粒手動採樣值分析比較外，另與鄰近採樣點之環保署空氣品質監測站及氣象站之資料，進行比較分析。

2.4 監測地點

目前監測地點規劃兩個區域，分別為彰化縣二林區域以及臺中市火力發電廠區域進行監測，手動採樣地點與鄰近測站位置，彰化二林地區為中科四期基地，其鄰近設施主要為中科四期之廠房，臺中市沙鹿地區鄰近台中港，除火力發電廠外，亦有加工出口工業區等設施。

3 成果與討論

3.1 能見度監測系統之建置

本研究能見度監測系統之建置，主要區分為實場硬體系統之架設，利用 LPV-3 長距式能見度監測系統(Air Resource Specialists Inc., USA)為整體能見度觀測系統，分別在彰化縣二林鎮及台中市海線地區兩地點建置系統；以及後續處理軟體處理技術之建立，利用影像數位化技術將環境能見度轉化成圖形，計算出影像指標數值。









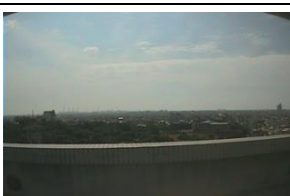
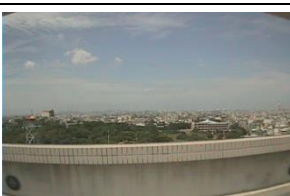

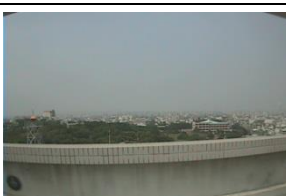
3.2 影像指標

本研究利用研發出之影像指標數值分析軟體針對擷取之大氣影像進行分析，表 1 為計畫中針對二林及台中地區擷取 6 天不同時段的影像進行影像指標數值表，圖 1 為二林地區與台中地區擷取大氣影像之影像指標數值圖，可以發現二林地區整體數值分佈在 25.07-71.88 間，台中地區整體數值分佈在 21.42-120.85 間。

雖目前已將系統與軟體設定完成，但目前仍在對影像取樣方向與角度作修正，以符合影像軟體之規範設定，以期能更精準地將影像指標數值估算出來。

表 1 二林地區與台中地區不同時段之影像指標數值

Image Index	二林 day 1	二林 day 2	二林 day 3	二林 day 4	二林 day 5	二林 day 6	台中 day 1	台中 day 2	台中 day 3	台中 day 4	台中 day 5	台中 day 6
10:00~11:00	71.88	68.83	51.77	51.98	51.35	59.32	120.85	39.74	21.42	89.17	63.11	78.12
11:00~12:00	63.82	45.09	64.5	44.94	59.24	61.38	65.44	61.67	40.09	79.19	76.9	92.04
12:00~13:00	43.02	45.09	56.51	40.92	43.35	58.92	54.63	85.86	70.36	53.88	33.69	33.17
13:00~14:00	39.51	45.08	51.35	30.63	55.25	47.31	92.9	86.86	97.79	29.07	41.35	30.44
14:00~15:00	31.45	31.61	51.28	25.07	46.25	41.67	82.69	60.07	71.61	46.42	76.49	40.61
15:00~16:00	48.47	25.38	43.5	23.78	43.02	61.15	59.61	31.03	70.54	42.8	57.61	51.87
16:00~17:00	40.64	25.60	46.37	21.64	46.92	41.94	63.04	33.62	72.68	62.75	53.45	56.43

			
二林 Index: 71.88	二林 Index: 63.82	二林 Index: 68.83	二林 Index: 51.77
			
二林 Index: 51.35	二林 Index: 51.98	二林 Index: 43.02	二林 Index: 59.24
			
台中 Index: 120.85	台中 Index: 92.90	台中 Index: 63.04	台中 Index: 39.74





			
台中 Index: 31.03	台中 Index: 97.79	台中 Index: 42.8	台中 Index: 56.43

圖 1 二林地區與台中地區擷取大氣影像之影像指標數值

3.3 影像與能見度關係

本研究針對大氣能見度進行偵測，不同天與時段下之能見度偵測結果，能見度主要分佈在 3.02 km~34.61km 間，為進一步瞭解能見度與影像之間關係，選擇特定時段內之能見度與影像進行回歸分析，整體關係為負相關， R^2 為 0.85。

3.4 手動 PM_{2.5} 採樣之懸浮微粒濃度

本研究利用 Model 300 系列泛用型採樣器(UASTM)採集大氣中懸浮微粒，表 2 為二林地區手動採樣之結果，由表 2 中得知細微粒 PM_{2.5} 平均濃度為 24.22 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ，PM_{2.5-10} 粗微粒平均濃度為 8.16 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ，PM₁₀ 平均濃度為 32.38 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ，而 PM_{2.5}/PM₁₀ 之比值為 0.56 ~ 0.92，顯示二林地區採樣期間之微粒分佈主要以 PM_{2.5} 之細懸浮微粒為大多數。

表 3 為沙鹿地區手動採樣之結果，由表 3 中得知細微粒 PM_{2.5} 平均濃度為 30.66 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ，PM_{2.5-10} 粗微粒平均濃度為 21.80 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ，PM₁₀ 平均濃度為 52.45 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ，而 PM_{2.5}/PM₁₀ 之比值為 0.27 ~ 0.76，顯示採樣期間內沙鹿地區之微粒分佈主要以 PM_{2.5} 為大多數。

表 2 二林地區手動採樣之懸浮微粒濃度

	Day 1	Day 2	Day 3	Day 4	Day 5	Day 6	Day 7	Day 8	Day 9	Day 10	Day 11	Day 12
PM _{2.5}	12.18	18.69	47.92	19.38	18.75	52.15	5.42	14.31	20.04	8.82	17.75	12.22
PM _{2.5-10}	9.19	6.54	21.46	3.19	2.78	4.24	1.46	6.52	20.22	6.94	9.15	9.19
PM ₁₀	21.37	25.23	69.38	22.57	21.53	56.39	6.88	20.83	40.26	15.76	26.9	21.41
PM _{2.5} /PM ₁₀	0.57	0.74	0.69	0.86	0.87	0.92	0.79	0.69	0.50	0.56	0.66	0.57

*濃度單位: $\mu\text{g}/\text{m}^3$

表 3 沙鹿地區手動採樣之懸浮微粒濃度

	Day 1	Day 2	Day 3	Day 4	Day 5	Day 6	Day 7	Day 8	Day 9	Day 10	Day 11	Day 12
PM _{2.5}	26.5	25.27	38.35	48.62	54.8	28.91	28.19	26.2	24.91	17.2	5.83	43.08
PM _{2.5-10}	24.12	17.49	12.42	16.54	21.92	22.83	22.18	25.62	33.91	31.85	15.83	16.83
PM ₁₀	50.62	42.76	50.77	65.16	76.72	51.73	50.37	51.83	58.82	49.05	21.67	59.91
PM _{2.5} /PM ₁₀	0.52	0.59	0.76	0.75	0.71	0.56	0.56	0.51	0.42	0.35	0.27	0.72

*濃度單位: $\mu\text{g}/\text{m}^3$

3.5 自動測站資料與手動採樣資料關係

本研究針對手動採樣與測站自動採樣之懸浮微粒濃度，所得資料相互比較分析，由表 4 結果得知二林自動測站細微粒 $\text{PM}_{2.5}$ 平均濃度為 $35.14 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ， $\text{PM}_{2.5-10}$ 粗微粒平均濃度為 $19.89 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ， PM_{10} 平均濃度為 $55.02 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ，而 $\text{PM}_{2.5}/\text{PM}_{10}$ 之比值為 $0.51 \sim 0.75$ ，顯示二林地區採樣期間之微粒分佈主要以 $\text{PM}_{2.5}$ 之細懸浮微粒為大多數，其結果與手動採樣之結果一致。

表 5 為二林地區手動採樣與二林自動測站採樣資料之關係，由表中可看出 $\text{PM}_{2.5}$ 手動/自動數值為 $0.15 \sim 0.94$ ，差異最大日期出現於 4/22， PM_{10} 手動/自動數值為 $0.15 \sim 0.94$ ，差異最大日期與 $\text{PM}_{2.5}$ 相同都出現 4/22，顯示自動採樣之濃度都高於手動採樣之濃度值。

表 6 為沙鹿自動監測站之懸浮微粒資料，由表 7 中得知沙鹿地區細微粒 $\text{PM}_{2.5}$ 平均濃度為 $44.07 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ， $\text{PM}_{2.5-10}$ 粗微粒平均濃度為 $24.72 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ， PM_{10} 平均濃度為 $68.79 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ，而 $\text{PM}_{2.5}/\text{PM}_{10}$ 之比值為 $0.48 \sim 0.76$ ，顯示沙鹿地區採樣期間之微粒分佈主要以 $\text{PM}_{2.5}$ 之細懸浮微粒為大多數。

表 7 為沙鹿地區手動採樣與沙鹿自動測站採樣資料之關係，由表中可看出 $\text{PM}_{2.5}$ 手動/自動數值為 $0.15 \sim 0.97$ ，差異最大日期出現於 10/30， PM_{10} 手動/自動數值為 $0.38 \sim 0.96$ ，差異最大日期與 $\text{PM}_{2.5}$ 相同都出現於 10/30，結果顯示自動採樣之濃度都高於手動採樣之濃度值。

表 4 二林自動監測站採樣資料

	Day 1	Day 2	Day 3	Day 4	Day 5	Day 6	Day 7	Day 8	Day 9	Day 10	Day 11	Day 12
$\text{PM}_{2.5}$	30.38	20.71	50.94	47.22	33.23	65.58	37.21	52.63	22.22	17.88	18.92	24.75
$\text{PM}_{2.5-10}$	21.33	18.00	26.81	24.70	19.41	21.58	14.29	20.17	21.22	14.25	15.42	21.46
PM_{10}	51.71	38.71	77.75	71.91	52.64	87.17	51.50	72.79	43.43	32.13	34.33	46.21
$\text{PM}_{2.5}/\text{PM}_{10}$	0.59	0.53	0.66	0.66	0.63	0.75	0.72	0.72	0.51	0.56	0.55	0.54

*濃度單位: $\mu\text{g}/\text{m}^3$

表 5 二林地區手動採樣與自動採樣關係

	Day 1	Day 2	Day 3	Day 4	Day 5	Day 6	Day 7	Day 8	Day 9	Day 10	Day 11	Day 12
$\text{PM}_{2.5}$ 手動/自動	0.40	0.90	0.94	0.41	0.56	0.80	0.15	0.27	0.90	0.49	0.94	0.49
PM_{10} 手動/自動	0.41	0.65	0.89	0.31	0.41	0.65	0.13	0.29	0.93	0.49	0.78	0.46
RH(%)	74.9	81.5	79.4	81.9	84.3	83.1	77.9	77.0	72.5	73.3	79.0	84.5
T(°C)	27.0	25.6	22.5	23.9	24.9	25.7	26.0	27.0	28.5	28.9	24.0	22.7
WS(m/s)	2.6	2.3	1.4	2.3	1.3	1.6	1.4	1.3	3.6	4.5	3.2	2.4

表 6 沙鹿自動監測站採樣資料

	Day 1	Day 2	Day 3	Day 4	Day 5	Day 6	Day 7	Day 8	Day 9	Day 10	Day 11	Day 12
PM _{2.5}	31.88	26.04	45.48	74.58	77.83	32.79	32.79	39.38	41.39	41.17	37.78	47.71
PM _{2.5-10}	34.00	24.00	24.35	24.00	29.46	20.96	24.71	24.38	29.65	22.00	18.78	20.33
PM ₁₀	65.88	50.04	69.83	98.58	107.29	53.75	57.50	63.75	71.04	63.17	56.57	68.04
PM _{2.5} / PM ₁₀	0.48	0.52	0.65	0.76	0.73	0.61	0.57	0.62	0.58	0.65	0.67	0.70

*濃度單位: $\mu\text{g}/\text{m}^3$

表 7 沙鹿地區手動採樣與自動採樣關係

	Day 1	Day 2	Day 3	Day 4	Day 5	Day 6	Day 7	Day 8	Day 9	Day 10	Day 11	Day 12
PM _{2.5} 手動/自動	0.83	0.97	0.84	0.65	0.70	0.88	0.86	0.67	0.60	0.42	0.15	0.90
PM ₁₀ 手動/自動	0.77	0.85	0.73	0.66	0.72	0.96	0.88	0.81	0.83	0.78	0.38	0.88
RH(%)	56.5	65.0	66.9	67.7	75.9	73.2	75.3	74.6	74.4	76.7	79.0	66.0
T(°C)	21.8	22.3	23.5	24.3	24.1	23.2	24.0	25.0	26.3	25.4	23.8	20.5
WS(m/s)	5.9	3.0	1.5	1.5	1.8	3.9	2.7	1.7	2.0	2.7	3.5	5.7

3.6 影像指標值與測站資料關係

本研究利用研發出之影像指標數值分析軟體針對擷取之大氣影像進行分析，並進一步了解對距離監測地點較近之測站監測結果之關係，選擇特定時段內之影相指標值與監測數據進行回歸分析。

二林地區影像指標數值與二林監測站之 PM_{2.5} 資料整體關係為負相關， R^2 為 0.61，影像指標數值與二林監測站之 PM₁₀ 資料整體關係為負相關， R^2 為 0.43。

沙鹿地區影像指標數值與沙鹿監測站之 PM_{2.5} 資料整體關係為負相關， R^2 為 0.73，影像指標數值與沙鹿監測站之 PM₁₀ 資料整體關係為負相關， R^2 為 0.44。

3.7 氣象局人工能見度與自動測站資料關係

本研究收集台中梧棲氣象測站之能見度資料與地點較近之沙鹿監測站之監測資料進行比較，進一步針對由人工判定之大氣能見度與自動測站監測資料之間關係，選擇特定時段內之能見度與 PM_{2.5}、PM₁₀ 懸浮微粒濃度數據進行回歸分析。

氣象站能見度與沙鹿監測站之 PM_{2.5} 監測資料整體關係為負相關， R^2 為 0.56，氣象站能見度與沙鹿監測站之 PM₁₀ 監測資料整體關係為負相關， R^2 為 0.77。

4 結論

本研究已建立中尺度大氣環境監測系統可有效地將大氣能見度與大氣影像進行即時擷取與紀錄，同時已建立大氣影像數位分析之軟體。

二林地區手動採樣之結果， $PM_{2.5}$ 平均濃度為 $24.22 \mu g/m^3$ ， PM_{10} 平均濃度為 $32.38 \mu g/m^3$ ；台中地區手動採樣之結果，細微粒 $PM_{2.5}$ 平均濃度為 $30.66 \mu g/m^3$ ， PM_{10} 平均濃度為 $52.45 \mu g/m^3$ ，兩地區主要粒徑以 $PM_{2.5}$ 分佈為主；手動採樣與自動測站採樣資料之關係，其結果為兩地區懸浮微粒濃度，都為自動測站值較手動採樣值為高。

能見度與 $PM_{2.5}$ 資料分析之結果，在兩地區之成果顯示能見度與 $PM_{2.5}$ 呈現負相關趨勢，顯示當能見度越高時 $PM_{2.5}$ 為越低的， PM_{10} 之結果亦同；影像指標數值與 $PM_{2.5}$ 資料分析之結果，在兩地區之成果顯示影像指標數值與 $PM_{2.5}$ 資料呈現負相關趨勢，顯示當影像指標數值越高時 $PM_{2.5}$ 為越低的， PM_{10} 之結果亦同；梧棲氣象站之能見度與沙鹿監測站資料分析之結果，顯示能見度與 $PM_{2.5}$ 呈現負相關趨勢，顯示當能見度越高時 $PM_{2.5}$ 為越低的， PM_{10} 之結果亦同。

5 謝誌

感謝國科會及環境保護署空污基金提供經費贊助此研究，研究團隊致上最高敬意。

6 參考文獻：

- 吳岳崧，微氣候對台北盆地能見度之影響研究，國立中山大學環工所碩士論文，2005。
- Y.I. Tsai, Atmospheric visibility trends in an urban area in Taiwan 1961-2003, *Atmospheric Environment*, 39(2005), 5555-5567.
- C.S. Yuan and H.Y. Yang, A study on the relationship of visibility with suspended particles and meteorological factors in Kaohsiung metropolitan area, 1997 International Conference on Aerosol Technology/Environmental Measurement and Control Proceedings (1997), 334-354.
- R. Sequeira, and K.H. Lai The effect of meteorological parameters and aerosol constituents on visibility in urban Hong Kong, *Atmospheric Environment*, 32(1998), 2865-2877.
- S.C. Pryor, R. Simpson and S. Sakiyama Visibility and aerosol composition in the Fraser Valley during reveal, *Journal of the Air and Waste Management Association*, 47(1997), 147-156.
- T.E. Dzubay, R.K. Steven, C.W. Lewis, D.H. Hern, W.J. Courtney, J.W. Tesch and M.A. Mason, Visibility and aerosol composition in Houston, Texas, *Environmental Science and Technology*, 16(1982), 514-525.
- N.P. Hyslop, Impaired visibility: the air pollution people see. *Atmospheric Environment*, 43(2009), 182-195.
<http://vista.cira.colostate.edu/improve/Overview/Overview.htm>
- R.C. Gonzalez and R.E. Woods, *Digital Image Processing*, Pearson Education Inc, Prentice Hall(2002).
- 羅金翔，溫哲彥 應用數位影像處理技術偵測環境目標物之視覺極限，*弘光學報*，35(2000)，139-149。
- C.H. Luo, S.H. Liu and C.S. Yuan, Investigate atmospheric visibility by the digital telephotography, *Aerosol and Air Quality Research*, 2(2002), 23-29.
- C.H. Luo, J.J. Liaw, C.Y. Wen, C.S. Yuan and C.C. Lo, Investigate urban atmospheric visibility by high frequency extraction: model development and field test, *Atmospheric Environment*, 39(2005), 2545-2552.
- C.H. Luo, C.S. Yuan, J.J. Liaw, C.Y. Wen, and S.C. Chang, Estimation of urban atmospheric visibility by the wavelet transform analysis, *Aerosol and Air Quality Research*, 5(4) (2005), 41-49.
- D. B ämer, S. Versick and B. Vogel, Determination of the visibility using a digital panorama camera, *Atmospheric Environment*, 42(2008), 2593-2602.
- C.H. Luo, K.H. Lin, C.Y. Wen, S.H. Chiu, C.S. Yuan and S. Yang, Suburban atmospheric visibility sensing by an image degradation processor: model development and field test, in press by *International Journal of Remote Sensing* (2011).

混合气溶胶吸湿性研究

(马庆鑫¹, 刘畅², 马金珠¹, 贺泓¹)

1 中国科学院生态环境研究中心, 北京, 100085;

2 中国气象科学研究院, 北京, 100081

摘 要: 气溶胶颗粒物在大气中广泛存在, 对人体健康具有负面影响, 也是全球气候变化模式预测最不确定的因素之一^[1]。因此, 研究气溶胶颗粒在大气传输过程中的各种物理化学性质变化, 尤其是对吸湿性的研究, 对于进一步认识气溶胶颗粒的健康效应和气候效应具有重要的意义。

大气颗粒物通常是多种组分以外混或者内混状态存在。以往关于颗粒物的吸湿性研究, 通常只研究水蒸气在单一组分颗粒物表面的吸附和脱附过程; 在混合组分吸湿性的研究中, 也很少涉及颗粒物中不同组分在吸湿过程中的相互影响。

二元羧酸是大气气溶胶中有机酸的主要成分, 也是大气有机气溶胶的重要组成部分。二元羧酸被认为是有效的云凝结核, 能够参与成云过程, 影响大气辐射平衡^[2]。外场观结果表明, 二元羧酸在大气中常常与矿质颗粒物或者海盐气溶胶混合^[3,4]。虽然对于二元羧酸、矿质颗粒物或海盐气溶胶的单一组分的吸湿性已经有很多研究, 但是对于这些组分的混合颗粒物的吸湿性还少见报道。在本研究中, 我们采用拉曼光谱仪和水蒸气吸附仪研究了二元羧酸与矿质颗粒物以及海盐颗粒物的混合物的吸湿性。

研究表明, 乙二酸与 $\text{Ca}(\text{NO}_3)_2$ 的混合物在吸湿过程中能够发生反应, 使得酸性较弱的乙二酸能够置换酸性较强的硝酸, 从而极大地改变混合物的吸湿性^[5]。而 NaCl 与二元羧酸在吸湿过程中的反应可能性取决于二元酸的酸性。 NaCl 与乙二酸混合物在吸湿过程中发生化学反应, 形成乙二酸钠, 明显的降低颗粒物在高相对湿度下的吸水量; NaCl 与丙二酸混合物在吸湿过程中反应较弱, 对混合颗粒物在高相对湿度下的吸水量影响不明显, 但是混合物的潮解点明显降低; NaCl 与丁二酸混合物在吸湿过程中没有反应发生, 对吸湿性也没有明显影响。本研究结果对于认识矿质气溶胶、海盐气溶胶与有机气溶胶混合物的吸湿性具有重要意义。

关键字: 海盐; 二元羧酸; 混合物; 吸湿性; 复合效应

参考文献

IPCC, Climate Change 2007

Yu, S., *Atmos. Res.*, 2000, 53, 185-217.

Sullivan, R. C.; Prather, K. A., *Environ. Sci. Technol.* 2007, 41 (23), 8062-8069.

Alexander Laskin, R. C. M., Mary K. Gilles, Jerome D. Fast, Rahul A. Zaveri, Bingbing Wang, Pascal Nigge, Janani Shutthanandan, *J. Geophys. Res.* **2012**, 117, D15302.

Ma, Q., and He, H., *Atmos. Environ.*, 2012, 50, 97-102.

联系人: qxma@rcees.ac.cn; honghe@rcees.ac.cn

基金项目: 国家自然科学基金 (No. 21107129, 20937004)

雾化液滴对湿法采集纳米 TiO₂ 气溶胶的影响研究

(茆平¹², 冯曙艳¹, 杨毅^{12*}, 刘梦楚¹, 周阳¹, 陈守文¹², 王正萍¹²)

1 南京理工大学环境与生物工程学院, 南京, 210094

2 南京理工大学连云港研究院, 连云港, 222006

摘要: 为掌握雾化液滴对提高湿法采样器对纳米气溶胶采集效率的影响作用, 考察了不同喷雾流量和雾化室尺寸对采集效率的影响, 并通过 Fluent 软件仿真模拟不同尺寸雾化室内雾化液滴的运动状况, 了解液滴对湿法采集的影响机理。研究结果表明, 雾化室中的液滴作用以润湿包覆为主, 而储液腔中的液滴主要以碰撞凝并实现对气溶胶粒子的捕获, 润湿包覆对纳米 TiO₂ 气溶胶粒子的采集效果大于碰撞凝并的捕获效果。当雾化室和储液腔的喷雾流量均控制为 40ml/min 时, 湿法采样器的采集效率可达到最高(92%)。仿真和实验结论均表明, 雾化室的最佳尺寸是高度 170mm、内径 60mm。
关键词: 湿法采样器, 雾化液滴, 采集效率, 仿真模拟

Effect of Atomized Droplets for Wet Collecting of Nano-TiO₂ Aerosols

Ping Mao¹² Shuyan Feng¹ Yi Yang^{12*} Mengchu Liu¹ Yang Zhou¹ Shouwen Chen¹² Zhengping Wang¹²

1 School of Environmental and Biological Engineering, Nanjing University of Science and Technology, Nanjing, 210094

2 Lianyungang Institute of Nanjing University of Science and Technology, Lianyungang, 222006

Abstract: In order to further know well the function and influence of atomized droplets for collection efficiency in wet sampler. The effects of different spray flow rates and spray tower sizes on collection efficiency were investigated by self-made wet sampler, and the movement of atomized droplets in spray tower with different dimensions were simulated via the Fluent software. The results indicated that the chief function of atomized droplets in spray tower was wetting coating, and the mainly function of atomized droplets in fluid reservoir was collection; however, the former contribution is greater than the latter. The collection efficiency of wet sampler could be as high as 92% with both flow rates of atomized droplets were 40ml/min. Simulation and experimental results showed that the best of dimension of the spray tower is height 170mm and inner diameter of 60mm.

Key Words: wet sampler, atomized droplets, collection efficiency, analogue simulation

***基金项目:** 江苏省环保厅环保科研项目 (No.2012015)、连云港社会发展科技项目 (No.SH1203)、连云港科技基础建设项目 (No.JC1203) 南京理工大学连云港研究院自主科研项目 (No.NUSTLYG-2012-001)

作者简介: 茆平, 男, 1987.10, 博士研究生。

通讯作者: 杨毅, 男, 1973.10, 副研究员, 博士生导师。主要从事微纳米气溶胶检测技术研究。E-mail: yyi301@163.com

1. 前言

纳米气溶胶与人类的生活、健康密切相关，是危害人体健康和影响环境的重要因素^[1]。它可以通过呼吸沉积于人体肺泡内并进入血液循环系统危害人类健康，由于其表面能大，表面活性高，从而其更能够吸附周围大量的有毒有害物质，因此纳米气溶胶对人体的危害性和不确定性远远大于一般的可吸入颗粒物^[2-5]。其次，气溶胶对气候环境也有重要影响，主要通过直接辐射强迫和间接气候效应两个方面来实现。比如充当云凝结核和冰核就是间接气候效应；而直接辐射强迫的有散射和吸收太阳辐射，散射、吸收或发射长波辐射^[6,7]。另外，它还能够通过对太阳辐射的吸收和散射来降低地表太阳的辐射，影响地面水分蒸发，影响水分循环。这些都能够影响到地球的能量和水分的平衡，从而对气候变化有影响^[8]。同时，气溶胶还能够影响到大气的能见度，臭氧层的破坏，酸雨的形成以及沙尘暴的产生等极端恶劣天气。

近年来，随着大气环境的不断恶化，关于气溶胶粒子的湿法采样研究也越来越受到重视。Agranovski^[9-11]等人采用在采样器中装有能使液体形成泡沫的滤板和防止气体带出泡沫的约束网等部件开发出多孔介质泡沫采样器；Mainelis^[12]等人利用离心力原理设计出一款自激式湿法采样器；Khlystov^[13]等人利用雾化和旋风分离系统研究了蒸汽射流气溶胶采样器；乔治亚理工大学的 Weber^[14,15]利用饱和蒸汽增长粒子粒径的原理研发出一套新型的湿法采样器（PILS）。前两款采样器虽然在实验室中使用效果良好，但至今未能被广泛利用，究其主要原因在于其采集效率不稳定，这是由于环境中粒子粒径不均一导致的，而采样器本身未能在捕获粒子前将粒子适当进行表面润湿改性；而后两款恰恰均采用了润湿增大粒子原理，因此它们早已在气溶胶粒子采样市场中占有一席之地。然而利用饱和蒸汽法包覆提高颗粒粒径，这对于气溶胶粒子中高温易分解的组分很不利，所以为避免造成采样误差，拓展湿法采样器的使用范围，势必需要开展非饱和蒸汽法包覆粒子的技术研究。之前 Brendan 等人^[16]研究发现被液相包覆的颗粒物更易被气溶胶质谱仪（AMS）的采集并检测到，而液相包覆的厚度越厚，采集效率越高；而且 Allan 等人^[17]在早期的研究中也发现采样环境的相对湿度越高，AMS 的采集效率越高。但是都未能系统的研究常温常压下雾化液滴对湿法采样效果的影响，因此本文着重考察雾化液滴在湿法采样器中的作用以及其对采样器采集效率的影响。

2. 实验与方法

2.1 湿法采样器

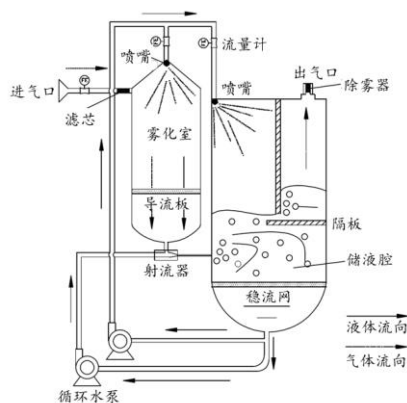


图 1 湿法采样器结构原理图

Fig1 Theschematicdiagram of the self-made wet sampler

湿法采样器的结构原理如图 1 所示，由雾化室、射流器和储液腔等主要部件组成。雾化室是由圆锥形顶盖、圆柱状筒身和半球形底座构成，在顶盖的锥心处安装有 FN 型雾化喷头（上海守望者喷雾智能系统有限公司），顶盖与筒身连接处有一进气口，在筒身的下半段装有用产生液膜的多孔导流板，底座的中心处设有一出口；射流器是基于伯努力方程原理工作的，其进液口直径大于出液口直径，促使穿过射流器的液体提速，从而在进气口处产生负压，利用此负压可抽吸外界气体或液体；储液腔是由带有出气口和雾化喷头的不锈钢平板顶盖、圆柱形筒身和带有出液口的半球形底座组成，筒体中分别装有一块阻止雾滴泄漏和一块稳定液面的实心不锈钢隔板，在筒体下沿设置一块用于阻止捕集液携带气泡的多孔稳流网。

2.2 实验方法

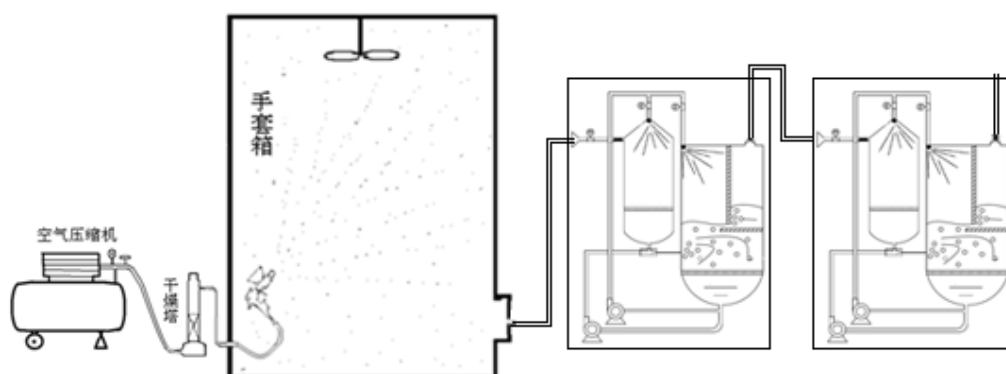


图 2 实验装置连接图

Fig2 The connection diagram of the experimental apparatus

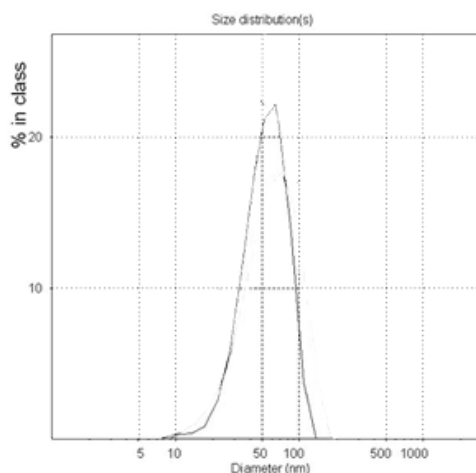


图 3 纳米 TiO₂ 粉末粒径分布图

Fig3 Diameter curves of nano-TiO₂

将实验装置按图 2 所示组装后，将粒径约为 65nm（粒径分布见图 3 所示）的纳米二氧化钛粉末（江苏河海纳米科技股份有限公司）加入 K-3 型喷枪（台州奥利达五金制造有限公司）进料口中，调节

喷枪喷嘴喷射角度，随后通过控制喷枪开关，在不低于 4bar 压力的压缩气体（由空气压缩机（鑫磊工贸有限公司）产生）作用下对纳米粉末进行冲散喷射，保持手套箱内纳米二氧化钛气溶胶的浓度为定值，再利用加湿器（北京亚都科技股份有限公司）、除湿器（上海斯信电子科技有限公司）控制手套箱内的相对湿度在 30% 左右，微型取暖器（上海帅格电器有限公司）控制手套箱内的温度在 25℃ 左右，调节微型风扇（台州市中联电器有限公司）对手套箱内气溶胶进行扰动，使得气溶胶粒子均匀飞散，确保手套箱中的各处浓度、浓度、相对湿度保持一致。

随后，在 1 号湿法采样器中射流器形成的负压作用下，形成的纳米二氧化钛气溶胶由捕集口经过滤芯过滤杂质后到达雾化室中，在室内与雾化液滴碰撞润湿聚合，再与由下落液滴形成并铺展在导流板上的液膜充分接触，随后气液混合物共同被吸入射流器后快速射入储液槽中，储液槽中二次雾化液滴再次与含尘气体以湍流的形式充分混合，雾化液滴在隔板上碰撞后形成较大液滴流下，而气体则通过隔板与捕集液液面间微小空隙（“液封”段）离开储液槽，最后经过除雾器进入 2 号采样器。2 号湿法采样器同原理再次捕集剩余气体中的气溶胶粒子。

2.3 采集效率的计算

课题组采用串联法[18]计算采样器的采集效率。此方法仅需检测出各采样器中捕集液的采集量或浓度，有效解决了现有采样器效率算法对其他同类仪器的严重依赖性 or 必须准确掌握环境中粉尘浓度的影响等问题。利用此方法计算采样器的采集效率时，需假设模拟的气溶胶浓度为恒定值， C_0 ；采样器气密性良好，无漏气现象；两台采样器的各性能参数（如采集效率、捕集液量、气体流量和液体流量等）一致；气流中的粒子通过采样器时无残留或损失（即粒子只能被捕集液捕获或随尾气排出采样器）。

采集效率公式的详细推导在专利号为 ZL200910233001.X 中详细说明，现列出最终公式：

错误!未找到引用源。 (1)

其中： m_1 ——1 号采样器采集到的粉尘质量，mg；

m_2 ——2 号采样器采集到的粉尘质量，mg；

c'_1 ——1 号捕集液中的粉尘颗粒的浓度，mg/L；

c'_2 ——2 号捕集液中的粉尘颗粒的浓度，mg/L；

η ——采样器的采集效率。

3 结果与讨论

3.1 雾化液滴的作用与对采样效果的影响

在本湿法采样器各捕集部件中，涉及雾化作用的有储液腔和雾化室两处，现探究各雾化液滴的作用及对采样效果的影响。将两台采样器的各参数设置如下：气体流量为 5.5L/min，采集时间为 2h，模拟的纳米气溶胶的浓度约为 2.0mg/m³。由于采样器的两个喷嘴是由同一台循环泵提供动力（如图 1），循环泵最大能够产生流量为 80ml/min 的雾化液滴，所以两个喷嘴流量之和约为 80ml/min（即 $v_{\text{雾化室喷雾}} + v_{\text{储液槽喷雾}} = 80\text{ml/min}$ ）。

从表 1 可以看出，采集效率随雾化室喷雾流量的增加从 72.8% 升至 90.4% 后降低到 82%。这说明两处

雾化液滴对采样器采样性能都具有积极作用，而对比仅有一个雾化喷嘴正常工作时（即储液槽喷雾流量为 80ml/min 或雾化室喷雾流量为 80ml/min）的采集效率不难发现，仅有雾化室喷嘴时的采集效率（82%）明显高于仅有储液腔喷嘴时的采集效率（72.8%），说明在采样器内，雾化室内的雾化作用不同于储液腔的雾化作用，而且雾化室的喷雾对采集效率的影响作用大于储液腔的喷雾。

表 1 喷雾流量对采集效率的影响

Table1 Effect of spray flow rate on collection efficiency

雾化室喷雾流量 (ml/min)	储液腔喷雾流量 (ml/min)	采集效率 (%)					平均采集效率 (%)
0	80	71	75	72	70	76	72.8
30	50	78	76	77	79	79	77.8
40	40	90	92	90	92	88	90.4
80	0	82	83	80	84	81	82

在湿法采样器中，雾化液滴的作用一般分为两种，一是与粒子碰撞聚合，润湿并包裹粒子，增加颗粒的粒径和提高粒子的球形完整度；二是与粉尘粒子碰撞后，带动粒子进入捕集液，直接捕获粉尘颗粒。结合本采样器的结构和实验数据，可以发现在雾化室内雾化液滴的润湿增大粒子粒径作用大于碰撞捕获作用，而且在储液槽中雾化液滴恰恰相反，其碰撞捕获作用大于润湿增大粒子粒径作用。

3.2 Fluent 软件仿真模拟雾滴在雾化室中的运动状况

为获取雾化室的最佳结构和直观掌握液滴在雾化室内的运动状况，利用 Fluent 软件仿真模拟不同尺寸雾化室环境下液滴的运动轨迹和速度分布。

由于在湿法采样器雾化室内，液滴颗粒所占的体积分数较小（<10%），所以采用欧拉-拉格朗日方法，将雾滴处理为离散相，空气处理为连续相。采用标准的 k-ε 模型进行计算。选取的雾化室的模拟尺寸分别是高度为 170mm 的 80mm、60mm 两种内径尺寸，内径为 60mm 的 220mm、170mm 和 120mm 三种高度尺寸。

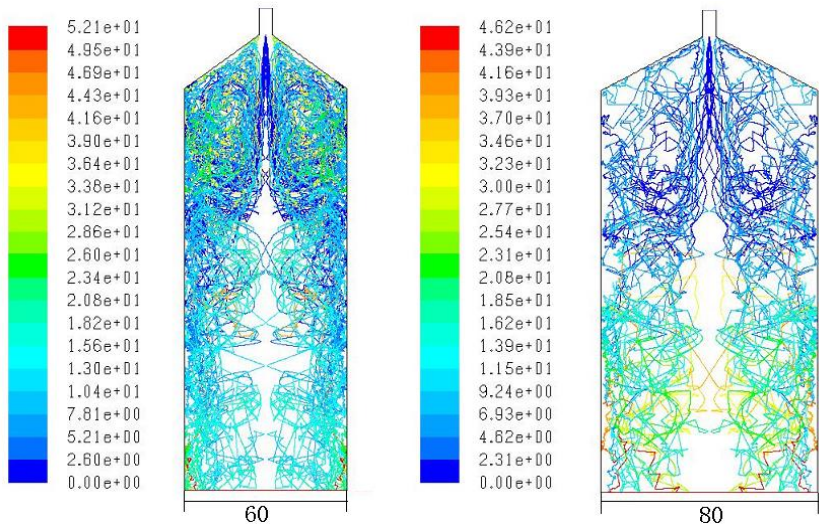


图 4 不同内径的雾化室中液滴的运动轨迹图

Fig4 Trajectory diagram of atomized droplets in spray towers with different diameter

图 4 显示的是在不同内径的雾化室中液滴颗粒的模拟运动轨迹，较为明显地发现液滴颗粒在内径小的雾化室中运动轨迹的路线更长，碰撞更激烈，且越紊乱。金向红等人[19]曾研究发现液滴在雾化室内将不断的碰撞、聚结或破碎，部分液滴会迁移到达室壁，并以一定的速度与室壁发生碰撞，碰撞后的液滴被吸附在筒壁上形成液膜，或者原状反弹出来，或者破碎飞溅，而液膜在重力作用下会沿筒壁向下流动。

对于液滴碰壁形式的判断，Escure[20]等人提出的判断准则。其定义为：

$$K = We_l^{0.5} Re_l^{0.25} = \frac{\rho_p^{0.75} (|u_n|)^{1.25} d_p^{0.75}}{\sigma_p^{0.5} \mu_p^{0.25}} \quad (2)$$

其中，We——碰撞韦伯数；

Re_l——液滴雷诺数；

ρ_p ——液滴的密度，kg/m³；

u_n ——液滴的法相速度，m/s；

d_p ——液滴的直径，m；

σ_p ——液滴的表面张力，N/m；

μ_p ——液滴的粘度，Pa·s。

当 $K \leq 3$ 时，液滴碰壁后反弹；当 $3 < K \leq 57.7$ 时，液滴碰壁后沉积；当 $K > 57.7$ 时，液滴碰壁后飞溅。

根据本湿法采样器的结构和实验参数，将相关数据代入式（1）可计算液滴与室壁碰撞的系数：

$$K = We_l^{0.5} Re_l^{0.25} = \frac{\rho_p^{0.75} (|u_n|)^{1.25} d_p^{0.75}}{\sigma_p^{0.5} \mu_p^{0.25}} = 1.84 (|u_n|)^{1.25}$$

而液滴的法向速度错误!未找到引用源。，则：

$$K = 1.84 (|u_n|)^{1.25} = 4687.9 \sin \theta_1^{1.25}$$

所以，当错误!未找到引用源。时，错误!未找到引用源。，液滴与室壁碰撞后破碎飞溅，将形成更小粒径的液滴在雾化室内紊乱碰撞；当错误!未找到引用源。时，错误!未找到引用源。，液滴与室壁碰撞后将沉积在壁面上形成液膜；当错误!未找到引用源。时，错误!未找到引用源。，液滴与室壁碰撞后将反弹出来。

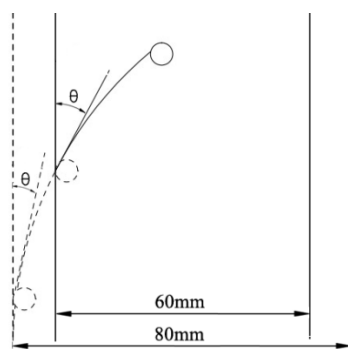


图 5 颗粒与室壁碰撞夹角示意图

Fig5 Angle diagram of atomized droplets collide with the wall

如图 5 所示，当雾化室内径变大后，液滴与室壁碰撞的夹角将减小，从而根据上述推导结论可知，内径增加后势必减少碰撞后破碎飞溅的液滴数量，从而降低雾化室内液滴的数浓度，这也正与 Fluent 软件模拟的大内经雾化室内的液滴运动轨迹的激烈程度不如小内经的雾化室的结论一致。

图 6 显示的是不同高度的雾化室中的液滴颗粒的运动轨迹图，图 8 中两幅图分别表示的是轴线上液滴的湍流状况和速度的分布散点。从图 6 中可以发现，三种尺寸内雾滴距室顶距离一致处的运动轨迹基本一致，同时此现象也与图 7 中的速度和湍流分布基本一致，但是随着液滴运行距离的增加，它们各项性能都在急剧下降。这说明随着雾化室高度的增加，能够增加液滴与气溶胶在雾化室内的停留时间，但是并不能显著提高液滴与粒子的碰撞几率。另外，考虑运行距离的增加，粒子损失的加剧和导流板上液膜质量下降等原因，本实验选取高度为 170mm 为最佳高度。

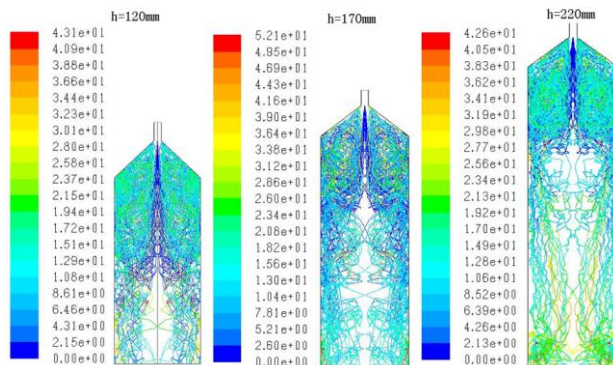


图 6 液滴在不同高度的雾化室内运动轨迹

Fig6 Trajectory diagram of fog drops in spray towers with different height

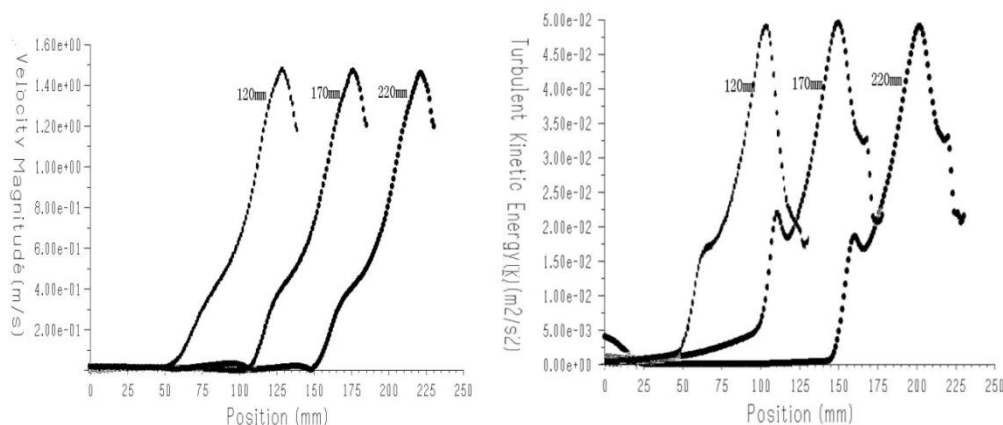


图 7 喷嘴轴线上湍流状况和速度分布散点图

Fig7 Theurbulence distribution and the velocity distribution in the axis of nozzle

3.3 雾化室尺寸对采样效果的影响

为验证 Fluent 软件与理论分析结果的准确性，选取不同尺寸的雾化室，考察雾化室尺寸对采集效率的影响，参考 Fluent 软件模拟的条件，分别如下表所示尺寸的雾化室。

表 2 雾化室的尺寸

Table2The size of the spray towers

名称	高度 (mm)	内径 (mm)
雾化室 1	170	60
雾化室 2	170	80
雾化室 3	120	60
雾化室 4	220	60

表 3 不同雾化室尺寸对采集效率的影响

Table3 Effect of spray towers with different size on collection efficiency

名称	采集效率 (%)					平均采集效率 (%)
雾化室 1	90	92	90	92	88	90.4
雾化室 2	60	65	70	67	62	64.8
雾化室 3	74	65	76	71	70	71.2
雾化室 4	70	76	77	86	88	79.4

由表 3 可以看出, 采用雾化室 1 的采样器的采集效率明显高于其他尺寸雾化室的采样器。对比雾化室 1 和 2 发现雾化室内径为 60mm 的采样器采集效率远大于雾化室内径为 80mm 的采样器, 这与 Fluent 软件模拟的结果一致, 原因也在上节给予详细叙述; 而对比同一内径的雾化室 1、3、4 发现, 170mm 高度的雾化室的采集效率最佳, 此结果也与 Fluent 软件模拟的结果一致, 而雾化室 3 的采集效率较低, 这是由于较高的雾化室增加了液滴与气溶胶粒子的碰撞时间, 提高了液滴包裹粒子的几率和厚度, 便于粒子在后续捕获进程中更易被捕集, 而雾化室 4 的采集效率不如雾化室 1, 这是由于随着雾化液滴运行距离的增加, 与室壁碰撞后粘附形成液膜的液滴数量也在不停地增加, 从而导致与粒子碰撞的液滴迅速下降, 所以采集效率未能持续提高; 另外, 由于液滴在雾化室中心位置数量的减小, 也降低了雾化室导流板上液膜的质量, 从而造成采样器采集效率的下降。

4 结论

本文研究了湿法采样器中雾化液滴的作用, 以及雾滴对采集效率的影响, 主要得到以下几点结论:

- (1) 雾化液滴在湿法采样器中的作用主要有润湿并包覆气溶胶粒子, 增加粒子的粒径, 提高粒子在后续捕集阶段被捕获的几率; 撞击并与粒子聚合, 利用惯性将粒子带入捕集液, 从而达到捕集效果;
- (2) 在雾化室内雾滴的作用主要是润湿并包覆气溶胶粒子; 而储液腔内雾滴的主要作用是捕获气溶胶粒子;
- (3) 当雾化室喷雾流量和储液槽喷雾流量均为 40ml/min 的最佳条件下, 湿法采样器的采集效率能高达 92%;

(4) Fluent 软件模拟与实验结果一致表明,雾化室尺寸对采集效率有一定的影响,内径的增加将降低空间内液滴的数量,若高度过低将缩短液滴与粒子碰撞的几率,而高度过高将造成粘附于室壁的液滴数量增加,导流板液膜质量下降,从而采样器采样效率下降。对于本湿法采样器,雾化尺寸的最佳尺寸是高度为 170mm,内径为 60mm。

参考文献:

- 李尉卿. 大气气溶胶污染化学基础[M]. 郑州: 黄河水利出版社, 2010.
- Y.Behenoush, M. K.Christy, S. H.Matthew, et al. Characterization of Airborne Particles during Production of Carbonaceous Nanomaterials[J]. Environmental Science Technology, 2008, 42(12):4600-4606.
- G.Oberdörster, Z. Sharp, V. Atudorei, et al. Translocation of Inhaled Ultrafine Particles to the Brain [J]. Inhalation Toxicology, 2004, 16(6-7): 437-445.
- Y.Kawanaka, Y. Tsuchiya, S. J. Yun, et al. Size Distributions of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in the Atmosphere and Estimation of the Contribution of Ultrafine Particles to their Lung Deposition [J]. Environmental Science Technology, 2009, 43(17):6851-6856.
- K. L. Ludwig, W. Peter, P.Manser, et al. Exposure of Engineered Nanoparticles to Human Lung Epithelial Cells: Influence of Chemical Composition and Catalytic Activity on Oxidative Stress [J]. Environmental Science Technology, 2007, 41(11):4158-4163.
- 董俊玲, 张仁健, 符淙斌. 中国地区气溶胶气候效应研究进展[J]. 中国粉体技术, 2010, 16(1):1-4.
- 吴蓬萍, 韩志伟. 中国夏季硫酸盐气溶胶间接辐射强迫的数值模拟[J]. 中国粉体技术, 2010, 16(1):65-67.
- 冯晶, 肖冰, 陈敬超. 纳米材料对生物体及环境的影响[J]. 材料科学与工程学报, 2006, 3(24): 462-465.
- I. E. Agranovski, V. Agranovski, A. A. Grinshpun, et al. Collection of Airborne Microorganisms into Liquid by Bubbling through Porous Medium [J]. Aerosol Science and Technology, 2002, 36:502-509.
- I. E. Agranovski, T. Myojo, R. D. Braddock. Removal of Aerosols by Bubbling through Porous Media Submerged in Organic Liquid [J]. Chemical Engineering Science, 2002, 57: 3141-3147.
- I. E. Agranovski, R. D. Braddock, T. Myojo. Removal of Aerosols by Bubbling Through Porous Media [J]. Aerosol Science and Technology. 1999, 31: 249-257.
- G. Mainelis, D. A. Masquelier, K. Willeke, et al. Performance of a Compact Air-to-liquid Aerosol Collector with High Concentration Rate [J]. Aerosol Science, 2006, 37(5):645-657.
- A. Khlystov, G. P. Wyers and J. Slantia. The Steam-jet Aerosol Collector [J]. Atmospheric Environment, 1995, 29(17): 2229-2234.
- R. J. Weber, D. Orsini, Y. Daun, et al. A Particle-into-Liquid Collector for Rapid Measurement of Aerosol Bulk Chemical Composition [J]. Aerosol Science and Technology, 2001, 35:718-727.
- N. Rastogi, M. M. Oakes, R. J. Weber, et al. New Technique for Online Measurement of Water-Soluble Fe(II) in Atmospheric Aerosols [J]. Environ. Sci. Technol. 2009, 43: 2425-2430.
- B. M. Matthew, A.M. Middlebrook and T. B. Onasch. Collection Efficiencies in an Aerodyne Aerosol Mass Spectrometer as a Function of Particle Phase for Laboratory Generated Aerosols [J]. Aerosol Science and Technology, 2008, 42:884-898.

J. D.Allan, K. N.Bower, H.Coe, et al. Submicron Aerosol Composition at Trinidad Head, California, during ITCT 2K2: Its Relationship with Gas Phase Volatile Organic Carbon and Assessment of Instrument Performance [J]. Journal Geophysical Research: Atmospheres, 2004, 109: D23S24 1-16.

杨毅, 陈守文, 王正萍等. 微纳米粉尘采样器效率评定方法. 中国国家专利, 专利号: ZL200910233001. X.

金向红, 金有海, 王建军. 气液旋流器内液滴破碎和碰撞的数值模拟[J]. 中国石油大学学报(自然科学版), 2010, 34(5): 114-120, 1.

C.Escure, M.Vardelle, P.Fauchais. Experimental and theoretical study of the impact of alumina droplets on cold and hot substrates [J]. Plasma Chemistry and Plasma Processing, 2003, 23(2): 185-221.

Water-soluble secondary organic aerosol in Qinghai Lake: implication for sources, formation, and degradation during long-range transport

(Jingjing Meng¹, Gehui Wang^{1,2,}, Jianjun Li¹, Chunlei Cheng¹, Junji Cao¹)*

¹ *State Key Laboratory of Loess and Quaternary Geology, Institute of Earth Environment, Chinese Academy of Sciences, Xi'an 710075, China*

² *School of Human Settlements and Civil Engineering, Xi'an Jiaotong University, Xi'an 710049, China*

Abstract: PM_{2.5} aerosol sampling for collection of 24 h samples was carried out every day from Qinghai Lake (3200m a.s.l.), a remote continental site in the northeastern part of Tibetan Plateau from July to August 2010. To better understand the production of water-soluble organic aerosols, the samples were analyzed for water-soluble dicarboxylic acids (C₂-C₁₁) and related compounds (ketocarboxylic acids and α -dicarbonyls), as well as organic carbon (OC), elemental carbon (EC), water-soluble organic carbon

(WSOC), and water-soluble inorganic ions. Distributions of dicarboxylic acids and related compounds were characterized by a predominance of oxalic acid ($29.3 - 347.6 \text{ ng m}^{-3}$, $148.2 \pm 83.9 \text{ ng m}^{-3}$) followed by malonic ($9.3 - 77.6 \text{ ng m}^{-3}$, $27.2 \pm 15.5 \text{ ng m}^{-3}$) and succinic ($3.6 - 29.3 \text{ ng m}^{-3}$, $14.5 \pm 8.0 \text{ ng m}^{-3}$) acids. The average contributions of diacids, ketoacids and dicarbonyls to WSOC were 44.1%, 1.3%, and 0.4 %, respectively. They were several times higher than those reported in north-western cities from which air masses were transported to the Qinghai Lake, indicating an importance of photochemical processing of aerosols during a long-range transport. The diacids/WSOC and C_9 /diacids ratios were higher than those reported previously in different atmosphere aerosols, which may indicate that the local aerosols were chiefly influenced by the biomass burning (herbages and dung) and photochemical oxidations were enhanced because of the stronger solar radiation. This study demonstrated that diacids were primarily produced by the secondary photochemical oxidation of organic pollutants and ω -oxoacids were likely intermediates to the production of dicarboxylic acids.

Keywords: Oxalic acid; secondary organic aerosols; $\text{PM}_{2.5}$; Qinghai Lake

Particle size distribution and characteristics of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons during an autumn haze episode in Nanjing, China

(Qingzi Meng¹, Shuxian Fan^{1,2}, Fan Zu¹, Jiabao He¹, Jian Zhang¹, Yu Sun¹)

1. Department of Atmospheric Physics, Nanjing University of Information Science and Technology, Nanjing 210044, China

2. Key Laboratory for Meteorological Disaster, Ministry of Education, Nanjing University of Information Science and Technology, Nanjing 210044, China

Abstract: The purpose of this study is to understand the characteristics of pollution and distribution of polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) in fine ($\text{PM}_{2.1}$) and coarse ($\text{PM}_{2.1-10}$) particles at suburban and city site during an autumn haze episode in Nanjing. PM_{10} samples were collected from Nov. 1, 2009 to Nov. 14, 2009. Filter samples were extracted by using Soxhlet and analyzed by using a gaseous chromatograph/mass spectrometer (GC-MS). Sixteen PAHs were measured at day and night of suburban

and city site in this study. The results show that the concentrations of particles could be as high as 579.55 and 573.43 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ at suburban and city site during the haze episode, it was 3-4 times higher than normal days and the proportion of fine particles in the haze episode was also higher than normal days; the varies of concentration of PAHs were in accord with the concentration of particles. The concentrations of particles and PAHs at night were higher than in the daytime both at city and suburban site during the haze episode; the main kinds of PAHs in particles were the high-molecular-weight PAHs which make up approximately 80% of the total PAHs no matter in normal days or haze episode. It also turns out that wet removal mechanism has strong scavenging ability for pollutants, especially for the fine fraction; the spectral distribution of PAHs was the transfer of coarse fraction to fine fraction and this phenomenon was most obvious at night at city site, which indicates that the emission sources and the condition of boundary layer play important roles in the distribution and concentration of PAHs; the concentration of CAN-PAHs is relatively higher at both sampling sites and periods, the highest proportion of CAN-PAHs appear at the night of city site, it was as high as 52% of total PAHs, it is higher risk exposures for the people in Nanjing.

Keywords: Polycyclic aromatic hydrocarbons; Haze episode; Particle size distribution; Meteorological conditions; Nanjing

Ambient Ammonia and Ammonium Observed at a Remote Mountain Site in Western China

(Zhaoyang Meng¹, Xiaofang Jia², Jianzhong Ma¹, JianQiong Wang³, Xiaolan Yu¹, YiAn Jiang⁴)

¹ Key Laboratory for Atmospheric Chemistry of CMA, Institute of Atmospheric Composition,
Chinese Academy of Meteorological Sciences, Beijing 100081, China.

² CMA Meteorological Observation Centre, Beijing 100081, China

³ Qinghai Province Meteorological Bureaus, Xining 810001, China

⁴ Department of Logistic Service, Ministry of Railways of China, Beijing 100844, China

KEYWORDS:Ammonia, ammonium, a remote mountain site in China

1. Introduction

Ammonia is a very reactive gas and plays a major role in the neutralization of atmospheric sulfuric and nitric acid to form ammonium salts, thereby affecting the acidity of cloud water and aerosols.¹⁻⁴ Some studies show that the spatial variability of the NH_3 concentration was large in China, with higher levels in North, Southwest and East China.⁵⁻⁶ The measurements of NH_3 and $\text{PM}_{2.5}$, particularly those from the background sites, are highly needed but have been scarcely reported. It is important to create databases suitable for the proper validation of models used to predict global or regional distributions of ammonia and ammonium aerosol, and their present and future influences on climate, human health, and ecosystems. The data of NH_3 and $\text{PM}_{2.5}$ may also be useful in the validation of satellite measurements.

With an average altitude of over 4000 m, the Qinghai-Tibetan Plateau is the highest landmass on Earth, and plays a key role in atmospheric circulation. The atmosphere lying over the Plateau is probably the least affected by human activities in the Asian continent because of the sparse population and minimal industrial activities in western China.⁷ In this paper, we present the measurements of NH_3 , SO_2 , NO_2 and $\text{PM}_{2.5}$ at a site in the northeastern edge of Plateau during 2009-2011 in order to better understand the sources of ammonia and ammonium aerosol over the remote highlands of western China. The levels and variations of these species are reported and the relative contributions of NH_3 to NH_x deposition are also investigated.

2. Description of Experiment

2.1 Measurement Site

The Waliguan Observatory (WLG, 36°17'N, 100°55'E, 3816 m a.s.l.) is a Global Atmosphere Watch baseline station, situated on the northeastern edge of the Qinghai-Tibetan Plateau. NH_3 , SO_2 and NO_2 samples were collected using Ogawa passive samplers. The samplers were deployed by trained WLG station operators in the thermometer screen (1.5 m above the ground), which protects the samplers from rain and direct sunshine. At WLG, each sampler was exposed about 10 days and a total of 183 samples were collected at the site from September 2009 to December 2010.

2.2 Experimental Methods

In the laboratory, the exposed samples as well as the field and laboratory blank samples were extracted and analyzed following the manufacturer's protocols. NH_3 and SO_2 samples were analyzed using an ion chromatographer (DX-3000, Dionex, US). The concentrations of NO_2 were determined using a spectrophotometer (WFZUV-2100, China).

Daily aerosol $\text{PM}_{2.5}$ samples were collected using the MiniVol portable sampler (Airmetrics, Oregon, USA) operating at a flow rate of 5 L/min from June 2010 to July 2011 at WLG. The sampling duration was continuously 10 days and a total of 47 valid $\text{PM}_{2.5}$ samples were collected. The concentrations of NH_4^+ , NO_3^- , SO_4^{2-} and Cl^- in $\text{PM}_{2.5}$ samples were also determined by using Dionex ICS-3000.

3. Results and Discussion

3.1 Ambient Ammonia

The 10-day average concentrations of NH_3 at WLG ranged from 0.5 to 65.9 ppb, with the mean value of 17.2 ± 15.6 ppb. The mean NH_3 value at WLG was higher than that (11.5 ± 8.4 ppb) observed in the corresponding period at Shangdianzi ($40^\circ 39' \text{N}$, $117^\circ 07' \text{E}$, 293.3 m a.s.l.) regional background station in Northern China. The NH_3 level at WLG in this study was also higher than that (16.5 ± 1.1 ppb) during 2009-2010 at Lin'an ($30^\circ 18' \text{N}$, $119^\circ 04' \text{E}$, 138.6 m a.s.l.) regional background station in the southern edge of the Yangtze Delta region in China. The NH_3 level at WLG was lower than that (20.1 ppb) measured during 2009-2010 at Longfengshan (44.73°N , 127.6°E , 310 m a.s.l.) regional background station in the northeast China.

Figure 1 shows that the peak NH_3 value was 65.9 ppb on 11-21 July and the lowest concentrations of NH_3 (0.5 ppb) appeared on 3-11 November 2010. The maximum value of NH_3 is consistent with the highest ambient temperature in July. NH_3 exhibited a distinct and significant temporal variation with higher concentrations in summer than in other season, especially in winter at WLG. Seasonal average concentrations of NH_3 at WLG were 18.0, 35.3, 15.1 and 9.8 ppb in spring, summer, autumn and winter, respectively. This seasonal cycle in ambient concentrations is in agreement with the temperature dependence of aqueous-phase partitioning between NH_3 and NH_4^+ , as well as the equilibrium between aqueous- and gas-phase NH_3 as predicted by Henry's law, which results in increasing ammonia emissions from animal manure, soils, and vegetation with increasing temperature.⁸

In Qinghai province, the cattle's grazing is a major activity, and many areas in the region are heavily fertilized with animal waste. The emission from soils and cattle grazing may be one of the main sources for NH_3 at WLG. NH_3 levels were higher during warm months due to ammonia emissions from soils and cattle grazing increasing with temperature at WLG.

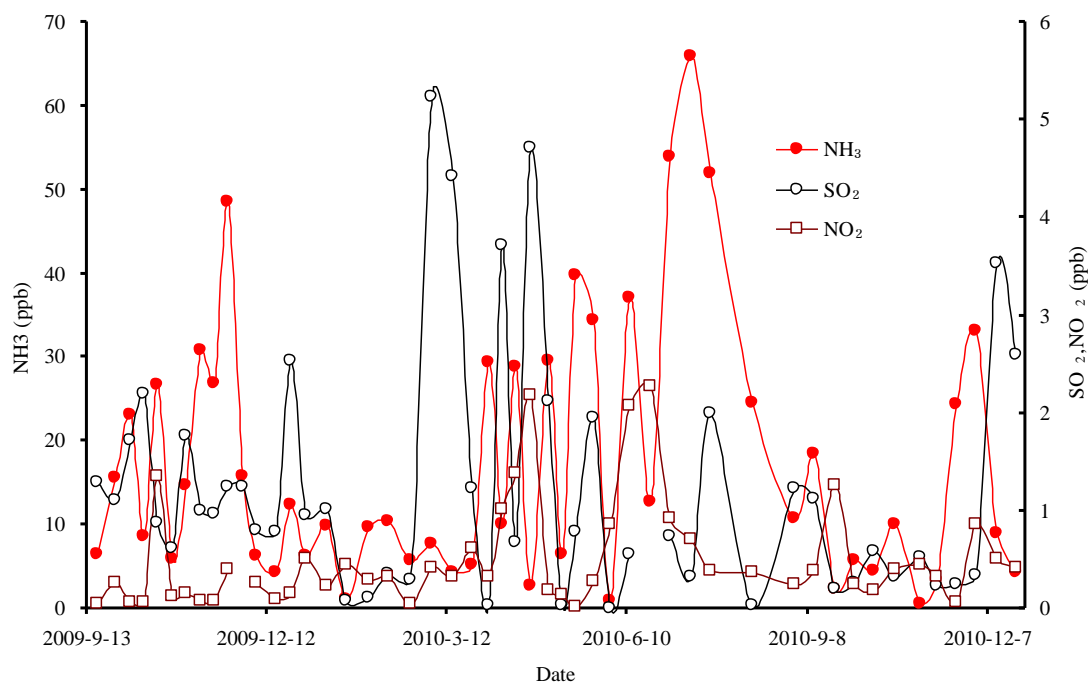


Figure 1. Temporal Variation of the 10-day Average NH_3 , SO_2 and NO_2 Concentration at WLG from September 2009 to December 2010.

The season cycles of SO_2 and NO_2 were different than with NH_3 . At WLG site, the average level of SO_2 was 2.3 ppb in spring and the average concentration was 0.7 ppb in summer. The lowest concentrations of NO_2 appeared in winter and the highest levels of NO_2 were observed in summer. This indicates a different source of NH_3 than with SO_2 and NO_2 . Since WLG is one of the global baseline stations in the WMO/GAW network, the low level of SO_2 and NO_2 are consistent with the remoteness of the site.

3.2 Ambient Ammonium Aerosol

The 10-daily average concentrations of $\text{PM}_{2.5}$ at WLG were in the range of 5.05–55.1 $\mu\text{g}/\text{m}^3$, with a mean and SD of 16.4 ± 9.71 $\mu\text{g}/\text{m}^3$. The average concentration of total water-soluble ion in $\text{PM}_{2.5}$ was 5.79 ± 2.38 $\mu\text{g}/\text{m}^3$, accounting for 35% of $\text{PM}_{2.5}$ mass concentration. Especially, the secondary aerosol components SO_4^{2-} , NO_3^- and NH_4^+ shared the largest part of the total water-soluble ions (79%).

With respect to the percentage of the total mass, on average, SO_4^{2-} was the most important species on average in $\text{PM}_{2.5}$ at WLG. Nitrate contributes more significantly to the total mass during colder months when SO_2 oxidation rates are reduced in response to lower concentrations of oxidants such as OH.

The daily NH_4^+ concentrations ranged from 0.11 to 1.30 $\mu\text{g}/\text{m}^3$, and the average concentration within one standard deviation was 0.57 ± 0.34 $\mu\text{g}/\text{m}^3$. The average concentrations of SO_4^{2-} , NO_3^- and Cl^- in $\text{PM}_{2.5}$ at WLG were 3.16 ± 1.47 , 0.82 ± 0.53 and 0.23 ± 0.24 $\mu\text{g}/\text{m}^3$, respectively.

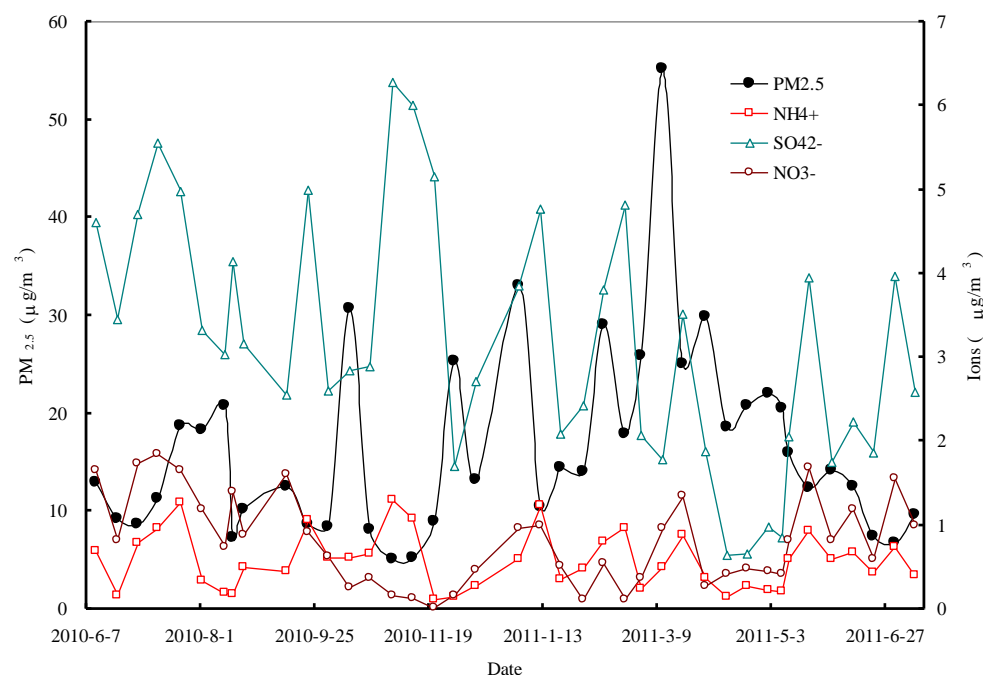


Figure 2. Temporal Variations of the Daily PM_{2.5} and Ionic Species Concentration at WLG from June 2010 to July 2011.

As shown in Figure 2, strong temporal variations in PM_{2.5} mass concentrations were observed at WLG. The high PM_{2.5} episode occurred in spring due to the intrusion of dust from the northwest of China. For example, the highest value of 10-day average PM_{2.5} mass (55.1 µg/m³) occurred when a super dust storm attacked WLG on 11-21 March 2010. The minimum 10-day average value of PM_{2.5} (5.1 µg/m³) occurred on 1-11 November.

The highest daily concentration of NH₄⁺ (1.30 µg/m³) occurred on 22 July-1 August and the lowest value (0.11 µg/m³) on 12-16 August 2010 at WLG. The average concentrations of NH₄⁺ were 0.53, 0.67, 0.48 and 0.53 µg/m³ in spring, summer, autumn and winter, respectively. It was noted above NH₄⁺ concentration was higher in summer. SO₄²⁻ concentrations were also higher in spring and summer due to the preference of the formation of (NH₄)₂SO₄. The average concentrations of SO₄²⁻ in spring, summer, autumn and winter were 3.80, 3.72, 2.20, 2.25 µg/m³, of NO₃⁻ were 1.34, 0.44, 0.57, 0.95 µg/m³, respectively. The results showed clearly that the concentrations of the secondary ions for NH₄⁺ and SO₄²⁻ were higher in spring and summer and lower in autumn and winter.

The average concentrations of NO₂ were 1.0 and 0.3 ppb in summer and autumn, respectively. NO₃⁻ is from NH₄NO₃ that is generally formed by the oxidation of NO_x to form the gas phase of nitric acid and then with

the reaction with NH_3 .

3.3 Relationship between Ammonia and Ammonium Aerosol

There was significant positive correlation between NH_4^+ and SO_4^{2-} at WLG. The correlation coefficient (R) of NH_4^+ versus SO_4^{2-} was 0.70. This indicates that particulate NH_4^+ was probably mainly associated with particulate SO_4^{2-} , likely to be as $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ and/or NH_4HSO_4 at WLG.

The ratio of NH_3 to NH_x ($\text{NH}_3 + \text{NH}_4^+$) had been used to identify the source of NH_x and the relative contribution of NH_3 and NH_4^+ to NH_x deposition.⁹ When the value is higher than 0.5, it signifies that NH_x is mainly from local NH_3 sources and the dry deposition of NH_3 contributes most to NH_x deposition. The mean ratio of NH_3/NH_x was 0.95, which suggests that NH_x was influenced by local sources at WLG. It also can be inferred that NH_3 dry deposition could contribute a large part of the NH_x deposition.

4. Conclusion

The average concentration of NH_3 and NH_4^+ were 17.2 ± 15.6 ppb and 0.57 ± 0.34 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ at WLG station. NH_3 concentrations were highest in summer and lowest in winter at WLG, while highest NH_4^+ concentrations occurred in summer. The soils emission, cattle grazing, air temperature and gas-to-particle conversion reactions have important influences on this seasonality. At WLG site, NH_3 is primarily in the gas phase during all seasons, and NH_x is strongly influenced by local NH_3 sources and dry deposition of NH_3 . More future studies are needed to pin down the sources/causes of ammonia and ammonium aerosol in the remote atmosphere of western China, and to study the potential impacts of the transport of regional pollution from populated eastern China and from other parts of the world.

Acknowledgements

This study was supported by National Natural Science Foundation of China (40975081), National Basic Research Program of China (2010CB428503), and Basic Research Fund of CAMS (2011Z003). The authors thank the staff of WLG Regional Background Station for carrying out the routine observations.

References

- [1]Roelle, P. A.; Aneja, V. P. Atmos. Environ. 2002, 36, 1087–1097.
- [2]Heeb, N. V.; Forss, A.-M.; Brühlmann, S.; Lüscher, R.; Saxer, C.J.; Hug, P. Atmos. Environ. 2006, 40, 5986–5997.
- [3]Alebic-Juretic, A. Environ. Pollut., 154, 439–447, 2008.
- [4] Cao, J. J., Zhang, T., Chow, J. C., Watson, J. G., Wu, F., and Li, H. Aerosol Air Qual. Res. 2009, 9, 277–289.
- [5] Meng, Z.Y.; Lin, W.L.; Jiang, X.M.; Yan, P.; Wang, Y.; Zhang, Y.M.; Jia, X.F.; Yu, X.L. Atmos. Chem. Phys. 2011, 11, 6139–6151.
- [6]Meng, Z. Y.; Xu, X.B.; Wang, T.; Zhang, X. Y.; Yu, X. L.; Wang, S. F.; Lin, W. L.; Chen, Y. Z.; Jiang, Y.A.; An, X. Q. Atmos. Environ. 2010, 44, 2625–2631.
- [7]Wang, T.; Wong, H. L. A.; Tang, T.; Ding, A.; Wu, W. S.; Zhang, X. C. J. Geophys. Res. 2006, 111.
- [8]Asman, W.A., Sutton, M.A., Schjöring, J.K. New Phytol. 1998, 139, 27–48.
- [9]Walker, J. T.; Whitall, D. R.; Robarge, W.; Paerl, H. W. Atmos. Environ. 2004, 38, 1235–1246.

西安水溶性类腐殖质气溶胶（HULIS）的污染特征及其来源

(倪海燕¹, 韩永明^{2*}, 曹军骥²)

1 西安交通大学, 西安, 710049;

2 中国科学院地球环境研究所, 西安, 710075

摘 要: 类腐殖质气溶胶 (HULIS) 是大气有机气溶胶的主要组成部分, 对云凝结核的形成和气溶胶吸湿性增长至起着重要作用, 但是 HULIS 的性质和来源在很大程度上仍是未知的。本文使用固相萃取法获得了 2008 年 7 月至 2009 年 8 月间西安 $PM_{2.5}$ 中的 HULIS, 并采用热光法获得 HULIS 的碳含量 (HULIS-C)。HULIS-C 年均质量浓度为 $3.1 \pm 3.0 \mu\text{gC m}^{-3}$ 。HULIS 含量冬季最高 ($6.2 \mu\text{gC m}^{-3}$), 秋季次之 ($3.3 \mu\text{gC m}^{-3}$)、夏季 ($1.5 \mu\text{gC m}^{-3}$) 和春季较低 ($1.2 \mu\text{gC m}^{-3}$)。冬季高浓度的主要原因是冬季能源消耗量大, 比如燃煤和生物质燃烧; 而春夏季低浓度主要是由于较少的能源消耗和较丰富的降水。HULIS 是水溶性有机碳 (WSOC) 的重要组分, 占 WSOC 的 34.5%, 表明其是影响 WSOC 吸湿性的重要组分; 相关性分析表明, HULIS 与左旋葡聚糖 ($r=0.84$) 和 K^+ ($r=0.81$) 呈显著相关, 说明 HULIS 主要来源于生物质燃烧; 此外, HULIS 与二次有机碳 (SOC) 相关性良好 ($r=0.83$), 表明 HULIS 同时有二次来源。

关键字: 类腐殖质气溶胶, HULIS, $PM_{2.5}$, 西安

乌鲁木齐市大气 $PM_{2.5}$ 和 $PM_{2.5-10}$ 中有机碳、元素碳的粒径分布及季节性分布

(热比古丽·达木拉¹ 迪丽努尔·塔力甫¹ 王新明² 丁翔² 阿不力孜·伊米提¹)

(1. 新疆大学化学化工学院, 新疆 乌鲁木齐 830046; 2. 中国科学院广州地球化学研究所, 广东 广州 510640)

摘要: 采用 NL20 型级式采样器, 于 2011 年 1 月至 2011 年 12 月, 在乌鲁木齐市新疆科学院院内设置采样点, 采集 PM_{2.5} 和 PM_{2.5-10} 样品。并用碳分析仪测定样品中有机碳(OC)和元素碳(EC)的含量, 考察了有机碳和元素碳的季节变化特征及粒径分布分布特征。研究表明: PM_{2.5} 中的 OC 和 EC 浓度变化范围为 3.3~61.8, 0.7~4.9 (μg/m³), PM_{2.5-10} 为 1.1~7.3, 0.1~2.5 (μg/m³), 其中冬季 PM_{2.5} 的质量浓度(299.3 μg/m³)、PM_{2.5} 的中 OC 浓度(29.3 μg/m³)、PM_{2.5-10} 的质量浓度(116.5 μg/m³)、PM_{2.5-10} 中 OC 浓度(3.9 μg/m³) 均为四个季节中最高, 即 PM_{2.5} 和 PM_{2.5-10} 中的 OC 和 PM_{2.5-10} 中的 EC 浓度相同地呈现出冬季>秋季 > 春季>夏季的季节变化特征, 而 PM_{2.5} 中 EC 则有冬季>秋季 >夏季 >春季的季节变化特征; 在乌鲁木齐市冬季, 采暖燃烧的煤是 OC 和 EC 的主要贡献源, 造成 OC 大大高于 EC, 从而使 OC / EC 比值增大。各种气象条件对 PM_{2.5}、PM_{2.5-10}、OC、EC 和 OC/EC 比值的变化都有不同程度的影响, 特别是大雾天气、相对湿度、风速和降雪是影响碳气溶胶浓度变化的重要因素。

关键词: PM_{2.5}, PM_{2.5-10}, 有机碳; 元素碳, 乌鲁木齐

Characterization on Carbonaceous Aerosols in PM_{2.5} and PM_{2.5-10} in Urumqi, China

Rabigul Damulla¹, Dilnur talip¹, wang xin ming²

(1 College Of Chemistry And Chemical Engineering, Xinjiang University, Analysis Chemistry 830046, china)

(2 State Key Laboratory of Organic Geochemistry, Guangzhou Institute of Geochemistry Chinese Academy of Sciences, Guangzhou 510640, China)

Abstract: Chemical characteristics and possible sources of fine particular matter (PM_{2.5}, PM_{2.5-10}) was investigated for 1 year in Urumqi. PM_{2.5} and PM_{2.5-10} was collected from January 2011 to December 2011. which carbonaceous species, organic carbon (OC) and elemental carbon (EC), in the samples were analyzed. Seasonal variations of OC and EC concentrations were investigated; results showed that carbonaceous concentrations varied in wide ranges with 10.3 ~ 559.0 (ug/m³) for PM_{2.5}, 16.7 ~ 218.8 (ug/m³) for PM_{2.5-10}. carbonaceous concentrations varied in wide ranges with 3.3~61.8 and 0.7~4.9 (ug/m³) for OC and EC in the PM_{2.5}; Carbonaceous concentrations varied in wide ranges with 1.1~7.3 and 0.1~2.5 (ug/m³) for OC and EC in the PM_{2.5-10}. On seasonal average, the highest PM_{2.5} (299.3 ug/m³) and OC (29.3 ug/m³) levels; PM_{2.5-10} (116.5 ug/m³) and OC (3.9 ug/m³) levels occurred during winter. The seasonal average concentrations of PM_{2.5} and PM_{2.5-10} organic carbon levels ranked by the order of winter > autumn > summer > spring, while the seasonal average concentrations of EC (PM_{2.5-10}) were in the order of winter > autumn > spring > summer. The

average OC/EC ratio 6.1 for $PM_{2.5}$ or $PM_{2.5-10}$ was comparable with most urban cities in the world. the stronger correlation between OC and EC ($R>0.8$) showed that there were similar OC and EC emissions in Urumqi.

Key words : $PM_{2.5}$; $PM_{2.5-10}$; Organic Carbon ; Elemental Carbon ;Urumqi

前言

近年来,全球人为排放的气溶胶粒子急剧增多并认为是影响大气环境和气候重要的因素之一。气溶胶粒子主要有矿物、硫酸盐、海盐和碳气溶胶等组成。碳气溶胶是大气气溶胶的重要组成部分,对全球气候变化、辐射强迫、能见度、环境质量、人类健康等会产生重要影响^[1]。研究表明人类的许多疾病如癌症、呼吸系统疾病、肺功能下降、免疫力降低等都可能与之相关。碳气溶胶主要来源于化石等燃料燃烧,一般可分为有机碳(Organic Carbon, OC)和元素碳(Elemental Carbon, EC)^[2]。有机碳(OC)并不是特定分子组成的一种或一类有机物,它是由成百上千种有机化合物组成如烷烃、烯烃、羧酸、酸、和芳香族化合物,如多环芳香族碳氢化合物(PAHs)^[3]。从饱和蒸汽压的角度,可以分为挥发性有机物(VOCs)、半挥发性有机物(SVOCs)以及不挥发性有机物;OC包括污染源直接排放的一次有机碳和碳氢化合物通过光化学反应等途径生成的二次有机碳(Secondary Organic Carbon, SOC)。EC是黑色的,又被称为碳黑(Black Carbon)或石墨碳,由化石燃料或木材等生物质的不完全燃烧产生并由污染源直接排放,故EC只存在于由污染源直接排放的一次气溶胶中,是判断大气污染来源的一个重要参数^[4-5];EC也是一个极其重要的引起全球变暖的物质,其原因首先在于吸光性,即能够辐射大气中的热量,提高空气温度。其次,当EC沉积在雪和冰时,能够吸收更多的热量,加速冰、雪融化^[6]。因此,系统、准确地观测城市大气中OC和EC的含量并考察其污染特征具有重要的现实意义。

乌鲁木齐市位于新疆中部,地处天山北麓、准噶尔盆地南缘。迅猛发展的城市化进程使得区内人口及机动车数量急剧增长,各类工业污染源向大气的排放也逐年增加,由此产生的大气气溶胶引起城市产生雾霾(haze)天气导致空气能见度下降,对居民的日常生活与工作已产生了不良影响。此研究以乌鲁木齐大气可吸入颗粒物 $PM_{2.5}$ 和 $PM_{2.5-10}$ 为研究对象,探讨OC、EC在两种粒径中的浓度分布、来源及不同季节的分布特征。

1 样品采集和分析

1.1 采样点

从2011年1月至2011年12月每月连续不少于五天的采样,共采12个月,采集 $PM_{2.5}$ 和 $PM_{2.5-10}$ 共计106个环境样品。采样点设在位于乌鲁木齐市新市区的中科院新疆分院新疆天文站大楼3层楼侧($42^{\circ}35'53.02''N$, $89^{\circ}09'02.56''E$),距地面高度9m。此点距乌鲁木齐市主干道—北京路500m,居次车道200m,可以排除汽车尾气及道路尘的干扰。

1.2 样品的采集

采样设备有日本生NL20型撞击式大气颗粒物采样头、转子流量计、真空泵组成。采样流量为20L/min,

每次采样时间设定为 24h。采样滤膜选用石英纤维滤膜(英国 Whatman 公司)。采样前滤膜在 450℃下灼烧 4 h、冷却,样品采集前后滤膜恒湿恒重 48 h,用 Sartorius (1 / 10⁵) 电子微量天平称量直至恒重为止。根据采样前后滤膜的质量差和大气的采样体积确定大气颗粒物的质量浓度,滤膜于 4℃下在冰箱中保存,待测。

1.3 样品的分析

样品中 EC 和 OC 的浓度采用美国 Sunset Laboratory Inc 的碳分析仪进行分析(中国科学院广州地球化学研究所有机重点实验室)。该仪器的工作原理是热/光吸收,是目前最先进的 EC 和 OC 分析方法之一。

样品分析前首先运行 CLEANOVEN 程序,清除仪器中可能存在的干扰物。然后在干净的空白石英纤维滤膜上用微量进样针加入浓度为 8.525g/l 的标准蔗糖溶液 10 μ l,标准样品的回收率为 95%~104%。分析时随机选取部分样品,进行平行样分析,相对标准偏差分别为: EC=8.5%, OC=3.5%, TC=2.6%。对所有采样点的野外采样空白进行分析。以野外采样空白值的三倍作为检测限(LOD)。EC 和 OC 的检测限分别为: 0.00 和 0.6 μ g/m³。

2 结果与讨论

2.1 PM_{2.5} 与 PM_{2.5-10} 的质量浓度分布

由图 1 可知,采样期间 PM_{2.5}、PM_{2.5-10} 质量浓度日均值的变化范围分别为 10.3-559.0 μ g/m³ 和 16.7-218.8 μ g/m³, 平均值分别为 101.2 μ g/m³ 和 64 μ g/m³。采样点 PM_{2.5} 日均值是国家标准的 1.35 倍(75 μ g/m³), 是美国标准的 1.56 倍(65 μ g/m³), 全年有 28d PM_{2.5} 的质量浓度超标, 占采样天数的 45.2%。采样期间 PM_{2.5}、PM_{2.5-10} 浓度 ($\rho_{PM_{2.5}}$ 、 $\rho_{PM_{2.5-10}}$) 变化趋势与 $\rho_{PM_{2.5}}/\rho_{PM_{2.5-10}}$ 浓度变化趋势相似。大部分采样日期 $\rho_{PM_{2.5}}$ 略高于 $\rho_{PM_{2.5-10}}$, 尤其冬季(11、12、1、2 月) $\rho_{PM_{2.5}}$ 更高; $\rho_{PM_{2.5}}/\rho_{PM_{10}}$ 变化较大, 介于 0.28 与 0.72 之间, 其平均为 0.61。从图中又可以看出冬季颗粒物浓度比较大, 尤其是 1 月 27、28、29, 2 月 4 日。这几日乌鲁木齐市均出现了大雾天气, 由于大气低空稳定层内空气湿度的增大, 并受下沉气流冷空气的影响, 形成雾滴, 释放大量液化热, 稳定层内大气温度升高, 雾层顶部出现梯度很强的逆温层, 成为覆盖在城市上空的盖子, 污染物不能向上部扩散。又由于低空稳定层结构稳定, 雾层内水平方向的风也难以形成, 所以雾层内的污染物也不能水平扩散到雾层外, 最终致使雾层成为浓度很大的污染物聚集区^[7], 而使得可吸入颗粒物的质量浓度急剧升高。

PM_{2.5} 与 PM_{2.5-10} 的质量浓度季节变化特征如图 2、3 所示, 在一年中冬季(12 月, 1 月, 2 月) $\rho_{PM_{2.5}}$ 、 $\rho_{PM_{2.5-10}}$ 分别达到 306.9 和 6.5 μ g/m³, 是四个季节中的最高值, $\rho_{PM_{2.5}}$ 、 $\rho_{PM_{2.5-10}}$ 均呈现出冬季>秋季>春季>夏季的季节变化特征。图 2、3 进一步说明在冬季无论是 PM_{2.5} 还是 PM_{2.5-10} 其质量浓度的变化范围较大, 这主要与乌鲁木齐市冬季大气气象因素的多变性有关; 对于细颗粒(PM_{2.5})而言, 夏季(6、7、8 月)所采集样品的质量浓度变化不大, 而粗粒子(PM_{2.5-10})则在秋天(9、10、11 月)质量浓度的变化范围较小。

表 1 乌鲁木齐市气溶胶中 PM_{2.5} 和 PM₁₀ 的浓度跟其他城市比较

Table1 Concentration of PM_{2.5}, PM₁₀ between Urumqi and other cities (μ g/m³)

Particle size	Sampling point	Average	Season	Reference
---------------	----------------	---------	--------	-----------

			Spring	Summe	Autum	Winte	
PM _{2.5}	Nanjing	98.8	90.1	109.6	102	100.5	[8]
	Urumqi	101.2	53.1	39.6	88.9	299.3	This study
	Beijing	87.7					[9]
	Taiyuan	193.4					[4]
	Tianjin					124.4	[10]
	Wuhan				104.2	137.0	[2]
PM ₁₀	Guangzhou	105.9					
	Dongying	121.87		121.87			[1]
	Urumqi	170.6	110.6	84.9	149.8	415.8	This study
	Beijing	155.37					[9]
	Taiyuan					224.6	[10]
	Wuhan				153.9	239.1	[11]
	Guangzhou	161.7					[2]

与其他城市相比（表 1 所示），乌鲁木齐大气 $\rho_{PM_{2.5}}$ 的年平均值虽然不是最高，但冬季为最高。由于很高的冬季的质量浓度使得 $\rho_{PM_{10}}$ 的年平均值处于较高的水平。这主要是由于冬季乌鲁木齐市冬季采暖以燃煤为主，再加上冬季乌鲁木齐市由于降雪、融雪使得空气湿度大，大气静风频率高污染物易于富集和进行水相反应，从而增加可吸入颗粒物在冬季的污染水平。

2.2 PM_{2.5} 与 PM_{2.5-10} 中 OC 和 EC 的浓度特征

PM_{2.5} 中 OC 和 EC 的浓度（OC_{PM_{2.5}}、EC_{PM_{2.5}}）变化范围分别为 3.3~61.8 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ，0.7~4.9 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ （如图 4），计算得 OC 和 EC 的日均值分别占 PM_{2.5} 质量浓度的 11.5% 和 2.2%，PM_{2.5-10} 中 OC 和 EC 的浓度（OC_{PM_{2.5-10}}、EC_{PM_{2.5-10}}）变化范围分别为 1.1~7.3 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 和 0.1~2.5 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ，计算得 OC_{PM_{2.5-10}}、EC_{PM_{2.5-10}} 日均值分别占 PM_{2.5-10} 质量浓度的 3.9% 和 0.8%。图 4（A）可以看出 OC_{PM_{2.5}}/OC_{PM₁₀} 介于 0.697~0.911 之间，平均比值为 0.795。OC_{PM_{2.5}}/OC_{PM₁₀} 变化趋势与 OC_{PM_{2.5}} 质量浓度的变化趋势相同，即夏季最低，从春季（3、4、5 月）到冬季逐渐增加。由图 4（B）可知，EC_{PM_{2.5}}/EC_{PM₁₀} 的值介于 0.569~0.956 之间，平均值为 0.819；EC_{PM_{2.5}}/EC_{PM₁₀} 变化趋势于 EC_{PM_{2.5}} 质量浓度的变化趋势有所不同，从春季到秋季 EC_{PM_{2.5}}/EC_{PM₁₀} 随 EC_{PM_{2.5}} 质量浓度的增大而增大，但冬季随 EC_{PM_{2.5}} 的浓度增大而有减小的趋势。这表明春、夏、秋三个季节大气中 EC 的增加以主要以细粒子为主，而冬季 EC 在粗粒子（PM_{2.5-10}）的增加速率大于细粒子（PM_{2.5}）的增加速率。这可能是由于乌鲁木齐冬季空气湿度较大，经常出现雾，浓雾天气，而雾天又会影响到大气颗粒物的粒度分布，使得大气颗粒的数浓度远大于非雾期间的浓度，而且可能会导致内部混合颗粒物、二次有机化合物和超细颗粒物的生成^[12]。

2.3 PM_{2.5} 与 PM_{2.5-10} 中 OC 和 EC 的季节变化特征

PM_{2.5-10} 与 PM_{2.5} 中 OC 和 EC 的季节变化特征如图 5(A)(B)所示，即在一年中深冬季节（乌鲁木齐的 12 月，1 月，2 月）PM_{2.5} 中的 OC 和 EC 平均浓度分别达到 30.4，3.6 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ，PM_{2.5-10} 中的 OC 和 EC 平均浓度分别达到 3.9，1.2 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 。所以冬季 PM_{2.5} 和 PM_{2.5-10} 的浓度、OC 和 EC 值在四季中最高。所以冬季 PM_{2.5} 和 PM_{2.5-10} 的浓度、OC 和 EC 值在四季中最高。总之，PM_{2.5} 和 PM_{2.5-10} 中的 OC 和 PM_{2.5-10} 中的 EC 浓度相同地呈现出冬季>秋季>春季>夏季的季节变化特征，而 PM_{2.5} 中 EC 则有冬

季>秋季 >夏季 >春季的季节变化特征。

表 2 不同季节 PM_{2.5} 与 PM_{2.5-10} 中 OC、EC、TC 浓度 (μg/m³) 及 OC/EC

Table2 The concentration of TC , OC, EC (μg/m³) and the OC/EC during the sampling periods

Particle size		PM _{2.5-10}				PM _{2.5}			
	Season	Spring	Summer	Autumn	Winter	Spring	Summer	Autumn	Winter
OC	Range	1.1-3.3	1.3-3.1	2.0-3.4	1.5-7.3	3.3-11.9	4.3-10.6	7.8-20.8	20.3-61.8
	Average	2.0	2.1	2.7	3.9	7.2	6.7	11.2	30.4
	Standard deviation	0.7	0.4	0.5	1.8	2.7	2.2	3.2	16.4
EC	Range	0.2-0.9	0.1-0.3	0.2-1.3	0.4-2.5	0.8-2.1	0.7-2.8	1.1-4.6	2.4-4.9
	Average	0.4	0.2	0.5	1.2	1.4	1.6	2.6	3.6
	Standard deviation	0.2	0.01	0.3	0.7	0.4	0.7	0.9	1.2
TC	Range	15.8-28.3	15.2-45.9	18.6-34.6	9.1-42.9	25.5-92.5	46.5-65.8	27.3-73	15-39.1
	Average	20.6	29.5	27.2	23.8	41.3	55.5	40.3	28.5
	Standard deviation	3.4	10.6	4.8	10.9	15.5	5.6	11.4	7.6
OC/EC		5	11.2	7.1	3.6	5.3	4.4	4.7	7.6

表 2 进一步说明, PM_{2.5-10} 中 OC 浓度从夏季到秋季增加的不是很明显, 但冬季具有突变 (是春季的 2 倍), 而在 PM_{2.5} 中夏季 OC 浓度减小之外, 秋季、冬季均有增加, 其中冬季是夏季的 4.5 倍; PM_{2.5-10} 中 EC 浓度在冬季出现突变即冬季 EC 浓度是夏季浓度的 6 倍, 从春季到冬季 PM_{2.5} 中 EC 浓度呈逐渐增加的趋势但并没有出现突变; TC(Total Carbon)占 PM_{2.5} 质量浓度的 42.8%、占 PM_{2.5-10} 质量浓度的 39.7%, 不论是在 PM_{2.5} 还是 PM_{2.5-10} 中夏季 TC 的均为最高值。

分析其原因是乌鲁木齐属于四季明显的城市, 四个季节的气象因素差别也比较大。乌鲁木齐从 12 月开始进入深冬季节, 光照较弱、日照时间短、逆温出现频率增大及大气对流不活跃等不利于空气中污染物质扩散的因素较多, 因此空气质量维持在严重污染的水平^[13]。还有采暖期和非采暖期的差别很明显, 为了取暖居民和单位自行供暖, 这样增加煤的燃烧; 其次温度低, 机动车的启动时间较长, 增加了尾气排放量; 另外秋季 (10 月、11 月), 季节易产生逆温层, 使得污染物不易扩散^[8]。由此进一步说明采暖期对乌鲁木齐城市大气有着重要的影响, 冬季细颗粒中 OC、EC 的含量较高。乌鲁木齐市的 6 月、7 月、8 月是较典型的夏季, 3 月、4 月、5 月是春季, 大气温度高、二次化学反应剧烈, 温暖、雨水的冲刷及其他气象因素使得大多时候的空气质量较好^[14]。

2.4 OC 和 EC 的来源分析

OC 和 EC 的来源主要有燃煤、机动车尾气 and 生物质燃烧。TURPIN^[15]等认为, 通过研究 OC 和 EC 的相关性分析可以识别碳气溶胶的来源。如果 OC、EC 的相关性好, 则表明 OC、EC 来

自于相同污染源。因此,利用 OC 与 EC 的相关性可对碳气溶胶的来源进行进一步的定性分析^[10]。从图 6(A、B)可见,一年中夏季和冬季 PM_{2.5} 和 PM_{2.5-10} 中 OC 与 EC 具有比较好的相关性 ($R^2>0.6$),说明冬季与夏季 OC 和 EC 具有相同的污染来源主要来源于本地污染。近年来,随着乌鲁木齐市周边地区快速的城市化进程,机动车数量急速增加,因此机动车排放为 OC 和 EC 的主要来源,在冬季不排除具有二次气溶胶的生成。

春季和秋季几乎相关性很低 ($R^2>0.3$),说明其来源成分复杂,有可能受采样、分析或其他原因影响。由于 EC 为惰性污染物,可视为一次排放,而 OC 却包含在空气中由于适宜的温度、光照容易发生各种光化学变化,形成的次生有机碳(SOC),由此可造成 OC/EC 的升高而使得相关系数降低,经研究发现当 OC/EC 超过 2.0 时存在二次反应生成的 OC。

OC、EC 相关性方程又可以看出夏季 PM_{2.5-10} 和冬季 PM_{2.5} 中的斜率最高,分别为 7.021 和 10.82,而春季和秋季斜率不是很大。这表明乌鲁木齐大气二次有机碳气溶胶 SOC 在春季和秋季对 OC 的贡献不太明显。乌鲁木齐冬季是采暖期,煤的燃烧、采样点周围环境、机动车尾气等加剧了有机碳在细颗粒的形成过程。另外,由于 EC 的多孔性可以广泛吸附大气中的化合物比如多环芳烃等,使得细颗粒中的 OC 的增加变得明显^[16];夏季的光照时间比较长,紫外线比较强而容易形成的光化学反应的缘故,可能使细粒子的有机碳向粗粒子进行了转移,使得粗粒子中 OC/EC 升高^[17]。

3 结论

1) 采样期间乌鲁木齐市科学院采样点 PM_{2.5}、PM_{2.5-10} 的日均值分别为 101.2 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 和 64 $\mu\text{g}/\text{m}^3$, PM_{2.5} 日均值是美国标准的 1.56 倍,国家标准的 1.35 倍,全年有 28d PM_{2.5} 超标,占采样天数 45.2%。大部分采样日期 PM_{2.5} 浓度高于 PM_{2.5-10} 的浓度,表明乌鲁木齐大气颗粒物以 PM_{2.5} 为主,颗粒物的控制战略应对细粒子进行优先控制。

2) PM_{2.5} 中 OC 和 EC 的浓度变化范围分别为 3.3~61.8 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 和 0.7~4.9 $\mu\text{g}/\text{m}^3$,其日均值分别占 PM_{2.5} 质量浓度的 11.5%和 2.2%;在 PM_{2.5-10} 中 OC、EC 的浓度变化范围分别为 1.1~7.3 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 和 0.1~2.5 $\mu\text{g}/\text{m}^3$,其日均值分别占 PM_{2.5-10} 质量浓度的 3.9%和 0.8%;PM_{2.5} 和 PM_{2.5-10} 中的 OC 和 PM_{2.5-10} 中的 EC 浓度相同地呈现出冬季>秋季>春季>夏季的季节变化特征,而 PM_{2.5} 中 EC 则有冬季>秋季>夏季>春季的季节变化特征,表明煤的燃烧,机动车尾气成为乌鲁木齐大气气溶胶的主要来源。

3) 一年中夏季和冬季 PM_{2.5} 和 PM_{2.5-10} 中 OC 与 EC 具有比较好的相关性 ($R^2>0.6$),说明冬季与夏季 OC 和 EC 具有相同的污染来源主要来源于本地污染。春季和秋季相关性很小 ($R^2>0.3$),可能来源于不同的污染源。重要研究这些污染源,找出控制污染的措施。

4) 冬季和夏季 PM_{2.5} 和 PM_{2.5-10} 中 OC 与 EC 的比值变化比较大,但春季和秋季变化不太明显,这表明乌鲁木齐大气二次有机碳气溶胶在春季和秋季 SOC 对 OC 的贡献不太明显,所以优先控制其他来源。

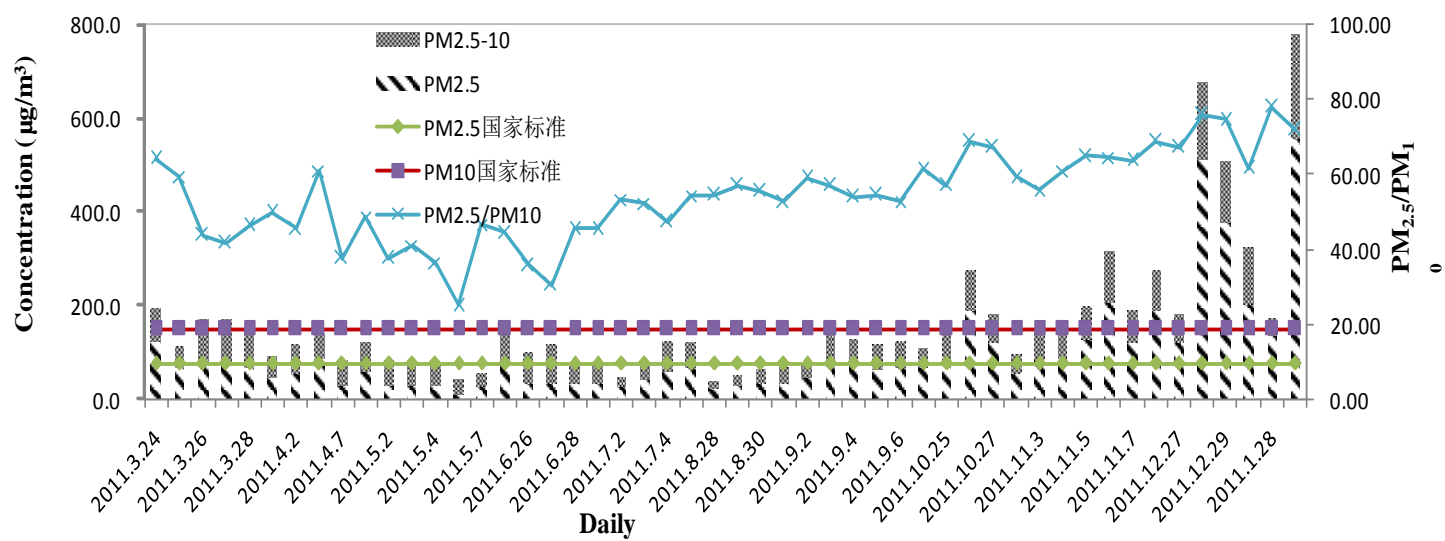
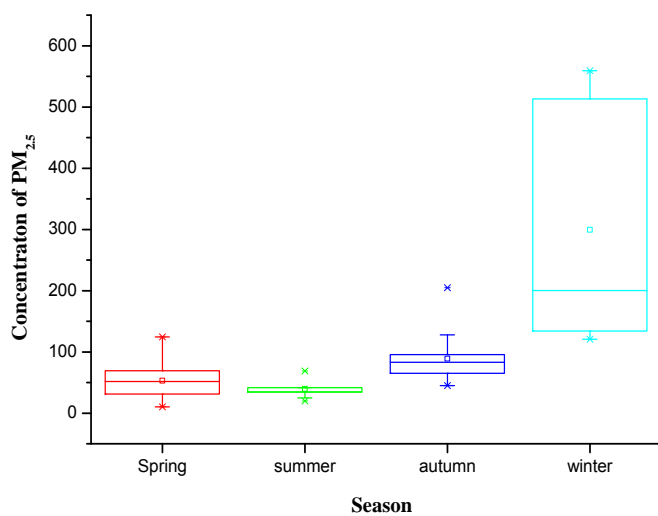


Fig1 Diurnal variations of Concentration



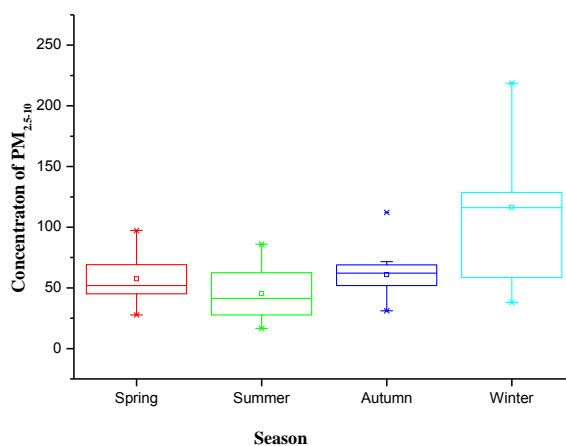
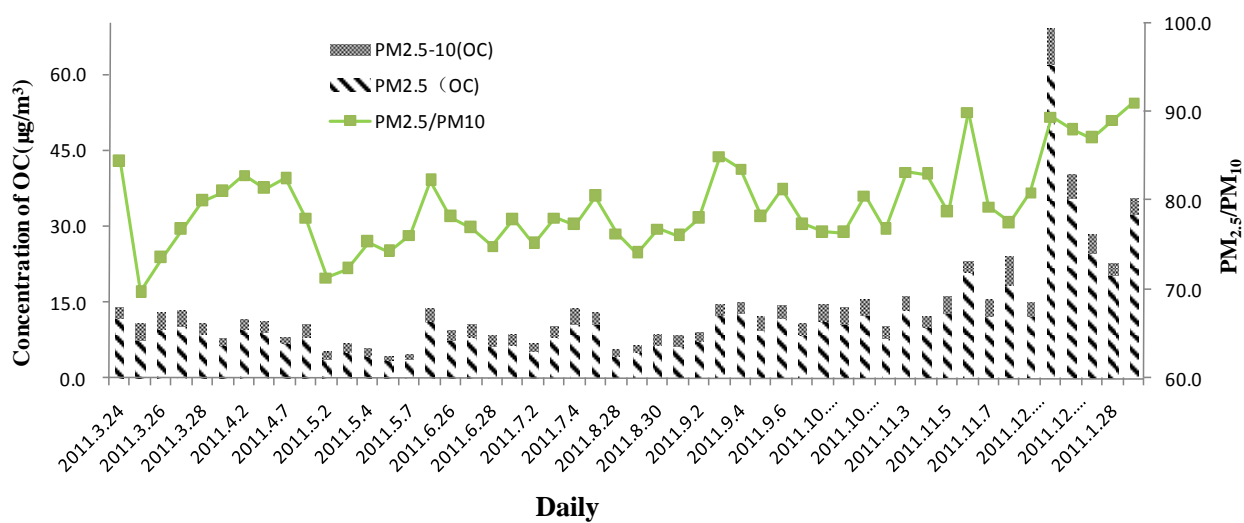


Fig 3 Seasonal variations of PM_{2.5-10}



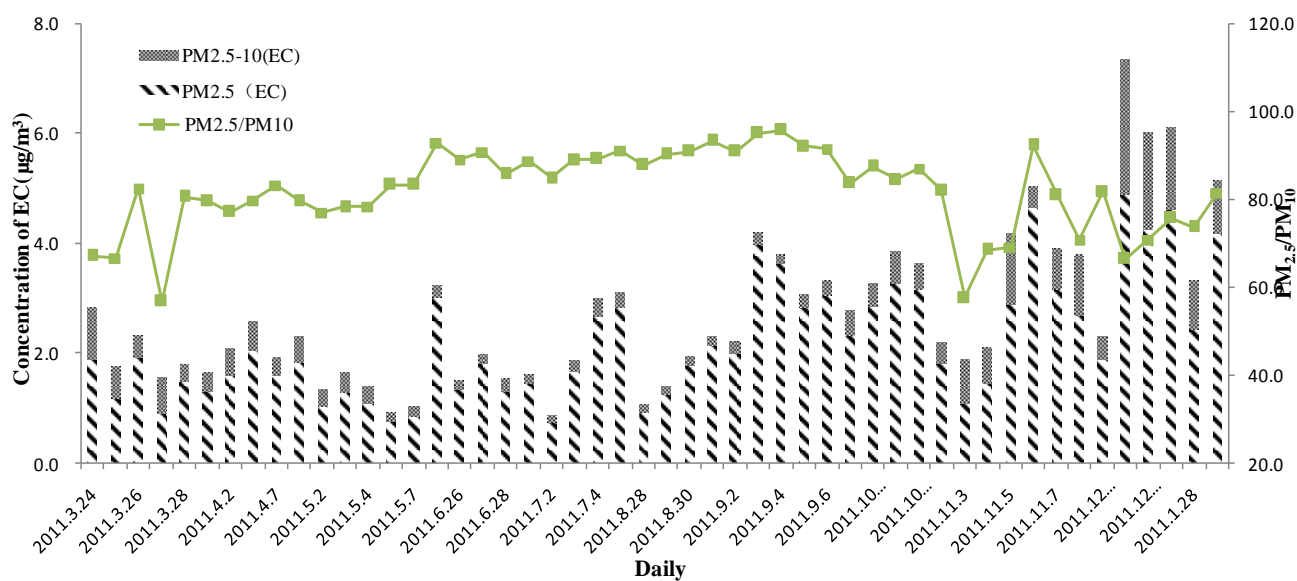


Fig4 (B) Concentration of EC

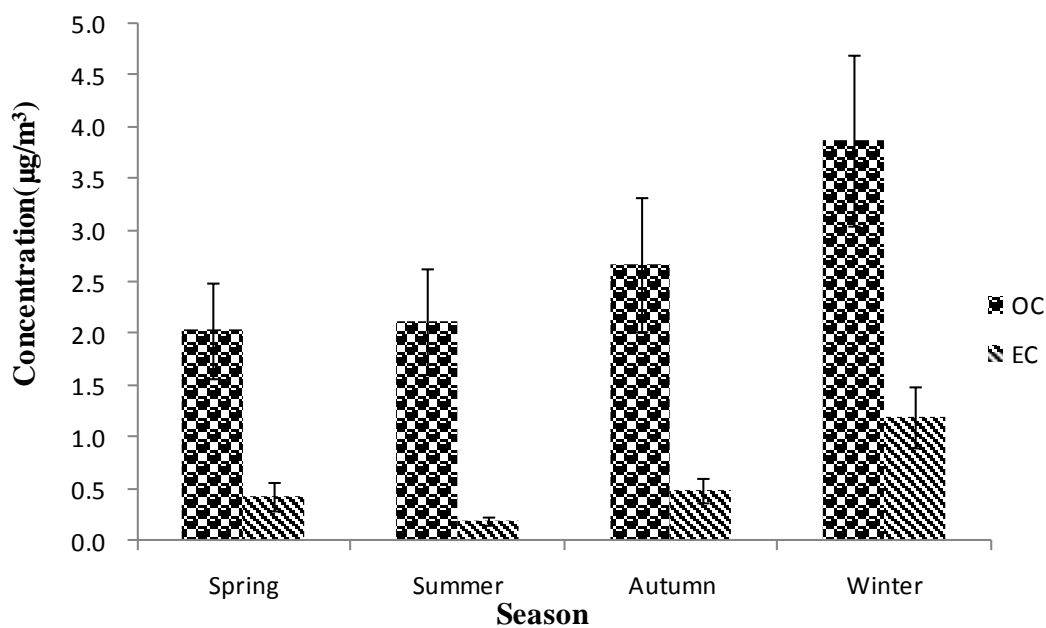


Fig5 (A) Diurnal variations of OC,EC Concentrations in $PM_{2.5-10}$

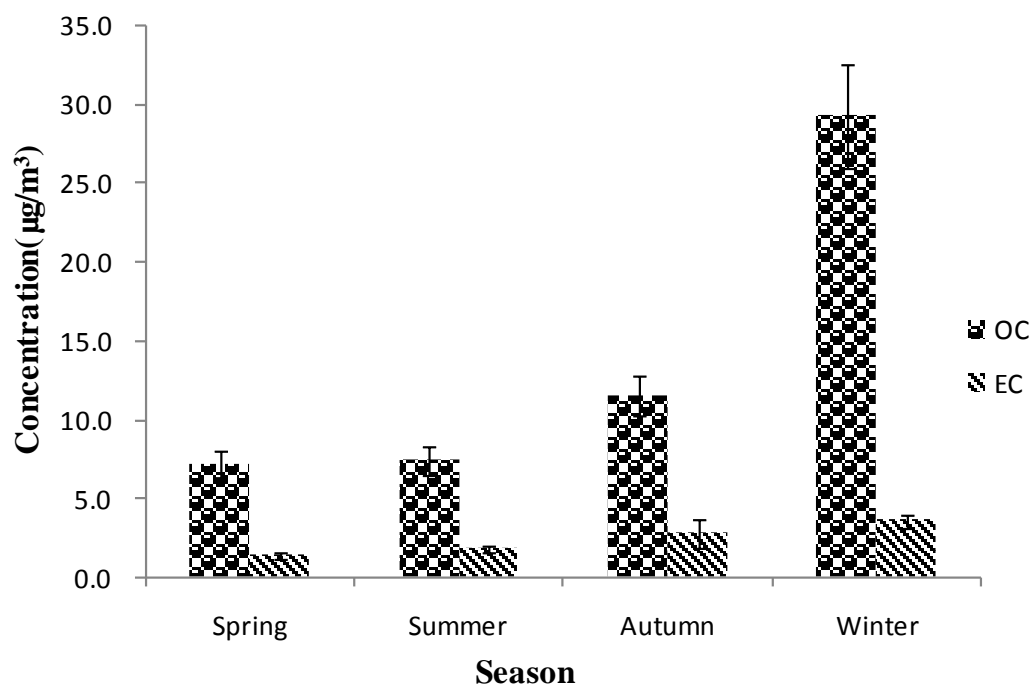


Fig5 (B) Diurnal variations of OC,EC Concentrations in $PM_{2.5}$

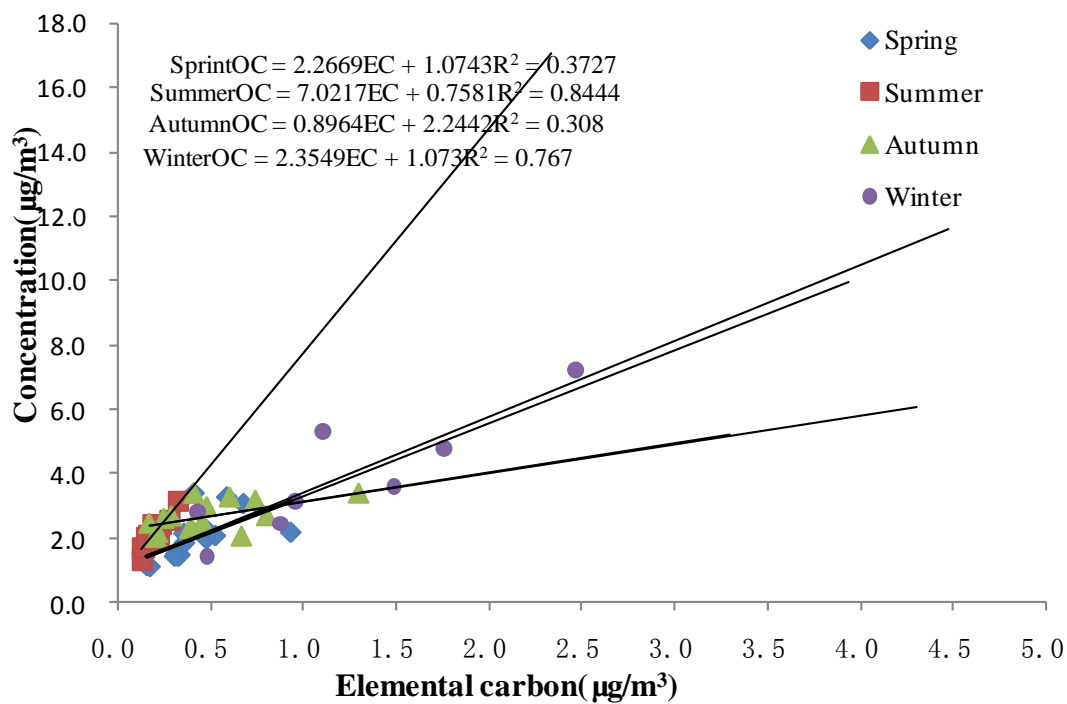


Fig 6 (A) correlation of OC, EC in $PM_{2.5-10}$

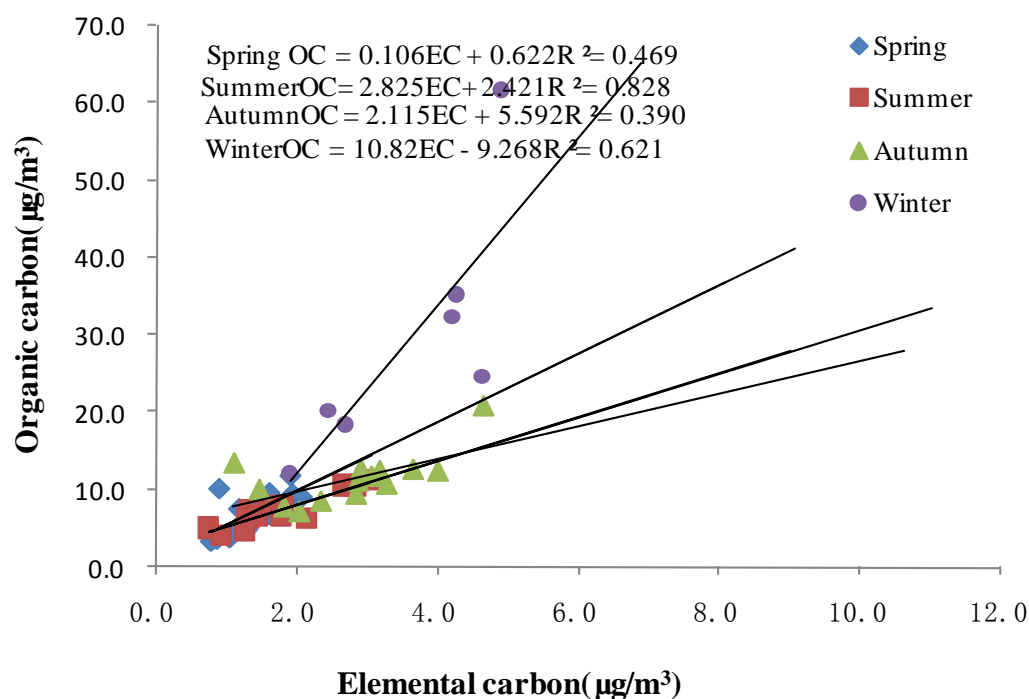


Fig 6 (B) correlation of OC, EC in PM_{2.5}

参考文献:

- [1]赵雪艳, 徐永海, 刘永等. 东营夏季 pm₁₀ 中有机碳、元素碳的污染特征. 南开大学 学报(自然科学版), 2010, 43(05): 84-88.
- [2]Zhao xueyan,Xu yanghai,Liu yong,et al.Pollution Characteristics of OC and EC in PM₁₀ in Dongying in Summer(Natural Science).Acta Scintiarum Naturalium Universitatis Nankaiensis, 2010, 43(05): 84-88.
- [3]赖森湖, 叶计朋. 广州冬季 PM₁₀ 和 PM_{2.5} 中有机碳与元素碳浓度水平及分布特征. 过程工程学报, 2004, 4:711-716.
- [4]Lai sen-chao ,Ye ji-peng ,Zou shi-chun,et al.Characterizations on Crbionaceous Arosols in PM₁₀ and PM_{2.5} in Winter period in Guangzhou ,China .The Chiese Jornal of Process Engineerig , 2004, 4:711-716.
- [5]Herlekar, M., A.E. Joseph, R. Kumar, Chemical Speciation and Source Assignment of Particulate (PM₁₀) Phase Molecular Markers in Mumbai Aerosol and Air Quality Research, 2012. 12: p. 1247-1260.
- [6]孟昭阳, 张怀德. 太原冬季 PM_{2.5} 中有机碳和元素碳的变化特征(J). Jornal of Appeled Meteorological Science, 2007,18(4):524-530.
- [7]Meng Zhaoyan,Zhang Huaide,Jiang Xiaomin ,et al. Characteristics of Organic Carbon and Elemental Carbon in PM_{2.5}During Winter in Taiyuan. JOURNAL OF APPLIED METEOROLOGICAL SCIENCE, 2007,18(4):524-530.
- [8]唐小玲,毕新慧, 陈颖军等. 不同粒径大气颗粒物中有机碳(OC)和元素碳(EC)的分布. 环境科学研究, 2006, 19(01): 104-108.
- [9]TANG Xiao-ling, BI Xin-hui, CHENYing-jun ,et al. Study on the Size Distribution of Organic Carbon(OC)and Elemental Carbon(EC)in the Aerosol. Research of Environmental Sciences, 2006, 19(01): 104-108.
- [10]Begum, B.A., A. Hossain, and N. Nahar, Organic and Black Carbon in PM_{2.5} at an Urban Site at Dhaka, Bangladesh

Aerosol and Air Quality Research, 2012, 12: p. 1062–1072.

[11]程丛兰, 李青春, 刘伟东等.北京地区一次典型大雾天气的空气污染过程物理量分布特征. 气象科技, 2003. 31(6).

[12]Cheng Conglan Li Qingchun Liu Weidong,et al. Characteristics and Physical Mechanism of Air Pollution During Typical Heavy Fog Days in Beijing Area:A Case Study. METEOROLOGICAL SCIENCE AND TECHNOLOGY, 2003. 31(6).

[13]魁陈, 银燕, 南京大气 PM_{2.5} 中碳组分观测分析. 中国环境科学, 2010, 30(8): 1015-1020.

[14]Chen kui ,Yin Yah, Wei Yu xiang, et al. Characteristics of carbonaceous aerosols in PM_{2.5} in Nanjing,China Envirmental Scince, 2010, 30(8): 1015-1020.

[15]颜鹏, 郇宁, 张养梅等. 北京乡村地区分粒径气溶胶 OC 及 EC 分析. 应用气象学报, 2012,23(03):286-292.

[16]Yan peng ,Huan ning ,Zhang yangmei ,et al.Size Resolved Arosols OC,EC iat a Redional Background Station in the Suburb of Beijing .Jornal of Applied Meteorological Scince , 2012,23(03):286-292.

[17]古金霞,白志鹏, 刘爱霞等。 天津冬季 pm_{2.5}与 pm₁₀中有机碳、元素碳的污染特征. 环境污染与防治, 2009, 31(08): 33-36.

[18]Gu Jinba ,Bai ji peng ,Liu ai xia, et al . Pollution Charactiristics of OC and EC in PM₁₀ and PM_{2.5}in Tianjin in Winter. Environmental Pollution and Control, 2009, 31(08): 33-36.

[19]马露, 贺克斌, 陈雁菊等.武汉市秋冬季室内外空气颗粒物以及有机碳、元素碳的污染特征. 城市环境与城市生态, 2011,24(06): 25-32.

[20]Ma Lu1,Yin Fan1, Song Yao, et al. Indoor and Outdoor Pollutant Characteristics of Particulate Matter and OC EC in Autumn and Winter in Wuhan. URBAN ENVIRONMENT & URBAN ECOLOGY, 2011,24(06): 25-32.

[21]时宗波, 贺克斌, 陈雁菊等. 雾过程对北京市大气颗粒物理化特征的影响. 环境科学, 2008,29(03): 552-556.

[22]Shi Zong -bo,He Ke -bin, Chen Yan -ju,et al. Influence of Fog Processes on Characteristics of Individual Particles in the Urban Atmosphere of Beijing. ENVIRONMENTAL SCIENCE, 2008,29(03): 552-556.

[23]伊丽米热阿布达力木,迪丽努尔塔力甫, 乌鲁木齐市大气颗粒物中重金属浓度的分布特征. 环境科学与技术, 2012, 35(8): 107-111.

[24]YiLiMi-re ABuDaLi-mu , DiLiNu-er TaLi-pu. Distribution Characteristics of Heavy Metals Concentration in Atmospheric Particles of Urumqi. Environmental Science & Technology, 2012, 35(8): 107-111.

[25]迪丽努尔 塔力甫, 亚力昆江 吐尔逊, 阿布力孜 伊米提, 乌鲁木齐市可吸入颗粒物污染水平及其与气象因素的相关性分析. 干旱环境监测, 2011, 25(02): :90-94.

[26]Dilinuer Ttalip, Yalikunjiang Tuerxun, Abulizi yimiti,et al. Mass Concentrat ion of Inhalable Particles and Its Relationship with Meteorological Conditions over Urumqi City. Arid Environmental Monitoring, 2011, 25(02): :90-94.

[27]TURPINB, CARYRA.Aninsitu timeresolved analyzed for aerosol organic and elemental carbon. Aerosol Sience Technology, 1990, 12(1):161-171.

[28]Jiang, M., Marr, L.C., Dunlea, E.J., Herndon, S.C., Jayne, J.T., Kolb, C.E., Knighton, W.B., Rogers, T.M., Zavala, M., Molina, L.T., Molina, M.J., 2005. Vehicle fleet emissions of black carbon,

[29]polycyclic aromatic hydrocarbons, and other pollutants measured by a mobile laboratory in MexicoCity. Atmos. Chem. Phys. 5, 3377-3387.

[30]王广华,位楠楠。上海市大气颗粒物中有机碳(OC)与元素碳(EC)的粒径分布. 环境科学, 2010, 6(09).

[31]Wang guanghua ,Wei nan nan . Particle size distribution of organic carbon (OC) and elemental carbon (EC) in Shanghai.Environmental Science , , 2010, 6(09).

武汉市雾霾期间 $PM_{2.5}$ 浓度和气象因子对能见度影响分析

(沈龙娇¹, 王建民², 胡珂³)

武汉市环境监测中心站, 武汉 430015;

摘要: 为了研究颗粒物、气象因子对武汉市大气能见度的影响, 于 2013 年 1 月 1 日~2013 年 1 月 31 日对武汉市大气能见度、 $PM_{2.5}$ 、相对湿度、温度、大气压、风速进行监测。结果表明, $PM_{2.5}$ 对能见度的影响最大, 相对湿度次之, 再次是风速, 而气温对能见度的影响较小。不同的相对湿度下, 武汉市 $PM_{2.5}$ 对能见度的影响不同。研究认为, 提高武汉地区大气能见度, 重点在于减少武汉市大气中气溶胶的形成。

关键字: 能见度, $PM_{2.5}$, 相对湿度, 相关性, 武汉市

Abstract: In order to study the effects of particles and meteorological factor on visibility in Wuh-an. Visibility, $PM_{2.5}$, RH, Temperature, Atmospheric pressure and wind speed were measured du-ring 1th~31thJanuary, 2013 in Wuhan. The results show that: The $PM_{2.5}$ mass concentration has a significant relationship with visibility, relative humidity, wind speed is once again, and the tem-perature effect on visibility. The effect of $PM_{2.5}$ on visibility was different in several visibility sec-tions in Wuhan. Therefore, The emphasis which should be reduced is the formation of aerosols in the atmosphere to increase the visibility in Wuhan.

Key words: visibility, $PM_{2.5}$, relative humidity, correlation, Wuhan

大气能见度是衡量城市环境的一个重要指标。霾是水平能见度小于10km、空气普遍出现浑浊的一种天气现象。霾的发生会直接导致能见度下降, 空气质量恶化, 严重影响人们身体健康。我国早在20世纪70年代就开始对大气能见度的降低及其影响因素进行了研究^[1-5], 苏维瀚等人^[6]研究得出, 北京地区能见度受大气中 SO_4^{2-} 浓度、相对湿度和可吸入颗粒的影响较大。吴兑等^[7]研究广州市大气能见度与颗粒物质量浓度关系, 认为 $PM_{2.5}$ 是影响广州市大气能见度的主要因素。梁延钢等^[8]研究得出香港能见度下降与气象因素密切相关。这些研究多针对于我国南、北部城市展开, 取得一系列阶段性成果, 但对于武汉这种高湿度中部地区研究较少, 大部分研究针对能见度的逐年及季节变化趋势, 对霾特定天气下能见度的变化特征研究较少。

武汉地处我国中部, 属于亚热带季风气候, 雨量充沛, 常年相对湿度较高。作为近年我国经济高速发展的城市, 地位十分重要。武汉市经济高速发展的同时也带来了严重的环境问题。环境空气恶化, 大气霾问题频发, 大气能见度下降。尤其在2013年1月份, 在我国中东部地区发生长时间持续大范围的雾霾情境下, 武汉市遭遇了一场高强度长时间的雾霾天气侵袭, 严重时大气能见度不足500米。本文利用武汉市大气复合污染实验室作为观测点, 着重研究了2013年1月武汉市大气能见度与颗粒物浓度、气象因子的变化特征和相关性, 初步探讨了气象因素、颗粒物对大气能见度的影响, 旨在找出武汉市大气能见度的主要影响因素, 为武汉市改善大气能见度以及空气污染控制措施的实施提供重要的参考依据。

实验与方法

观测时间及地点

武汉市大气复合污染实验室位于武汉市江汉区湘江路1号武汉市环境保护科学研究院楼顶(30°36'N, 114°16'E), 地处汉口中心城区, 为二类功能区。观测点距离地面约25m, 观测点周围为居民区, 周围无建筑物遮挡视线较为开阔, 无明显工业污染源, 监测数据一定程度上代表武汉城市中心城区大气污染状况水平。观测时间为2013年1月1日-2013年1月31日。观测期内, 武汉市气象因素较为稳定, 除个别时段有零星降雨后, 无明显雨雪天气。

仪器

能见度仪采用美国Belfort公司的Model 6000能见度传感器, 观测量程为6m-50km。气象参数采用德国LUFFT公司WS600-umb室外气象监测仪, 可监测风速、风向、相对湿度、大气压力、温度及雨量气象六参数。PM_{2.5}监测仪器采用美国Met One公司的BAM-1020颗粒物监测仪。

1.3 质量控制与质量保证

气象参数观测执行国家相关标准^[9-11], 数据的统计处理与解释、样本异常值的判断和处理采用标准方法^[12]。实验前对所有在线设备进行校准, 并定期维护。大气能见度分析仪定期进行两点校准(零校准和范围校准), 颗粒物监测仪参照环境空气自动监测技术规范^[13]和仪器使用说明采取质量保证措施。

(1)每周使用无水乙醇清洗颗粒物监测仪切割器, 雾霾天气期间根据实际情况加大清洗频次。

(2)定期进行颗粒物监测仪主、辅流量校准。

(3)定期清洗采样总管和各支管, 清洗完成后进行检漏测试确保采样总管工作正常。

数据采集与分析

气象数据和能见度采集频率为1次/s, 为避免降雨时雨滴对能见度的影响, 剔除降雨时段内的数据, 然后进行小时平均。PM_{2.5}的采集频率为1次/h, 剔除仪器维护指控时段监测值。本研究采用小时均值和日均值。当日小时样本数据达到20个, 平均后得到日均值。观测期内共得到有效日均样本数31个, 小时均值样本数707个。

2 结果与讨论

2.1 武汉市大气污染物浓度变化特征

1. 武汉市大气能见度和颗粒物浓度(PM_{2.5})变化特征

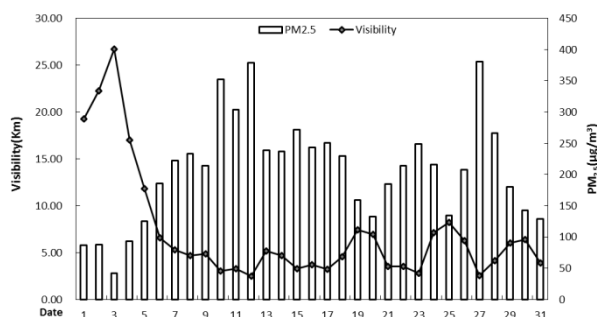


图1武汉市大气能见度与细颗粒物(PM_{2.5})的变化

Fig.1 The changes of atmospheric visibility and PM_{2.5} in Wuhan

图2为观测期内武汉市大气能见度与细颗粒物(PM_{2.5})浓度的逐日变化趋势。由图可以看出, 观测期

内，武汉市大气能见度呈明显下降趋势，相反地， $PM_{2.5}$ 日均浓度普遍较高。1月1日-1月4日为正常天气，武汉市大气能见度较好，细颗粒物（ $PM_{2.5}$ ）监测浓度处于污染以下水平，其中1月3日大气能见度达到26Km，当日 $PM_{2.5}$ 日均浓度仅为 $40\mu g/m^3$ ，低于国家环境空气质量二级标准（ $75\mu g/m^3$ ）^[14]。从1月4日开始， $PM_{2.5}$ 浓度显著上升，对应的大气能见度显著下降，从17 km下降至6 km以下。1月27日 $PM_{2.5}$ 日均浓度最高，为 $381\mu g/m^3$ ，当日大气能见度仅为6km。因此，武汉市 $PM_{2.5}$ 浓度升高时，大气能见度降低。

2.观测期内污染物浓度与气象因子统计

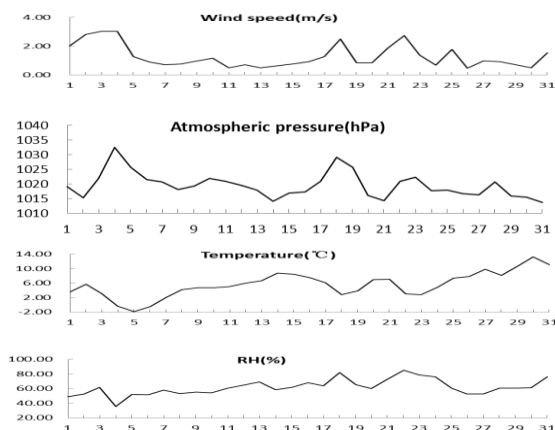


图2武汉市气象因子(风速、大气压、温度、相对湿度)的变化

Fig.2The changes of meteorological factor (WS、Atmospheric pressure、Temperature、RH) in Wuhan

分别统计观测期内武汉市各气象因子（风速、大气压、温度、相对湿度）的逐日变化趋势，如图2所示。从图1、图2我们可以发现，1月1日-1月4日武汉市地面平均风速相对较高，达到3m/s，期间稳定的大气层结受到较强的扰动，加快了大气中颗粒物的传输和稀释，促使 $PM_{2.5}$ 浓度维持在较低水平，大气能见度较好。从1月5日开始，地面日平均风速降到1m/s以下，大气层结稳定，大气污染物水平方向上的扩散减弱，同时观测到大气相对湿度维持在较高水平（60%以上），较大的空气湿度有利于水汽在气溶胶粒子上凝结，促使气溶胶粒径增大，细颗粒物浓度上升。从1月6日开始，武汉市进入长达23d的长时间雾霾天气下，这段时期内气温呈上升趋势，但基本维持在 $10^{\circ}C$ 以下，当冬季气温较低时，尤其在平均风速较小时，太阳辐射减弱，易出现高空大气温度高于近地面大气温度现象，此时大气污染物垂直方向上的对流扩散减弱甚至消失，大气状态稳定，导致近地面污染物累计，容易出现霾^[15]。1月18日和22日日平均风速上升至2.5m/s左右。但由于相对湿度较高，达到85%左右，相对湿度升高会导致大气中的大量水蒸气凝结，从而产生雾滴。水汽和雾滴本身会增强光的吸收和散射，因而会对大气能见度造成影响^[16]。

通常霾由下述三个条件确定：(1)日平均能见度 $<10km$;(2)日平均相对湿度 $<90\%$;(3)没有降雨事件^[16]。观测期内能见度小于10km的天数达到了26天，其中霾天气有23天。分别统计霾天气与非霾天气的 $PM_{2.5}$ 质量浓度、能见度、风速、相对湿度、气温、大气压各因子均值见表1。由表1我们可以发现，霾天气下颗粒物浓度、相对湿度及温度均比非霾天气高，日平均风速及大气压较非霾天气低。霾天气下颗粒物浓度为 $234.8mg/m^3$ ，是非霾天气的2.72倍，从能见度观测结果上看，霾天气下武汉市大气能见度仅为非霾天气的1/4。

表1 武汉市霾和非霾时段PM_{2.5}浓度与气象因子统计Table 1 The statistics of PM_{2.5} and meteorological elements in the haze and normal time in Wuhan

	霾天气		非霾天气	
	均值	标准偏差	均值	标准偏差
PM _{2.5} (μg/m ³)	234.8	81.9	86.4	33.9
能见度(m)	4768	2456	20273	10634
相对湿度(%)	63.21	13.30	50.23	12.05
气温(°C)	6.15	3.72	2.02	3.45
风速(m/s)	1.05	0.96	1.83	1.57
大气压(hPa)	1019.03	3.87	1022.87	6.66

2.2 霾和非霾期间PM_{2.5}浓度对大气能见度的影响

大气能见度是反映大气透明度的一个指标,大量研究证明^[16-18],太阳辐射在通过大气时,对能见度的削弱作用主要由两种消光效应决定:气体分子和颗粒物对光的散射和吸收,其中颗粒物的散射和吸收比例为60%-95%。因此颗粒物对可见光的散射和吸收是造成大气能见度下降的主要原因。为进一步确定PM_{2.5}浓度对大气能见度的影响,分别选取霾时段和非霾时段所有有效小时监测数据,进行线性和非线性拟合。我们可以发现,武汉市大气能见度与PM_{2.5}呈现较好的负相关性,将能见度与PM_{2.5}浓度进行幂指数拟合时,相关系数较直接线性拟合高,说明武汉市大气能见度与PM_{2.5}浓度并不是单一的线性加减,PM_{2.5}浓度的升高,会导致PM_{2.5}中化学成分对可见光的散射和吸收能力增强,从而降低大气能见度^[17]。武汉市大气能见度与PM_{2.5}呈负相关,但霾和非霾天气下相关系数不同,在非霾天气下相关性较好,达到0.85。这可能是因为霾天气时PM_{2.5}的浓度普遍较高,已有研究证明^[18],当PM_{2.5}浓度较低时,能见度对PM_{2.5}的响应较强,而当PM_{2.5}质量浓度超过边界浓度,能见度对PM_{2.5}的响应就会逐渐减弱。

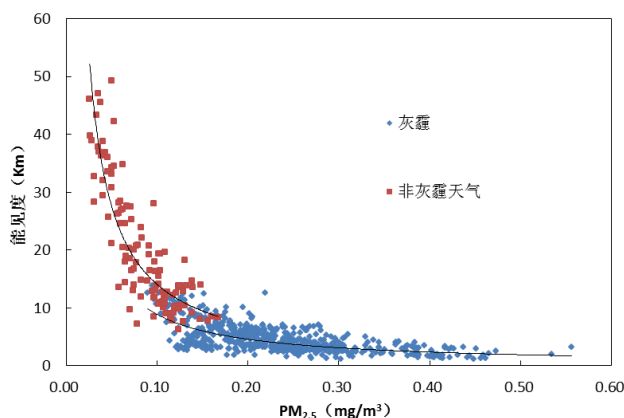
图3武汉市霾和非霾时段能见度与PM_{2.5}的相关性Fig.3 The correlation among the visibility and PM_{2.5} in haze and normal time in Wuhan表2 武汉市霾和非霾时段能见度与PM_{2.5}的相关关系

Table 2 The correlation between the visibility and PM_{2.5} in Wuhan

能见度	PM _{2.5}			
	线性拟合	相关系数	非线性拟合	相关系数
霾	$y = -18.09x + 8.9442$	0.62	$y = 0.9814x^{-0.958}$	0.67
非霾	$y = -257.42x + 42.492$	0.82	$y = 1.4853x^{-0.977}$	0.85

2.3 不同湿度区段武汉市能见度与颗粒物的相关分析

武汉地处中部，属于亚热带季风气候，雨量充沛，常年相对湿度较高。考虑降水对能见度会产生明显影响，因此本研究主要针对无降水过程，为进一步研究相对湿度及PM_{2.5}浓度对大气能见度的影响，将相对湿度划分为3个区段RH<50%、50%≤RH≤80%、80%<RH≤90%，分别对大气能见度与PM_{2.5}浓度进行回归统计分析，如图4、表3。

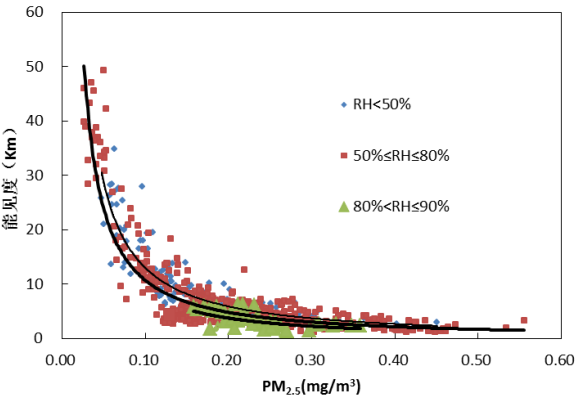


图4武汉市不同湿度区间下能见度与PM_{2.5}的相关性

Fig.4 The correlation between the visibility and PM_{2.5} in different RH ranges in Wuhan

表3 武汉市不同相对湿度区段下能见度与PM_{2.5}的相关关系

Table 3 The correlation between the visibility and PM_{2.5} in different RH ranges in Wuhan

相对 湿度	PM _{2.5}	
	拟合方程	相关系数
RH<50%	$y = 0.9413x^{-1.139}$	0.96
50%<RH<80%	$y = 0.7518x^{-1.153}$	0.86
80%<RH<90%	$y = 0.4904x^{-1.262}$	0.58

各种RH区段下，能见度与PM_{2.5}浓度均成显著负相关，但相关系数不同。随着相对湿度的增加，能见度与PM_{2.5}的相关性逐渐减弱。RH小于50%时相关性最好，相关系数高达0.96，RH为50%≤RH≤80%时相关系数为0.86，当相对湿度超过80%时，相关性显著下降，相关系数只有0.58。相对湿度较高时，虽没有降水，但空气中仍有较多的水蒸汽和水滴，会影响能见度^[19]。运用SPSS19.0软件对观测期内

大气能见度小时均值与同时期PM_{2.5}浓度和各气象因子小时均值做简单相关和偏相关分析，计算其相关系数，简单相关和偏相关系数分析结果如表 4。

表 4 大气能见度和 PM_{2.5} 及地面气象要素间的简单相关和偏相关分析

Table 4 Pearson and partial correlation coefficient of visibility and PM_{2.5} and meteorological elements

	Pearson相关			偏相关		
	相关系数	概率p	样本数	偏相关系数	概率p	自由度
PM _{2.5}	-0.68	0.000	702	-0.60	0.000	696
相对湿度	-0.24	0.000	702	-0.23	0.000	696
温度	-0.21	0.000	702	-0.18	0.000	696
平均风速	0.31	0.000	702	0.24	0.000	696
大气压	0.17	0.000	702	-0.08	0.028	696

由Pearson相关系数可以看出，大气能见度与PM_{2.5}浓度、相对湿度和温度呈负相关关系，而与平均风速和大气压呈正相关关系。Pearson相关分析不仅显示两个变量之间相互影响（包括直接和间接影响）的程度，而且包含了其他相关变量的影响。因此要单独考察两个变量间的相关程度时，需要控制其他变量的影响，此时需要进行偏相关分析。表4的结果显示，在不受其他因素的情况下，大气能见度仍与相对湿度呈负相关，相关系数为-0.23。空气中水蒸气较丰富时，容易发生凝结生成大量的小水滴，从而降低能见度^[16]。大气中相对湿度的变化会影响大气颗粒物化学组分的浓度变化从而改变大气颗粒物的消光系数，特别是当相对湿度超过60%时更为明显^[17]。武汉常年为高湿度地区，前文统计显示，观测期内武汉市大气相对湿度均值达到62%。大气颗粒物中部分吸湿性气溶胶在与水分子接触后会形成水滴，造成颗粒物粒径的成长，使散光系数增加。在排除其他条件影响下，地面风速与大气能见度呈正相关。风速较低时，大气水平输送能力差，污染物扩散能力差，容易造成污染物富集，从而降低大气能见度；风速较高时，大气扩散条件较好，污染物稀释能力强，浓度降低，使能见度上升，但应该注意，当超过临界风速时，风又能吹起空气中的污染物，反而会使得能见度降低^[18]。本次观测期间平均风速仅为1.05m/s，大气水平方向处于静风及小风状态，不利于大气污染物向城区外围扩散稀释，因此在城区内积累形成高浓度污染。偏相关性分析说明冬季武汉市温度与大气能见度呈负相关关系，冬季当大气温度降低到0℃左右时，冰面的饱和水汽压 E_i 小于水面的饱和水汽压 E_w ，也就是说，同样的水汽在0℃以下时，会发生相对于冰面饱和而水面不饱和的情况，则水汽会形成冷雾（冰晶雾），因此在冬季0℃附近由于冰面饱和水汽压小于水面饱和水汽压，从而更有利于雾的形成，影响大气能见度。在排除其他因素的情况下，大气压对大气能见度的变化无显著性影响，说明大气压对大气能见度并无直接影响，大气压的变化多会伴随冷暖空气的流动，大面积的气流运动通常会造成区域气象的变化，从而影响大气能见度。

2.4 能见度、气象因素和颗粒物的多元线性统计分析

对观测期内的有效监测数据进行多元线性回归，讨论气象因素及PM_{2.5}浓度对能见度的影响。取武汉市所有有效小时样本数（702个），进行多元线性统计分析。由前面研究得到排除其他因素影响下，大气压对大气能见度的变化无直接显著性影响，因此建立回归方程时将大气压设为无关因子。定义

能见度 (Vis) 为因变量, RH、PM_{2.5}、T、WS 为自变量, 建立多元线性回归模型, 置信度取95%, 得到能见度回归方程如式1所示。

$$\text{Vis} = 69.387 - 11.299 \ln(\text{PM}_{2.5}) - 0.047 \text{RH} - 0.169 \text{T} + 0.541 \text{WS} \quad \text{式1}$$

线性方程相关系数为0.852, 置信度为95%时, 各参量的显著性水平均为0 (小于0.05), 因此该方程具有统计学意义。由回归方程可以得出, 颗粒物浓度对能见度的影响贡献最大, 相对湿度次之, 再次是风速, 而气温对能见度的贡献较小。同时我们可以发现回归方程中PM_{2.5}、RH、T的偏回归系数为负数, 平均风速的偏回归系数为正值, 与前文相关性分析中的结果一致。值得注意的是, 在回归方程中, 气象参数均是用线性关系表示的, 而对于颗粒物, 则是用对数关系表示的。在前文中, 单独考察能见度与颗粒物相关性时, 非线性拟合方程较简单线性拟合相关性高。这说明武汉市的城市能见度并不是气象参数与颗粒物的单一的线性加减, 而是这两大影响因素的混合相关。其他的文献和研究中也得到类似的结论^[19], 证明大气能见度与气象参数仅仅是简单的线性关系, 而能见度与颗粒物则是指数或者对数相关。这可能是因为气象参数在一定的时间范围内, 其变化幅度较小, 不会出现突生和突降的情况。而针对颗粒物, 由于此因素与人类活动密切相关, 因此不同时段的变化幅度较大。

2.5 武汉市大气能见度、PM_{2.5}浓度及气象因子的日变化分析

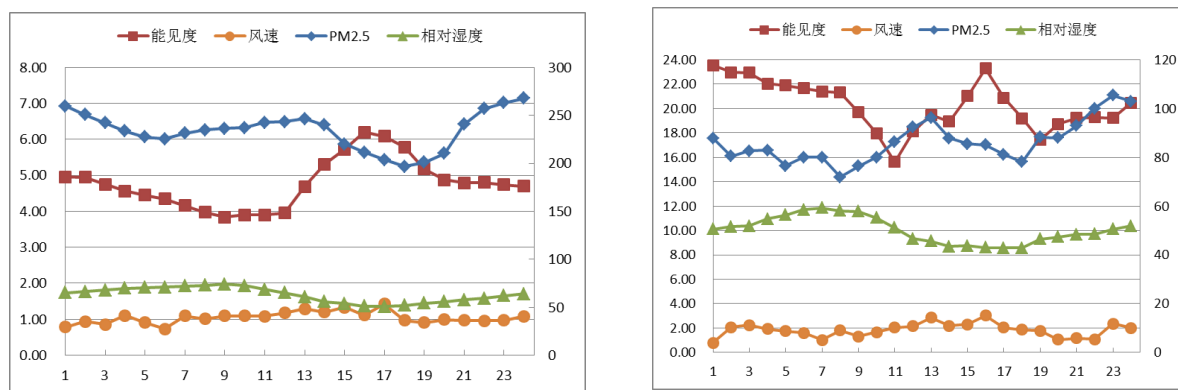


图 (a) 图 (b)

图5霾日(a)和非霾日(b)大气能见度、PM_{2.5}浓度及气象因子的小时变化

Fig.5 The hour changes of atmospheric visibility and PM_{2.5} and meteorological elements in haze (a) and normal days (b)

前文研究得出, 武汉市大气能见度与PM_{2.5}浓度、相对湿度及地面风速存在一定的相关性, 为进一步了解上述因子的日变化规律, 分别统计观测期内霾日和非霾日下能见度、PM_{2.5}浓度、相对湿度及风速的小时均值, 如图5。由图可以发现, 武汉市大气能见度日变化特征明显, 一日之中, 早晨9、10时能见度最低, 12时之后能见度逐渐升高, 16时能见度达到最高。武汉市相对湿度各小时均处于较高水平, 霾天气下, 一日之中相对湿度大部分时段维持在50%以上。此时, 大气中颗粒物会与空气中的水分子接触形成水膜或附着于颗粒物表面, 造成颗粒物粒径的成长。随着中午气温的逐渐升高, 空气中的水蒸气含量逐渐减少, 颗粒物粒径减小, 颗粒物浓度会逐渐降低。17时之后, 随着相对湿度的升高, PM_{2.5}浓度随着升高, 大气能见度逐渐下降。

3 结论

通过分析2013年1月典型雾霾期间武汉大气能见度及气象因子、PM_{2.5}及其中水溶性离子浓度监测结果,本文可以得出以下结论:

(1) 2013年1月武汉市雾霾天气下,PM_{2.5}浓度为234.8μg/m³,是非霾天气的2.72倍。霾天气下武汉市大气能见度为4.77km,仅为非霾天气的1/4。武汉市大气能见度日变化特征明显,一日之中,上午9、10时能见度最低,12时之后能见度逐渐升高,16时能见度达到最高。

(2) 雾霾期间PM_{2.5}是造成大气能见度下降的主要原因之一。武汉市霾期间和非霾期间PM_{2.5}浓度均与大气能见度呈显著负相关,但相关系数不同,非霾天气下相关性较好,相关系数为0.85,主要是由于霾期间PM_{2.5}浓度普遍较高,当PM_{2.5}的浓度高于临界值时,PM_{2.5}的浓度与大气能见度的相关性就会逐渐减弱。因此,在PM_{2.5}浓度处于较高水平下时,其浓度的下降大气能见度的改善并不明显。

(3) 不同的相对湿度下,武汉市PM_{2.5}浓度与大气能见度的相关性不同,RH<50%时,能见度与颗粒物的相关性最好,存在显著的幂指数关系($R^2=0.96$)。相关和偏相关分析结果表明武汉市大气能见度与PM_{2.5}、相对湿度和温度呈负相关关系,而与平均风速和大气压呈正相关关系。针对观测期内的有效监测数据进行多元线性回归分析,得出PM_{2.5}浓度对能见度的影响贡献最大,相对湿度次之,再次是风速,而气温对能见度的贡献较小。

参考文献:

- [1] 沈家芬,冯建军,谢利等.广州市大气能见度的特征及其影响因子分析[J].生态环境,2007,16(4):1199-1204.
- [2] 张浩,石春娥,邱明艳.合肥气象条件对大气能见度影响分析[J].大气科学研究与应用,2007,2:92-99.
- [3] 韩毓,白志鹏,孙初.颗粒物质量浓度对大气能见度水平影响分析[J].环境监测管理与技术,2008,20(4):60-62.
- [4] 周巧兰,束炯,王坚捍.上海地区低能见度特征分析[J].气象与环境科学,2009,32(2):26-29.
- [5] 刘和平,代佩玲,张青珍等.郑州市大气能见度变化特征及与空气污染的关系[J].气象与环境科学,2008,31(4):44-46.
- [6] 苏维瀚,张秋彭,沈济等.北京地区大气能见度与大气污染的关系初探[J].大气科学,1986,10(2):138-144.
- [7] 吴兑,邓雪娇,毕学岩等.细粒子污染形成灰霾天气导致广州地区能见度下降[J].热带气象学报,2007,23(1):1-6.
- [8] 梁延钢,胡文致,杨敬基等.香港能见度、大气悬浮粒子浓度与气象条件的关系[J].气象学报,2008,66(3):61-69.
- [9] QX/T 47—2007 地面气象观测规范:气象能见度观测[s].
- [10] QX/T 50—2007 地面气象观测规范:空气温度和湿度观测[s].
- [11] QX/T 52—2007 地面气象观测规范:降水观测[s].
- [12] GB/T 4883—2008 数据的统计处理和解释正态样本离群值的判断和处理[s].
- [13] HJ/T193-2005 环境空气质量自动监测技术规范[S].
- [14] GB 3095—2012,环境空气质量标准[S].
- [15] 谭吉华.广州灰霾期间气溶胶物化性质及其对能见度影响的初步研究[D].广州:中国科学院广州地球化学研究所,2007.
- [16] Wu D, 2005. A discussion on difference between haze and fog and warning of ash haze weather [J]. Meteorology, 31:1-7
- [16] 张涛,陶俊等.2008年1月广州颗粒物数浓度污染特征[J].中国环境监测,2009,25(2):31-34.

- [17]陈义珍, 赵丹, 柴发合等. 广州市与北京市大气能见度与颗粒物质量浓度的关系[J]. 中国环境科学, 2010:30 (7) 967-971.
- [18]张宏, 子锐等. 能见度变化趋势及冬季一次典型污染过程分析[J]. 2011, 16(5):620-626.
- [19]路婵. 大气污染物和气象参数对城市能见度的影响分析[D]. 长沙:中南大学, 2010.

Seasonal and day-night variations of chemical species in PM₁₀ over Xi'an, China: Implications of water-soluble organic carbon (WSOC) sources

(Zhenxing Shen^{a,b,*}, Junji Cao^b, Qian Zhang^a, Jianjun Li^b, Suixin Liu^b)

^aDepartment of Environmental Science and Engineering, Xi'an Jiaotong University, Xi'an 710049, China

^bKey Laboratory of Aerosol, SKLLQG, Institute of Earth Environment, Chinese Academy of Sciences, Xi'an 710075, China

^cAir Quality Research Division, Science and Technology Branch, Environment Canada, Toronto, Canada

*Author to whom correspondence should be addressed. E-mail: zxshen@mail.xjtu.edu.cn (Zhenxing Shen)

Abstract

To investigate the seasonal and day-night variation of PM₁₀ chemical species, daytime and nighttime PM₁₀ mass, water-soluble ions (Na⁺, NH₄⁺, K⁺, Mg²⁺, Ca²⁺, F⁻, Cl⁻, NO₃⁻, and SO₄²⁻), organic carbon (OC), elemental carbon (EC), and water-soluble carbon (WSOC) were acquired at a urban site of Xi'an from 20 December 2006 to 12 November 2007. No dramatic differences were found in PM₁₀ or chemical species loadings between daytime and nighttime. In general, PM₁₀ concentrations were in excess of 1.5 times to China Ambient Air Quality Standard (CAAQS) for 24-h average PM₁₀ (150 µg m⁻³). Carbonaceous fractions and water-soluble ions accounted for nearly one-third and 12.4% of the PM₁₀ mass. Relative Low NO₃⁻/SO₄²⁻ ratio suggested that stationary source emissions were more important than the vehicle emissions in the source areas in Xi'an, China. Good correlation between WSOC and OC were observed, which indicated that they might derive from the similar origin, such as primary emission sources or secondary processes. Moreover, a strong relationship between WSOC and K⁺ was observed in winter, which implies winter WSOC were mainly from biomass burning. This was also highlighted by the chemical components results of biomass burning events. In contrast, poor correlation between WSOC and K⁺ in summer indicated WSOC was mainly of Secondary organic carbon contribution from strong photochemical activity.

Keywords: PM₁₀, water-soluble ions, WSOC

Aerosol Variations in Boundary Atmospheres: Review and Prospect

(Shi Guangyu and Chen Bin)

Institute of Atmospheric Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100029, China

Abstract: Atmospheric aerosols play important roles in climate and atmospheric chemistry: They scatter sunlight, provide condensation nuclei for cloud droplets, and participate in heterogeneous chemical reactions. To enable better understanding of the vertical physical, chemical and optical features of the aerosols in East Asia, using some atmospheric and aerosol measurement instruments on board a kind of tethered-balloon system, a series of measurements were operated in some typical areas of East Asia, including Dunhuang, which is located in the source origin district of Asian dust and Beijing, which is the representative of large inland city during the years of 2007-2011. Mineral composition and microbial components carried by the airborne particles were both analyzed. Moreover, the simultaneous observations over the districts of China, Japan and Korea supported by an international cooperative project are highly expected.

References:

CHEN Bin, YAMADA Maromu, SHI Guangyu, ZHANG Daizhou MATSUKI Atsushi and IWASAKA Yasunobu, Vertical Changes in Mixing State of Aerosol Particles in the Boundary Layer in Beijing, China: Balloon-borne Measurements in Summer and Spring: *Journal of Ecotechnology Research*, 17(1),1-9(2013)

Daizhou Zhang, Bin Chen, Maromu Yamada, Hongya Niu, Biao Wang, Yasunobu Iwasaka and Guangyu Shi, Elevated Soot Layer in Polluted Urban Atmosphere: a Case Study in Beijing. *Journal of the Meteorological Society of Japan*, Vol. 90, No. 3, pp. 361–375, 2012

G. Shi, D. Zhang, B. Wang, B. Chen, M. Yamada, and H. Niu. Elevated aerosol layer embedded with aged soot particles in a polluted urban atmosphere. *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, Vol. 11(2011), p1641-1669.

Bin Chen, Fumihisa Kobayashi, Maromu Yamada, Yang-Hoon Kim, Yasunobu Iwasaka and Guang-Yu Shi, Identification of Culturable Bioaerosols Collected over Dryland in Northwest China: Observation using a Tethered Balloon. *Asian Journal of Atmospheric Environment*, Vol. 5-3, pp.172-180, September 2011

Bin Chen, Guang-Yu Shi, Maromu Yamada, Dai-Zhou Zhang, Masahiko Hayashi and Yasunobu Iwasaka Dependence of Visibility on Particle Sizes in Different Boundary Layers over Beijing. *Asian Journal of Atmospheric Environment*, Vol. 4-3, pp.141-149, December 2010

青岛市区春、夏季生物气溶胶浓度及影响因子分析*

(宋志文^{**}, 吴等等, 钱生财, 徐爱玲, 夏岩)

青岛理工大学环境与市政工程学院, 青岛, 266033

摘要: 为了解青岛市生物气溶胶分布特征和影响因素, 采用 SAS ISO100 空气浮游菌采样仪和安德森 FA-I 型六级空气微生物取样器, 分析青岛市市区街道春、夏季空气细菌和空气真菌浓度、粒径分布及环境因子对空气微生物浓度的影响。结果表明, 青岛市区春季空气细菌和空气真菌浓度分别为 596.6 cfu m⁻³、797.4 cfu m⁻³, 夏季分别为 280.9 cfu m⁻³、250.9 cfu m⁻³, 春季空气细菌和空气真菌浓度均高于夏季; 春季和夏季空气细菌粒径均呈偏态分布, 空气真菌粒径呈对数正态分布; 春季空气细菌、空气真菌粒子中值直径分别为 4.6μm 和 2.2μm, 夏季分别为 4.1μm 和 1.9μm, 春季空气细菌和空气真菌中值直径均大于夏季。空气细菌浓度与温度呈正相关, 空气真菌浓度随着温度升高而增加, 温度到达 25℃, 随温度增加有下降趋势; 空气细菌浓度与湿度正相关, 空气真菌浓度与湿度负相关; 一定范围内, 空气细菌、空气真菌浓度随风速增大而升高, 达到一定程度后, 随风速增加开始降低。

关键词: 空气细菌, 空气真菌, 浓度, 粒径分布, 环境因子, 青岛

中图分类号 X172 文献标识码 A 文章编号

Concentration and Influence Factors Analysis of Airborne Microbes in Spring and Summer in Qingdao.

SONG Zhi-wen^{**}, WU Deng-deng, QIAN Sheng-cai, XU Ai-ling, XIA Yan

(Institute of Environment and Municipal Engineering, Qingdao Technological University, Qingdao 266033, China).

Abstract: To determine the concentrations and influencing factors of bioaerosol in Qingdao, airborne microbes were collected by SAS ISO100 and Andersen Six Stage Sampler in city streets. Concentrations of airborne bacteria and airborne fungi, size distributions, and influence of environmental factors on airborne microbe concentrations were studied systematically. The results showed that the average concentrations of airborne bacteria and airborne fungi were 596.6 cfu m⁻³, 797.4 cfu m⁻³ in spring, and 280.9 cfu m⁻³, 250.9 cfu m⁻³ in summer, respectively. The average concentrations of airborne bacteria and airborne fungi were higher in spring than those in summer. The particle sizes of airborne bacteria were plotted with skew

*国家自然科学基金项目 (31170509, 31170509)。

**通讯作者 E-mail:songzhiwen@qtech.edu.cn

distribution, and those of airborne fungi with normal logarithmic distribution. The median diameters of airborne bacteria and airborne fungi were $4.6\mu\text{m}$ and $2.2\mu\text{m}$ in spring and $4.1\mu\text{m}$ and $1.9\mu\text{m}$ in summer. The median diameters of airborne bacteria and airborne fungi were larger in spring than in summer. The concentration of airborne bacteria was positively correlated with temperature. Concentration of airborne fungi increased with temperature, but when temperature reached 25°C , begun to decrease with temperature. The concentration of airborne bacteria and humidity had a positive correlation while the concentration of airborne fungi and humidity had a negative correlation. Within a certain range, the airborne bacteria and airborne fungi concentrations increased with wind velocity but upon reaching a certain level, begun to decrease.

Key words: airborne bacteria; airborne fungi; concentration; size distribution; environmental factor; Qingdao

空气微生物主要以气溶胶形式存在于环境中,是城市功能区生态系统中重要生物组成部分。空气微生物不仅具有极其重要的生态功能,还与空气环境质量、空气污染和人体健康密切相关,是评价城市空气环境质量的重要指标之一^[1]。空气中微生物浓度过高会增加人们呼吸道感染、哮喘气喘、皮肤过敏、慢性肺部疾病和心血管疾病等的发病几率^[2-4]。空气中病原菌在适宜条件下可以在空气中繁殖并向周围环境中扩散,导致人类过敏反应,对免疫力低下人群造成健康危害^[5]。空气微生物对人类健康危害与微生物种类、浓度以及气溶胶粒径密切相关^[6]。

空气微生物群落组成及浓度不稳定,大气温度、相对湿度、风速、风向、雨雪雾和日光辐射等气象因素都可产生影响。陈铭夏等^[7]研究表明,生物气溶胶浓度和通量日变化存在着周期性规律,生物气溶胶浓度是湍流通量输送、太阳辐射、风速、温度等环境因素共同作用的结果,其中太阳辐射和相对湿度对空气细菌浓度影响较大,温度对空气真菌浓度影响较大。Beaumont等^[8]总结了影响大气真菌的气象因素,大致顺序依次为降雨、风向、日最高温度、日照、风力、对流。

了解城市空气微生物浓度及影响因素,对控制城市微生物污染、改善环境质量、控制微生物疾病的发生和维持人们健康、提高工农业生产具有重要的理论意义。目前已有一些学者从不同城市、区域等大尺度上对空气微生物作了调查研究^[9-20],但这些研究大多集中在内陆城市,针对海滨城市的研究相对较少^[21,22]。青岛位于黄海之滨,其生物气溶胶既有陆源又有海源输入,研究青岛市区街道生物气溶胶浓度及影响因素对于了解沿海生物气溶胶特征及其对大气环境和人体健康的影响具有重要意义。

1 材料与方

1.1 研究地点概况

选取青岛市市区街道抚顺路青岛理工大学段作为采样点。抚顺路为青岛市交通枢纽,人员车辆流动大,地面灰尘多,交通污染较严重。

1.2 采样器工作原理

温度、湿度采用 TASI-620 数字式温湿度计测定;风速采用 TASI-641 风速仪测定。细菌及真菌数量

采用 SAS ISO100 空气浮游菌采样器（意大利 PBI 公司）测定。微生物气溶胶粒径分布使用 Andersen FA-I 型生物粒子取样器（辽阳市康洁仪器研究所）测定，采样器采用惯性撞击原理设计制造，将悬浮在空气中的微生物粒子按大小等级分别收集在采样介质表面，采样器分为 6 级，各级特性见表 1。

表 1 FA-1 采样器各级特征

Table 1 Characteristics of FA-1 sampler

级数	孔径/ mm	空气流速 / m/s	捕集粒子范围/ μm	ECD* / μm
F1	1.18	1.02	>7.0	7.0
F2	0.91	1.53	4.7-7.0	4.7
F3	0.71	3.65	3.3-4.7	3.3
F4	0.53	4.85	2.1-3.3	2.1
F5	0.34	12.62	1.1-2.1	1.1
F6	0.25	23.14	0.65-1.1	0.65

*ECD 有效截留粒径 Represents effective cut diameter

1.3 采样方法和培养方法

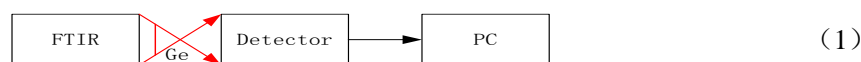
采样时间为 2012 年 4 月至 6 月和 8 月至 9 月，采样时间为上午（8:00~9:00），中午（11:30~12:30），下午（4:30~5:30），每次 2 个重复。采样高度为距离地面 1.5m 处。SAS ISO100 采样器细菌和真菌采样量分别为 200L 和 100L。Andersen 生物粒子取样器（FA-I）空气细菌采样时间为 10min，真菌的采样时间为 5min。同时测定温度、湿度、风速、风向等指标。

采用 9.0cm 的玻璃平板进行微生物气溶胶收集，细菌采用营养琼脂培养基，采样后 37℃ 培养 48h；真菌采用孟加拉红培养基，采样后 27℃ 培养 72h。

1.4 计算方法

1.4.1 空气微生物数量

分别对各级采样器培养皿进行菌落计数，根据各级空气微生物的粒子数量，利用公式进行校正，然后计算出空气微生物数量。具体校正公式（1）和计算公式（2）如下：



式中，Pr 表示每一级采样器上获得的有效菌落数（即经过校正的菌落数量），N 表示每一级采样器上采样孔数，r 表示每一级采样器上获得的实际菌落数量，C 表示空气微生物数量，T 为 6 级采样器上获得的有效菌落数量总和，t 表示采样时间，F 表示空气流量。

1.4.2 微生物气溶胶各级粒子百分比

各级粒子百分比计算公式：



式中 $\sum_{i=1}^n P_i$ 表示各级粒子百分比, $\sum_{i=1}^n N_i$ 表示每一级采样器上菌落数量, $\sum_{i=1}^6 N_i$ 表示 6 级采样器上获得的菌落总和; $\sum_{i=1}^n P_i$ 和 $\sum_{i=1}^6 N_i$ 分别为采样器各级和 6 级微生物浓度。

1.4.3 微生物气溶胶粒子中值直径

根据测定结果计算出采样器各级粒子数占总数的百分比, 然后按照 F6~F1 顺序进行累加, 计算出各级的累计百分比, 再根据给定的采样器各级 ECD 和各级累计百分比, 求得对数回归方程, 累计百分比为 50%时相对应的 ECD 值即为中值直径。

1.4.4 数据分析与处理

数据结果采用平均值±标准偏差的形式表示, 用 SPSS16.0 软件中单因素方差分析 (ANOVA) 对部分数据进行显著性差异分析。

2 结果与分析

2.1 青岛市区春、夏季空气微生物浓度和粒径分布

青岛市市区街道春、夏季空气细菌浓度分别为 $596.6 \pm 396.4 \text{ cfu m}^{-3}$ 、 $280.9 \pm 57.0 \text{ cfu m}^{-3}$, 空气真菌浓度分别为 $797.4 \pm 18.9 \text{ cfu m}^{-3}$ 、 $250.9 \pm 42.4 \text{ cfu m}^{-3}$, 春季空气细菌和空气真菌浓度均高于夏季。春季真菌浓度高于细菌, 与方治国等^[10,11]在北京等城市得到的结果不同, 分析可能与青岛是海滨城市, 受海洋空气影响有关, 刘苗苗等^[2]也得到类似的结果。

春季和夏季空气细菌的粒径分布趋势相同。细菌粒子粒数百分比从 Stage1 到 Stage6 逐渐减少, 但 Stage2 下降最为明显, 呈偏态分布。细菌粒子主要分布在前 4 级 ($>2.1 \mu\text{m}$) 中, 春季和夏季分别占总数的 85.8 和 84.9%。高峰均分布在 Stage1 ($>7.0 \mu\text{m}$) 中, 分别占 46.2%和 42.12%; 最低值分布在 Stage5 ($1.1 \sim 2.1 \mu\text{m}$) 中, 分别占 6.9%和 5.7% (图 1)。空气细菌大多是吸附于尘埃粒子表面, 由于重力作用, 较大的粒子沉降于近地面, 而较小的粒子则漂浮在高空, 所以人工呼吸带较大的细菌粒子明显多于较小的粒子^[7]。交通干线汽车来往频繁, 地面的土壤细粒和灰尘粒子漂浮于近地面, 这些灰尘和细粒是交通干线空气细菌的主要来源。

夏季和春季空气真菌的粒径分布趋势相同, 呈对数正态分布。春季真菌粒子主要分布在 Stage1 到 Stage4 中, 占总数的 75.7%, 夏季主要分布在 Stage4 和 Stage5 中, 占 47.8%; 春季和夏季高峰均分布在 Stage4 ($2.1 \sim 3.3 \mu\text{m}$), 分别占 22.9%和 28.2%; 最低值春季与夏季不同, 春季分布在 Stage6 ($0.65 \sim 1.1 \mu\text{m}$) 中, 夏季分布在 Stage3 ($3.3 \sim 4.7 \mu\text{m}$) 中, 分别占 9.0%和 9.9%。

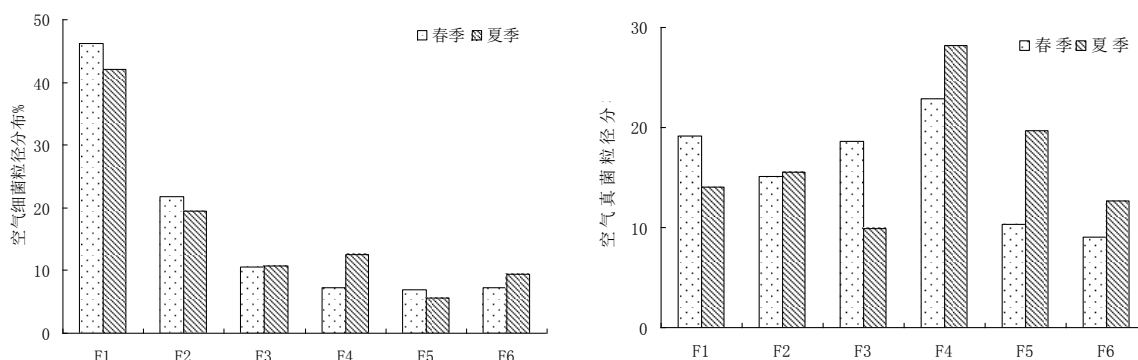


图 1 青岛市区街道春夏季空气细菌、空气真菌粒径分布

Fig.1 Size distributions of airborne microbes at streets of Qingdao in spring and summer

春季和夏季空气细菌粒子中值直径分别为 $4.6\mu\text{m}$ 和 $4.1\mu\text{m}$ ，空气真菌分别为 $2.2\mu\text{m}$ 和 $1.9\mu\text{m}$ 。空气细菌中值直径明显大于空气真菌 ($P<0.01$)。细菌主要吸附在尘埃粒子表面，真菌则以单个孢子的形式存在于空气环境中^[23]，这可能是细菌中值直径大于真菌的原因。

2.2 温度对微生物气溶胶浓度的影响

温度变化直接影响到微生物存活，一般而言，微生物最适生长存活温度细菌是 37°C ，真菌是 27°C 。为了探讨温度对空气微生物浓度的影响，分别将空气细菌、空气真菌浓度与温度作相关性分析，结果见图2。

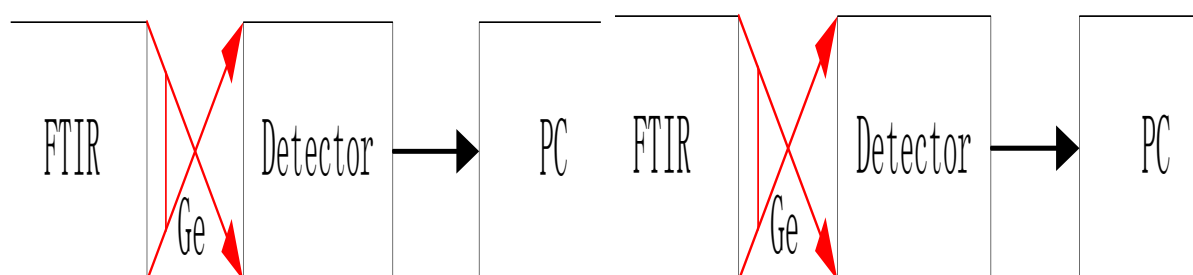


图 2 空气细菌、空气真菌浓度与温度关系

Fig. 2 Correlation between airborne microbe concentration and temperature

从图中可以看出，温度对空气微生物浓度的影响有一定的规律性，空气细菌与温度呈正相关 ($R=0.805$)。空气真菌在一定范围内随着温度升高而增加， 25°C 后则随温度增加有下降趋势。温度控制着空气中水蒸气的变化速率以及环境和微生物表面间的热量交换速率，同时它也能通过细胞内水分的蒸发影响大气微生物的生存能力。一般情况下空气微生物浓度与气温呈正相关关系，但当温度升高到一定程度的时候，由于高温可导致空气微生物蛋白质变性，而影响其在空气中的存活^[24]。温度过低也会导师微生物体内酶活性较低，抑制微生物生长。

2.3 湿度对微生物气溶胶浓度的影响

分别将空气细菌和空气真菌浓度与湿度作相关性分析，结果见图4。由图中可以看出细菌浓度与湿度呈正相关 ($R=0.788$)，与Giorgio等研究结果相同^[25,26]；真菌浓度与湿度呈负相关 ($R=-0.452$)，但相关性较弱。

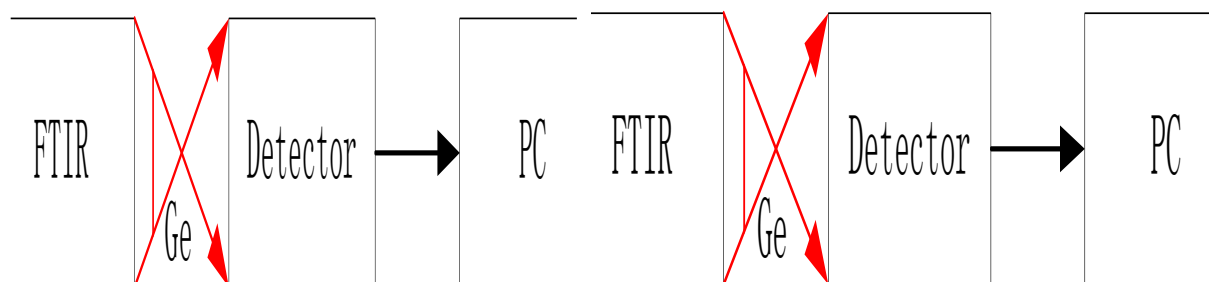


图 3 空气细菌、空气真菌浓度与湿度关系

Fig.3 Correlation between airborne microbe concentration and humidity

2.4 风速对微生物气溶胶浓度的影响

风速对微生物浓度影响也较大，在一定范围内，空气细菌、空气真菌浓度随风速增大而增大，达到一定风速后，随着风速增加浓度降低（图4）。当风速较低时，微小气流可将地面粒径较小的微生物颗粒吹入大气中，且不会在很大程度上扰乱大气运动，此时微生物粒子能够长时间悬浮于大气中而不降落，增加了大气中微生物浓度。但当风速增大时，就会加大大气的气流紊乱程度，有利于大气中微生物颗粒在垂直和水平方向上扩散，导致空气微生物浓度降低。

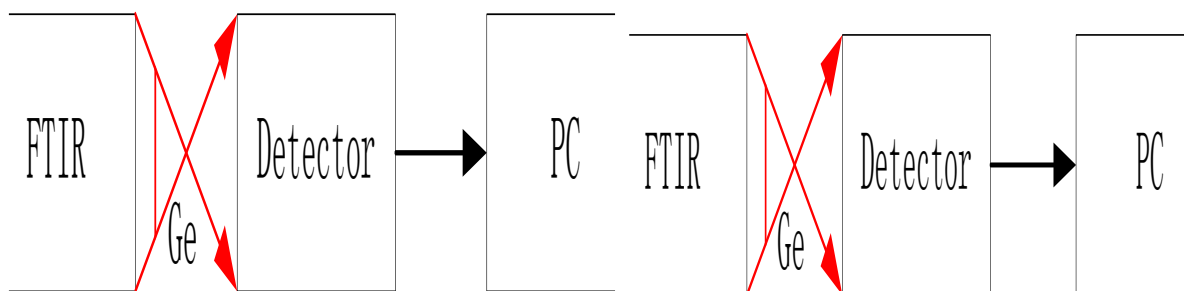


图 4 空气细菌、空气真菌浓度与风速关系

Fig.4 Correlation between airborne microbe concentration and wind velocity

3 结论

（1）青岛市区春季空气细菌和空气真菌浓度均高于夏季，春季空气细菌浓度高于空气真菌，夏季空气细菌浓度低于空气真菌；空气细菌春季和夏季的粒径分布趋势相同，呈偏态分布，空气真菌春季和夏季的粒径呈对数正态分布，但分布情况存在差异；空气细菌中值直径大于空气真菌，春季空气细菌和空气真菌中值直径均大于夏季。

（2）空气细菌浓度与温度呈正相关，空气真菌浓度随着温度升高而增加，温度到达25℃左右，随温度增加有下降趋势；空气细菌浓度与湿度呈正相关，空气真菌浓度与湿度呈负相关；空气细菌、空气真菌浓度随风速增大而升高，达到一定程度后，随风速增加开始降低。

参考文献：

- [1] Jones A, Harrison R. The effects of meteorological factors on atmospheric bioaerosol concentrations - a review [J]. Science of the Total Environment, 2004, 326:151-180.
- [2] Hargreaves M, Parappukkaran S, Morawska L, et al. A pilot investigation into association between indoor airborne fungal and non-biological particle concentrations in residential houses in Brisbane, Australia [J]. Science of the Total Environment, 2003, 3(12):89-101.
- [3] Clark C S, Bjornson A B, Schiff G M, et al. Sewage worker's syndrome [J]. The lancet, 1977, 7:1009.
- [4] Rylander R, Andersson K, Berlin L, et al. Sewage worker's syndrome [J]. The lancet, 1976, 28:478-479.
- [5] Shelton B, Kirkland K, Flanders W, et al. Profiles of airborne fungi in buildings and outdoor environments in the United

- States [J]. Applied and Environmental Microbiology, 2002, 68 (4):1743-1753.
- [6] Reponen T, Willeke K, Ulevicius V, et al. Effect of relative humidity on the aerodynamic diameter and respiratory deposition of fungal spores [J]. Atmospheric Environment, 1996, 30(23):3967-3974.
- [7] 陈铭夏, 金龙山, 孙振海, 等. 生物气溶胶浓度、通量及环境因素的影响 [J]. 自然科学进展, 2001, 11 (9) :939-944.
- [8] Beaumont F, Kauffman HF, vailder Mark TH, et al. Volumetric aerobiological survey of conidial fungi in the North•East Netherlands: I. Seasonal patterns and the influence of meteorological variables[J]. Allergy, 1985, 40: 173-180.
- [9] 方治国, 欧阳志云. 城市室内外空气真菌群落及影响因素研究进展, 生态环境学报, 2009, 18 (1) :386-393.
- [10] 方治国, 欧阳志云, 胡利锋, 等. 城市生态系统空气微生物群落研究进展, 生态学报, 2004, 24 (2) :315-322.
- [11] 方治国, 欧阳志云, 胡利锋, 等. 北京市夏季空气真菌生态分布特征, 环境科学学报, 2005, 25 (2) :160-165.
- [12] 方治国, 欧阳志云, 赵景柱, 等. 北京城市空气细菌群落结构与动态变化特征, 微生物学报, 2006, 46 (4) :618-623.
- [13] 方治国, 欧阳志云, 胡利锋, 等. 北京市三个功能区空气微生物中值直径及粒径分布特征, 生态学报, 2005, 25 (12) :3220-3224.
- [14] 陈梅玲, 胡庆轩, 徐秀芝, 等. 南京市大气微生物污染调查. 中国公共卫生, 2000, 16 (6) :504-505.
- [15] 符春兰, 何文华, 贾建华, 等. 我国四城市真菌特别调查微. 生物学通报, 2000, 27 (4) : 264~269.
- [16] 孙荣高. 兰州城区大气细菌污染分布及区系组成. 微生物学通报. 1994, 21 (2) :85-88.
- [17] 周大石, 马汐平, 刘玉晶, 等. 沈阳市大气微生物区系分布研究. 环境保护科学, 1994, 20 (1) :10-14.
- [18] 车凤翔, 徐桂清, 史传英, 等. 京津地区大气细菌生态分布. 中国环境科学, 1990, 10 (3) :192-196.
- [19] 宋凌浩, 宋伟民, 施玮. 上海市大气细菌污染研究. 上海环境科学, 1999, 18 (6) :258-260.
- [20] 周晏敏, 韩梅, 陈振宇. 齐齐哈尔市不同功能区大气微生物污染研究. 中国环境监测, 1994, 10 (1) :49-51.
- [21] 吕爱华, 王庆燕, 苏君, 等. 乌鲁木齐市大气微生物浓度变化规律. 中国环境监测, 1996, 12 (3) :50-53.
- [22] 刘苗苗, 祁建华, 高冬梅, 等. 青岛近海秋季生物气溶胶分布特征 [J]. 生态环境, 2008, 7 (2) :565-571.
- [23] 徐文兵, 祁建华, 金川, 等. 青岛近海夏、秋季生物气溶胶分布特征研究 [J]. 环境科学, 2011, 32 (1) :9-17.
- [24] Millner, P D, Bassett D, Marsh P B. Dispersal of *Aspergillus fumigatus* from sewage sludge compost piles subjected to mechanical agitation in open air [J]. Applied and Environmental Microbiology, 1980, 39:1000-1009.
- [25] Rosas I, Calderson C, Ulloa M .et al. Abundance of airborne penicillium CFU in relation to urbanization in Mexico city. Applied and Environmental Microbiology, 1993. S9: 2648-2652.
- [26] Di Giorgio C Krempff A, Guifaud H. et al. Atmospheric pollution by airborne microorganism in the city of Marseilles [J]. Atmospheric Environment, 1996, 30 (1): 155-160.
- [27] Franz F. Reinthaler, Egon Marth, Ute Eibel, et al . The Assessment of Airborne Microorganisms in Large-scale Composting Facilities and Their Immediate surroundings [J]. Aerobiologia, 1997. 13: 167-175.

Column-integrated aerosol optical properties over Xi'an, China







(Xiaoli Su¹, Junji Cao^{1,2}, Zhengqiang Li³, Meijing Lin⁴, Gehui Wang¹)

¹ Key Laboratory of Aerosol Science & Technology, SKLLQG, Institute of Earth Environment, Chinese Academy of Sciences, Xi'an 710075, China,

² Department of Environmental Science and Engineering, Xi'an Jiaotong University, Xi'an 710049, China,

³ Institute of Remote Sensing and Digital Earth, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100101, China,

⁴ Zhongshan Bureau of Meteorology, Zhongshan 528400, China.

Abstract: Column-integrated aerosol optical properties were derived systematically for the first time from the measurements of a ground-based CIMEL sun photometer in Xi'an from May to November, 2012. Aerosol Optical Depth (AOD), Angstrom exponent, water vapor content and inversed aerosol optical and micro-physical properties, including aerosol volume size distribution, complex refractive indices and single scattering albedo (SSA), were analyzed in this study. Evolution of daily AOD at 440 nm () was compared with that of 24-hr mean concentrations of PM_{2.5}. Statistics of monthly means calculated from quality-assured daily AOD, Angstrom exponent () and water vapor content () were presented and discussed. August showed the highest monthly  with the value of 1.13, while the largest monthly  (1.30) and  (4.28) appeared both in July. Monthly variations of size distribution were investigated and indicated the domination of coarse mode aerosols in most of the studied months, except July and August, when the contribution of accumulation and coarse mode were fairly comparable. Monthly variability of complex refractive index (including both real and imaginary parts) and single scattering albedo was also studied, along with their wavelength dependence, which implied the variance in aerosol types for different months. Finally, an episode, involving urban and dust aerosols, was analyzed using aerosol retrievals from sun photometer, while MODIS images captured by Aqua satellite and average wind vectors from the NCEP operational global analyses were considered in the case study.

Keywords: Aerosol Optical Depth; Angstrom Exponent; water vapor content, aerosol optical properties, sun photometer

The molecular composition and mass-size distribution of biogenic secondary organic aerosol from Xi'an

(SUN Tao, WANG Ge-hui, LI Jian-jun)

State Key Laboratory of Loess and Quaternary Geology, Institute of Earth and Environment, Chinese Academy of Sciences, Xi'an 710075, China.

Abstract: In this study, concentration and size distribution of biogenic secondary organic aerosols (i.e., isoprene, pinene and sesquiterpene photooxidation products) in the summertime atmosphere of Xi'an city, China was characterized using a GC/MS technique after a conversion to TMS derivatives. Our results showed that BSOA in Xi'an are dominated by isoprene oxidation products, which accounted for around 80% of the total quantified BSOA. Biogenic secondary organic carbon derived from isoprene, α -/ β -pinene and sesquiterpene were $0.39\mu\text{g C/m}^3$, $0.13\mu\text{g C/m}^3$, $0.10\mu\text{g C/m}^3$, respectively. Size distributions of the nine determined compounds suggest that BSOA in the city are enriched in fine particles. Compared to that in other cities and mountain areas the relatively lower ratio of MBTCA/CPA ratio of Xi'an BSOA indicates that BSOA in the city are mostly derived from local sources and more fresh.

Key words: biogenic secondary organic aerosol; isoprene; α -/ β -pinene; sesquiterpene; molecular composition; size distribution

An Observational Study of the Hygroscopic Properties of Aerosols over the Pearl River Delta Region

(Haobo Tan^{a,b}, Yan Yin^a, Xuesong Gu^a, Fei Li^b, P.W. Chan^d, Hanbing Xu^c, Xuejiao Deng^b)

^a Institute of Tropical and Marine Meteorology, China Meteorological Administration, Guangzhou, Guangdong 510080, China

^b Key Laboratory for Aerosol-cloud-precipitation of China Meteorological Administration, Nanjing University of Information Science and Technology, Nanjing 210044, China;

^c Experimental Teaching Center, Sun Yat-sen University, Guangzhou 510275, China

^d Hong Kong Observatory, Hong Kong, China

Abstract :Hygroscopic growth can significantly affect size distribution and activation of aerosol particles, as well as their effects on human health, atmospheric visibility, and climate. In this study, a H-TDMA (Hygroscopic Tandem Differential Mobility Analyzer) was utilized to measure hygroscopic growth factor and mixing state of aerosol particles at the CAWNET station in Panyu, Guangzhou, China. A statistical analysis of the results show that, at relative humidity (RH) of 90%, for less-hygroscopic particles of 40-200 nm in diameter, the growth factor (g_{LH}) was around 1.13, while the number fraction (NF_{LH}) varied between 0.41 ± 0.136 and 0.26 ± 0.078 ; for more-hygroscopic particles, the growth factor (g_{MH}) varied between 1.46 and 1.55 with the average equivalent ammonium sulfate ratio ($AS_{错误!未找到引用源。}$) ranging from 0.63 to 0.68. The differences in AS among particle of different sizes reveal that more-hygroscopic inorganic salts, such as ammonium sulfate and ammonium nitrate, are of more effective condensation growth for Aitken mode particles. A combined analysis of the probability density function of growth factor (Gf-PDF) and simultaneous meteorological data shows that during clean periods with air masses moving from the north, the particles are more likely to have homogeneous chemical composition, while during polluted or pollution accumulation periods, variations in mean number weighted growth factor (g_{mean}) and NF_{MH} become more pronounced, indicating that locally-emitted aerosol particles tend to be in an externally mixed state and contain a certain proportion of less-hygroscopic particles. This study can help improve our understanding of aerosol hygroscopicity and its impact on the atmospheric visibility and environment.

Keywords: H-TDMA, aerosol hygroscopicity, urban aerosol, haze, Pearl River Delta

东南极大陆沿岸黑碳气溶胶的本底特征研究

(汤洁 卞林根 逯昌贵)

中国气象局气象探测中心, 北京 100081

中国气象科学研究院, 北京 100081

摘 要: 利用 2010 年 2 月 18 日-2011 年 3 月 31 日南极中山站的黑碳(BC)浓度及气象资料, 对 BC 本底浓度、季节变化、来源等进行了初步研究. 结果显示, BC 浓度在偏东南风影响下, BC 浓度异常偏高, 该方向是站区发电和人为活动污染扩散方向, 对本底浓度影响较大. 当风速小于 $3 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ 时, BC 浓度也偏高且不稳定. 在计算本底浓度时, 剔除了东偏南风方向和小于 $3 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ 的 BC 浓度资料. 东南极大陆沿岸秋季和冬季逐月平均 BC 浓度较低, 最小出现在 5 月; 为 $3.3 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$, 春季和夏季较大, 最大出现在 2 月; 为 $10.0 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$, 次大出现在 10 月; 为 $8.7 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$. BC 本底浓度的变化除了局部方向人为活动的影响, 主要来源是由对流层气流从低层向南极的输送. BC 浓度季节变化特征与其它南极站基本相似。

关键词: 东南极大陆沿岸, 黑碳, 本底特征, 季节变化

北京一次持续雾霾天气过程的气象特征分析

(唐宜西^{1, 2}, 张小玲², 熊亚军³)

1 成都信息工程学院, 成都, 610225;

2 中国气象局北京城市气象研究所, 北京, 100089;

3. 北京市气象台, 北京, 100089

摘 要: 2013年1月10日至14日, 北京平原地区出现了水平能见度一度在2km以下, 以PM_{2.5}为首要污染物, 空气质量持续5天维持在重度以上污染水平的雾-霾天气。综合分析雾-霾期间的天气形势、北京地区常规和加密气象资料以及城郊连续观测的PM_{2.5}浓度资料, 结果表明: 此雾-霾过程期间, 北京高空以平直纬向环流为主, 受西北偏西气流控制, 没有明显冷空气南下影响北京地区, 地面一直处于均压场, 高压底部, 低压带等不利于污染物扩散和稀释的弱气压场控制; 大气层结稳定、地面风速偏小(观象台日平均风速均在2.0m/s以下, 2分钟平均风速在0~3.5m/s内波动, 并且1~2m/s的风频率为75%, 1m/s以下的风频率为11%)、相对湿度较大(日平均相对湿度在70%以上)、逆温频率高强度大(除每日的正午时段外, 其余大部分时间均存在强近地逆温层), 边界层内污染物的水平和垂直扩散能力差, 静稳的气象条件相互配合导致污染物的持续积累和雾-霾的形成; PM_{2.5}浓度与地面气象因子存在密切的联系, PM_{2.5}质量浓度较高的时段对应着低能见度、较低的风速、较高的相对湿度以及以偏南风为主导风向; 12日午后北京地面风场显示南部地区为西南风, 此后西南风势力逐渐向北推进, 至20时覆盖了北京东南部的平原地区, 对西北及东北部的山区没有显著影响, 由此得出12日午后至13日凌晨出现的城区重污染现象与偏南风的输送有关; 北京城区及南部的京津冀地区人类活动排放污染物强度大, 在相对稳定和高湿的天气背景下, 受地形和城市局地环流的影响, 北京本地污染物累积和受西南风影响区域污染物的输送以及PM_{2.5}细粒子在高温高湿条件下的物理化学转化等过程共同作用造成此次北京城区及平原地区污染物浓度快速增长并持续偏高。高浓度PM_{2.5}对大气消光有显著影响, 造成低能见度和严重的雾-霾天气。

关键字: 雾霾天气, 重污染, 气象条件, 污染物输送

参考文献

- 胡亚旦, 周自江. 中国霾天气的气候特征分析[J]. 气象, 2009, 35(7): 73-78.
- 赵普生, 徐晓峰, 孟伟, 等. 京津冀区域霾天气特征[J]. 中国环境科学, 2012, 32(1): 31-36.
- Duan F K, He K B, Ma Y L, et al. Concentration and chemical characteristics of PM_{2.5} in Beijing, China: 2001-2002[J]. Science of the Total Environment, 2006, 355(1-3): 264-275.
- Li L, Wang W, Feng J, et al. Composition, source, mass closure of PM_{2.5} aerosols for four forests in eastern China[J]. Journal of Environmental Sciences, 2010, 31(3): 405-412.
- Grazia M Marazzan, Stefano Vaccaro, et al. Characteristics of PM₁₀ and PM_{2.5} particulate matter in the ambient air of Milan [J]. Atmospheric Environment, 2001, 35: 4639-4650.

- Nilson E D, Patero J, Boy M. 2001. Effects of air masses and synoptic weather on aerosol formation in the continental boundary layer[J]. *Tellus Series B-Chemical and Physical Meteorology*, 53(4): 462-478.
- 郭利, 张艳昆, 刘树华, 等. 北京地区 PM₁₀ 质量浓度与边界层气象要素相关性分析[J]. *北京大学学报*, 2011, 47 (4): 607-612.
- 徐晓峰, 李青春, 张小玲. 北京一次局地重污染过程气象条件分析[J]. *气象科技*, 2005, 33 (6): 543-547.
- 王淑英, 张小玲. 北京地区 PM₁₀ 污染的气象特征[J]. *应用气象学报*, 2002, 13 (特刊): 177-184.
- 任阵海, 苏福庆, 高庆先, 等. 边界层内大气排放物形成重污染背景解析[J]. *大气科学*, 2005, 29 (1): 57-63.
- 颜鹏, 刘桂清, 周秀骥, 等. 上甸子秋冬季雾霾期间气溶胶光学特性[J]. *应用气象学报*, 2010, 21 (3): 257-265.
- 吴兑, 毕雪岩, 邓雪娇, 等. 2006. 珠江三角洲大气灰霾导致能见度下降问题研究[J]. *气象学报*, 64 (4): 510-517.
- 宋宇, 唐孝炎, 方晨, 等. 2003. 北京市能见度下降与颗粒物污染的关系[J]. *环境科学学报*, 23 (4): 468-471.
- Qiu J H, Yang L Q. Variation characteristics of atmospheric aerosol optical depths and visibility in North China during 1980-1994[J]. *Atmospheric Environment*, 2000, 34: 603-609.
- Wu D, Tie X X, Li C C, et al. An extremely low visibility event over the Guangzhou region: A case study[J]. *Atmospheric Environment*, 2005, 39: 6568-6577.
- 程从兰, 李青春, 刘伟东, 等. 北京地区一次典型大雾天气的空气污染过程物理量分布特征[J]. *气象科技*, 2003, 31 (6): 345-349.
- 樊文雁, 胡波, 王跃思, 等. 北京雾、霾天细粒子质量浓度垂直梯度变化的观测[J]. *气候与环境研究*, 2009, 14 (6): 631-637.
- 贺克斌, 贾英韬, 马永亮, 等. 北京大气颗粒物污染的区域性本质[J]. *环境科学学报*, 2009, 29 (3): 482-487.
- Zhao, X.J., P. S. Zhao, J. Xu, W. Meng, W. W. Pu, F. Dong, D. He, and Q. F. Shi, 2013. Analysis of a winter regional haze event and its formation mechanism in the North China Plain, *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, 13, 903-933.
- Huang W, Tan J G, Kan H D, et al. Visibility, air quality and daily mortality in Shanghai, China[J]. *Science of The Total Environment*, 2009, 407: 3295-3300.
- 白志鹏, 蔡斌彬, 董海燕, 等. 灰霾的健康效应[J]. *环境污染与防治*, 2006, 28 (3): 198-201.
- 孟燕军, 程从兰. 影响北京大气污染物变化的地面天气形势分析. *气象*, 2002, 28 (4): 42-46.
- 李德平, 程兴宏, 等. 北京地区三级以上污染日的气象因子初步分析[J]. *气象与环境学报*, 2010, 26 (3): 7-13.
- 陈媛, 岑况, 等. 北京市区大气气溶胶 PM_{2.5} 污染特征及颗粒物溯源追踪分析[J]. *现代地质*, 2010, 24 (2): 345-354.

CARSNET 太阳光度计室内积分球标定方法研究

(陶然^{1, 2, *}, 车慧正², 鲁赛³)

¹成都信息工程学院大气科学学院, 中国 成都, 610225

²中国气象科学研究院大气成分研究所, 中国 北京, 100081

³中国气象局气象探测中心大气成分服务于观测中心, 中国 北京, 100081

*Email: taoran616@sina.com

摘 要: 基于溯源于美国 NIST 机构标准的 Labsphere 公司生产的积分球光源系统, 利用积分球辐亮度标定方法, 对四台新型 Ce-318 太阳光度计 (T914, T984, T985 和 T986) 的天空散射通道进行了室内标定, 建立了一套应用于中国气溶胶遥感监测网 (CARSNET) 内 Ce-318 太阳光度计的室内标定方法和流程, 并且对这四台经此方法标定的新型太阳光度计进行了室外观测验证。标定结果显示, 2012 年 6 月利用西安光学精密机械研究所 ASD 分光光度计传递对积分球辐射源进行过标定, 积分球辐亮度除了在 1 个灯的光度级别下 440nm 处十次测量的相对误差达到 0.12%, 在其余波段和其余光强下相对标准偏差在 0.40% 以内, 说明此积分球光源输出稳定, 用其作为标准光源可靠, 结果可信度较高。计算得到的一起标定系数在可见光波段与 Cimel 公司提供的出厂数据相比, 偏差均在合理范围内, 红外波段偏差稍大, 其中 T914 的 1020nm 波段、T984 的 870nm 波段、T985 的 1020nm 波段和 T986 的 870nm 以及 670nm 波段的标定结果与出厂值的相对偏差在 3.12%~5.24% 之间, 其余波段的标定结果与出厂值相对偏差不超过 3%。利用完成标定的仪器 (T985 和 T986) 在室外进行观测验证, 获得的数据显示, 在太阳等高度角天空扫描 (ALMUC) 和太阳主平面扫描 (PPLAN) 两种扫描模式下, 各扫描模式在 $\pm 6^\circ$ 处, 由 AUR 通道和 SKY 通道各自测量的太阳辐照度在所有观测波段 (1020nm, 1640nm, 870nm, 675nm, 440nm 和 500nm) 处, 其辐照度数值是基本一致的, 相差在 1% 以内, 表明本文介绍的标定方法适用于 CARSNET 仪器的大规模标定, 并对站网观测的精确度和数据质量的提高有帮助。

Development of an integrating sphere calibration method for China Aerosol Remote Sensing NETwork Cimel sunphotometer

Ran Tao^{1, 2}, Huizheng Che^{2*}, Quanliang Chen¹, Yaqiang Wang², Junying Sun², Xiaochun Zhang³, Sai Lu³,
Jianping Guo², Hong Wang², Xiaoye Zhang²

1College of Atmospheric Sciences, Chengdu University of Information Technology

*2Key Laboratory of Atmospheric Chemistry (LAC), Chinese Academy of Meteorological Sciences (CAMS),
CMA, Beijing, 100081*

3Meteorological Observation Center, CMA, Beijing, 100081

Address: 46 Zhong-Guan-Cun S. Ave., Beijing 100081, China

E-mail: chehz@cams.cma.gov.cn

Tel: 86-10-5899-3116

Fax: 86-10-6217-6414

Abstract:Based on the integrating sphere traced from NIST (U.S.A), a sphere calibration method and protocol for the China Aerosol Remote Sensing NETwork (CARSNET) Cimel sunphotometer was established. Four Ce-318 sunphotometers have been verified using the calibration method and operational protocol. The calibration results show the instruments' coefficients differ less than 3% (~5%) for visible (infrared) wavelengths from the original ones offered by Cimel Co. Ltd. In-situ validation experiments data showed the irradiances at $\pm 6^\circ$ measured by sun collimator (aureole) are consistent with those measured by sky collimator (sky) under both almucantar (ALMUC) and principal plane (PPLAN) scenarios. The differences at all wavelengths are less than 1%, which indicates the method and protocol are suitable for CARSNET field sunphotometer calibration and should benefit the improvement of data quality and accuracy of network observations.

Keywords: Ce-318 sunphotometer, integrating sphere calibration, CARSNET

大型燃烧腔的设计、特征与实验测试——生物质露天燃烧的室内模拟

(田杰¹, 韩永明^{1*}, 倪海燕², L.-W. A. Chen^{3, 1}, 曹军骥¹)

1 中国科学院地球环境研究所, 西安, 710075

2 西安交通大学, 西安, 710049;

3 Desert Research Institute, 2215 Raggio Parkway, Reno, Nevada 89512, USA

摘 要: 生物质露天燃烧会直接向大气中排放各种气态和颗粒态污染物, 如有机污染物 (包括多环芳烃等)、重金属、二氧化碳、一氧化碳等, 是大气细颗粒物 (PM_{2.5}) 和含碳气溶胶 (如有机碳 OC 和元素碳 EC) 的一个主要来源, 不仅恶化区域空气质量, 降低大气能见度, 而且改变生态系统的循环, 产生不利的健康效应。为了获得生物质露天燃烧的排放因子, 中国科学院地球环境研究所 (IEECAS) 与美国沙漠研究所 (DRI) 合作建立了一套测量生物质露天燃烧排放因子的室内模拟平台, 包括稀释通道采样系统和大型燃烧腔。本文着重介绍了大型燃烧腔的结构组成、工作原理以及在模拟生物质露天燃烧真实状况时相较于其他燃烧腔的特点和优势, 并通过实验测试得到小麦秸秆的排放因子 $EF_{PM_{2.5}}=10.49\pm3.43\text{g/kg}$, $EF_{OC}=3.94\pm2.50\text{g/kg}$, $EF_{EC}=0.53\pm0.19\text{g/kg}$, 通过文献数据对比, 证明大型燃烧腔系统设计科学合理, 在排放因子、排放清单、源谱分析及 PM_{2.5} 来源解析研究中具有广阔的应用前景。

关键字: 大型燃烧腔, 生物质露天燃烧, 排放因子

Aerosol vertical distribution and seasonal variation over SACOL derived from CALIPSO lidar observations

(Pengfei Tian, Lei Zhang, Xianjie Cao)*

Key Laboratory for Semi-Arid Climate Change of the Ministry of Education, College of Atmospheric Sciences, Lanzhou University, Lanzhou, 730000, China

**Author to whom correspondence should be addressed. E-mail: zhanglei@lzu.edu.cn*

Abstract: Firstly, presents an assessment of CALIPSO observation by comparing to the ground based lidar CE 370-2. Then CALIPSO level 2 aerosol profile data from June 2006 to October 2011 is used to study the vertical distribution and seasonal variation of aerosols over SACOL. Four types of aerosols are observed over SACOL: dust (with an occurrence frequency of 55.3% among all subtypes of aerosols), polluted dust (27.3%), smoke (15.5%) and clean continental (1.8%). Aerosols are uniformly distributed from ground to 2 km above, anthropogenic aerosols decrease while natural aerosols relatively increase from 2 to 4 km, dust dominates in the heights of 4~6 km, while only polluted dust is observed in the layer of 6~8 km, no aerosol is observed above 8 km. In spring, dust occurs frequently over SACOL (90.6%); in summer, the occurrence frequency of smoke almost equals that of polluted dust and these two types of aerosols occur almost at the same height bin; in autumn, local dust and smoke are mixed from ground to 2 km; in winter, dust is observed in the height bin of 2~6 km. Dust is mostly observed in spring and winter within 6 km; smoke is mostly observed in summer and autumn within 4 km; polluted dust has much the same occurrence frequency in summer, autumn and winter, mostly below 2 km and can reach the height bin of 6~8 km.

Key words: atmospheric aerosol, CALIPSO, vertical distribution, seasonal variation

1. Introduction

Through the direct radiative effect (scatter and absorb the solar radiation), indirect radiative effect (modify the microphysical processes and albedo of cloud) and semi-direct radiative effect (emit long wave radiation to affect atmospheric temperature structure), atmospheric aerosols play an important role in the earth-atmosphere system (Charlson et al, 1987; IPCC, 2007). As one of the major forcing factors of climate change, atmospheric aerosols become a popular research topic (Charlson et al, 1992; Pornsawad, et al, 2012). Due the vastly temporal and spatial variation, the study on the aerosol radiative effect still exist uncertainties and is the most important characteristic of atmospheric aerosols; the vertical distribution influences the atmospheric temperature structure (Satheesh et al, 2009; Guan et al, 2010).

Lidar, or laser radar, has the advantage of detecting the vertical distribution of aerosols, been used to study aerosols, laying the foundation for studying atmospheric aerosols (Collis, 1967; Klett, 1981; Fernald, 1984). Since April 2006, space borne lidar CALIOP has collected a large number of valuable data. CALIPSO data

has been widely used in research work: Winker et al (2007) carried out the initial performance assessment of CALIOP; Liu et al (2008) studied the airborne dust distributions over the Tibetan Plateau and surrounding areas, Mishra and Shibata (2012) studied vertical distribution over central Indo-Gangetic belt, Campbell et al (2012) studied aerosol vertical distribution over Southeast Asia and the Maritime Continent. Liu et al (2013) studied the transpacific transport and evolution of the optical properties of Asian dust. It is widely accepted that space borne lidars provide a good opportunity to examine aerosol vertical distribution.

Based on SACOL, Key Laboratory for Semi-Arid Climate Change of the Ministry of Education carried out a lot of research work: Huang et al (2008a) analyzed the initial observation of a micro-pulse lidar, Bi et al (2010) carried out the characterization of the aerosol optical properties, Li Xia and Zhang Lei (2012) used backward trajectories derived from the NOAA HYSPLIT model NCEP/NCAR reanalysis data to study the sources of aerosols over SACOL. But subtypes of aerosols are not analyzed over SACOL.

Though, lidar ratio (or the aerosol extinction-to-backscatter ratio) varies with the aerosol size distribution, shape, and composition (He et al., 2006), each subtype of aerosol has a statistical typical value (Omar et al., 2009), which is essential in lidar equation. The study of Zhang et al (2010) sets lidar ratio as 20 for the altitude below 2 km and 25 for that above 2 km in the lidar data retrieval. To appropriately set the value of lidar ratio, the subtype of aerosols must be studied in detail.

Dust has been the research focus of SACOL: Zhang et al (2010) analyzed the vertical distribution of dust aerosol and its radiative properties during a dust storm from 27~29 March 2007, Zhou et al (2012) analyzed the vertical distribution and size distribution of dust during another dust storm from 16~18 March 2010. These research works focus on the dust during spring (March, April and May; the other seasons, vice verse); aerosols during the other seasons are not analyzed.

This paper aims to analyze the vertical distribution and seasonal variation of aerosol subtypes over SACOL, using the data collected by CALIPSO and some ground based observations.

2.Data and Methodology

2.1 Data analysis

Level 2 Version 3-01 5 km data from June 2006 to October 2011 collected by the space-borne lidar CALIOP (Cloud-Aerosol Lidar with Orthogonal Polarization) onboard the satellite CALIPSO (Cloud-Aerosol Lidar Infrared Pathfinder Satellite Observation) is used in this study. Statics of the day and night data distance from SACOL is shown in table 1.

Table 1 Distance between SACOL and the selected CALIPSO observation

	Mean	Min	Max	File number
Day (km)	8.0	1.0	16.4	115
Night (km)	67.7	58.5	77.3	228

Mean distance during daytime is 8.0 km while in the night is 67.7 km. Take the vastly spatial variation of

aerosols into consideration, the CALIPSO data in the daytime is used in this study to compare with the ground data collected by SACOL.

The ground based lidar CE 370-2 with the wavelength of 532 nm is applied to carry out the assessment of CALIPSO observation. The data corrections to the CE 370-2 lidar data is carried out including dead time correction, afterpulse correction, background noise subtraction and geometric overlap correction. The data of particle size distribution and Ångström exponent over SACOL from AERONET is also used in the study.

2.2 Occurrence frequency of aerosols vertical distribution

The CALIPSO aerosol-type identification algorithm defines six aerosol types: clean continental (with 532 nm lidar ratio of 35), clean marine (20), dust (40), polluted continental (70), polluted dust (65), and smoke (70), called the CALIPSO aerosol model.

To achieve better understanding of the vertical distribution of aerosols, the occurrence frequency of aerosols in different height bins is calculated. Five height bins is divided: within 2 km, 2~4 km, 4~6 km, 6~8 km and above 8 km, same as that in the research of Liu et al (2008). As the vertical resolution of CALIPSO data is 60 m, each divided height bin has sub bins. The height bin with more than 3 sub bins detected aerosols is considered as one in which aerosols detected. The number of detected aerosols is counted and then the occurrence frequency is calculated of aerosols for each height bin.

2.3 Anthropogenic Aerosol Ratio

Smoke is a kind of anthropogenic aerosol while dust is generated by nature; polluted dust is the mixture of smoke and dust. Here Anthropogenic Aerosol Ratio (AAR) is defined as the ratio between occurrence frequency of aerosols from anthropogenic and natural sources.



$$\text{FTIR} \xleftrightarrow{\text{Ge}} \text{Detector} \rightarrow \text{PC} \quad (1)$$

Where N stands for the occurrence frequency of aerosols, the subscripts stands for aerosol subtypes. So, AAR equals to 1 means that anthropogenic aerosols and aerosols of natural sources have the same occurrence frequency; AAR larger than 1 indicates more anthropogenic aerosols while AAR less than 1 indicates more aerosols of natural sources.

3. Results

3.1 Assessment of CALIPSO observation

Figure 1 and 2 show the assessment of CALIPSO observation compared with the ground based lidar CE 370-2. In figure 1 the CALIPSO data is at 06:24 (UTC) while the ground based lidar data is at 06:34; in figure 2 the CALIPSO data is also at 06:24 while the ground based lidar data time is at 06:14.

Aerosol is detected from ground to 2.7 km by CALIPSO and CE 370-2 observation. There is a maximum of CE 370-2 observation near ground; both CALIPSO and CE 370-2 observation decrease gradually from ground to higher height. The aerosol optical depth (AOD) is 0.30 for CALIPSO observation while it is 0.32

for CE 370-2 observation in figure 1; the AOD for CALIPSO and CE 370-2 observation are 0.57 and 0.67 in figure 2. CALIPSO observed AOD is smaller than that observed by CE 370-2.

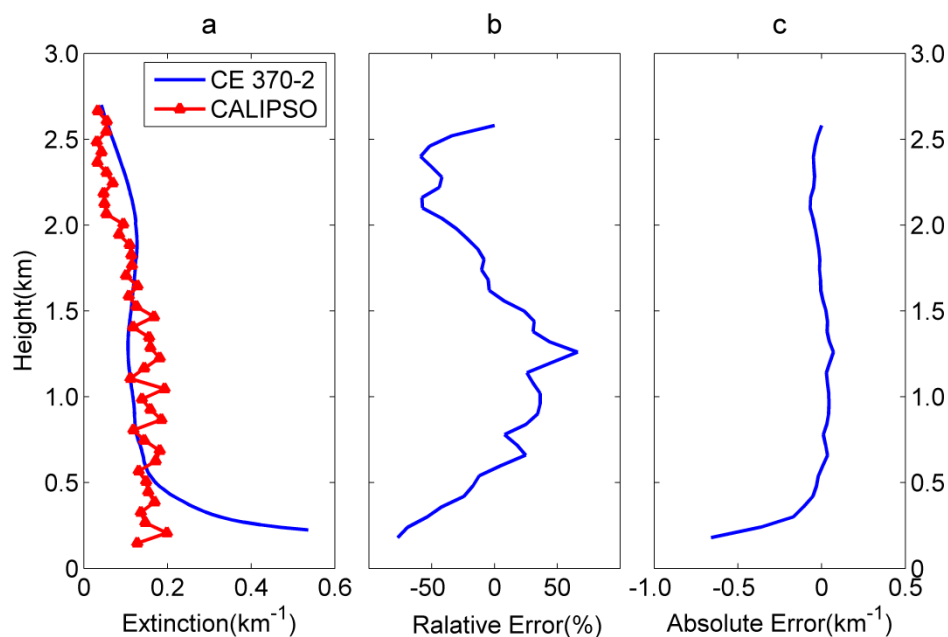


Fig. 1 The assessment of CALIPSO observation on March 26, 2007

The maximum absolute value of relative error and absolute error occur below 0.5 km; above 0.5 km the absolute error is quite small. On the whole, the CALIPSO observation and the ground based lidar CE 370-2 observation agree well; CALIPSO observation is less than CE 370-2 observation, the main difference occurs below 0.5 km.

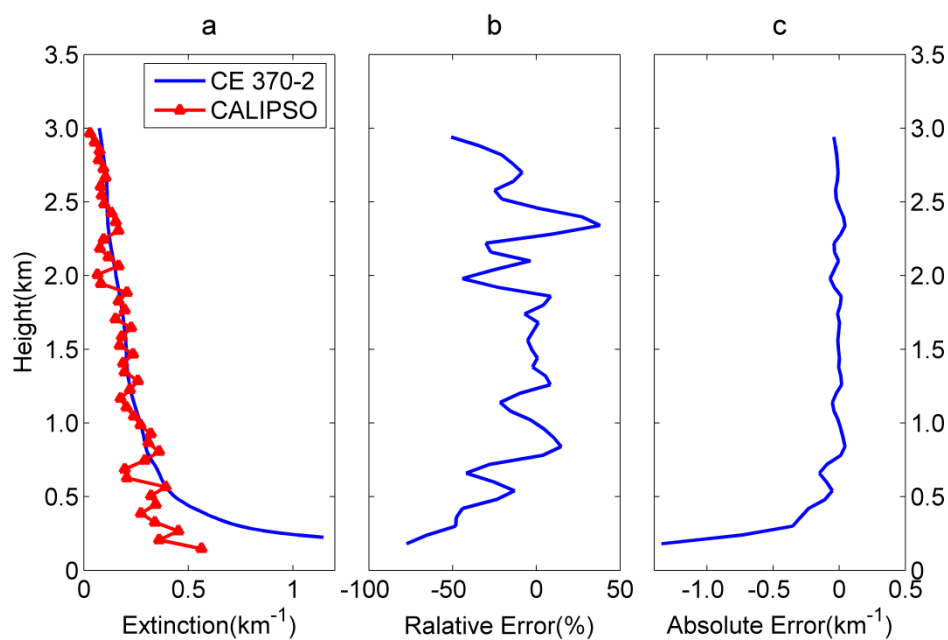


Fig. 2 The assessment of CALIPSO observation on April 11, 2007

3.2 Vertical distribution and seasonal variation of aerosols subtypes

Table 2 shows the vertical distribution of all types of aerosols over SACOL. And in all the aerosols occurrence frequency decreases with height: 67.8% within 2 km, 96.0% within 4 km, and 4.0% between 4~8km, no aerosols above 8km. The detected subtypes of aerosols are dust (with an occurrence frequency of 55.3% among all subtypes of aerosols), polluted dust (27.3%), and smoke (15.5%) and clean continental (1.8%).

Table 2 Occurrence frequency of all types of aerosols for the divided height bins

Height bins (AGL, km)	Dust	Clean Cont.	Polluted Dust	Smoke	All Aerosols	Frequency (%)	AAF (%)
8~	0	0	0	0	0	0.0	-
6~8	0	0	4	0	4	0.5	1.00
4~6	26	0	1	0	27	3.5	0.04
2~4	134	7	49	30	220	28.2	0.42
~2	271	7	159	91	528	67.8	0.57
All height bins	431	14	213	121	779	100.0	0.51
Frequency (%)	55.3	1.8	27.3	15.5	100.0	-	-

Dust aerosol mainly occurs below 4 km (accounts for 94.0% of all dust aerosol), reaching a maximum height of 4~6 km. Smoke aerosol is completely located within 4 km. Polluted dust aerosol mainly occurs below 4 km (accounts for 97.7% of all polluted dust aerosol), a small amount can reach a maximum height of 6~8 km (1.9%), higher than the maximum height of smoke. Clean continental aerosol is detected on September 7, 2009, at the height about 2.0 km, so it is counted in both from ground to 2 km and 2~4 km height bins.

The anthropogenic aerosol ratio (AAR) is 0.51 for all subtypes of aerosols in all height bins, indicating more aerosols of natural sources than anthropogenic aerosols over SACOL. AAR decreases with height within 6 km, indicating more anthropogenic aerosols near the ground and relatively more aerosols of natural sources in higher heights. Only polluted dust is detected in the 6~8 km height bin, so the AAR in this height bin is 1.0.

Table 2 describes the occurrence of aerosols in different height bins, not the content of aerosols. Figure 3 (a) shows the vertical profile of aerosol backscatter coefficient which indicates the variation of aerosol content with height. In figure 3 the height equals to 0 km means the surface of SACOL. SACOL is located on top of the Cuiying Mountain, so the initial height in figure 3 is negative. The aerosol backscatter coefficient reaches the maximum near ground, and then decreases with height till about 8 km.

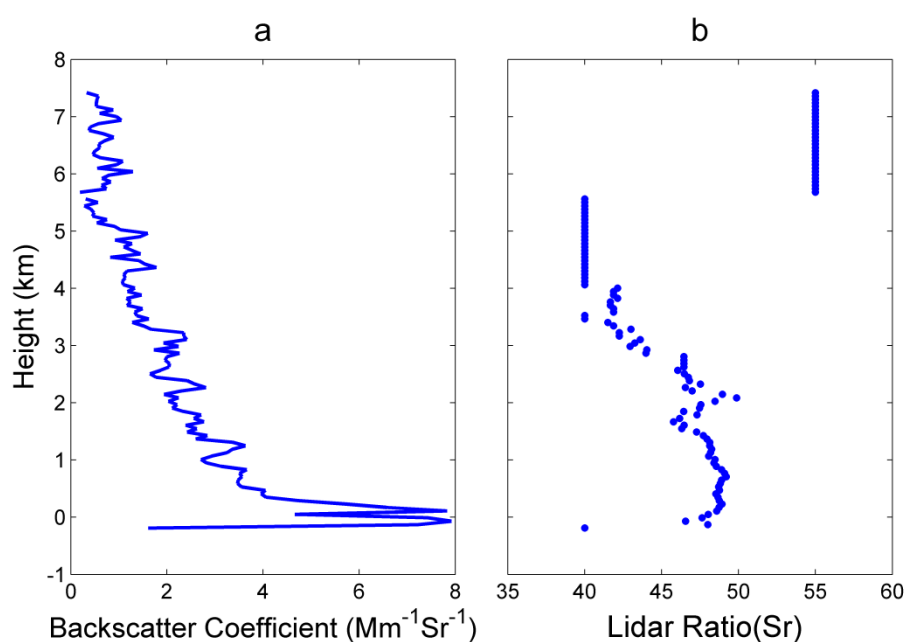


Fig. 3 Aerosol backscatter coefficient and lidar ratio of all aerosol subtypes

Figure 3 (b) shows the vertical distribution of lidar ratio, which is initially defined as a constant value for each subtype of aerosols in CALIPSO retrieval algorithm, so it can be used to distinguish the subtypes of aerosols. It is defined 40, 65 and 70 for dust polluted dust and smoke. Lidar ratio is around 48 in the height bin of from ground to 2 km, indicating different subtypes of aerosols uniformly distributed in this height bin. Lidar ratio decreases in the height bin of 2~4 km, meaning that smoke decreases while dust relatively increases in this height bin, the same trend as shown by AAR. Lidar ratio is around 40 in the height bin of 4~6 km, indicating dust dominants this height bin. Only polluted dust is detected in the height bin of 6~8 km, so the lidar ratio equals to 55 (smaller than the typical value of 65, may be resulted in by the relatively higher occurrence frequency of dust aerosol) in this height bin.

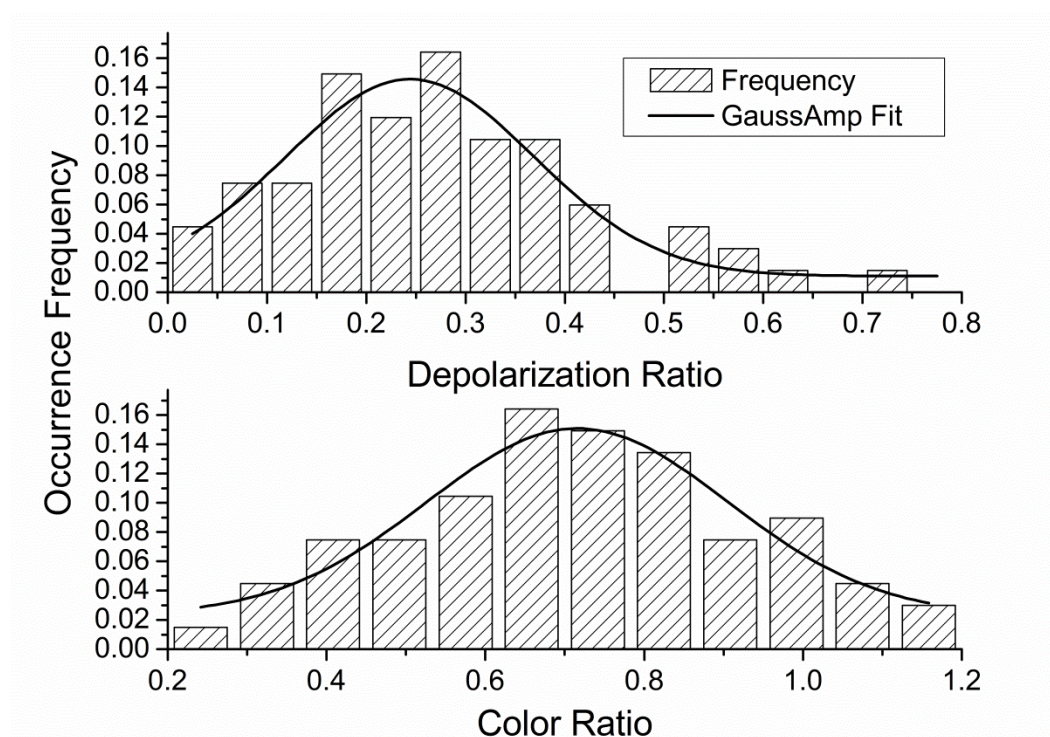


Fig. 4 Aerosol depolarization and color ratio of all aerosol subtypes

The aerosol particle depolarization ratio (PDR) is defined as the ratio of the perpendicular polarization component to the parallel component of aerosol scattering, indicates the non-sphericity of aerosols. The color ratio (CR) of aerosols in CALIPSIO data is defined as the ratio of backscatter between 1064 nm and 532 nm, which can be used to describe the size of aerosols. PDR ranges from less than 0.1 to greater than 0.4, with the peak value of about 0.28, similar to the PDR of dust in the study of Liu et al (2013). CR ranges from 0.2 to 1.2, with the peak value of about 0.71, greater than the results of Omar et al (2009) and Mishra and Shibata (2012), indicating larger size of aerosols over SACOL.

Aerosol distribution is analyzed as a whole above; the seasonal variation of aerosols over SACOL will be analyzed as follows.

Table 3 Occurrence frequency of all types of aerosols in different seasons

Height (AGL, km)	Spring	Summer	Autumn	Winter	All seasons	Frequency (%)
8~	0	0	0	0	0	0.0
6~8	1	0	3	0	4	0.6
4~6	8	6	0	15	29	4.2
2~4	72	58	45	27	202	29.0
~2	95	91	132	143	461	66.2
All height bins	176	155	180	185	696	100.0
Frequency (%)	25.3	22.3	25.9	26.6	100.0	-

Because of different counting methods, the total number in table 3 is 696, less than that in table 2, while the vertical distribution shown in table 3 is similar to that in table 2. The occurrence frequency in autumn and winter is slightly larger than that in spring and summer. The occurrence frequency in four seasons in the height bin of 0~2 km respectively are 54.0%、58.7%、73.3% and 77.3% while in the height bin of 2~4 km are 40.9%、37.4%、25.0% and 14.6%, indicating relatively more aerosols in the height bin of 0~2 km in autumn and winter while more aerosols in the height bin of 2~4 km in spring and summer. The occurrence frequency in winter is the largest; slightly less in spring and summer; no aerosol is detected in autumn.

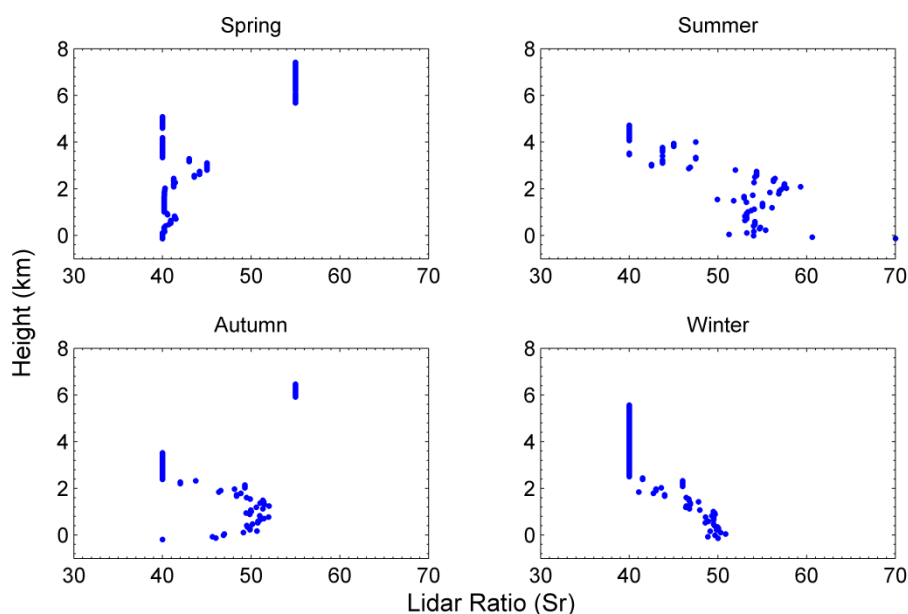


Fig. 5 Lidar ratio vertical profile in different seasons

According to the CALIPSO aerosol model, figure 5 reflects the vertical distribution of aerosol types. In spring, lidar ratio is about 40 from ground to 6 km, indicating the dominance of dust; it is 55 in the height bin of 6~8 km, implying the occurring of polluted dust. In summer, lidar ratio decreases from 70 to 40 from ground to 6 km, indicating more anthropogenic aerosols (such as smoke) near the ground and relatively more aerosols of natural sources (such as dust) at higher heights. In autumn, lidar ratio firstly increases from 40 to 53 and then decreases to 40 gradually from ground to about 2 km, indicating local dust near ground and smoke in this height bin; it is 40 in the height bin of 2~4 km, implying the presence of dust; only polluted dust detected in the height bin of 6~8 km, so the lidar ratio is 55. In winter, lidar ratio decreases from 52 to 40 from ground to 2 km, indicating the presence of dust and smoke; it is 40 from 2 km to 6 km, indicating the dominance of dust.

Figure 7 shows the aerosol size distribution for all seasons over SACOL derived from the data provided by AERONET. By comparing to the aerosol size distribution carried out by Omar et al (2009), the aerosol size distribution in spring and winter separately are similar to that of dust and polluted dust while in

summer and autumn similar to that of smoke.

Ångström exponent (AE) is used to describe the aerosol particle size (Eck et al, 1999), AE less than 1 indicates large aerosol particle while AE larger than 1 indicates small aerosol particle. AE in spring, summer, autumn and winter are 0.70, 1.10, 1.01 and 0.84, indicating more dust in spring and winter while more smoke in summer and autumn.

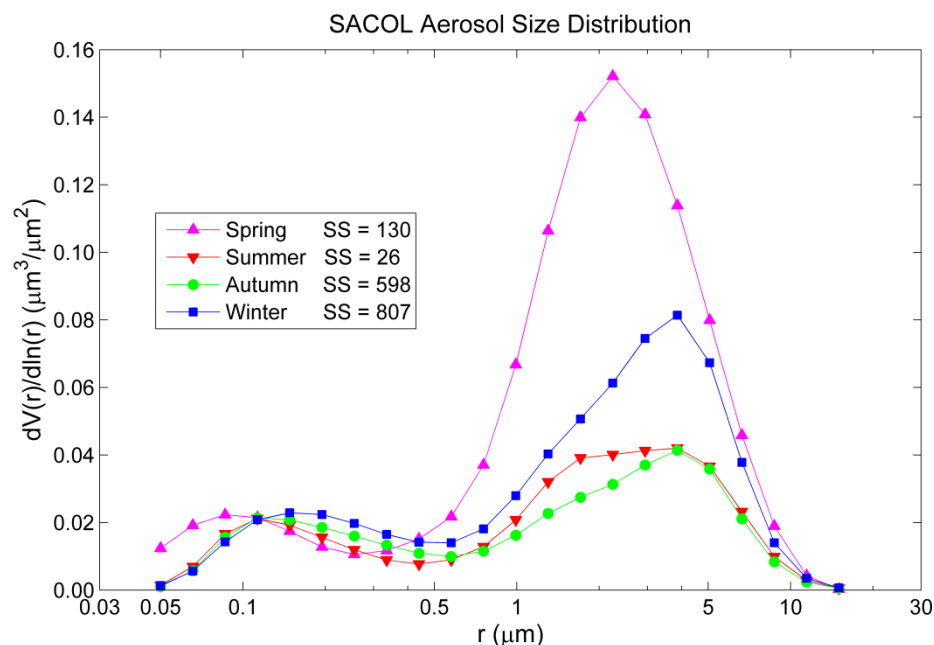


Fig. 6 Aerosol size distribution for all seasons

3.3 Dust vertical distribution and seasonal variation

Table 4 Occurrence frequency of dust in all seasons

Height (AGL, km)	Spring	Summer	Autumn	Winter	Whole year	Frequency (%)
6~	0	0	0	0	0	0.0
4~6	5	6	0	15	26	6.0
2~4	64	21	29	20	134	31.1
~2	94	24	68	85	271	62.9
All height bins	163	51	97	120	431	100.0
Frequency (%)	37.8	11.8	22.5	27.8	100.0	-

As shown in table 4, dust occurs within 6 km above ground and 94.0% within 4 km. The occurrence frequencies of dust are higher in spring and winter, separately 37.8% and 27.8%; while lower in summer and autumn, separately 11.8% and 22.5%. SACOL is located at the semi-arid area and the edge of the Loess Plateau, with the Taklimakan Desert at the northwest side and Gobi Desert at the north side, so dust occurs all over the year. The vegetation cover is to the disadvantage of dust emission during summer and autumn while the exposed surface helps the emission of dust during spring and winter, so there is less dust during

summer and autumn and more during spring and winter.

3.4 Smoke vertical distribution and seasonal variation

Smoke occurs within 4 km above ground as shown in table 5, indicating that smoke originates from local sources. The occurrence frequency in summer is the highest (48.8%), lower in autumn (31.4%) and winter (19.8%). The occurrence frequency in winter is low and smoke is detected during spring, this may related to the dominance of dust during spring and winter.

Table 5 Occurrence frequency of smoke in different seasons

Height (AGL, km)	Spring	Summer	Autumn	Winter	Whole year	Frequency (%)
4~	0	0	0	0	0	0.0
2~4	0	21	9	0	30	24.8
~2	0	38	29	24	91	75.2
All height bins	0	59	38	24	121	100.0
Frequency (%)	0.0	48.8	31.4	19.8	100.0	-

3.5 Polluted dust vertical distribution and seasonal variation

As shown in table 6, polluted dust mainly occurs within 2 km (77.0%, from local sources) and a small amount can reach the height bin of 6~8 km (1.9%, transported from long distance sources). The occurrence frequency of polluted dust in spring is quite low among all the seasons, may caused by the dominance of dust in spring. In summer, autumn and winter, polluted dust occurs within 4 km while it can reach higher height in spring.

Table 6 Occurrence frequency of polluted dust in different seasons

Height (AGL, km)	Spring	Summer	Autumn	Winter	Whole year	Frequency (%)
8~	0	0	0	0	0	0.0
6~8	1	0	3	0	4	1.9
4~6	1	0	0	0	1	0.5
2~4	12	23	6	3	44	20.7
~2	3	37	56	68	164	77.0
All height bins	17	60	65	71	213	100.0
Frequency (%)	8.0	28.2	30.5	33.3	100.0	-

4. Summary and Conclusions

The vertical distribution and seasonal variation of aerosols over SACOL are analyzed using the CALIPSO level 2 aerosol profile data from June 2006 to October 2011. Ground based lidar profile data, particle size distribution and Ångström exponent data are also used as validation.

CALIPSO observation and the ground based lidar CE 370-2 observation agree well; CALIPSO observation is less than CE 370-2 observation, the main difference occurs within 0.5 km.

Aerosol occurrence frequency decreases with height, 67.8% within 2 km, 96.0% within 4 km, and 4.0% between 4~8 km. The detected subtypes of aerosols are dust (with an occurrence frequency of 55.3% among all subtypes of aerosols), polluted dust (27.3%), and smoke (15.5%) and clean continental (1.8%). The anthropogenic aerosol ratio (AAR) is 0.51 for all subtypes of aerosols in whole, indicating more aerosols of natural sources than anthropogenic aerosols over SACOL.

Aerosols are uniformly distributed from ground to 2 km above, anthropogenic aerosols decrease while natural aerosols relatively increase from 2 to 4 km, dust dominates the height bin of 4~6 km, only polluted dust is observed at the height bin of 6~8 km, no aerosol is observed above 8 km.

In spring, dust occurs frequently over SACOL (90.6%), no smoke is detected in this season; in summer, the occurrence frequency of smoke almost equals that of polluted dust and these two aerosols occur almost at the same heights; in autumn, local dust and smoke are mixed from ground to 2 km; in winter, dust is observed at the heights of 2~6 km.

Dust is mostly observed in spring and winter, below 6 km; smoke is mostly observed in summer and autumn, below 4 km; polluted dust has much the same occurrence frequency in summer, autumn and winter, mostly below 2 km and can reach the heights of 6~8 km.

For the comparison to the ground data collected by SACOL, only CALIPSO data of the day is used in this study; CALIPSO data of the night will be applied to study aerosols for appropriate study area.

Acknowledgements

This work was funded by National Basic Research Program of China (2012CB955302), National Natural Science Foundation of China (41075104), National Natural Science Foundation of China (41205112), and Program for Changjiang Scholars and Innovative Research Team in University (IRT1018). The authors acknowledge the CALIPSO team and SACOL for providing satellite data sets and CE370-2 lidar data. We also thank the AERONET program for providing the particle size distribution and Ångström exponent data.

References :

- [1]Bi, J. R., Huang, J. P., Fu, Q., Wang, X., Shi, J. S., Zhang, W., Huang, Z. W., & Zhang, B. D. (2011). Toward characterization of the aerosol optical properties over Loess Plateau of Northwestern China. *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, 112(2), 346-360.
- [2]Campbell, J. R., Reid, J. S., Westphal, D. L., Zhang, J. L., Tackett, J. L., Chew, B. N., Welton, E. J., Shimizu, A., Sugimoto, N., Aoki, K., & Winker, D. M. (2012). Characterizing aerosol particle composition and the vertical profile of extinction and linear depolarization over Southeast Asia and the Maritime Continent: the 2007–2009 view from CALIOP. *Atmospheric Research*, [http://dx. doi.org/10.1016/j.atmosres.7](http://dx.doi.org/10.1016/j.atmosres.7).

- [3]Charlson, R. J., Lovelock, J. E., Andreae, M. O., & Warren, S. G. (1987). Oceanic phytoplankton, atmospheric sulphur, cloud albedo and climate. *Nature*, 326(6114), 655-661.
- [4]Charlson, R. J., Schwartz, S. E., Hales, J. M., Cess, R. D., Coakley JR, J. A., Hansen, J. E., & Hofmann, D. J. (1992). Climate forcing by anthropogenic aerosols. *Science*, 255(5043), 423-430.
- [5]Collis, R. T. H. (1966). Lidar: a new atmospheric probe. *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, 92(392), 220-230.
- [6]Eck, T. F., Holben, B. N., Reid, J. S., Dubovik, O., Smirnov, A., O'Neill, N. T., Slutsk, I., & Kinne, S. (1999). Wavelength dependence of the optical depth of biomass burning, urban, and desert dust aerosols. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 104(D24), 31333-31349.
- [7]Fernald, F. G. (1984). Analysis of atmospheric lidar observations-Some comments. *Applied Optics*, 23(5), 652-653.
- [8]Guan, H., Schmid, B., Bucholtz, A., & Bergstrom, R. (2010). Sensitivity of shortwave radiative flux density, forcing, and heating rate to the aerosol vertical profile. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 115(D6).
- [9]He, Q. S., Li, C. C., Mao, J. T., Lau, A. K. H., and Li, P. R. (2006). A study on the aerosol extinction-to-backscatter ratio with combination of micro-pulse LIDAR and MODIS over Hong Kong, *Atmos. Chem. Phys.*, 6, 3243-3256, doi:10.5194/acp-6-3243-2006.
- [10]Huang, J. P., Huang, Z. W., Bi, J. R., Zhang, W., & Zhang, L. (2008a). Micro-pulse lidar measurements of aerosol vertical structure over the Loess Plateau. *Atmos. Oceanic Sci. Lett.*, 1(1), 8-11.
- [11]Huang, J. P., Zhang, W., Zuo, J. Q., Bi, J. R., Shi, J. S., Wang, X., Chang, Z. L., Huang, Z. W., Yang, S., Zhang, B. D., Wang, G. Y., Feng, G. H., Yuan, J. Y., Zhang, L., Zuo, H. C., Wang, S. G., Fu, C. B., & Chou, J. F. (2008b). An overview of the semi-arid climate and environment research observatory over the Loess Plateau. *Advances in atmospheric sciences*, 25(6), 906-921.
- [12]Intergovernmental Panel on Climate Change (IPCC). 2007. In: Solomon, S., Qin, D., Manning, M., Chen, Z., Marquis, M., Averyt, K.B., Tignor, M., Miller, H.L. (Eds.), *Climate Change 2007: The Physical Science Basis. Contribution of Working Group I to the Fourth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change*. Cambridge Univ. Press, Cambridge, U. K.
- [13]Klett, J. D. (1981). Stable analytical inversion solution for processing lidar returns. *Applied optics*, 20(2), 211-220.
- [14]Li, X., & Zhang, L. (2012). Analysis of aerosol sources and optical properties based on backward trajectory method over SACOL. *Acta Phys. Sin.*, 61(2): 023402. (in Chinese)
- [15]Liu, Z., Liu, D., Huang, J., Vaughan, M., Uno, I., Sugimoto, N., Kittaka, C., Trepte, C., Wang, Z., Hostetler, C., & Winker, D. (2008). Airborne dust distributions over the Tibetan Plateau and surrounding areas derived from the first year of CALIPSO lidar observations. *Atmos. Chem. Phys.*, 8(16), 5045-5060.
- [16]Liu, Z., Duncan Fairlie, T., Uno, I., Huang, J., Wu, D., Omar, A., Kar, J., Vaughan, M., Rogers, R., Winker, D., Trepte, C., Hu, Y. X., Sun, W. B., Lin, B., & Cheng, A. (2013). Transpacific transport and evolution of the optical properties of Asian dust. *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*.
- [17]Mishra, A. K., & Shibata, T. (2012). Climatological aspects of seasonal variation of aerosol vertical distribution over central Indo-Gangetic belt (IGB) inferred by the space-borne lidar CALIOP. *Atmospheric Environment*, 46, 365-375.

- [18]Omar, A. H., Winker, D. M., Kittaka, C., Vaughan, M. A., Liu, Z. Y., Hu, Y. X., Trepte, C. R., Rogers, R. R., Ferrare, R. A., Lee, K. P., KUEHN, R., E., & Hostetler, C.A. (2009). The CALIPSO automated aerosol classification and lidar ratio selection algorithm. *Journal of Atmospheric and Oceanic Technology*, 26(10), 1994-2014.
- [19]Pornsawad, P., D'Amico, G., Böckmann, C., Amodeo, A., & Pappalardo, G. (2012). Retrieval of aerosol extinction coefficient profiles from Raman lidar data by inversion method. *Applied Optics*, 51(12), 2035-2044.
- [20]Satheesh, S. K., Krishna Moorthy, K., Suresh Babu, S., Vinoj, V., Nair, V. S., Beegum, S. N., Dutt, C. B. S., Alappattu, D. P., & Kunhikrishnan, P. K. (2009). Vertical structure and horizontal gradients of aerosol extinction coefficients over coastal India inferred from airborne lidar measurements during the Integrated Campaign for Aerosol, Gases and Radiation Budget (ICARB) field campaign. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 114(D5).
- [21]Winker, D. M., Hunt, W. H., & McGill, M. J. (2007). Initial performance assessment of CALIOP. *Geophysical Research Letters*, 34(19).
- [22]Zhang, L., Cao, X. J., Bao, J., Zhou, B., Huang, J. P., Shi, J. S., & Bi, J. R. (2010). A case study of dust aerosol radiative properties over Lanzhou, China. *Atmos. Chem. Phys*, 10, 4283-4293. (in Chinese)
- [23]Zhou, B., Zhang, L., Cao, X. J., Li, X., Huang, J. P., Shi, J. S., & Bi, J.R. (2012). Analysis of the vertical structure and size distribution of dust aerosols over the semi-arid region of the Loess Plateau in China, *Atmospheric Chemistry and Physics Discussions*, 12, 6113-6143.

北京城区夏季大气气溶胶亲水性特征研究

(田平^{1,2}, 张仁健², 颜鹏³, 王广甫¹, 武云飞²)

1 北京师范大学核科学与技术学院, 北京, 100875;

2 中国科学院大气物理研究所, 北京, 100029;

3 中国气象局气象探测中心, 北京, 100081

摘 要: 为研究北京城区夏季气溶胶的光学特性及其亲水性特征, 2012 年 5 月 26 日至 2012 年 6 月 30 日在中国科学院大气物理研究所铁塔分部 (IAP, CAS) 进行了针对气溶胶散射系数 σ_s 、吸收系数 σ_a 、单次散射反照率 ω_0 以及 σ_s 亲水性增长因子 $f(\text{RH})$ 随相对湿度变化的实验。结果显示, 2012 年 6 月北京城区 525 nm 气溶胶 σ_s 、 σ_a 和 ω_0 的平均值分别为 $370.3 \pm 313.2 \text{ Mm}^{-1}$ 、 $42.4 \pm 28.4 \text{ Mm}^{-1}$ 、 0.85 ± 0.26 , 与其它在北京城区的测量结果相比偏低。当相对湿度从低到高变化的过程中, $f(\text{RH})$ 主要表现出平滑连续增长的特点。在“清洁”天气下, $f(\text{RH}=80\%)$ 亲水特性不显著; 而在“污染”情况下和“重污染”情况下, σ_s 体现出较强的吸湿特性。根据 $\text{PM}_{2.5}$ 和 PM_{10} 膜采样中化学成分的分析结果, 观测期间 $f(\text{RH}=80\%)$ 和 OMC/SO_2-4 之比呈明显的负相关关系, 说明有机碳成分对气溶胶的亲水性有一定的抑制作用。本文同时研究了 σ_s 、 σ_a 和 ω_0 对亲水性增长因子的影响, 结果显示, 当 σ_s 大于 200 Mm^{-1} 或 ω_0 大于 0.9 时, $f(\text{RH}=80\%)$ 有剧烈增大的趋势。

关键字: 隔散射系数, 吸收系数, 亲水性增长因子

Impact of meteorological parameters and gaseous pollutants (SO₂ and NO₂) on PM_{2.5} and PM₁₀ mass concentrations during 2010 in Xi'an, China

(Ping Wang ¹, JunJi Cao ¹, Yongming Han ¹, Yu Huang ², Shuncheng Lee ²)

¹ State Key Lab of Loess and Quaternary Geology, Institute of Earth Environment, Chinese Academy of Sciences, Xi'an 710075, China

² Department of Civil and Environmental Engineering, The Hong Kong Polytechnic University, Hong Kong

Abstract: PM_{2.5} and PM₁₀ mass from quartz-fiber weight were obtained in Xi'an for two weeks of every month corresponding to January, April, July and October during 2010 at upwind district of Gaoling county (GLC), downwind background station of Black river reservoir (BRR) and four urban sites. Annual average PM_{2.5} and PM₁₀ mass concentrations were $140.9 \pm 108.9 \mu\text{g m}^{-3}$, $257.8 \pm 194.7 \mu\text{g m}^{-3}$, respectively. Seasonally, high concentrations in wintertime and low ones during summertime were attributed to seasonal variations of meteorological parameters and cycle changes of precursors (SO₂ and NO₂). Stepwise Multiple Linear Regression (MLR) analysis indicated that relative humidity is the main factor influencing on meteorological parameter. Sulfate of SO₂ oxidation products are concentrated in fine mode of PM_{2.5} and nitrate of NO₂ oxidation in coarse mode of PM₁₀. Entry MLR analysis suggested that SO₂ and NO₂ contributed 48.6% and 33.9%, and 17.5% and 0.7% of the total PM_{2.5} and PM₁₀, respectively. Trajectory cluster results indicated long distance air mass from northwest in winter (82.1%) and in spring (67.9%), and short distance from surrounding provinces in summer (62.5%) and autumn (73.2%). Potential Source Contribution Function (PSCF) analysis showed three day Dust storm (DS) came from Taklimakan Desert in Xinjiang and Gobi Desert in Inner Mongolia in spring. Remote sensing retrieval (OMI UV Aerosol Index (AI), OMI tropospheric NO₂ column of Aura and Aerosol Optical Depth (AOD) of MODIS TERRA) from Giovanni online tools of NASA Goddard Earth Sciences Data and Information Services Center (GES DISC) were verified results of observation on the ground to some extents.

Key words: Xi'an, PM_{2.5} and PM₁₀, meteorological parameters, gaseous pollutants, MLR, PSCF.

青海湖地区单颗粒黑碳气溶胶的特性

(王启元¹, 曹军骥^{2*}, 胡塔峰²)

1 西安交通大学环境科学与工程系, 西安, 710049;

2 中国科学院地球环境研究所, 西安, 710075

摘 要: 2011 年 10 月在我青海湖畔使用单颗粒黑碳光度计 (SP2) 测量单颗粒黑碳气溶胶的质量、粒径分布及其混合状态。并使用黑碳仪测量黑碳的光学性质以及一氧化碳 (CO) 分析仪测量 CO 的浓度。测量结果表明黑碳平均质量浓度为 $0.36 \mu\text{g m}^{-3}$, 明显高于世界各地背景及偏远地区的质量浓度。黑碳浓度在夜间呈现出高峰值而在下午呈现出低谷。这种日内变化与当地的混合层高度成反相关。黑碳的质量粒径分布峰值在 $\sim 175\text{nm}$, 且在 $\sim 495\text{nm}$ 处有一个次峰值。采样期间, $\sim 50\%$ 的黑碳颗粒物呈现出内部混合。黑碳仪与 SP2 的对比结果表明, 青海湖地区存在除黑碳以外的其他物质对光有吸收作用。黑碳浓度与 CO 具有很好的相关性 ($r=0.83$), 表明他们具有相同的来源, 此外黑碳与 CO 的比值为 $1.5 \pm 0.1 \mu\text{g m}^{-3} \text{ ppbv}^{-1}$ 代表了青海湖地区的混合排放源特征。

关键字: 黑碳, 单颗粒黑碳光度计, 青海湖

*通讯联系人, E-mail address: cao@loess.llqg.ac.cn

Investigation of NR-PM1 Species and Effect on Visibility in Xi'an, China

Yichen Wang^{1,2}, Jun-ji Cao¹

¹.State Key Laboratory of Loess and Quaternary Geology, Institute of Earth Environment, Chinese Academy of Sciences, Xi'an 710075, China.

².Graduate University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China.

Abstract :With an Aerodyne Aerosol Chemical Speciation Monitor, we mainly focused on the variation of NR-PM1 species, its inorganic species formation and its effect on visibility impairment under a stable atmospheric condition (low wind speed period, from 1 September to 6 September, from 26 September to 1 October respectively). The NR-PM1 took up ~60% of PM_{2.5}. Organic contributes the most (58% on average) to the NR-PM1 mass loading, other species make ~40% contributions. Through Principle component analysis, we found NH₄⁺, SO₄²⁻ and NO₃⁻ played a stably significant role on visibility impairment within different period of the day. With the IMPROVE equation, Light scattering from NR-PM1 was ~ 80% of that from PM_{2.5}, illustrating the dominance of NR-PM1 in the light scattering process. Organics contributed the most to light scattering during this period whereas (NH₄)₂SO₄ and NH₄NO₃ played more important role on the visibility variation than Org did. Overall, it is the combination of organics, (NH₄)₂SO₄ and NH₄NO₃, not a single species that are responsible for the variation of visibility variation. Sulfate formation was dominated with gas phase reactions during daytime and droplet phase reactions at night. Nitrate particles, however, were not formed immediately after gas phase reactions in the afternoon. Two types of OA (HOA and OOA) were found in this study. The oxygenation level of organics was relatively high and photochemical reaction proceeded rapidly in the afternoon. BBOA(biomass burning organic aerosol) cannot be resolved though tracers of BBOA(m/z 60 and 73) have a prominent signal, illustrating the similar variation of time series between these two factors, which maybe resulted from the traditional energy consumption pattern in villages.

Key words:ACSM, NR-PM1, stable atmospheric condition, formation, visibility, HOA, OOA

台灣北部三個空氣品質測站之大氣微粒來源及特性研究

(危涵¹, 劉俊男¹, 蔡春進^{1,*}, 巫月春², 陳重方²)

1 台灣交通大學環境工程研究所, 臺灣, 30010;

2 行政院環境保護署環境檢驗所, 臺灣, 32024

摘要: 本研究利用正矩陣因子法(Positive Matrix Factorization, PMF)以及其他輔助來源分析之相關理論分析台灣北部都會地區三空氣品質測站: 中山、新莊及竹東測站, 三種微粒(PM_{10} 、 $PM_{2.5}$ 及 $PM_{0.1}$)之污染來源。本研究使用的數據為交大環工所蔡春進教授研究團隊的成果, 其微粒的採樣係利用雙道採樣器(Dichotomous PM_{10} samplers)、微孔均勻沉降微粒採樣器 (Micro-Orifice Uniform Deposit Impactor, MOUDI) 及半自動氣膠碳成份分析儀(Sunset Laboratory Model 4 Semi - Continuous OC/EC Field Analyzer)完成, 並分析了微粒中的元素(Al、Fe、Na、Mg、K、Ca、Ba、Ti、Mn、Cu、Zn、Pb、V 及 Cr 共 17 種)、離子(F^- 、 Cl^- 、 NO_3^- 、 SO_4^{2-} 及 NH_4^+ 五種)及元素碳和有機碳濃度。2011 年 5 月至 2012 年 9 月, 期間共進行 38 次(中山測站)、36 次(新莊測站)及 35 次(竹東測站) 24 小時的採樣。在元素、離子及有機碳和元素碳之來源特性研究中, 其相關性可幫助判別各物種與污染來源之間的關係。PMF 的分析結果中三個測站的 PM_{10} 及 $PM_{2.5}$ 中皆分別以地殼元素及汽機車排放為最大宗污染源, 而 $PM_{0.1}$ 中的主要污染源有二次氣膠或汽機車排放, 中山測站位於都市繁忙之市中心, 以汽機車排放為主, 竹東測站則在較小型的都市, 污染物容易受到光化學反應作用而以二次氣膠為主要來源, 新莊測站位於大都市邊陲地區, 二次氣膠及汽機車排放兩污染源貢獻比例相當。此初步結果顯示, 粗微粒的部分仍以自然界的來源貢獻為主, 但在交通繁忙的都會區, 細微粒及奈米微粒將受到人類活動極大的影響, 而以汽機車排放或二次氣膠為主。

关键字: 都會地區大氣微粒、正矩陣因子法、污染來源解析、條件機率函數、地殼富集值

同时测定大气中气态和颗粒态多环芳烃及其含氧/氮衍生物的新方法

(魏崇^{1,2,4}, Benjamin A. Musa Bandowe², Hannah Meusel², 何建辉¹, 韩永明^{1,*}, 曹军骥^{1,3}, Thorsten Hoffmann⁵, Wolfgang Wilcke²)

1 中国科学院地球环境研究所, 西安, 710075;

2 瑞士伯尔尼大学, 伯尔尼, CH 3012

3 西安交通大学全球变化研究院, 西安, 710049

4 中国科学院大学, 北京, 100049

5 德国美因兹大学, 美因兹, 55128

摘 要: 多环芳烃 (PAHs) 及其含氧/氮衍生物 (OPAHs、NPAHs) 可由化石燃料不完全燃烧产生, 另外 OPAHs 和 NPAHs 还可以由 PAHs 经过光化学反应生成。他们都具有致癌、致畸、致突变等“三致效应”, 尤其是 OPAHs 和 NPAHs 的毒性比 PAHs 更强。本文的目的是为了测试和应用新的方法来同时测量大气中气态和颗粒态的 PAHs、OPAHs 和 NPAHs 的浓度。本文分别使用聚氨酯泡沫和石英滤膜来采集大气中气态和颗粒态物质。使用加速溶剂萃取仪来提取目标组分, 并应用不同极性的溶剂从硅胶层析柱中分离出 PAHs 和 OPAHs+NPAHs 组分。PAHs 和 OPAHs 组分由带有 EI 离子源的 GC/MS 来测量, 而 NPAHs 则是利用反向化学电离源 (NCI) 的 GC/MS 来测量。添加标准后的 PAHs, OPAHs 和 NPAHs 的回收率分别是 80% (60–150%), 70% (40–120%), 75% (40–120%)。线性度测试 (PAHs ($r^2 = 0.985 - 1.000$), OPAHs ($r^2 = 0.970 - 0.994$) 以及 NPAHs ($r^2 = 0.883 - 0.991$)) 以及标准参考物质的测量 (与标准值相比 <10%) 也表明我们的改进具有高的精确度和精密度。

关键字: 多环芳烃 (PAHs), OPAHs/NPAHs, 加速溶剂萃取法, 回收率

气溶胶中硫酸根离子的 FTIR 定量分析⁴

(魏秀丽⁵, 高闽光, 刘建国, 刘娜, 徐亮, 童晶晶, 金岭)

(中国科学院环境光学与技术重点实验室, 中国科学院安徽光学精密机械研究所 合肥 230031)

摘 要: 大气气溶胶是影响大气环境的三大污染物之一, 在大气污染过程中, 大气气溶胶粒子污染在其中占有重要的地位。本文通过对FTIR方法研究气溶胶硫酸根离子测量方法的改进, 使离子定量研究更精确。通过FTIR方法研究气溶胶水溶液中加入硫酸铵的特性, 分析气溶胶水溶液中硫酸氨加入前后的硫酸根拟合曲线, 对空气中硫酸根进行定量。表明硫酸根红外吸收峰是 615cm^{-1} 可以作为定量的吸收峰, 我们研究了这些红外吸收峰吸收面积和离子质量成线性关系, 溶剂对离子定量分析没有影响。Ge片上滴膜的均匀性没有影响到定量分析的结果。

关键词: 气溶胶, FTIR, 无机离子

大气气溶胶是形成大气污染的三大重要污染物之一, 在我们许多地方已成为首要污染物。气溶胶对于大气能见度、大气辐射平衡和全球气候以及环境变迁等都有重要影响。它们一方面通过对太阳光的吸收和散射改变地面的温度分布, 另一方面气溶胶不但是形成云的凝结核, 也是各种病毒和细菌的传输载体[1]。其中的无机盐类(例如硫酸盐、硝酸盐、铵盐)是大气气溶胶中最主要也是最有影响的成分之一[2], 硫酸盐、硝酸盐和铵盐三种离子成分占气溶胶总成分的 40%以上, 占水溶性成分的 90%以上。

目前对大气颗粒物化学成分的检测方法很多, 传统气溶胶化学成分的测量方法一般为色谱法和质谱方法[3-7], 它们多采用离线的方式, 前期处理工作较麻烦, 耗时较长, 还导致某些成份失活, 测量精度降低。

傅里叶变换红外光谱是一种优良、非接触、实时测量技术。不需要对样品进行预处理, 理论上不仅可以避免采样过程带来的活性损失问题, 提高测量精度, 而且大幅度提高了分析速度。1997年Z. Krivacsy[8]等人对气溶胶PM_{2.5}中的NH₄⁺等水溶性离子进行了定性分析, 对这些离子的红外吸收峰进行了归属。美国新泽西州罗格斯大学的Barbara J. Turpin [9]小组直接测量滤膜上的气溶胶样品的红外光谱, 得到了无机水溶性离子浓度分布特性。台湾的Ying I. Ysai小组[10]利用漫反射红外光谱对气溶胶无机水溶性离子进行了分析, 借助色谱进行了定量分析。

本文中, 我们通过研究PM_{2.5}中整个Ge片上硫酸根的定标曲线, 而不是传统单点的测量, 定量分析更加精确, 不受膜的均匀性的影响。

1. 测量系统和化学试剂

FTIR 光谱仪采用 Bruck 公司生产的傅立叶变换红外光谱仪, 采用使用广泛的高灵敏度 MCT(mercury cadmium telluride) 探测器, 红外光源为碳硅棒, 分辨率 4cm^{-1} , 扫描次数是 64 次, 探测波段 $600-5000\text{cm}^{-1}$ 。分析成分的基片是 Ge 片。Ge 片是直径 3mm 的圆片。整个测量系统图如下:

⁴国家自然科学基金(41105022);

⁵魏秀丽, 女, 助理研究员, E-mail:xlwei@aiofm.ac.cn.;



所用化学试剂是硫酸氨，分析纯。硫酸铵浓度为 0.0376g/l。

气溶胶采样时间是 6 小时，采样流速 16.7l/min。

2 基本原理

根据朗伯-比尔（Lambert-Beer）定律，在任一波数 ν 处，被测物质对红外光的吸收服从以下公式：

$$A = -\log T = \log \frac{I_0}{I} = \epsilon Cl$$

式中， A 为被测物质的吸光度； T 为被测物质的透过率； I_0 为输入光强， I 为物质吸收后的光强； ϵ 为被测物质的摩尔吸收系数； C 为被测物质的浓度； l 为总的吸收光程。

如果被测物质为固体，则以上公式可以写成：

$$A = \epsilon m$$

式中 m 为被测物质的质量。

3 结果和讨论

图 1 是采集 4 个小时后的透过率谱。850-1200 cm^{-1} 之间由于玻璃纤维膜的问题没有红外光透过，硫酸根离子吸收峰在 608-620 cm^{-1} 和 1103-1135 cm^{-1} ，因为 850-1200 cm^{-1} 之间没有红外光透过，因此我们看不到 1103-1135 cm^{-1} 的硫酸根吸收峰。我们把 608-620 cm^{-1} 作为硫酸根的定量吸收峰。硝酸根离子吸收峰出现在 825-835 cm^{-1} ，1325-1332 cm^{-1} 左右。在 1332 cm^{-1} 的吸收峰为 NO_3^- 的反对称伸缩振动吸收峰，在 825 cm^{-1} 的吸收峰为 NO_3^- 的面内弯曲振动吸收峰，且在 1332 cm^{-1} 处的吸收远强于 825 cm^{-1} 处的吸收，但是在 1328 cm^{-1} 处的吸收受到 NH_4^+ 离子吸收

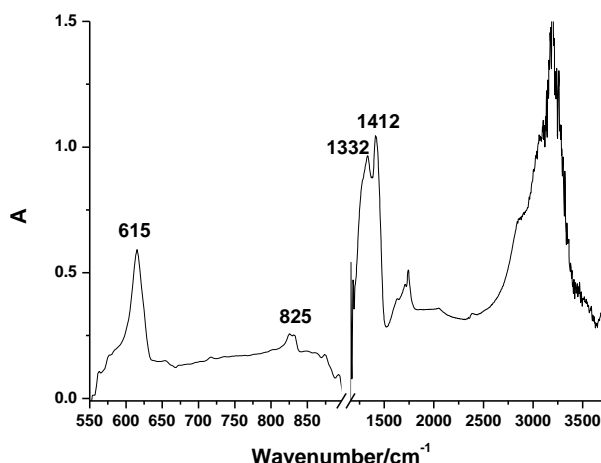


图 1 PM2.5 气溶胶透过率谱

3.1 气溶胶中硫酸根吸光度随时间的变化

气溶胶中的硫酸根吸光度随着滴定量得增加，吸光度也随着增加。图 2 给出了吸光度随滴定量的增加图，可以看出完全是线性增加了，我们对吸光度和滴定量进行了线性拟合，拟合方程为：

$$A = 0.178 V + 0.021 \quad R^2=0.973$$

拟合结果中 $R^2=0.973$ ，表明吸光度和滴定量的线性关系很好。

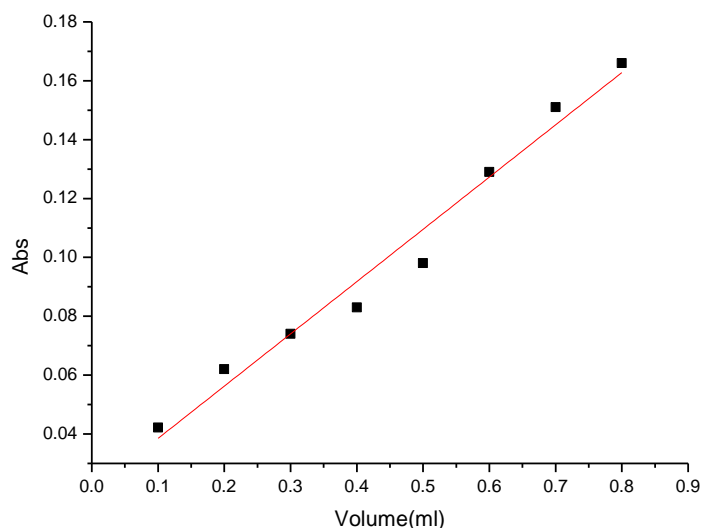


图 2 气溶胶滴定量与吸光度的拟合曲线

3.2 气溶胶中硫酸根+硫酸铵吸光度随时间的变化

在上述的气溶胶溶液中加入 0.1ml 的硫酸氨标准溶液，然后在看硫酸根吸光度和滴定量的关系。图 3 给出了吸光度和滴定量的关系图，可以看出吸光度随滴定量的增加也是线性增加，我们对此吸光度和滴定量也进行了线性拟合，拟合方程为：

$$A = 0.3438 V + 0.043 \quad R^2=0.987$$

拟合结果中 $R^2=0.987$ ，表明吸光度和滴定量的线性关系很好。两个线性曲线就可以计算得到空气中硫酸根的浓度为 $48.6 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 。

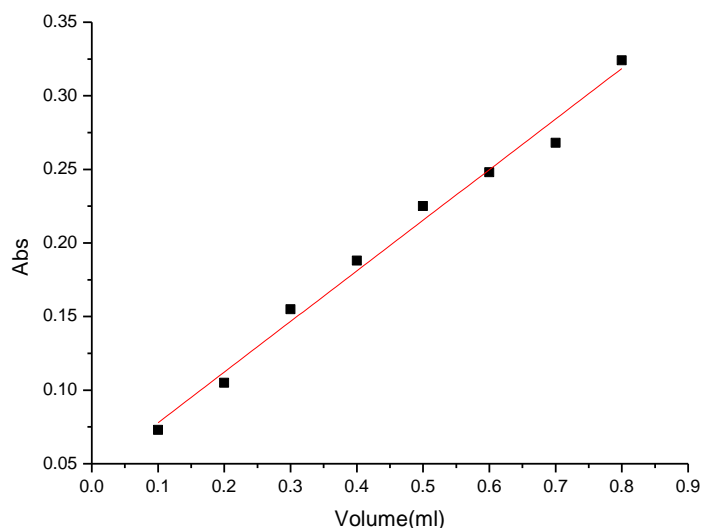


图3 (气溶胶+硫酸根) 滴定量与吸光度的拟合曲线

4 结论

本文给出了测量整个基片上硫酸根的红外吸收光谱来分析硫酸根的红外特性，定标曲线 R^2 是0.97以上。通过FTIR方法研究气溶胶中水溶性中加入硫酸铵前后的硫酸根离子的红外特性，结果表明硫酸根在 615cm^{-1} 的红外吸收峰和溶液量成线性关系，并计算得到空气在含硫酸根浓度为 $48.6 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 。Ge片上滴膜的均匀性没有影响到定量分析的结果。FTIR为气溶胶中离子成分检测提供一种新方法。

作者简介：魏秀丽（1978-），女，硕士，2005年毕业于吉林大学化学系物理化学专业。现在中国科学院安徽光机所工作，主要从事大气污染物的环境光学监测研究工作。E-mail: xlwei@aiofm.ac.cn
电话：0551-5593693。

参考文献：

- [1] . Kleindienst, T.E., Smith, D.F., Li, W., Edney, E.O., Driscoll, D.J., Speer, R.E., et al., 1999. Secondary organic aerosol formation from the oxidation of aromatic hydrocarbons in the presence of dry submicron ammonium sulfate aerosol. *Atmospheric Environment* 33, 3669–3681.
- [2] . Oh, S., Andino, J.M., 2000. Effects of ammonium sulfate aerosols on the gas-phase reactions of the hydroxyl radical with organic compounds. *Atmospheric Environment* 34, 2901–2908.
- Tsai, Y.I., Cheng, M.T., 1999. Visibility and aerosol chemical compositions near the coastal area in Central Taiwan. *Science of the Total Environment* 231, 37–51.
- [3]. D. Voisin, J. N. Smith, H. Sakurai, P. H. McMurry, F. L. Eisele, Thermal Desorption Chemical Ionization Mass Spectrometer for Ultrafine Particle Chemical Composition. *Aerosol Science and*

Technology, 2003, 37:471-475

[4]. Brent J. Williams, Allen H. Goldstein, Nathan M. Kreisberg, and Susanne V. Hering, An In-Situ Instrument for Speciated Organic Composition of Atmospheric Aerosols: Thermal Desorption Aerosol GC/MS-FID (TAG), *Aerosol Science and Technology*, 2006, 40, 627-638

[5]. Oliver V. Rattigana, Olga Hogrefe, H. D. Feltona, James J. Schwab, Utpal K. Roychowdhury, Liaquat Husain, Vincent A. Dutkiewicz, Kenneth L. Demerjian Multi-year urban and rural semi-continuous PM_{2.5} sulfate and nitrate measurements in New York state: Evaluation and comparison with filter based measurements, *Atmospheric Environment* 2006, 40: S192-S205

[6]. P. Laj, J. Klusén et al., Measuring atmospheric composition change, *Atmospheric Environment* 2009, 43: 5351-5414

[7]. Daniel M. Murphy, The design of single particle laser mass spectrometers. *Mass Spectrometry Reviews*, 2007, 26: 150-165

[8]. Krivacsy, Z., Barcza, T., Gelencser, A., Kiss, G., FTIR study of atmospheric aerosols. *Journal of Aerosol Science*, 1997, 28, S113-S114. [9]. Blando, J., Porcja, R., Turpin, B., 2001. Issues in the quantification of functional groups by FTIR spectroscopic analysis of impactor collected aerosol samples. *Aerosol Science and Technology* 35 (5), 899-908.

[9]. Andrea Polidori, Barbara J. Turpin, Cliff I. Davidson, Lisa A. Rodenburg, Francesco Maimone, Organic PM_{2.5}: Fractionation by Polarity, FTIR Spectroscopy, and OM/OC Ratio for the Pittsburgh Aerosol. *Aerosol Science and Technology*, 2008, 42:233-246

[10]. Yin I. Tsai, Su-Ching Kuo. Development of diffuse reflectance infrared Fourier transform spectroscopy for the rapid characterization of aerosols. *Atmospheric Environment* 2006, 40: 1781-1793

青岛市不同功能区冬季空气微生物群落代谢与多样性特征*

(吴等等, 宋志文**, 徐爱玲, 郑远, 夏岩)

(青岛理工大学, 山东青岛, 266033)

摘要: 选取青岛市 5 个不同功能区(市区街道、海滨区域、饮用水源地、垃圾填埋场和人工湿地), 采用 SAS ISO100 空气浮游菌采样器于 2013 年 1 月采集空气微生物样品, 应用 Biolog 方法分析空气微生物群落碳源代谢特征、群落功能多样性, 阐明空气微生物群落代谢、多样性特征与环境相关性。结果表明, 不同功能区空气微生物群落碳源代谢强度存在差异, 海滨区域和饮用水源地空气微生物群落碳源代谢强度明显高于其他功能区; 不同功能区空气微生物群落 Shannon 指数和 Simpson 指数接近, 但海滨区域和饮用水源地 McIntosh 指数明显高于其他功能区; 海滨区域和饮用水源地空气微生物群落碳源代谢类型丰富, 代谢水平高, 而人工湿地、市区街道及垃圾填埋场碳源代谢类型单一, 代谢水平低, 5 个功能区空气微生物群落对羧酸类碳源代谢水平均较高; 功能区空气微生物群落碳源代谢特征差异呈现区域性, 其中分异代谢特征差异的主要碳源类型是羧酸类; 风速、温度、湿度等非生物因素对空气微生物群落碳源代谢特征具有不同程度影响, 且不同功能区主导非生物因素存在差异。

关键词: 青岛市, 城市功能区, 空气微生物, 代谢特征, 群落多样性, Biolog 方法

Metabolic Characteristics and Community Diversities of Airborne

Microbes in Different Functional Regions in Qingdao in Winter.

WU Deng-deng, SONG Zhi-wen**, XU Ai-ling, ZHENG Yuan, XIA Yan (*Institute of Environment and Municipal Engineering, Qingdao Technological University, Qingdao 266033, China*).

Abstract: In order to determine the metabolic characteristics and community diversities of airborne microbes in different functional regions in Qingdao in winter, monitoring points were set up in five different functional regions (city streets, coastal area, source area of drinking water, municipal landfill site, and constructed wetlands for wastewater treatment). Airborne microbes were collected by SAS ISO100 in January 2013 and their carbon source metabolic characteristics, functional diversity of microbial community, and relationship with environmental factors were analyzed systematically through the Biolog method. The results showed that the differences of carbon metabolic profiles of air microbial communities from the five locations were significant. Among the five locations, levels of carbon metabolic profiles at coastal area and source area of drinking water were higher than those in other locations. The Shannon indexes and Simpson indexes in five different city functional regions were similar. However, the McIntosh

*国家自然科学基金项目 (31170509)

**通讯作者 E-mail: songzhiwen@qtech.edu.cn。

indexes at coastal area and source area of drinking water were higher than that in other locations. Among the five locations, carbon catabolic types and levels at coastal area and source area of drinking water were richer and higher compared to those in the artificial wetland, urban streets, and refuse landfill. Utilization level of carboxylic acids was higher in the five air samples compared with other carbon sources. The characteristics of carbon metabolic profiles revealed regional features and the key carbon source was carboxylic acids which caused the differences in characteristics of carbon metabolic profiles. Environmental factors, such as wind speed, temperature, and humidity may have effects on carbon utilizations to certain degrees with the dominant factors different according to different environments.

Key words: Qingdao, city functional regions, airborne microbe community, metabolic characteristics, Microbial diversity, Biolog method

空气微生物是指空气中细菌、霉菌和放线菌等有生命的活体，主要来源于土壤、水体、动植物和人类，此外污水处理、动物饲养、发酵过程和农业活动等也是空气微生物的重要来源^[1~4]，已知存在空气中的细菌及放线菌有 1200 种，真菌有 40000 种^[5]。空气微生物不仅具有重要的生态系统功能，还与空气污染、环境质量和人体健康密切相关^[6]。同时，作为评价空气环境质量的重要指标之一，空气微生物研究越来越受到人们的关注。

空气中各种微生物的来源不同，不同环境中微生物的种类和结构也不相同。全面掌握城市空气微生物的群落特征和物种组成及其浓度，对控制城市微生物污染、改善环境质量、控制微生物疾病的发生和维持人们健康、提高工农业生产具有重要的理论意义。国内外学者已经对城市不同功能区、垃圾填埋场、污水处理厂、养殖环境等空气微生物区系、时空分布特征进行研究^[1, 7~14]。但这些研究大多采用传统微生物培养方法^[15~20]，由于“可培养类”仅占空气微生物总数的不到 1%^[21~22]，并且还有部分微生物处于活的不可培养状态（VBNC），同时培养结果受培养基组分影响较大，导致测得的数据与实际情况有较大偏差。为了较准确的反映空气微生物群落和生态功能，需要从空气微生物种类、群落结构多样性、功能多样性和生物量等层次来研究。新发展的基于微生物群落代谢单一碳源特征的 Biolog 技术能够弥补传统方法的不足，可比较全面地表征微生物群落结构、总体代谢活性与功能信息，该技术已在微生物鉴定、水处理工艺、污染土壤修复中得到广泛应用。

本文以青岛市 5 个城市功能区（青岛市市区街道、海滨区域、饮用水源地、城市生活垃圾填埋场和人工湿地污水处理厂）为研究对象，采用 SAS ISO100 空气浮游菌采样仪采集空气样品，应用 BIOLOG 方法分析空气微生物群落碳源代谢特征、群落功能多样性，阐明空气微生物群落代谢、多样性特征与环境相关性。这对于了解沿海城市不同功能区空气微生物特性及其对大气环境和人体健康的影响具有重要意义。

1 材料与方法

1.1 实验地点概况

选择青岛市区街道（抚顺路）、海滨区域（鲁迅公园）、饮用水源地（棘洪滩水库）、垃圾填埋场（小涧西生活垃圾综合处理厂）、人工湿地（胶南人工湿地污水处理厂）等 5 个不同功能区作为采样地点。其中，（1）抚顺路是青岛市主要交通枢纽，车流量较大（平均每分钟通过约 60 辆车），人流量也较大，由汽车尾气及扬尘造成空气污染比较严重；（2）鲁迅公园紧邻大海，长约 1 km，

占地面积 0.04 km²，绿化面积 75%以上，是青岛 4A 级旅游景区，每天接待大量游客；（3）棘洪滩水库是引黄济青工程唯一调蓄水库，库区面积 14.422 km²，供应青岛市 50%以上居民用水，是青岛市主要饮用水源地，其周围是大面积农田，人流量较少；（4）小涧西生活垃圾综合处理厂是青岛市内六区唯一的生活垃圾填埋场，设计库容 7.1×10⁶ m³，占地面积 0.66 km²，填埋区面积 0.27 km²，绿地率为 41.25%，目前实际日填埋量为 3500 t/d，垃圾渗滤液经垂直和水平收集系统收集后排入污水处理厂进行处理；（5）胶南市人工湿地污水处理厂占地面积 76.7 km²，处理规模 3×10⁴ m³/d，为自由表面流芦苇湿地，由 99 个并联运行湿地单元组成，每个单元大小为 140 m×32 m，污水来源为生活污水和工业废水（约 1:1）。

1.2 空气样品采集

采样时间为 2013 年 1 月，采用 SAS ISO 100 空气微生物采样器采集空气微生物，空气流量 100L/min，采样时间 30min。采样后取下凝胶膜，加到 100mL 灭菌生理盐水中，摇床震荡 10min，凝胶膜溶解后作为接种液。采样期间同时利用 TASI-620 数字式温湿度计测定采样环境温度和湿度，利用 TASI-641 风速仪测定风速。表 1 为采样期间环境因子情况。

表 1 采样点环境因子

Table 1 Environmental factors of sampling sites

地点	风向	风速/m/s	温度/℃	湿度/%
市区街道	西北	0.55	-0.1	30.4
饮用水源地	西北	1.80	-6.0	30.1
海滨区域	北	2.48	-8.4	28.1
垃圾填埋场	西北	0.55	-6.0	31.0
人工湿地	西北	2.45	-2.5	37.7

1.3 基于 Biolog-GN 微平板的操作

接种混匀的实验样品液于 Biolog-GN 板中，每孔接种量为 125uL，接种后的 Biolog-GN 板置于 25℃ 恒温培养箱中培养^[23]，每隔 12h 在 Biolog 读数器上读数，波长为 590nm，直至光密度值稳定为止，整个过程共培养 8d，选取 72h 平均光密度值(average well color development, AWCD)进行主成分分析(Principal component analysis, PCA)。

1.4 计算方法

1.4.1 微生物碳源代谢水平

平均吸光值(AWCD)能够反应微生物碳源代谢整体水平，其计算方法^[23]： $AWCD = \sum (C - R) / n$ ，其中 C 为反应孔光密度值，R 为对照孔光密度值，n 为底物数量，对于不同 Biolog 微平板 n 值不同，其中 Biolog-GN 板为 96。

1.4.2 微生物多样性计算方法

选用 72h 光密度值计算 5 个不同功能区空气微生物群落多样性指数^[24]：（1）Shannon 指数(H')；（2）McIntosh 指数(U)；（3）Simpson 指数(D)。计算公式见表 2。

表 2 空气微生物群落多样性指数计算方法

Table 2 Computational methods of indices of diversity of airborne microbial community

多样性指数	用途	公式	备注
Shannon 指数	评估丰富度	$H' = -\sum p_i \ln p_i$	p_i 为第 i 孔相对吸光值 (C-R) 与整个平板相对吸光值总和的比率
McIntosh 指数	度量群落物种均一度指标	$U = \sqrt{(\sum n_i^2)}$	n_i 表示第 i 反应孔与对照孔的差值 ($n_i=C_i-R$)
Simpson 指数	反映微生物群落优势度指标	$D = 1 - \sum p_i^2$	同上

1.4.3 统计分析方法

利用 SPSS17.0 软件进行主成分分析 (PCA) 和相关分析, 利用 CANOCA 软件进行典范对应分析 (CCA) [25]。

2 结果与分析

2.1 空气微生物群落碳源代谢强度变化

平均吸光值 (AWCD) 能够衡量空气微生物利用不同碳源的整体能力, 表征微生物平均生理活性水平, 从代谢水平上揭示空气微生物群落功能多样性。图 2 是青岛市 5 个功能区 AWCD 变化趋势。

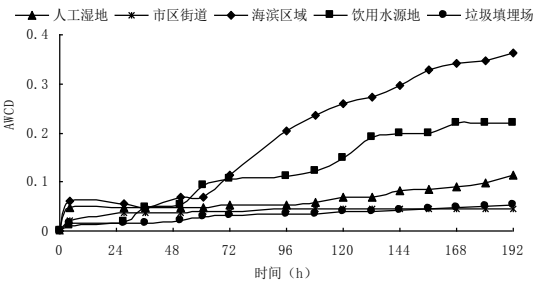


图 1 青岛市 5 个功能区空气微生物 AWCD 变化

Fig. 1 AWCD change of airborne microbes in five city functional regions in Qingdao

从图中可以看出, AWCD 随着时间延长而变大,最初 48h 内曲线比较平缓, 72h 左右 AWCD 值变化进入指数增长期, 192h 基本达到稳定状态。其中, 海滨区域和饮用水源地空气样品 AWCD 值高于人工湿地、市区街道和垃圾填埋场空气样品, 说明海滨区域和饮用水源地空气微生物群落碳源代谢水平较高, 而人工湿地、市区街道和垃圾填埋场空气微生物群落碳源代谢水平较低。

2.2 空气微生物群落碳源利用水平分析

Biolog-GN 板包含 95 种碳源, 根据碳源官能团可将其划为 6 类, 其中糖类 (carbohydrates) 30 种、羧酸类 (carboxylic acids) 24 种、氨基酸类 (amino acids) 20 种、胺/氨类 (amines/amides) 6 种、聚合物类 (polymers) 5 种、其他 (miscellaneous) 10 种[26]。图 3 是青岛市 5 个功能区空气微生物群落对不同类碳源的利用情况。

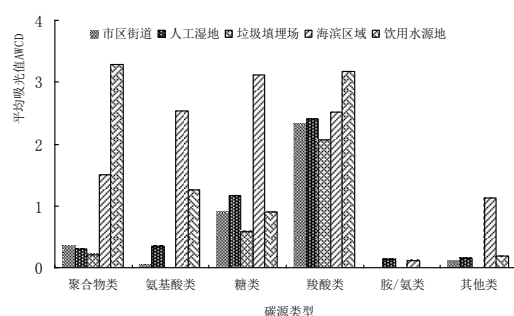


图2 青岛市5个功能区空气微生物群落对 Biolog 平板碳源的相对利用率

Fig.2 Relative utilization ratios of carbon sources in Biolog plate by the airborne microbes in five city functional regions in Qingdao

总体说来, 空气微生物在碳源代谢方面优势群落依次为羧酸类代谢群落、碳水化合物类、氨基酸类代谢群落, 5个功能区空气微生物对羧酸类和碳水化合物的利用程度均较高, 对其它化合物类的利用程度较低, 其中对胺/氨类代谢水平最低, 市区街道、垃圾填埋场和饮用水源地空气微生物基本不能代谢这类碳源。5个功能区空气微生物对6类碳源利用程度存在差异, 同一功能区对不同碳源的利用程度也有差异。海滨区域和饮用水源地空气微生物对6类不同碳源代谢水平比其他功能区空气微生物高。

2.3 空气微生物群落种群多样性分析

利用多样性指数分析不同功能区空气微生物群落种群多样性。其中 Shannon 指数受群落物种丰富度影响较大, 反映了微生物群落物种数及种间个体分配的均匀性; Simpson 指数用于评估微生物群落优势度的指标; McIntosh 指数则是度量群落物种均一度的指标。表3是不同功能区空气微生物群落种群多样性指数。

表3 不同功能区空气微生物群落多样性指数

Table 3 Diversity index of airborne microbial community in five city functional regions in Qingdao

采样地点	Shannon 指数 (H)	McIntosh 指数 (U)	Simpson 指数 (D)
饮用水源地	3.03 ± 0.0523	3.11 ± 0.7843	0.88 ± 0.0939
海滨区域	3.79 ± 0.0448	2.43 ± 0.1995	0.96 ± 0.0013
人工湿地	4.32 ± 0.0250	0.69 ± 0.0062	0.98 ± 0.0002
市区街道	4.26 ± 0.0282	0.72 ± 0.0123	0.98 ± 0.0004
垃圾填埋场	4.25 ± 0.0283	0.69 ± 0.0067	0.98 ± 0.0002

从表中可以看出, 5个功能区空气微生物群落 Shannon 指数和 Simpson 指数接近, 但是 McIntosh 指数存在差异。

2.4 空气微生物群落代谢功能主成分分析 (PCA)

利用主成分分析法对青岛市5个功能区空气微生物群落代谢功能进行分析, 共提取2个主成分, 其中主成分1 (PC1) 方差贡献率 37.6%, 主成分2 (PC2) 方差贡献率 23.0%, 累计方差贡献率 60.6%, 能够解释原有变量大部分变异。表4是在 PC1 及 PC2 上载荷大于 0.9 的基质。从表中可以看出, 在

PC1 上载荷大于 0.9 的基质有 15 种，主要是羧酸类、氨基酸及糖类，其中 D-葡萄糖二酸载荷最大（0.968）；在 PC2 上载荷大于 0.9 的基质有 9 种，主要是氨基酸和糖类，其中 D-葡萄糖-6-磷酸载荷最大（0.984）。PC1、PC2 上载荷大于 0.9 的基质类型和利用率较高的碳源类型一致。

表 4 在 PC1、PC2 上载荷大于 0.9 的基质

Table 4 Correlation coefficients greater than 0.9 between main substrates and PC1 or PC2

基质	PC1(r)	基质	PC2(r)
D-葡萄糖二酸	0.968	D-葡萄糖-6-磷酸	0.984
肝糖	0.960	α -环式糊精	0.978
L-谷氨酸	0.959	L-苏氨酸	0.976
N-乙酰-D-半乳糖胺	0.958	L-鸟氨酸	0.972
L-丙氨酸	0.955	L-丝氨酸	0.966
L-脯氨酸	0.954	D-阿拉伯醇	0.965
吐温 80	0.953	麦芽糖	0.963
α -戊酮酸	0.948	尿苷	0.939
乙酸	0.944	松二糖	0.900
α -D-乳糖	0.931		
D-葡萄糖	0.925		
奎宁酸/金鸡钠酸	0.914		
γ -羟丁酸	0.904		
L-海藻糖	0.902		
i-赤藓糖醇	0.903		

利用 PCA 法分析青岛市 5 个功能区空气微生物群落碳源代谢特征相似性，揭示产生碳源代谢特征差异区域性的主要分异碳源类型（图 4）。从图中可以看出，5 个功能区可以归为 3 类，其中市区街道、人工湿地及垃圾填埋场空气微生物碳源代谢特征相似，可以归为一类；海滨区域归为一类；饮用水源地归为一类。在 PC1 上，3 类区域空气微生物碳源代谢特征差异显著，碳源利用谱容易区分。考察成分载荷矩阵可知，羧酸类在 PC1 上载荷较大，而在 PC2 上载荷较小，因此，3 类区域空气微生物群落对羧酸类的利用能力存在差异。

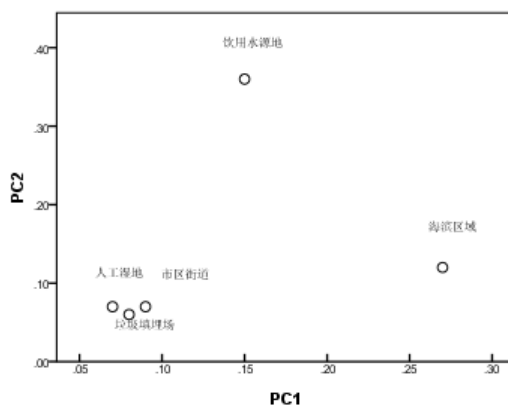


图 3 5 个功能区空气微生物群落对 Biolog 平板碳源代谢的主成分分析

Fig. 3 Principal component analysis (PCA) of Biolog plate data profiles revealed the patterns of microbial communities in five city functional regions in Qingdao

2.5 非生物因素对空气微生物群落碳源代谢水平的影响

研究表明, 非生物因素(温度、湿度、海拔、风速、风向等)对空气微生物群落碳源代谢强度和单一碳源利用能力具有不同程度影响^[27~29]。CCA 典范对应分析能够从统计学角度分析环境因子和空气微生物群落碳源代谢特征相关性, 揭示不同环境条件下微生物群落结构变化原因。图 5 是青岛市 5 个不同功能区空气微生物群落碳源代谢强度与环境因子的 CCA 分析排序图。从图中可以看出, 温度、湿度与人工湿地、垃圾填埋场、市区街道空气微生物群落碳源代谢水平呈正相关, 而风速与其碳源代谢水平呈负相关; 温度、湿度与海滨区域、饮用水源地空气微生物群落碳源代谢水平呈负相关, 风速与其碳源代谢水平呈正相关。

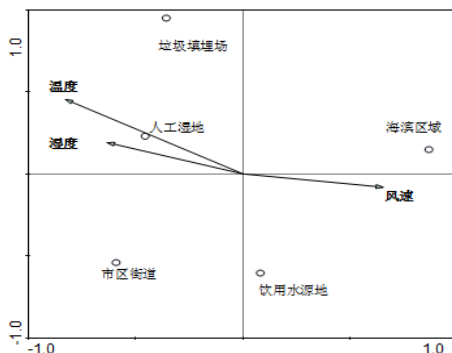


图 4 青岛市不同功能区碳源代谢强度与环境因子 CCA 分析排序

Fig. 4 A two-dimensional graph of CCA ordination for AWCD of airborne microbial community in five city functional regions in Qingdao

3 讨论

不同环境条件或不同环境介质中微生物群落碳源代谢强度、碳源代谢类型差异显著, 由于各种环境因子共同作用, 微生物群落碳源代谢特征呈现区域性, 并且分异这种区域性的碳源类型随环境条件和环境介质改变而不同^[23,27,29~31]。

3.1 空气微生物群落碳源代谢强度变化

AWCD 用以衡量空气微生物利用不同碳源的整体能力, 从功能代谢水平上揭示空气微生物群落结构的多样性, 是反映空气微生物活性、描述空气微生物群落利用碳源功能多样性的一个重要指标^[29]。青岛市 5 个功能区空气微生物群落碳源代谢强度差异显著, 其中海滨区域、饮用水源地空气微生物群落碳源代谢强度较高, 而人工湿地、市区街道、垃圾填埋场空气微生物群落碳源代谢强度较低, 其在 192h AWCD 值仍小于 0.1。研究表明, 高辐射、寡营养及干燥环境使得一些生长缓慢、产孢子和芽孢的类群(如放线菌和芽孢杆菌)占优势, 导致碳源利用能力降低^[32], 而 Biolog 方法对生长缓慢、不能很好利用 Biolog 板中碳源的微生物反映能力较差^[33]。海滨区域及饮用水源地环境湿度较大, 空气微生物生理活性较高, 碳源利用强度较高。对比 Biolog 方法在土壤环境微生物群落代谢中研究结果^[34~40], 发现环境空气微生物群落碳源代谢整体水平不高, 可能与采样季节有关。

3.2 空气微生物群落多样性

Shannon 指数 (H')、McIntosh 指数 (U) 和 Simpson 指数 (D) 分别从微生物群落丰富度、均一性以及常见种群优势度等不同侧面反映空气微生物群落多样性。青岛市不同功能区空气微生物群落种群丰富度和优势度接近, 而群落物种均一度存在差异, 饮用水源地和海滨区域空气微生物群落物种较均一, 可能由于该功能区环境湿度较大, 昼夜温差较小, 为一些微生物种群提供适宜的生存条件, 其生理活性也相对较高。结合空气微生物碳源代谢强度分析结果, 也可以推测, 海滨区域和饮用水源地等功能区空气样品 AWCD 值较高主要是由于功能区中这些微生物种群对相应碳源充分代谢所致。

3.2 空气微生物群落碳源代谢水平差异

空气微生物群落碳源代谢类型和代谢水平差异显著, 且呈现区域性。海滨区域空气微生物群落碳源代谢类型主要是糖类、氨基酸类、羧酸类以及聚合物类, 其中对糖类的代谢水平最高; 饮用水源地碳源代谢类型主要是聚合物类、羧酸类、氨基酸类以及糖类, 其中对聚合物类碳源代谢水平最高; 市区街道、人工湿地及垃圾填埋场空气微生物群落主要碳源代谢类型是羧酸类、糖类; 5 个功能区空气微生物群落对羧酸类碳源代谢水平均较高。研究发现, 空气微生物群落碳源代谢水平与其来源及所处环境条件具有相关性, 环境条件影响空气微生物群落的主要来源, 同时构成微生物生存的特殊生境, 影响其生理活性, 使空气微生物群落碳源代谢特征差异呈现区域性^[17,19]。海滨区域和饮用水源地环境空气湿度大, 昼夜温差小, 为微生物提供适宜生存条件, 海风也增加了空气微生物来源多样性, 因此, 这两个功能区空气微生物群落碳源代谢类型丰富, 且代谢水平较高; 而冬季人工湿地、市区街道及垃圾填埋场碳源代谢水平与湿度、温度等环境因子相关性较大, 且呈正相关, 因此, 湿度相对较小、昼夜温差大等因素可能导致空气微生物群落碳源代谢类型单一, 代谢水平较低。

Biolog 方法能够从微生物群落碳源代谢强度、碳源代谢类型以及碳源利用多样性区域性分异等方面研究微生物群落代谢特征, 但不能检测所有空气微生物, 只能反应在 Biolog-GN 板上能够生长的微生物, 因此, 要全面研究空气微生物群落特性, 还需要结合基于微生物基因方面的研究方法, 以更好的反映空气微生物群落组成和种群特性。

4 结论

(1) 青岛市 5 个功能区空气微生物群落碳源代谢强度和碳源代谢类型存在差异, 其中海滨区域及饮用水源地空气微生物群落碳源代谢强度明显高于其余功能区, 海滨区域及饮用水源地空气微生物群落碳源代谢类型丰富, 代谢水平较高, 市区街道、人工湿地及垃圾填埋场空气微生物群落碳源代谢类型单一, 代谢水平较低。

(2) 青岛市 5 个功能区空气微生物丰富度和种群优势度接近, 而群落物种均一度存在显著差异; 空气微生物群落碳源代谢特征差异呈现区域性, 可以归为 3 类, 分别为人工湿地、市区街道和垃圾填埋场, 海滨区域和饮用水源地; 5 个功能区空气微生物群落碳源代谢特征呈现区域性, 其中羧酸类是分异不同功能区空气微生物碳源代谢特征差异区域性的主要碳源类型。

5 参考文献:

Bovallius A, Bucht B, Roffey R, et al. Three-Year investigation of the natural airborne bacterial flora at four localities in Sweeden [J]. Applied and Environmental Microbiology, 1978, 35(5): 847-852.

- Lindmanm J, Constantinidou H, Barchet W, et al. Plants as sources of airborne bacteria, including ice nucleation-action bacteria [J]. *Applied and Environmental Microbiology*, 1982, 44(5): 1059.
- Mancinelli R. Airborne bacteria in an urban environment [J]. *Applied and Environmental Microbiology*, 1978, 35(6): 1059.
- Martinez K, Sheehy J, et al. Microbial containment in conventional fermentation processes [J]. *Appl. Ind. Hyg*, 1988,3: 177-181.
- 宋凌浩, 宋伟民, 施玮, 等. 上海市大气微生物污染对儿童呼吸系统健康影响的研究[J]. *环境与健康杂志*, 2000, 17(3): 135-138.
- Lacey J and Dutkiewicz J. Bioaerosols and occupational lung disease[J]. *Journal of Aerosol Science*, 1994, 25(8): 1371-1404.
- Wright J, Greene V and Paulus H. Viable microorganisms in an urban atmosphere[J]. *Journal of Air Pollution Control Associate*, 1969, 19: 337-339.
- 方治国, 欧阳志云, 胡利锋, 等. 北京市夏季空气微生物群落结构和生态分布[J]. *生态学报*, 2005, 25(1): 83-88.
- 岳冰, 夏立江, 杜文利, 等. 北京某垃圾填埋场空气微生物污染状况[J]. *中国环境科学*, 2006, 26(1): 102-105.
- 任启文, 王成, 杨颖, 等. 城市绿地空气微生物浓度研究[J]. *干旱区资源与环境*, 2007, 21(4): 80-83.
- 蔡旭玲, 刘坚, 姚振江, 等. 广州部分大型汽车客运站候车厅空气微生物污染状况[J]. *环境与健康杂志*, 2010, 27(8): 725.
- 谢小保, 欧阳友生, 曾海燕, 等. 广州地铁站空气微生物污染状况研究[J]. *中国卫生检验杂志*, 2008, 18(9): 1883-1897.
- 叶锦韶, 尹华, 彭辉, 等. 广州部分菜市场空气的微生物污染状况[J]. *环境与健康杂志*, 2006, 23(5): 444-446.
- 欧阳友生, 谢小保, 陈仪本, 等. 广州空气微生物含量及其变化规律研究[J]. *微生物学通报*, 2006, 33(3): 47-51.
- Choi D. S., Park Y. K., Oh S. K., et al. Distribution of airborne microorganisms in Yellow Sand of Korea [J]. *The Journal of Microbiology*, 1997, 35:1-9.
- Yeo H. G., Kim J.H. SPM and fungal spores in the ambient air of west Korea during the Asian dust (Yellow Sand) period [J]. *Atmospheric Environment*, 2002, 36:5437-42.
- Griffin D.W., Kubilay N., Koçak M., et al. Airborne desert dust and aeromicrobiology over the Turkish Mediterranean coastline [J]. *Atmospheric Environment*, 2007, 41: 4050-4062.
- Hua N.P., Kobayashi F., Iwasaka Y., et al. Detailed identification of desert-originated bacteria carried by Asian dust storms to Japan [J]. *Aerobiologia*, 2007, 23: 291-298.
- Polymenakou P.N., Mandalakis M., Stephanou E.G., et al. Particle size distribution of airborne microorganisms and pathogens during an intense African dust event in the eastern Mediterranean [J]. *Environmental Health Perspectives*, 2008, 116: 292-296.
- Meyer C., Bernard N., Moskura M., et al. Effects of urban particulate deposition on microbial communities living in bryophytes: An experimental study [J]. *Ecotoxicology and Environmental Safety*, 2010, 73(7): 1776-1784.
- Brock T. The study of microorganisms in situ: Progress and problems [J]. *Symposium of the society for General Microbiology*, 1987, 41: 1-17.
- Amann R I, Ludwig W, Schleifer K H. Phylogenetic identification and in situ detection of individual microbial cells without cultivation [J]. *Microbiology Reviews*, 1995, 59: 143-169.

- 郑华, 陈法霖, 欧阳志云, 等. 不同森林土壤微生物群落对 Biolog-GN 板碳源的利用[J]. 环境科学, 2007, 28(5): 1126-1130.
- Jeffrey S B, Donald D K. Microbial diversity in the rhizosphere of corn grown under conventional and low-input systems [J]. *Applied soil ecology*, 1996, 5: 21-27.
- 王强, 戴九兰, 吴大千, 等. 微生物生态研究中基于 Biolog 方法的数据分析[J]. 生态学报, 2010, 30(3): 817-823.
- Preston-Mafham J, Boddy L, Randerson P F. Analysis of microbial community functional diversity using sole-carbon source utilization profiles-a critique [J]. *FEMS Microb Ecol*, 2002, 42: 1-14.
- 段魏魏, 娄恺, 曾军, 等. 塔克拉玛干沙尘暴源区空气微生物群落的代谢特征[J]. 环境科学, 2012, 33(1): 27-31.
- 凌琪, 王晏平. 黄山风景区夏季空气微生物分布特征初步研究[J]. 微生物学通报, 2008, 35(9): 1379-1384.
- 凌琪, 包金梅, 李瑞, 等. Biolog-Eco 解析黄山风景区空气微生物碳代谢多样性特征[J]. 应用基础与工程科学学报, 2012, 20(1): 56-63.
- 郑琼, 崔晓阳, 邸雪颖, 等. 不同林火强度对大兴安岭偃松林土壤微生物功能多样性的影响[J]. 林业科学, 2012, 48(5): 96-100.
- 姜睿玲, 杨统一, 陈芳艳, 等. 桑园土壤微生物群落功能多样性对 PAHs 污染的影响[J]. 生态与农村环境学报, 2012, 28(4): 439-444.
- Griffin D W. Atmospheric movement of microorganisms in clouds of desert dust and implications for human health [J]. *Clinical Microbiology Reviews*, 2007, 20(3): 459-477.
- 张海涵, 唐明, 陈辉, 等. 不同生态条件下油松菌根根际土壤微生物群落[J]. 生态学报, 2007, 27(12): 5463-5470.
- 徐华勤, 肖润林, 邹冬生, 等. 长期施肥对茶园土壤微生物群落功能多样性的影响[J]. 生态学报, 2007, 27(8): 335-3361.
- 申卫收, 林先贵, 张华勇, 等. 不同施肥处理下蔬菜塑料大棚土壤微生物活性剂功能多样性[J]. 生态学报, 2008, 28(6): 2682-2689.
- Xue D, Yao H Y, Ge D Y, et al. Soil microbial community structure in diverse land use systems: a comparative study using Biolog, DGGE, and PLFA Analyses [J]. *Pedosphere*, 2008, 18(5): 653-663.
- 曹均, 吴姬, 赵小蓉, 等. 北京 9 个典型板栗园土壤碳代谢微生物多样性特征[J]. 生态学报, 2010, 30(2): 527-532.
- 孔滨, 孙波, 郑宪清, 等. 水热条件和施肥对黑土中微生物群落代谢特征的影响[J]. 生态学报, 2009, 46(1): 100-106.
- 罗希茜, 赫晓晖, 陈涛, 等. 长期不同施肥对稻田土壤微生物群落功能多样性的影响[J]. 生态学报, 2009, 29(2): 740-748.
- 毕江涛, 贺达汉, 沙月霞, 等. 荒漠草原不同植被类型土壤微生物群落功能多样性[J]. 干旱地区农业研究, 2009, 27(5): 149-155.

Characteristics of aerosol transport and distribution in East Asia

(Jian Wu¹ (吴润), Jun Guo^{1,2} (郭俊), Deming Zhao³ (赵得明))

¹*Department of Atmospheric Science, Yunnan University, Kunming 650091, China*

²*School of Atmospheric Physics, Nanjing University of Information Science & Technology, Nanjing, 210044, China*

³*Key Laboratory of Regional Climate-Environment for Temperate East Asia, Institute of Atmospheric Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing, 100029, P. R. China*

Abstract: We used daily aerosol simulations for the period from 2001 to 2003 that were generated by the Goddard Chemistry Aerosol Radiation and Transport (GOCART) model to characterize aerosol transport and distributions in East Asia. In comparison with the AERONET, MODIS, and visibility observations, the model can capture the main distribution features of the aerosol optical depth (AOD) and its temporal changes with a correlation coefficient of 0.75 and 0.85, respectively. It was found that high AODs occur in Central China, the Sichuan basin, the Indo-China peninsula, the Indian subcontinent, and the Bay of Bengal because of black carbon, organic matter, and sulfate, whereas in the Taklimakan desert and its adjacent regions, high AODs occur because of dust. The potential effects of the hygroscopicity of aerosol particles on the AOD were mainly observed in the Sichuan basin, the Bay of Bengal, the Indo-China peninsula, and Central and Southern China. The East Asian aerosol transport was distinctly affected by the flux divergence induced by aerosol advection (AFD) and by the flux divergence induced by wind divergence/convergence (WFD). For black carbon, organic matter, and sulfate, the effect of AFD was a factor of 2 or 3 larger than that of WFD in the divergence region, whereas AFD dropped to 70% of WFD in the convergence region. The high AOD of black carbon, organic matter, and sulfate over the Sichuan basin related to the circulation characteristics of convergence in low altitudes and divergence in high altitudes, which can collect aerosol from adjacent regions at altitudes below 300 hPa and cause them to diverge easterly at higher altitudes.

Keywords: Aerosol; AOD; Transport; East Asia; GOCART model.

台灣柴油車 NO_x 排放管制成效探討

(吳容輝¹, 林文淵¹, 顏瑞瑩¹, 許仲景², 莊志偉², 盧昭暉³, 林建良³)

1 嘉義縣環境保護局, 嘉義

2 華門工程顧問股份有限公司, 台南

3 國立中興大學機械工程研究所, 台中

摘要: 本文主要目的是探討臺灣柴油車的 NO_x 排放, 以瞭解使用中車輛的排放情形。其中新車排放情況以環保署的柴油車審驗資料為主, 使用中車輛排放情況是以嘉義縣環境保護局在 2004~2011 年所執行的測試資料為主, 分別探討新車排放、全負載不同轉速、不同排氣量與不同管制期程對 NO_x 排放之影響。

本文發現三期重型柴油車的 NO_x 與 PM 都相當集中, 接近排放標準。NO_x 的新車審驗值都集中在 3~5 g/bhp-hr 的區域內, 平均值為 3.74 g/bhp-hr, 而 PM 的分佈則集中在 0.06~0.1 g/bhp-hr 的區域內, 平均值為 0.09 g/bhp-hr。

使用中柴油車的 NO_x 濃度分佈類似 γ 分佈。全負載 100%轉速時與全負載 60%轉速的 NO_x 濃度分佈較集中, 而全負載 40%轉速的 NO_x 濃度分佈則較分散。排氣量 3000cc 以下柴油車的 NO_x 排放濃度約 500ppm, 隨著測試轉速降低而上升; 3000cc 以上柴油車的 NO_x 排放濃度約 700~1150ppm, 隨著排氣量增加而上升, 也會隨著測試轉速降低而升高。自從全面實施第四期柴油車輛排放標準, 2007 年以後的 NO_x 平均排放濃度有明顯的降低趨勢。全負載 100%轉速下的 NO_x 平均排放濃度, 從 2004 年至 2011 年減少了 44%, 顯示加嚴排放法規, 控制 NO_x 污染排放有明顯的效果。平均 NO_x 排放濃度以 40%轉速最高, 為 844ppm, 其次為 60%轉速, 為 768ppm, 而 100%轉速的 NO_x 排放濃度最低, 為 643ppm。在全負載各轉速下的平均 NO_x 濃度以一期車排放最高。在全負載 40%轉速與 60%轉速下的三期車排放有稍微比二期車還多, 四期車所量測的排放濃度為最低。在全負載 100%轉速下的 NO_x 排放濃度隨著排氣法規所制定期程越嚴格而降低。

若考慮單位輸出功的排放量(g/bhp-hr)時, 平均 NO_x 排放量以 40%轉速最高, 為 9.03 g/bhp-hr, 其次為 100%轉速, 而 60%轉速的 NO_x 排放量最低。各轉速下的平均 NO_x 排放量, 皆高於各期程所規範的排放標準。在全負載各轉速下的 NO_x 排放量, 有隨著所制定期程越嚴格而降低。二期使用中車輛在全負載各轉速下的平均 NO_x 排放量都已超過新車法規標準, 三期與四期之使用中車輛在 60%與 100%轉速下都非常接近新車法規標準, 而在 40%轉速時, NO_x 排放量超過新車法規標準。

關鍵字: 柴油車, NO_x, 汙染排放

1.前言

由於經濟快速成長, 國民所得日益提高, 及個人交通便利之需求, 導致機動車輛數目不斷成長。根據 2012 年 12 月份交通統計月報資料顯示[1], 台灣機動車輛數已逾 2230 萬輛, 已成為國內都會

地區重要的空氣污染來源，其中柴油車的數量佔約 3%，共有 65 萬輛。與汽油車比較，柴油車的數量並不很多，但每年加油站柴油的銷售量卻佔汽油銷售量的 50%[2]。這是因為柴油車大部分都是商用車輛，行走里程遠較一般車輛長，故用油量與污染排放量都相當可觀。

柴油車輛具備燃油效率高及耐久性佳等經濟條件，其應用範圍日漸增加，尤其是行駛里程較長的公共汽車及貨車卡車都是使用柴油引擎為動力來源。其污染排放相當可觀，對人體的健康造成嚴重影響，尤其在都會地區，柴油車是重要的污染來源。各國政府為有效管制柴油車輛的廢氣，多半採取分階段加嚴排放標準或管制總體汙染減量，以控制區內的汙染排放總量，作為進行環保法規制定的考量。

環保署為改善國內空氣品質，加強機動車輛污染管制，依據交通工具空氣污染物排放標準規定，自 1987 年開始正式展開對柴油車污染排放管制，1993 年 7 月 1 日起實施柴油車第二期排放管制標準，對國產或進口柴油新車進行污染管制工作，並於 1999 年 7 月 1 日起實施柴油第三期排放標準（相當於美國聯邦 1994 年標準），為配合歐洲四期排放標準，在 2006 年 10 月 1 日全面實施第四期柴油車輛排放標準。另為加嚴交通工具排放標準，以符合世界環保潮流，促使業者引進生產使用最新污染防制技術之清潔車輛，我國亦參考歐盟第五期(Euro 5)及美國等先進國家之管制標準，增訂我國柴油車第五期排放標準，依車型、車重之分類，加嚴氮氧化物（NO_x）、粒狀污染物（PM）、黑煙污染度之管制值，並自 2012 年 1 月 1 日施行，以改善國內車輛廢氣污染問題。

柴油車污染排放逐年改善有兩個因素，一是新車效應，另一是檢修效應。新車效應是指新的低污染車輛取代老舊的高污染車輛，如三期車逐漸取代二期車，四期車會逐漸取代三期車，未來五期車又會逐漸取代三期車。由於越新的柴油車污染排放越低，故新車取代舊車後整體的污染排放會降低，這是屬於新車管制的成效；而檢修效應是指透過動力計檢驗及調修的方式來降低車輛的污染排放，這是屬於使用中車輛管制的成效。

財團法人車輛研究測試中心針對新車管制的污染減量成效，分別推估 2010 年的柴油車污染排放總量以及 2011 年的污染排放總量，再計算二者的差值，此即為以新車管制的減量效果。2011 年 NO_x 減量 277.5 噸，約減量 10.8%；PM 為減量 19.2 噸，約減量 8.9%[3]。

柴油車的污染排放與車輛總數，行駛里程，及排放係數有關。盧昭暉等人於 2002 年進行台灣地區柴油車 NO_x 排放現況調查，並推估柴油車的 NO_x 排放量，發現大貨車是主要的污染排放源，佔 87%，主要是大貨車數量多，而且行駛里程長。若以管制期別來看，以一期車為最多，佔 53%，主要是一期車數量多，污染排放又嚴重，總排放量就高。但二期車的比例也不低，主要是行駛里程高，佔 44%。三期車因數量少，排放又低，總排放比例非常低[4]。

本文主要目的是探討台灣地區柴油車的 NO_x 排放，以了解使用中車輛的排放情形。其中新車排放情況以柴油車審驗資料為主，使用中車輛排放資料主要是以 2004~2011 年在嘉義縣檢驗站所量測數據為主，分別探討全負載不同轉速、不同排氣量與不同期程車對 NO_x 排放之影響。

2.調查方法及結果

依據環保署所執行總量推估的結果，重型柴油車所排放的 NO_x 佔所有車輛的 55%，而 PM 則佔 49%，顯示重型柴油車的 NO_x 與 PM 都是嚴重的污染源[5]。曾頤華等人研究發現重型柴油引擎之懸浮微粒濃度粒徑分佈呈現顯著的雙峰，一為凝核峰，眾數粒徑位於 15nm，另一個為艾特坎峰，眾數粒徑位於 83nm[6]，顯示柴油車所排放的黑煙顆粒相當小，對人體可以產生直接的危害。

N₂ 與 O₂ 反應會生成 NO，這個反應在室溫下很慢，因此很少 NO 生成。但是從引擎高溫下所排出的氮氣，會有少量 NO 生成而被排放到空氣中。在空氣中，它很快就被氧化成 NO₂。所生成的 NO₂ 是棕色的氣體，它會吸收太陽光中一部分的可見光而被分解，稱為光化學煙霧。所生成的氧原子非常活潑，可以引發許多反應，其中之一是與空氣中的氧原子反應成 O₃。O₃ 是光化學煙霧中最主要的成分，它雖然同在同溫層中扮演過濾紫外光的角色，但在對流層中卻是污染物。O₃ 非常活潑而且很毒，尤其對於氣喘患者、運動者及老年人影響很大[7]。

移動污染源所產生的 PM_{2.5} 主要有三個來源，分別為排氣尾管的直接排放(如柴油車的黑煙與二行程機車的青白煙)，車行揚塵，以及由 NO_x，SO_x，VOC 等前驅物所衍生的粒狀物。Barnard 等人分析全美國多處的量測資料，發現衍生的粒狀污染物在不同地區與不同季節有很大的差異，其中硝酸鹽的比率約為 4~37%，平均值為 13%，為移動污染源所產生 PM_{2.5} 的第三大來源[8]。

許多柴油引擎排放係數研究(包括動力計、路邊與隧道內)指出，引擎尾氣中之懸浮微粒質量絕大部分(80 ~ 90 %以上)是由粒徑小於 2.5 μm 的微粒所組成。而在 PM_{2.5} 組成成分上，以含碳物質為最主要的化學成分，這當中元素碳(elemental carbon, EC)佔的比例約 50 ~ 70 %，其餘為有機碳(organic carbon, OC)。值得注意的是，重型柴油引擎單位油量的 PM 排放係數為汽油引擎的 20 倍高[9, 10, 11, 12, 13]。

重型柴油引擎之 PM 排放係數已隨引擎技術的改進而逐年的減少，反觀，NO_x 排放係數並未因此而逐年減少[14]。NO_x 排放未改善之可能原因有二：引擎與機械設備耗損及未妥當保養，導致燃料噴射時間改變，增加 NO_x 排放；此外，過去有非法控制設備之使用。1990 年代的重型柴油引擎 PM 排放係數在暫態循環測試下約介於 0.1 ~ 0.3 g/bhp-hr 附近[12]，相當於 167 ~ 500 mg/km；Robert et al. 的研究結果顯示類似的結果，介於 183 ~ 580 mg/km 間[10]。最近，Biswas et al. 的研究結果顯示，先進的尾氣控制技術可大幅降低重型柴油引擎的 PM 排放量；裝有連續再生技術(CRT)、選擇性催化系統(SCRT)、濾煙器(DPX 與 EPF)等的重型柴油引擎 PM 排放係數皆遠小於 100 mg/km[9]。

2.1 新車的污染排放

圖 1 所示為台灣重型柴油車的 NO_x 及 PM 管制標準演變，其中二期排放標準為 NO_x 6.0 g/ bhp-hr，PM 0.7 g/ bhp-hr，三期排放標準為 NO_x 5.0 g/ bhp-hr，PM 0.1 g/ bhp-hr，四期排放標準為 NMHC+NO_x 2.4 g/ bhp-hr，PM 0.1 g/ bhp-hr，五期 ESC 測試型態的排放標準為 NO_x 1.5 g/ bhp-hr，PM 0.015 g/ bhp-hr，而五期 ETC 測試型態的排放標準為 NO_x 1.5 g/ bhp-hr，PM 0.022 g/ bhp-hr。由圖可看出從 1993 年開始實施柴油車第二期排放管制標準到 2012 年實施第五期排放管制標準為止，這二十年來，PM 的排放標準加嚴了 32 倍，NO_x 的排放標準加嚴了 4 倍，顯示在新車管制方面，效果相當顯著。

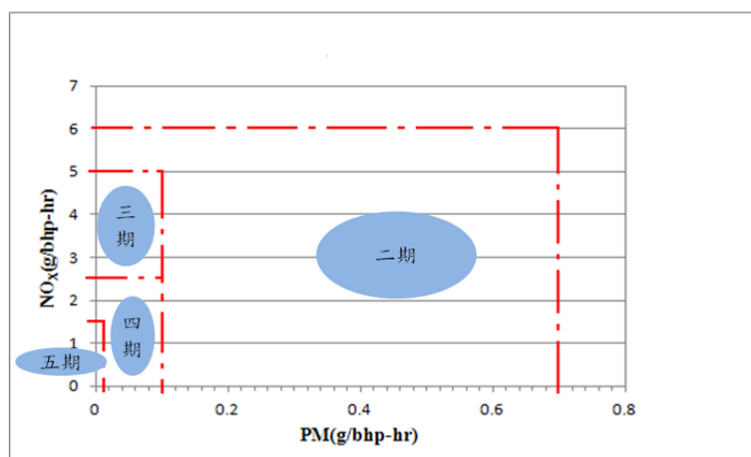


圖 1 台灣重型柴油車的管制標準演變(1993 年~2012 年)

本文以 1999~2006 年間的重型柴油車新車審驗資料來探討新車的排放情形，其結果如圖 2 所示，由圖可看出三期車 NO_x 的新車審驗值都集中在 3~5 g/ bhp-hr 的區域內，平均值為 3.74 g/ bhp-hr，約為排放標準的七成；而 PM 的分佈則集中在 0.06~0.1 g/ bhp-hr 的區域內，平均值為 0.09 g/ bhp-hr，約為排放標準的九成，顯示新車排放雖然都符合排放標準，但也都相當接近排放標準。若使用中保養不當，或劣化嚴重，就有可能超出排放標準。故本文再針對使用中車輛的 NO_x 排放再做進一步解析。

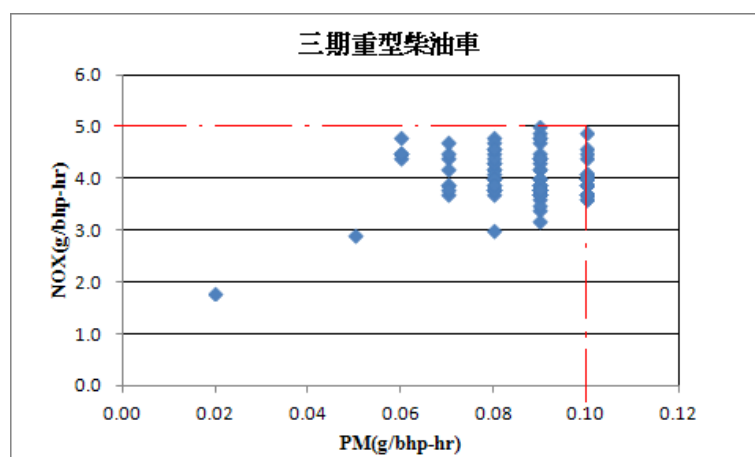


圖 2 台灣三期重型柴油車的新車審驗值

2.2 嘉義縣柴油車檢測業務

本研究的使用中車輛 NO_x 檢測是在嘉義縣柴油車排煙檢測站進行。嘉義縣柴油車排煙檢測站位於嘉義縣鹿草鄉豐稠村馬稠後農場 50 號，於 1999 年於設置完成，並開始執行柴油車檢測作業。該檢測站使用 MD-1000 底盤動力計，單軸最大軸負荷 11 噸以上，可執行大客車、貨車、卡車之檢測。動力計最大吸功率 550 HP，可測車速範圍 0~160 km/hr。嘉義縣柴油車排煙檢測站以排煙檢測為主，圖 3 所示即為車輛在嘉義縣檢測站進行排煙檢測之實際情況。除了排煙檢測外，嘉義縣柴油車排煙檢測站也執行過一些使用中車輛 NO_x 檢測，2004~2011 年共進行過 2379 筆的 NO_x 檢測，表 1 所示為各年度的檢測數。本研究即是以這些資料來進行分析。

表 1 各年度的檢測數

年分	檢測數量
2004	316
2005	302
2006	213
2007	302
2008	318
2009	244
2010	526
2011	158

試驗方法是以全負載定轉速方式來進行，將油門踏板踩到底，依照引擎最大額定馬力轉速，設定如下三個試驗點，選擇適當檔位依序進行試驗。

- (1) 該轉速之 $100\% \pm 50$ rpm。
- (2) 該轉速之 $60\% \pm 50$ rpm。
- (3) 該轉速之 $40\% \pm 50$ rpm。



圖 3 嘉義縣檢測站之實際測試情況

2.3 使用中車輛 NO_x 濃度量測

使用中車輛排放資料主要是以 2004~2011 年在嘉義縣檢驗站所量測數據為主，總共有 2379 筆資料，分別探討全負載不同轉速、不同排氣量與不同期程車對 NO_x 排放之影響。

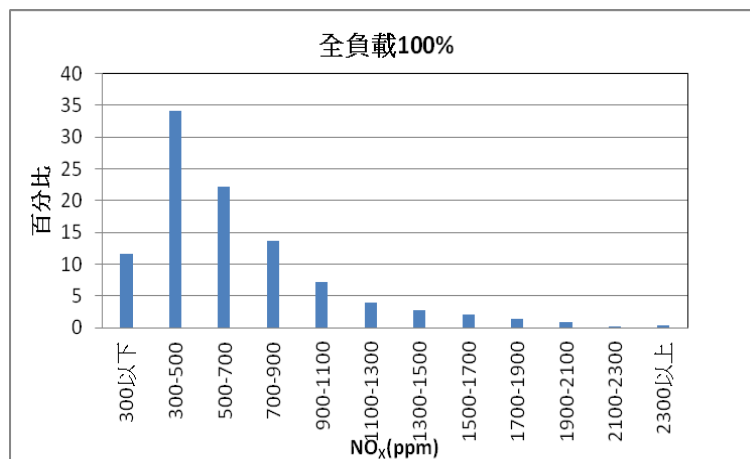
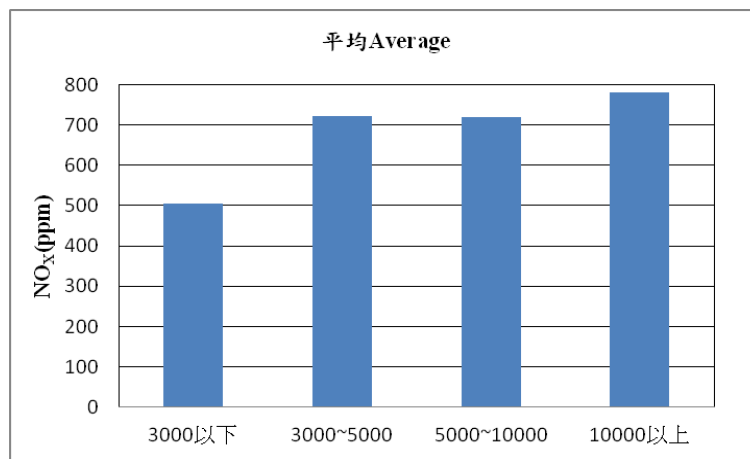
圖 4 全負載 100%轉速 NO_x 濃度分佈

圖 4 為全負載 100%轉速 NO_x 濃度分佈，由圖可看出受測車輛的 NO_x 濃度差異很大，主要分布範圍在 300ppm~700ppm，最大值超過 2500ppm。各型柴油車的 NO_x 濃度分佈類似 γ 分佈。全負載 60%轉速時的 NO_x 濃度分佈與全負載 100%轉速類似，主要範圍在 300ppm~900ppm，但較不集中。而全負載 40%轉速的 NO_x 濃度主要在 300ppm~1100ppm，其分佈則更分散。

本文中將受測車輛依其引擎排氣量來分類，分成四個等級，再分別計算各排氣量範圍內平均的 NO_x 排放濃度。由圖 5 全負載 100%定轉速下不同範圍排氣量的 NO_x 濃度可看出 3000cc 是個明顯的分界點。3000cc 以下柴油車的 NO_x 排放濃度約 500ppm，隨著測試轉速降低而上升；3000cc 以上柴油車的 NO_x 排放濃度約 700~1150ppm，隨著排氣量增加而上升，也會隨著測試轉速降低而升高。3000cc 以下是輕型柴油車的範圍，通常使用間接噴射式引擎(IDI)，3000cc 以上是中型與重型柴油車的範圍，通常使用直接噴射式引擎(DI)。間接噴射式引擎燃燒溫度低，NO_x 排放濃度較低。

圖 5 全負載 100%定轉速各排氣量的 NO_x 平均濃度

本文將所有量測車輛，依所量測之年份計算全負載 100%轉速下的 NO_x 平均排放濃度，如圖 6 所示。自從 2006 年 10 月 1 日全面實施第四期柴油車輛排放標準，從圖中可看出 2007 年以後的 NO_x 平均排放濃度有明顯的降低趨勢。從 2004 年 NO_x 平均排放濃度，為 788ppm，至 2011 年 NO_x 平均排放濃度，為 442ppm，減少了 44%，顯示加嚴排放法規，控制 NO_x 污染排放有明顯的效果。

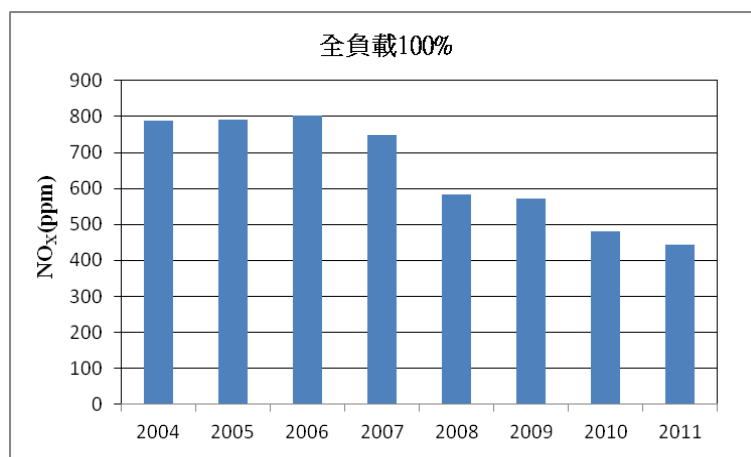


圖 6 全負載 100%定轉速各年的 NO_x 平均濃度

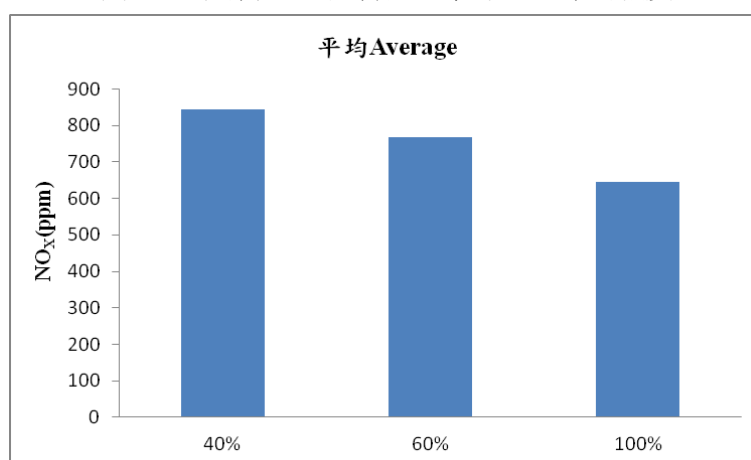


圖 7 全負載不同定轉速的 NO_x 平均濃度

本文中將所有量測車輛，依不同定轉速計算其平均的 NO_x 排放濃度，如圖 7 所示。全負載下各轉速的平均 NO_x 排放濃度以 40%轉速最高，為 844ppm，其次為 60%轉速，為 768ppm，而 100%轉速的 NO_x 排放濃度最低，為 643ppm。這是因為 40%~60%轉速之間比較接近引擎的最大扭力點，燃燒溫度較高。此外，NO_x 的生成速率較慢，引擎轉速較低時，才有足夠的時間在氣缸內產生 NO_x。

本文將受測車輛依排氣法規所制定期程來分類，分類成一期車、二期車、三期車與四期車，再分別計算各期範圍內平均的 NO_x 排放濃度，其結果如圖 8 所示。在全負載各轉速下的平均 NO_x 濃度以一期車排放最高。全負載 40%轉速與 60%轉速的各期車排方趨勢一樣，以一期車排放濃度最高，而三期車排放有稍微比二期車還多，四期車所量測的排放濃度為最低。在全負載 100%轉速下的 NO_x 排放濃度隨著排氣法規所制定期程越嚴格而降低。由圖也可看出，100%轉速的 NO_x 排放濃度最低，因為引擎扭力在全負載低中轉速 (40%~60%轉速) 之間最大，因此燃燒溫度較高，較容易產生大量的 NO_x。