

拉萨夏季大气边界层气溶胶垂直结构特征

李若羽^{1,2} 卞建春^{2,3,4} 唐贵谦⁵ 李丹² 白志宣² 毛文书¹

1 成都信息工程大学大气科学学院, 成都 610225

2 中国科学院大气物理研究所中层大气和全球环境探测重点实验室, 北京 100029

3 中国科学院大学地球与行星科学学院, 北京 100049

4 兰州大学大气科学学院, 兰州 730000

5 中国科学院大气物理研究大气边界层物理和大气化学国家重点实验室(LAPC), 北京 100029

摘要 大气污染物的垂直梯度观测是识别区域输送和本地贡献的必要手段。基于此, 2020年8月在拉萨市利用光学粒子计数器(the Printed Optical Particle Spectrometer, POPS)在地面和系留气艇分别对0.13~3.39 μm粒径范围的气溶胶数浓度进行了测定。结果表明: (1) 拉萨近地面气溶胶数浓度在16 cm⁻³到870 cm⁻³范围之间, 比华北和珠江三角洲地区小2~3个量级; (2)气溶胶数浓度呈现两峰两谷的日变化结构, 峰值通常以0.13~0.4 μm的小粒径粒子为主, 且对应早(10:00 LT, Local Time)晚(21:00 LT)高峰时段; (3)气溶胶数浓度垂直分布与边界层演变密切相关, 稳定边界层中的气溶胶随高度递减, 粒子数浓度为194±94 cm⁻³, 对流边界层和残留层中的气溶胶分布均一, 数浓度分别为165±99 cm⁻³和123±95 cm⁻³, 且显著低于稳定边界层。以上研究结果表明, 拉萨的污染源主要为局地机动车排放, 机动车污染物减排是打造高原生态旅游城市的必由之路。

关键词 边界层结构 气溶胶 垂直廓线 拉萨 数浓度

Vertical evolution of aerosols in the atmospheric boundary layer in Lhasa summer

Li Ruoyu^{1,2}, Bian Jianchun^{2,3,4}, Tang Guiqian⁵, Li Dan², Bai Zhixuan², Mao Wenshu¹

1 Chengdu University of Information Technology, Chengdu 610225

2 Key Laboratory of Middle Atmosphere and Global Environmental Sounding, Institute of Atmospheric Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100029

3 School of Earth and Planetary Sciences, University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049

4 School of Atmospheric Sciences, Lanzhou University, Lanzhou 730000

5 State Key Laboratory of Atmospheric Boundary Layer Physics and Atmospheric Chemistry(LAPC), Beijing 100029

Supported by (The Second Comprehensive Scientific Study of the Tibetan Plateau: 2019QZKK0604)

Corresponding author: tgq@dq.cern.ac.cn

Abstract Vertical gradient observation of air pollutants is necessary to identify regional transport and local contribution. Based on this, aerosol number concentrations in the particle size range of 0.13 to 3.39 μm were measured in Lhasa in August 2020 using an optical particle counter (the Printed Optical Particle Spectrometer, POPS) at the ground level and in a tethered airboat, respectively. The results show that (1) the aerosol number concentration near the ground in Lhasa ranges from 16 cm⁻³ to 870 cm⁻³, which is 2-3

收稿日期 2021-11-15; 网络与出版日期 2021-12-28

作者简介 李若羽, 女, 1996年生, 硕士研究生, 从事大气污染防治方面的研究。E-mail: liruoyu@mail.iap.ac.cn

通讯作者 唐贵谦, E-mail:tgq@dq.cern.ac.cn

资助项目 国家自然科学基金项目 41905041, 第二次青藏高原综合科学考察研究项目 2019QZKK0604

Funded by The Second Comprehensive Scientific Study of the Tibetan Plateau: 2019QZKK0604

orders of magnitude smaller than that in northern China and the Yangtze River Delta. (2) The aerosol number concentration shows a daily variation structure with two peaks and valleys. The peaks are usually dominated by small particles of 0.13-0.4 μm and correspond to the morning and evening peaks (10:00 LT, Local Time; 21:00 LT). (3) Furthermore, the vertical distribution of aerosol number concentration is closely related to the evolution of the boundary layer. The aerosol in the stable boundary layer decreases with height, and the particle number concentration is $194\pm94 \text{ cm}^{-3}$. In contrast, the aerosol in the convective boundary layer and the residual layer are uniformly distributed, and the number concentration is $165\pm99 \text{ cm}^{-3}$ and $123\pm95 \text{ cm}^{-3}$, respectively, and significantly lower than that in the stable boundary layer. The above research results show that the pollution sources in Lhasa are mainly local motor vehicle emissions. Therefore, controlling motor vehicles and reducing emissions is how to build a highland eco-tourism city.

Keywords boundary layer structure, aerosol, vertical profile, Lhasa, number concentration

1 引言

青藏高原是“世界屋脊”，一直以来是众学者研究的热点地区。在2000年，国家将“西部大开发”作为一项战略任务，启动对西部的经济网络建设。而大气气溶胶作为城市空气污染的重要组成部分，其颗粒大小及分布可以影响空气质量 (Liu et al., 2015; Huang et al., 2015)、能见度 (Kim et al., 2005; Li et al., 2016)、人类健康 (Delfino et al., 2005; Gautam et al., 2016; Tang et al., 2017)、以及地球的辐射收支 (Pope et al., 2000; Huang et al., 2015)。在建设经济的同时，为了控制大气污染物的排放，降低PM_{2.5}的浓度，于2003年颁布更严格的火电厂标准 (GB 13223-2003)。

拉萨作为青藏高原的省会城市和直接污染源，其空气质量一直是中国最好的城市之一 (Duo et al., 2018; Yin et al., 2019)，但不如三亚、海口(海南省)等沿海清洁城市 (Jiang et al., 2014)。由于城市化发展和发达的旅游业，已经使化石燃料成为了拉萨的主要消耗能源 (Ran et al., 2014)，而高海拔、低纬和稀薄大气，使得拉萨的紫外线辐射水平较高 (杨龙元等, 1994; Ren et al., 1999; Norsang et al., 2009)，尤其在夏季，可能导致拉萨产生比平原地区更严重的光化学污染。另外，拉萨的生态脆弱，植被覆盖率低，经济不发达，存在原始的生物质燃烧以及宗教焚烧 (Cui et al., 2018; Wei et al., 2019)，拉萨的空气污染对当地生态环境和自然资源及人类健康构成潜在风险。

从国家环境空气质量监测网自2013~2020年的空气污染物六要素 (PM_{2.5}, PM₁₀, O₃, CO, SO₂, NO₂) 监测数据 (<http://www.cnemc.cn>) 发现拉萨除了O₃以外的气态污染物都逐渐改善到一级标准以内，而PM_{2.5}和PM₁₀在2013~2015年下降较快，于2016~2020年无明显变化，说明环境治理遇到瓶颈，需要进一步对气溶胶产生的来源和性质进行评估。气溶胶数浓度谱可以直接识别粒子来源和性质。如杨龙元等 (1994) 发现青藏高原北缘五道梁的气溶胶数浓度谱具有本底特征 (0.4 μm 以下微粒占比急剧减少)，近地面气溶胶数密度在23~66 cm^{-3} 之间。He et al. (2011) 和 Liu et al. (2017) 分别通过模拟和实地测试发现在较低和较高的行车速度下，气溶胶各粒径段数浓度会随着海拔的升高而有不同程度的增加，纳米级的气溶胶数浓度增幅更大。而政改之后对高原城市气溶胶数浓度谱缺乏进一步的观测数据加以研究。

由于距离地面1~2 km的大气边界层是人类主要的活动空间，其中发生着复杂的地气相互作用与大气污染 (胡非等, 2003)，研究边界层内气溶胶的时空分布便尤为重要。周任君 (2008) 等人利用HAIOE雷达资料发现先高原上空的对流层顶存在气溶胶极大值区；秦武斌 (2017) 等人利用雷达和太阳光度计测量数据拟合得到气溶胶标高来反应我国西北地区气溶胶的垂直分布特征，但高原城市也缺乏定量的垂直变化原位探测实验数据来做科学的数据支撑。

为了弥补先前研究的不足，本研究搭建基于地面和系留汽艇的观测平台，分别对近地面和垂直梯度拉萨大气边界层内气溶胶数浓度进行了观测研究，获取了拉萨夏季气溶胶数浓度的时空演变规律，厘清了对气溶胶贡献显著的关键排放源。

2 数据来源与方法

2.1 实验地点及数据来源

实验的观测时间为2020年8月1日~28日，分别在拉萨市东南方的西藏大学纳金校区（ $29^{\circ}38'56''$ N, $91^{\circ}11'13''$ E）（图1）校区进行系留气艇边界层探空实验，于拉萨市中心的拉萨市气象局（ $29^{\circ}39'43''$ N, $91^{\circ}8'35''$ E）（图1）进行POPS地面观测实验。系留气艇探测系统由有效载荷为10 kg的 60 m^3 氦气气艇、便携式光学粒子计数器（the Printed Optical Particle Spectrometer, POPS）、常规气象要素探空仪（Bian et al., 2011）组成。通过气象传感器收集温度（T）、相对湿度（Rh）、风向（WD）、风速（WS）在内的气象参数，以无线电实时从计算机显示传输数据。试验期间，在天气允许的情况下，进行单日多时次（7点、8点、10点、11点、12点、14点、15点、16点、19点、22点）边界层低空探测，共获得可利用垂直廓线数据57组。

图 1 拉萨市地图及试验场地（EPB：西藏环保局；MB：气象局；TU：西藏大学）

Fig. 1 Map of Lhasa city and test site (EPB: Xizang Environmental Protection Bureau; MB: Meteorological Bureau; TU: Xizang University).

POPS是单粒子计数器，时间分辨率为1s，流量为 $\sim 2.98\text{ cm}^3\cdot\text{s}^{-1}$ ，通过记录每个气溶胶粒子经过450 nm的激光所产生的脉冲强度来统计计数（Gao et al., 2016），能够提供 $0.13\text{--}3.39\text{ }\mu\text{m}$ 范围内气溶胶数浓度谱分布，并将其分为15个通道，通道范围为：b1（ $0.13\text{--}0.14\text{ }\mu\text{m}$ ），b2（ $0.14\text{--}0.15\text{ }\mu\text{m}$ ），b3（ $0.15\text{--}0.17\text{ }\mu\text{m}$ ），b4（ $0.17\text{--}0.19\text{ }\mu\text{m}$ ），b5（ $0.19\text{--}0.22\text{ }\mu\text{m}$ ），b6（ $0.22\text{--}0.30\text{ }\mu\text{m}$ ），b7（ $0.30\text{--}0.41\text{ }\mu\text{m}$ ），b8（ $0.41\text{--}0.49\text{ }\mu\text{m}$ ），b9（ $0.49\text{--}0.61\text{ }\mu\text{m}$ ），b10（ $0.61\text{--}0.92\text{ }\mu\text{m}$ ），b11（ $0.91\text{--}1.27\text{ }\mu\text{m}$ ），b12（ $1.27\text{--}1.58\text{ }\mu\text{m}$ ），b13（ $1.58\text{--}2.05\text{ }\mu\text{m}$ ），b14（ $2.05\text{--}2.63\text{ }\mu\text{m}$ ），b15（ $2.63\text{--}3.39\text{ }\mu\text{m}$ ）。POPS具有体积小，重量轻的特点，更适用于部署在系留气艇等探空平台以进行大气垂直气溶胶数浓度的测定。仪器的科学性已经得到充分的对比实验证，更详细的对比和仪器介绍可参照Gao et al. (2016)的工作。为确保对气溶胶的高效采集，实验前，需对POPS进行流量标定，并用聚苯乙烯（PSL）球型粒子进行粒径校准。

2.2 其他数据来源

另外获得位于拉萨西北向的拉萨市环保局（ $29^{\circ}39'25''$ N, $91^{\circ}11'13''$ E）（图1）20年8月地面的六要素数据；以及第二次青藏科考实验中Vaisala增强型单镜头云高仪CL51仪器数据（Zhu et al., 2015）。

云高仪运用脉冲二极管激光探测和测距（Light Detection and Ranging, LIDAR）技术，发射器沿垂直或近乎垂直的方向发射强大功率的短脉冲激光束，激光束通往天空经由气溶胶、大气分子以及水汽引起光散射（后向散射），测量散射光并由雷达接受系统接收并转换为光电流，得到不同高度的后向散射强度。

2.3 分析方法

2.3.1 数据剔除方法

以2倍标准偏差为基准剔除地面POPS观测数据中的异常值（郑家亨， 1995），再计算气溶胶数浓度的小时均值用于后续分析。常规气象要素探空仪所观测的高度数据有部分缺失，但气压数据正常，利用压高公式对其进行修订。系留气艇实验中POPS的数据亦用两倍标准偏差为基准进行剔除，随后按10 m的高度间隔计算数据平均值。

2.3.2 边界层测算方法

利用两种方法确定边界层高度（Planetary boundary layer height, PBLH）。首先通过云高仪（CL51）获得连续的拉萨市大气边界层演化过程，也同时作为系留气艇释放时采样高度的参考（Tang et al., 2015, 2016）。其次，利用气象要素垂直廓线确定采样时次大气边界的精细结构。稳定边界层（Stable boundary layer, SBL）的顶部多位于低空急流发生或相对湿度出现突变的位置，残留层（Residual layer, RL）位于其上方。所以将稳定边界层顶（Stable boundary layer height, SBLH）定为虚位温（Virtual potential temperature, VPT）不再随高度升高或出现明显拐点的位置。白天VPT随高度先减小后增大，将VPT增大的位置与近地面相同处确定为

对流边界层顶部（Convective boundary layer height, CBLH）。

2.3.3 大气稳定度评估方法

使用总体理查逊数 (Ri) (Weisman and Klemp, 1986) 来估计对流边界层内的大气湍流稳定性，计算方法为公式(1):

$$Ri = \frac{\frac{g}{\theta} \frac{\Delta\bar{\theta}}{\Delta z}}{\left(\frac{\Delta\bar{u}}{\Delta z}\right)^2 + \left(\frac{\Delta\bar{v}}{\Delta z}\right)^2} \quad (1)$$

其中， Δz 是测量层结稳定度的两高度之差， g 是重力加速度， $\bar{\theta}$ 是两高度的平均虚位温， $\Delta\bar{u}$ 和 $\Delta\bar{v}$ 为两高度内纬向和经向的平均风速差。

Ri 诊断湍流是常用的经典方法之一 (Stull, 1988; King, 1993)，为用浮力项 $\left(\frac{g}{\theta} \cdot \frac{\Delta\bar{\theta}}{\Delta z}\right)$ 和机械产生项 $\left(\left(\frac{\Delta\bar{u}}{\Delta z}\right)^2 + \left(\frac{\Delta\bar{v}}{\Delta z}\right)^2\right)$ 之比。当 $Ri > 1$ 时，湍流被抑制，对流边界层发展也受到抑制，而 $Ri < 1$ 时，机械产生项占主导地位，表现为湍流特征。

3 结果分析

3.1 地面观测

3.1.1 观测期概述

观测期内拉萨各项污染物均符合我国的一级标准 (GB 3095-2015) (图2) ($PM_{2.5}$ 的24小时均值浓度为 $8.3 \pm 3.3 \mu g \cdot m^{-3}$, PM_{10} 的24小时均值浓度为 $23.5 \pm 8.1 \mu g \cdot m^{-3}$, SO_2 的小时浓度均值为 $6.2 \pm 0.4 \mu g \cdot m^{-3}$, NO_2 的小时浓度均值为 $11.4 \pm 9.2 \mu g \cdot m^{-3}$)。 $0.13 \sim 3.39 \mu m$ 粒径范围的气溶胶数浓度月均值为 $154 \pm 100 cm^{-3}$ ，在 $16 cm^{-3}$ 到 $870 cm^{-3}$ 之间变化，相比华北及珠江三角洲小2~3个量级，与中国其他城市的气溶胶数浓度对比见表1。气溶胶主要分布在粒径为 $0.5 \mu m$ 以下的细粒子段，以 $0.2 \mu m$ 以下占比最多。细粒子在26日有明显增长，结合图2b、c、d可以看出 $PM_{2.5}$ 、 NO_2 和气溶胶数浓度的最大值都出现在26日，而 SO_2 在26日并没有明显的增加反而呈下降趋势，说明机动车的尾气排放可能是气溶胶增加的主要原因，与此同时对应的细粒子数浓度也有显著增长。

表 1 不同地区积聚模态粒子数浓度对比。

Table 1 Comparison of accumulative modal particle number concentrations in different regions.

Observation sites	Diameter (nm)	Number counts (cm ⁻³)	Reference
		Mean (\pm STD)	
Ji nan (summer)	100~1000	481 \pm 332	Gao et al., 2007
Taicang (summer)	100~1000	1745 \pm 1260	Gao et al., 2009
Beijing (summer)	100~2500	1859 \pm 837	Gao et al., 2012

Beijing (winter)	100~1000	7800 ± 5400	Wu et al., 2008
Guangzhou (summer)	100~800	3210 ± 2057	韩冰雪等, 2015
Yangtze River Delta (summer)	100~800	5300 ± 5500	Qi et al., 2015
Xintai (summer)	100~552 / 100~685	7019	Wang et al., 2021
Lhasa (summer)	130-3900	154 ± 100	This work

图 2 整个观测期的时间序列图, 包括 $\text{PM}_{2.5}$ 、 PM_{10} 、 NO_2 、 SO_2 、气溶胶数浓度以及气溶胶不同粒径数浓度变化 (阴影代表系留气艇释放时段)。(a) PM 24 小时均值, 红、蓝、黑虚线分别对应代表 GB 3095-2012 的 24 小时一级标准 ($\text{PM}_{2.5}$: $35 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 和 PM_{10} : $55 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, 以及 WHO 最新 2021 年的 24 小时标准 $\text{PM}_{2.5}$: $15 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$) ; (b) PM 小时均值

Fig. 2 Time series of the whole observation period, including $\text{PM}_{2.5}$, PM_{10} , NO_2 , SO_2 , number concentration of particulate matter, and number concentration of different particle sizes of particulate matter (Shadow represents release period of captive airship). (a) The 24-hour mean value of PM, The red, blue and black dotted lines correspond to the 24-hour level 1 standard of GB 3095-2012 $\text{PM}_{2.5}$: $35 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ and PM_{10} : $55 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, and the latest WHO 24-hour standard of 2021 $\text{PM}_{2.5}$: $15 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$; (b) the hourly mean of PM.

将地面气溶胶总数浓度按照由小到大不同分档进行分类, 统计各粒径段粒子占比 (图3), 发现拉萨近地面气溶胶集中分布在 $0.13\text{--}0.49 \mu\text{m}$ 粒径段的细粒子, 占到总数浓度的 98.4%~99.3%, 其中 $0.13\text{--}0.14 \mu\text{m}$ 数浓度占比最大, 为 28.8%~34.8%; $0.14\text{--}0.16 \mu\text{m}$ 次之, 为 21.8%~24.6%; $0.16\text{--}0.18 \mu\text{m}$ 占 15.5%~16.5%; $0.18\text{--}0.22 \mu\text{m}$ 占 10.9%~11.4%; $0.22\text{--}0.30 \mu\text{m}$ 占 7.5%~10.1%, $0.30\text{--}0.41 \mu\text{m}$ 占 1.5%~2.9%, 而大于 $0.41 \mu\text{m}$ 的粒子占比仅有不到 1%。在地面总数浓度值为 $240 \text{ cm}^{-3}\text{--}870 \text{ cm}^{-3}$ (即高数浓度值) 范围内, $0.18\text{--}0.49 \mu\text{m}$ 段的粒子数浓度有所增加, 进一步证实拉萨近地面的污染来源于细粒子。

图 3 不同数浓度程度下气溶胶粒径占比图

Fig. 3 The proportion of particle size at different concentration levels.

3.1.2 污染物日变化特征

为了进一步验证 8 月拉萨的污染是来源于机动车排放, 我们分析了 $\text{PM}_{2.5}$, PM_{10} , 气溶胶, NO_2 以及 SO_2 的日变化特征 (图4)。

$\text{PM}_{2.5}$ 和 PM_{10} 的质量浓度显示出明显的昼夜模式, $\text{PM}_{2.5}$ 和 PM_{10} 在每日呈现两峰两谷结构, 峰值分别对应早上的 ~10: 00 LT 和晚上的 ~21: 00 LT, 两个谷值分别出现在凌晨 ~4: 00 LT 和下午的 ~15: 00 LT。均值而言, 晚峰的幅度略大 ($\text{PM}_{10}=30.6 \pm 8.6 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$; $\text{PM}_{2.5}=10.4 \pm 2.7 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$), 高于早峰的浓度均值 ($\text{PM}_{10}=25.7 \pm 7.0 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$; $\text{PM}_{2.5}=9.1 \pm 3.1 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$)。 $\text{PM}_{2.5}$ 的日均值为 $8.5 \pm 2.6 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, PM_{10} 为 $24.0 \pm 7.7 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 。 NO_2 的变化也呈现两峰两谷结构, 日均变化为 $11.5 \pm 5.3 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, 日最大值为 $21.6 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, 对应早间 9: 00 LT。而 SO_2 日均变化为 $6.1 \pm 0.1 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, 呈现单峰单谷结构, 最小值出现在 7: 00 LT, 最大值出现在晚 21: 00 LT, 与其他变量没有明显联系。气溶胶的变化同样为两峰两谷结构, 日均值为 $156 \pm 33 \text{ cm}^{-3}$, 且峰值出现在 9: 00 LT 和 21: 00 LT, 与 NO_2 早晚峰值对应, 并且该时段细粒子明显增多 (图4d), 证明气溶胶与 NO_2 有良好的同源性。西藏

自治区使用的是北京时间，日出时比北京要晚~1.9 h (Cui et al., 2018)，早晚高峰正好对应当地排放量的增加和高交通密度，而PM_{2.5}和PM₁₀二者峰值比NO₂和气溶胶峰值出现时间晚~1 h，进一步验证拉萨地面的污染主要来自于人为活动中机动车的排放。

除此之外，这种昼夜模式也由当地的气象条件及PBLH变化共同影响。白天边界层厚度大，大气污染物随边界层内强烈的大气运动充分混合，导致边界层内污染物浓度下降。而随着夜间边界层厚度的降低，污染物在近地面的聚集，导致各污染物的夜晚峰值大于早间峰值。

图 4 NO₂, SO₂, PM_{2.5}, PM₁₀ 和气溶胶的日变化(短线代表标准差), (d) 为不同粒径段气溶胶数浓度变化

Fig. 4 Diurnal variation of NO₂, SO₂, PM_{2.5}, PM₁₀ and particulate matter (short line represents standard deviation),(d) shows the number concentration of particulate matter in different particle size bins.

3.2 垂直演变

3.2.1 平均垂直廓线

为了验证拉萨本地的污染源主要为近地面的人为排放，我们进一步利用系留气艇探测气溶胶在大气边界层内的分布。将实验所得廓线经过总体理查逊数初步判定稳定度，再结合气象要素VPT、T、Rh的垂直廓线进行对比，得到单廓线的PBLH。而对于对流状态下发展较高难以判定边界层高度的廓线，便结合云高仪数据判定。按照边界层结构，分为CBL (Convective boundary layer, CBL) (39条) 和SBL (18条) (图5) 两种平均廓线。各廓线的边界层高度和系留气艇释放时间等相关信息见（附表2、附表3），y轴是标准化后的坐标，代表Z/PBLH的值。

边界层是气溶胶分布良好的分界线，上下气溶胶数浓度分布具有明显梯度差异。CBL的气溶胶数浓度垂直变化较小，地面数浓度范围为57 cm⁻³~511 cm⁻³，CBLH数浓度在45 cm⁻³~421 cm⁻³变化，层结内数浓度递减率为7.3±32.9%，而CBLH以上数浓度递减率为10.9±40.7%，说明在CBL内气溶胶混合更均匀；SBL地面数浓度为144 cm⁻³~562 cm⁻³，SBLH数浓度范围降至15 cm⁻³~159 cm⁻³，气溶胶数浓度随高度下降，SBLH处气溶胶数浓度递减率为50.5±30.8%；而RL中气溶胶数浓度为15 cm⁻³~222 cm⁻³，RL底部较层结最大探测高度处数浓度的递减率为19.1±39.3%。表明CBL和RL中的数浓度随高度变化较小，气溶胶分布较为均一；而SBL中数浓度随高度下降较快，大多气溶胶都聚集在近地层，印证边界层内的气溶胶主要来自于近地面的污染。

图 5 观测期存在的两种垂直剖面类型 (a) 对流边界层；(b) 稳定边界层：红线代表平均廓线；加粗黑线代表边界层位置

Fig. 5 Two types of vertical profile existed in the observation period (a) Convective boundary layer; (b) Stable boundary layer: red line represents average profile; The bold black line represents the boundary layer position.

3.2.2 典型垂直廓线

为了更明确的表征边界层结构对气溶胶垂直廓线演变的影响，将57条数浓度廓线根据各自时刻进行分类统计 (7: 00~8: 00 LT, 9: 00~11: 00 LT, 12: 00~14: 00 LT, 15: 00~19: 00 LT, 20: 00~23: 00 LT)，观察各时段廓线的垂直日变化特征（图6）。

9: 00~11: 00 LT (图6b) 是拉萨当地日出后，太阳短波辐射加热下垫面，引起感热通量向上输送，加热产生的热泡是引起对流的主要原因，对流驱动湍流发生，此时层结为静力不稳定。暖空气热泡从地面不断混合向上，促使对流边界层发展，将近地层产生的气溶胶向上输送参与混合。由VPT廓线可以看出30 m 以下为超绝热层，此时的对流边界层高度发展到约500 m高度，地面平均数浓度为229 cm⁻³，600 m处为197 cm⁻³，递减率仅为13.7%，垂直方向混合较为均匀。12: 00~14: 00 LT (图6c) 随着下垫面的继续加热，湍流发展更加旺盛，VPT在垂直方向混合更为均匀，地面平均气溶胶数浓度为179 cm⁻³，而600 m处浓度为218 cm⁻³，相比于9: 00~11: 00 LT，高空气溶胶数浓度更高，而地面的数浓度更低，说明近地面的污染会随着

对流边界层发展被输送到更高的高度。15: 00~19: 00 LT间，对流边界层继续发展，此时地面气溶胶数浓度平均值更低，为 138 cm^{-3} ，而600 m处为 106 cm^{-3} 变化率为23.4%，对流边界层中VPT廓线分布均匀。

图 6 统计不同时段的气溶胶垂直分布廓线

Fig. 6 Distribution profiles of particulate matter in different periods.

20: 00~23: 00 LT是拉萨的夜间，失去日照的下垫面逐渐变性降温，变为静力稳定的大气，VPT近地面迅速减小，呈现从地面到高空逐渐递增的趋势，稳定边界层上方出现逆温层。白天发展起来的CBL在湍流衰减后变成中性的RL，而白天扩散的污染物夜间仍然停留在RL中。此时段近地面的平均气溶胶数浓度为 292 cm^{-3} ，600 m处降低到 148 cm^{-3} ，递减率为49.3%，污染物被抑制在近地面。7: 00~8: 00 LT近地面气溶胶已经失去高浓度的人为排放，平均数浓度为 239 cm^{-3} ，较20: 00~23: 00 LT时段略低，但污染物仍然聚集在近地层，此时的数浓度递减率为51.2%。

因此来看，气溶胶的分布和边界层发展有良好响应，气溶胶数浓度呈现出 $\text{SBL} > \text{CBL} \approx \text{RL}$ 的变化特征。这一研究结果证实了拉萨气溶胶主要来自于近地面的猜测。

3.2.3 不同层结差异

图 7 气溶胶粒子数浓度谱分布

Fig. 7 Distribution of the number of concentration profiles of aerosol particles.

为了分析不同层结气溶胶数浓度的谱分布，按照不同层结对其进行统计（图7）。

拉萨市气溶胶数浓度在不同层结谱图分布主要表现为数浓度量级的不同，层结粒子数浓度谱分布趋势基本一致。SBL内气溶胶粒子数浓度均值为 $194 \pm 94 \text{ cm}^{-3}$ ，CBL内为 $130 \pm 110 \text{ cm}^{-3}$ ，RL内为 $123 \pm 95 \text{ cm}^{-3}$ 。SBL内为双峰分布， $0.13\text{--}0.2 \mu\text{m}$ 粒径段粒子数浓度最大，均值为 185 cm^{-3} ，双峰分别出现在 $0.4\text{--}0.7 \mu\text{m}$ 粒径段和 $1\text{--}2 \mu\text{m}$ 粒径段，而 $0.7 \mu\text{m}$ 以上的粗粒子已经非常少，均值数浓度仅有不到 1 cm^{-3} 。CBL和RL中同样呈现双峰分布，峰值粒径范围同SBL一致。而在 $0.2 \mu\text{m}$ 以上，粒子数浓度要显著小于SBL。三个层结中都是 $0.13\text{--}0.2 \mu\text{m}$ 粒径段内的气溶胶数浓度最大，占总体的90.0%~94.3%，远大于粗粒子浓度占比。 $0.2 \mu\text{m}$ 以下，粒子数浓度为 $\text{SBL} > \text{CBL} > \text{RL}$ ；而在 $0.2 \mu\text{m}$ 以上，呈现 $\text{SBL} > \text{RL} > \text{CBL}$ 特征。由于SBL主要出现在20: 00~次日08: 00 LT时段，边界层高度低，导致气溶胶在近地面积聚。随着日出CBL的发展，9: 00~19: 00 LT时段气溶胶随大气垂直向的交换和扩散，将近地面的气溶胶数浓度稀释，CBL的数浓度分布较SBL较低。而RL主要位于SBL上部以及发展初期的CBL上部，除层结中性无湍流发展外，重力沉降作用也是其将气溶胶数浓度降至三者最低的原因。

4 结论

本研究基于2020年8月拉萨地面和系留汽艇的观测平台测定的 $0.13\text{--}3.39 \mu\text{m}$ 粒径范围的气溶胶数浓度数据，结合气象要素探测数据分析气溶胶污染的时空变化以及主导污染源，得到以下结论：

拉萨近地面气溶胶数浓度在 16 cm^{-3} 到 870 cm^{-3} 范围之间，比华北及珠三角地区小2~3个量级；气溶胶的数浓度呈现两峰两谷的日变化结构，峰值通常以细粒子为主，且对应早晚高峰；气溶胶的垂直分布与边界层演变密切相关，SBL中的气溶胶随高度递减，CBL和RL中的气溶胶数浓度分布均一，且显著低于SBL。综合表明，拉萨的污染源主要来自于机动车排放。针对机动车污染物的减排措施是打造高原生态旅游城市的重要途径。

本文的研究结果阐明了高原城市拉萨市夏季气溶胶边界层内数浓度的时空演变规律，以及对气溶胶贡

献最显著的排放源，但缺少与其他高原城市的对比实验，且由于实验仅开展在20年8月，而气溶胶数浓度的季节变化可能存在较大差异，也对后续实验提出新的要求。

参考文献（References）

- Bian J C, Chen H B, Vömel H, et al. 2011. Intercomparison of humidity and temperature sensors: GTS1, Vaisala RS80, and CFH [J]. *Adv. Atmos. Sci.* 28, 139–146. doi:10.1007/s00376-010-9170-8
- Cui Y Y, Liu S, Bai Z X, Bian J C, et al. 2018. Religious burning as a potential major source of atmospheric fine aerosols in summertime Lhasa on the Tibetan Plateau [J]. *Atmospheric Environment*, 181, 186–191. doi:10.1016/j.atmosenv.2018.03.025
- Delfino R J, Sioutas C, Malik S. 2005. Potential role of ultrafine particles in associations between airborne particle mass and cardiovascular health [J]. *Environ Health Perspect*, 113(8):934-946. doi:10.1289/ehp.7938
- Duo B, Cui L, Wang Z, et al. 2018. Observations of atmospheric pollutants at Lhasa during 2014–2015: Pollution status and the influence of meteorological factors [J]. *Environ. Sci. (China)*, 63:28-42, doi:10.1016/j.jes.2017.03.010.
- Gao J, Chai F, Wang T, et al. 2012. Particle number size distribution and new particle formation: New characteristics during the special pollution control period in Beijing [J]. *Journal of Environmental Sciences*, 24(1), 14–21. doi:10.1016/s1001-0742(11)60725-0
- Gao J, Wang J, Cheng S H, et al. 2007. Number concentration and size distributions of submicron particles in jinan urban area: characteristics in summer and winter [J]. *Journal of Environmental Sciences (China)*. 19(12):1466-1473. doi: 10.1016/s1001-0742(07)60239-3. PMID: 18277651.
- Gao J, Wang T, Zhou X, et al. 2009. Measurement of aerosol number size distributions in the Yangtze River delta in China: Formation and growth of particles under polluted conditions [J]. *Atmospheric Environment*, 43(4), 829–836. doi:10.1016/j.atmosenv.2008.10.
- Gao R S, Telg H, McLaughlin R J, et al. 2016. A light-weight, high-sensitivity particle spectrometer for PM2.5 aerosol measurements [J]. *Aerosol Science Technology*, 50(1):00-00. doi:10.1080/02786826.2015.1131809
- Gautam S, Yadav A, Tsai C J, et al. 2016. A review on recent progress in observations, sources, classification and regulations of PM2.5 in Asian environments [J]. *Environmental Science & Pollution Research International*. doi:10.1007/s11356-016-7515-2
- He C, Ge Y, Ma C, et al. 2011. Emission characteristics of a heavy-duty diesel engine at simulated high altitudes [J]. *Science of The Total Environment*, 409(17), 3138–3143. doi:10.1016/j.scitotenv.2011.01.029
- Huang J, Wang T, Wang W, et al. 2015. Climate effects of dust aerosols over East Asian arid and semiarid regions [J]. *JOURNAL OF GEOPHYSICAL RESEARCH-ATMOSPHERES*, 119(19):11398-11416. doi:10.1002/2014JD021796
- Huang J, Wang T, Wang W, et al. 2015. Climate effects of dust aerosols over East Asian arid and semiarid regions [J]. *JOURNAL OF GEOPHYSICAL RESEARCH-ATMOSPHERES*, 119(19):11398-11416. doi:10.1002/2014JD021796
- Jacob D J, Winner D A. 2009. Effect of climate change on air quality [J]. *Atmospheric Environment*, 43(1):51-63. doi:10.1016/j.atmosenv.2008.09.051
- Jiang J, Wei Z, Zhen C, et al. 2014. Particulate Matter Distributions in China during a Winter Period with Frequent Pollution Episodes (January 2013) [J]. *Aerosol and Air Quality Research*, 15(2):494-503+i. doi:10.4209/aaqr.2014.04.0070
- Kim Y J, Kim K W, Kim S D, et al. 2006. Fine particulate matter characteristics and its impact on visibility impairment at two urban sites in Korea: Seoul and Incheon [J]. *Atmospheric Environment*, 40(S2):593-605. doi:10.1016/j.atmosenv.2005.11.076
- King J. 1993. The atmospheric boundary layer Cambridge Atmospheric and Space Science Series [M]. J.R. Garratt.
- Li J, Li C, Zhao C, et al. 2016. Changes in surface aerosol extinction trends over China during 1980–2013 inferred from quality-controlled visibility data [J]. *Geophys. Res. Lett.*, 43, 8713–8719, doi:10.1002/2016GL070201.
- Liu J, Ge Y, Wang X, et al. 2017. On-board measurement of particle numbers and their size distribution from a light-duty diesel vehicle: Influences of VSP and altitude [J]. *Journal of Environmental Sciences*, 57, 238–248. doi:10.1016/j.jes.2016.11.023
- Liu P, Zhao C, Zhang Q, et al. 2009. Aircraft study of aerosol vertical distributions over Beijing and their optical properties [J]. *Tellus B*. doi:10.1111/j.1600-0889.2009.00440.x
- Liu Z, Hu B, Wang L, et al. 2015. Seasonal and diurnal variation in particulate matter (PM10 and PM2.5) at an urban site of Beijing: analyses from a 9-year study [J]. *Environmental Science & Pollution Research*, 22(1):627-642. doi:10.1007/s11356-014-3981-6
- Mauderly J L, Chow J C. 2008. Health effects of organic aerosols [J]. *Inhal Toxicol*, 20(3):257-288. doi:10.1080/08958370701866008

- Norsang G, Kocbach L, Tsoja W, et al. 2009. Ground-based measurements and modeling of solar UV-B radiation in Lhasa, Tibet [J]. *Atmospheric Environment*, 43(8):1498-1502. doi:10.1016/j.atmosenv.2008.11.048
- Pope , C A, 2000. Review: Epidemiological Basis for Particulate Air Pollution Health Standards [J]. *Aerosol Science and Technology*, 32,4-14. doi:10.1080/027868200303885
- Qi X M, Ding A J, Nie W, et al. 2015. Aerosol size distribution and new particle formation in the western Yangtze River Delta of China: 2 years of measurements at the SORPES station [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 15(21), 12445–12464. doi:10.5194/acp-15-12445-2015
- Ran L, Lin W L, Deji Y Z, et al. 2014. Surface gas pollutants in Lhasa, a highland city of Tibet – current levels and pollution implications [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 14(19):10721-10730. doi:10.5194/acp-14-10721-2014
- Ren P B C, Gjessing Y, and Sigernes F. 1999. Measurements of solar ultraviolet radiation on the Tibetan Plateau and comparisons with discrete ordinate method simulations [J]. *Atmos. Sol. Terr. Phys.*, 61, 425–446. doi:10.1016/S1364-6826(99)00005-X
- Stull. 1988. An Introduction to Boundary Layer Meteorology [M]. Springer, Dordrecht:1988-01-01.
- Tang G, Zhang J, Zhu X, et al. 2016. Mixing layer height and its implications for air pollution over Beijing [J]. *China Atmos. Chem. Phys.*, 16, 2459–2475. doi:10.5194/acp-16-2459-2016
- Tang G, Zhao P, Wang Y, et al. 2017. Mortality and air pollution in Beijing: The long-term relationship [J]. *Atmospheric Environment*, 150(FEB.):238-243. doi:10.1016/j.atmosenv.2017.03.016
- Tang G, Zhu X, Hu B, et al. 2015. Impact of emission controls on air quality in Beijing during APEC 2014: lidar ceilometer observations [J]. *Atmos. Chem. Phys.*, 15, 12667–12680 , doi:10.5194/acp-15-12667-2015.
- Wang Y Y, Wang J L, Li Z Q, et al. 2021. Contrasting aerosol growth potential in the northern and central-southern regions of the North China Plain: Implications for combating regional pollution [J]. *ATMOSPHERIC ENVIRONMENT*,267. doi:<https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2021.118723>. doi:10.1016/j.atmosenv.2021.118723
- Wei N N, Ma C L, Liu J W, et al. 2019. Size-Segregated Characteristics of Carbonaceous Aerosols during the Monsoon and Non-Monsoon Seasons in Lhasa in the Tibetan Plateau [J]. *Atmosphere*. doi:10.3390/atmos10030157
- Weisman L, Klemp B. 1986. Characteristics of Isolated Convective Storms [M]. AMS.
- Wu Z, Hu M, Lin P, Liu S, et al. 2008. Particle number size distribution in the urban atmosphere of Beijing, China [J]. *Atmospheric Environment*, 42(34), 7967–7980. doi:10.1016/j.atmosenv.2008.06.
- Yin X, Foy B D, Wu K, et al. 2019. Gaseous and particulate pollutants in Lhasa, Tibet during 2013-2017: Spatial variability, temporal variations and implications [J]. *Environmental Pollution*, 253: doi:10.1016/j.enpol.2019.06.113
- Zhu X, Tang G Q, Feng L, et al. 2018. The spatial representativeness of mixing layer height observations in the North China Plain [J]. *Atmospheric Research*, 209:204-211. doi:10.1016/j.atmosres.2018.03.019
- 韩冰雪, 张国华, 毕新慧, 等. 2015. 广州城区夏季大气颗粒物数浓度谱分布特征 [J]. *环境科学研究*, 28(2): 198—204. Han Bingxue, Zhang Guohua, Bi Xinhui, et al. 2015. Pollution characteristics of atmospheric particle size and number concentrations during summer in urban area of Guangzhou [J]. *Research of Environmental Sciences*, 28(2):198—204. doi: 10.13198/j.issn.1001-6929.2015.02.05
- 胡非, 洪钟祥, 雷孝恩. 2003. 大气边界层和大气环境研究进展[J]. *大气科学*, 27(4): 712-728. doi: 10.3878/j.issn.1006-9895.2003.04.18. Hu Fei, Hong Zhongxiang, Lei Xiaoen, et al. 2003. Recent Progress of Atmospheric Boundary layer Physics and Atmospheric Environment Research in IAP [J]. *Chinese Journal of Atmospheric Sciences*,2003, 27(4): 712-728. doi: 10.3878/j.issn.1006-9895.2003.04.18.
- 秦武斌, 李学彬, 鲁先洋, 等. 2017. 我国西北地区气溶胶垂直分布特征分析 [J]. *光学学报*, 37(3):130-137. Qin Wubin, Li Xuebin, Lu Xianyang, et al. 2017. Aerosol Vertical Distribution Characteristics in Northwest China [J]. *Acta Optica Sinica*, 37(3):130-137.
- 杨龙元, 王明星, 吕国涛, 等. 1994. 青藏高原北部大陆气溶胶本底值特征的初步观测研究 [J]. *高原气象*,(02):23-31. Yang Longyuan, Wang Mingxing, LÜ Guotao, et al. 1994. The observation and Research for the Continental Aerosol Background Characteristics in the Northern Part of the Qinghai-Xizang Plateau [J]. *Plateau Meteorol (in Chinese)*, 13(2): 135–143. doi:10.1007/BF02658170
- 郑家亨. 统计大辞典 [M]. 中国统计出版社, 1995. Zheng Jiaheng. 1995. A dictionary of statistical theory and practice [M]. China Statistics Press.
- 周任君, 陈月娟, 毕云, 等. 2008. 青藏高原上空气溶胶含量的分布特征及其与臭氧的关系 [J]. *高原气象*, 2008, 27(003):500-508.. Zhou Rrenjun, Chen Yuejuan, Bi Yun, et al. 2008. Aerosol distribution over the Qinghai-Xizang Plateau and its relationship with Ozone [J]. *Plateau Meteorology*, 27(3): 500508.

附录:

表 2: 所测量的混合状态下每个垂直剖面的日期、时间和其他信息

Table 2: Date, time, and other information for each vertical section in the measured mixed state.

NO.	Date	Release time (Local Time)	Ri	PBLH/ (m)
1	2020-8-8	9:10	-1.59	200
2	2020-8-8	10:27	-20.77	660
3	2020-8-8	11:26	-443	700
4	2020-8-9	11:49	-5.28	560
5	2020-8-9	12:32	-6.86	700
6	2020-8-9	13:20	-8.62	430
7	2020-8-9	13:58	-12.91	450
8	2020-8-9	14:40	-5.23	445
9	2020-8-9	16:07	-7.04	900
10	2020-8-9	16:50	-1.06	1000
11	2020-8-10	12:28	-222.24	290
12	2020-8-10	13:05	-13.86	500
13	2020-8-10	13:42	-15.67	700
14	2020-8-11	11:51	-24.31	390
15	2020-8-11	12:39	-19.79	600
16	2020-8-11	15:06	-63.11	1400
17	2020-8-11	15:45	-41.37	1350
18	2020-8-12	10:25	-4.72	480
19	2020-8-12	12:13	-119.89	760
20	2020-8-12	15:13	-77.63	800
21	2020-8-13	10:13	-283.18	400
22	2020-8-14	13:51	-15.16	490
23	2020-8-16	10:44	-10.79	520
24	2020-8-16	11:24	-5.38	700
25	2020-8-17	11:14	-13.37	400
26	2020-8-17	11:59	-10.85	620
27	2020-8-18	7:10	0.77	310
28	2020-8-18	12:53	-72.37	800
29	2020-8-19	15:21	-61.37	2750
30	2020-8-19	19:39	-9.83	590
31	2020-8-20	13:06	-12.22	1100
32	2020-8-20	21:20	0.96	500
33	2020-8-21	12:45	-40.08	750
34	2020-8-21	14:36	-12.9	1750
35	2020-8-22	10:35	-14.39	700
36	2020-8-22	13:58	-17.16	1300
37	2020-8-26	12:35	-6	1440
38	2020-8-26	19:11	-43.56	490

表 3: 所测量的稳定状态下每个垂直剖面的日期、时间和其他信息

Table 3: Date, time, and other information for each vertical section in the measured steady state.

NO.	Date	Release time (Local Time)	Ri	PBLH/ (m)
1	2020-08-08	7:52	1.85	220
2	2020-08-12	7:05	14.59	620
3	2020-08-12	8:36	11.61	700
4	2020-08-12	9:28	2.34	280
5	2020-08-17	7:09	26.56	200
6	2020-08-17	8:05	19.98	340
7	2020-08-18	21:52	1.53	340
8	2020-08-19	21:10	7.31	420
9	2020-08-20	7:12	8.42	200
10	2020-08-20	8:49	3.52	550
11	2020-08-22	7:12	25.59	200
12	2020-08-22	21:28	2.87	500
13	2020-08-26	7:11	15.36	580
14	2020-08-26	22:01	15.87	350
15	2020-08-27	7:09	2.1	190
16	2020-08-27	21:19	8.64	340
17	2020-08-28	6:53	13.58	660
18	2020-08-28	8:20	3.44	300

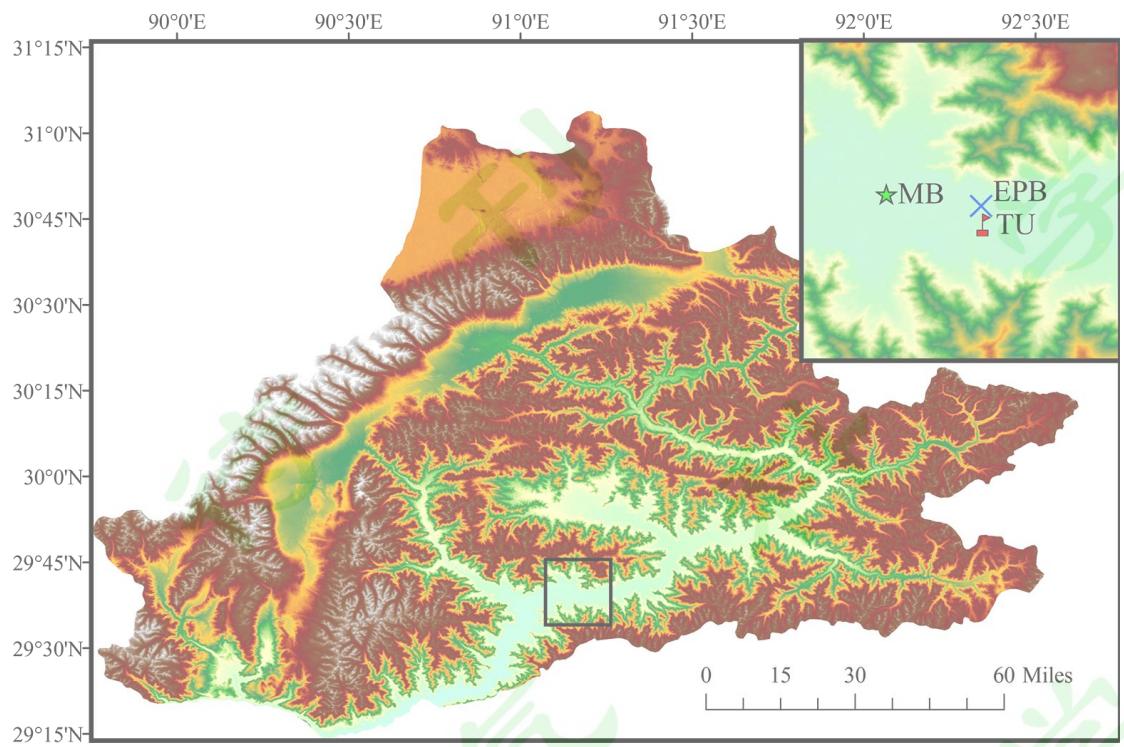


图 1 拉萨市地图及试验场地 (EPB: 西藏环保局; MB: 气象局; TU: 西藏大学)

Fig. 1 Map of Lhasa city and test site (EPB: Xizang Environmental Protection Bureau; MB: Meteorological Bureau; TU: Xizang University).

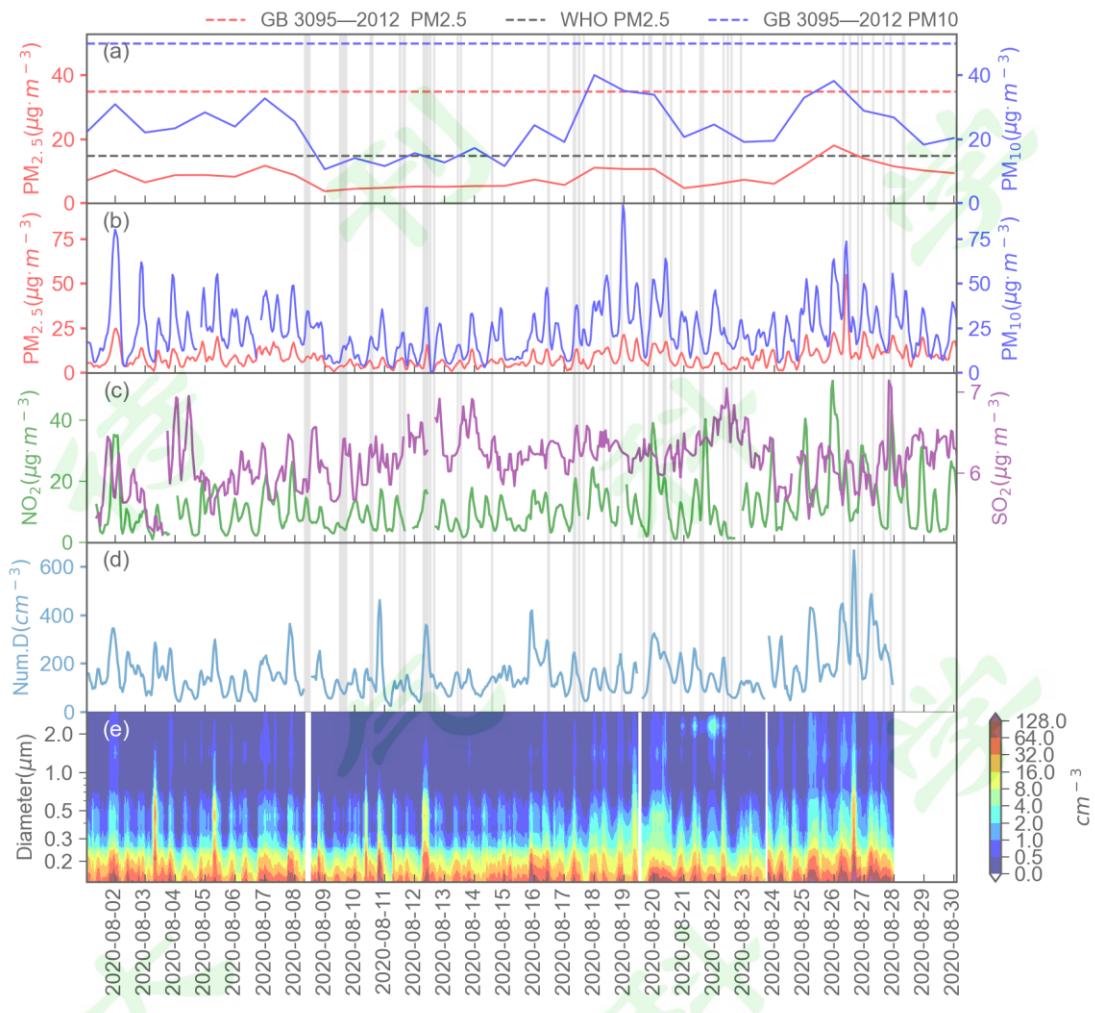


图 2 整个观测期的时间序列图，包括 PM_{2.5}、PM₁₀、NO₂、SO₂、气溶胶数浓度以及气溶胶不同粒径数浓度变化（阴影代表系留气艇释放时段）。(a) PM 24 小时均值，红、蓝、黑虚线分别对应代表 GB 3095-2012 的 24 小时一级标准 (PM_{2.5}: 35 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 和 PM₁₀: 55 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ ，以及 WHO 最新 2021 年的 24 小时标准 PM_{2.5}: 15 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$)；(b) PM 小时均值

Fig. 2 Time series of the whole observation period, including PM_{2.5}, PM₁₀, NO₂, SO₂, number concentration of particulate matter, and number concentration of different particle sizes of particulate matter (Shadow represents release period of captive airship). (a) The 24-hour mean value of PM, The red, blue and black dotted lines correspond to the 24-hour level 1 standard of GB 3095-2012 PM_{2.5}: 35 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ and PM₁₀: 55 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, and the latest WHO 24-hour standard of 2021 PM_{2.5}: 15 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$; (b) the hourly mean of PM.

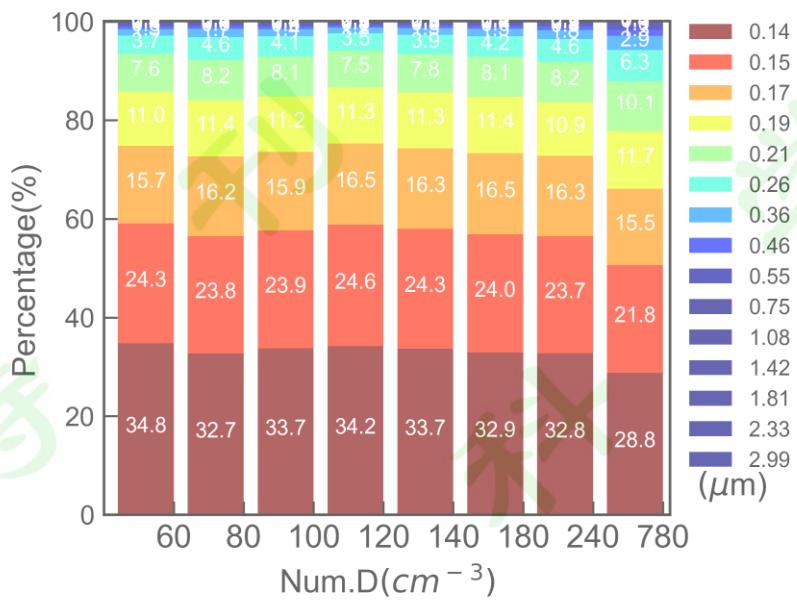


图 3 不同浓度程度下气溶胶粒径占比图

Fig. 3 The proportion of particle size at different concentration levels.

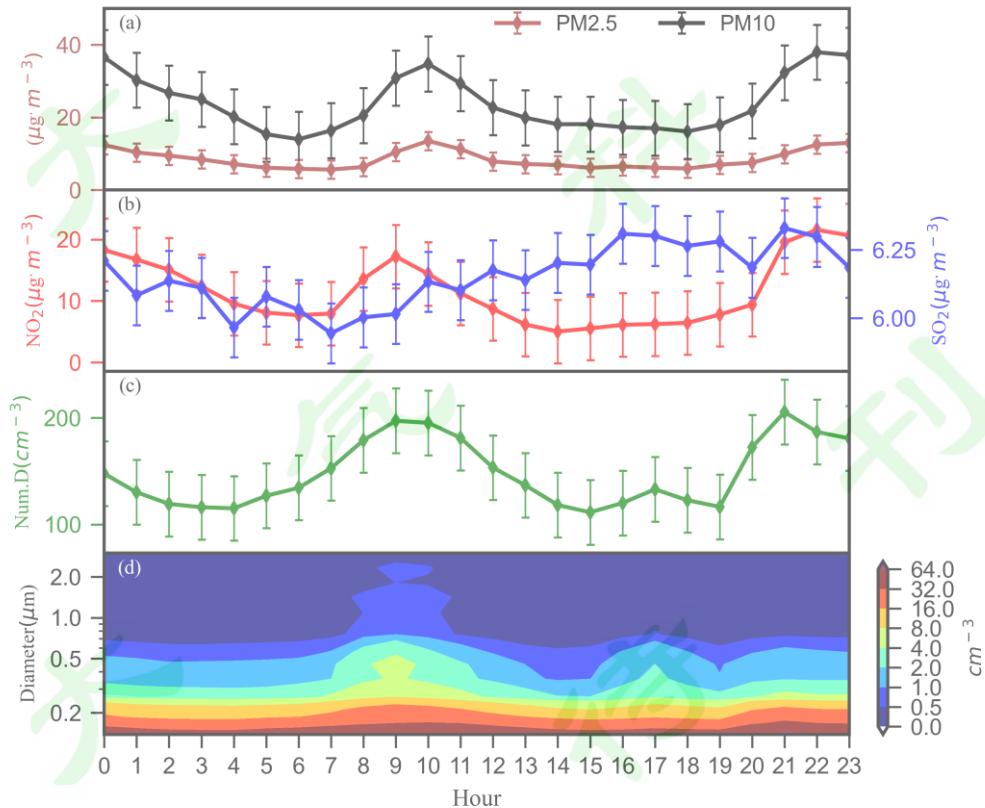


图 4 NO₂, SO₂, PM_{2.5}, PM₁₀ 和气溶胶的日变化(短线代表标准差), (d) 为不同粒径段气溶胶数浓度变化

Fig. 4 Diurnal variation of NO₂, SO₂, PM_{2.5}, PM₁₀ and particulate matter (short line represents standard deviation),(d) shows the number concentration of particulate matter in different particle size bins.

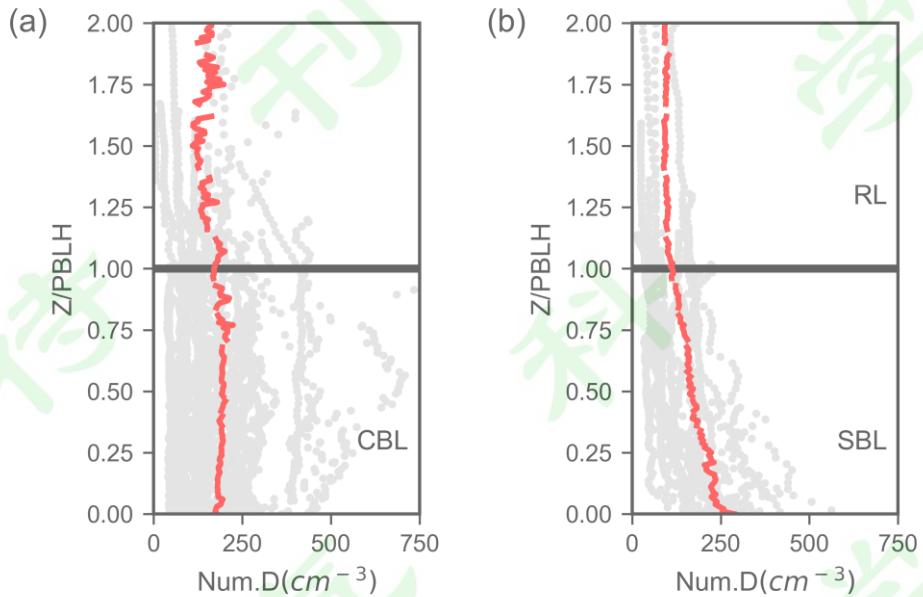


图 5 观测期存在的两种垂直剖面类型 (a) 对流边界层; (b) 稳定边界层: 红线代表平均廓线; 加粗黑线代表边界层位置

Fig. 5 Two types of vertical profile existed in the observation period (a) Convective boundary layer; (b) Stable boundary layer: red line represents average profile; The bold black line represents the boundary layer position.

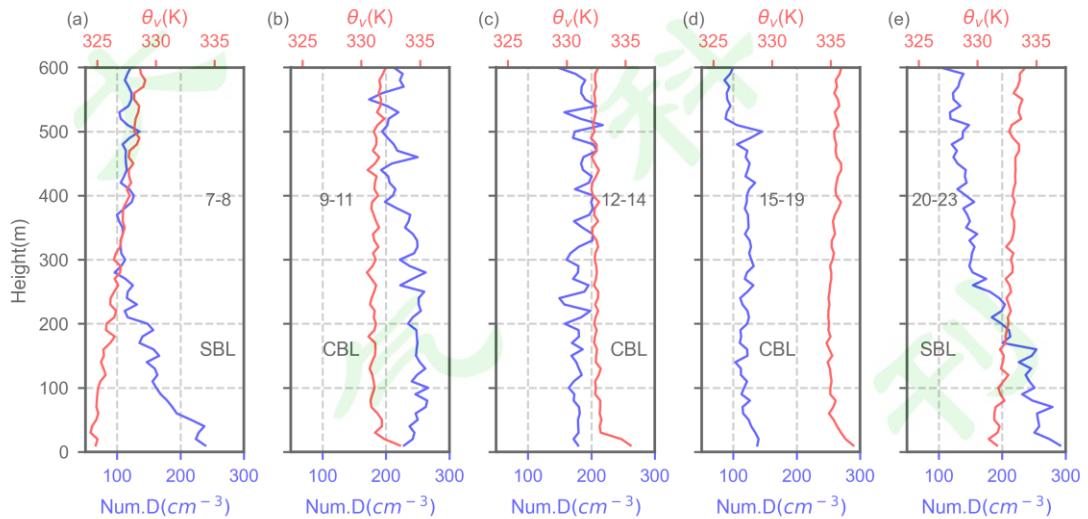


图 6 统计不同时段的气溶胶垂直分布廓线

Fig. 6 Distribution profiles of particulate matter in different periods.

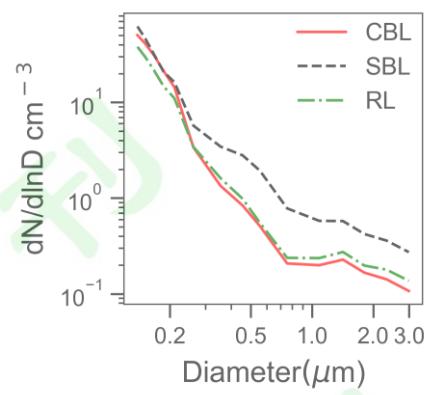


图 7 气溶胶粒子数浓度谱分布

Fig. 7 Distribution of the number of concentration profiles of aerosol particles.