



城市地区大气污染物和温室气体的 通量观测研究

袁斌

暨南大学 环境与气候研究院

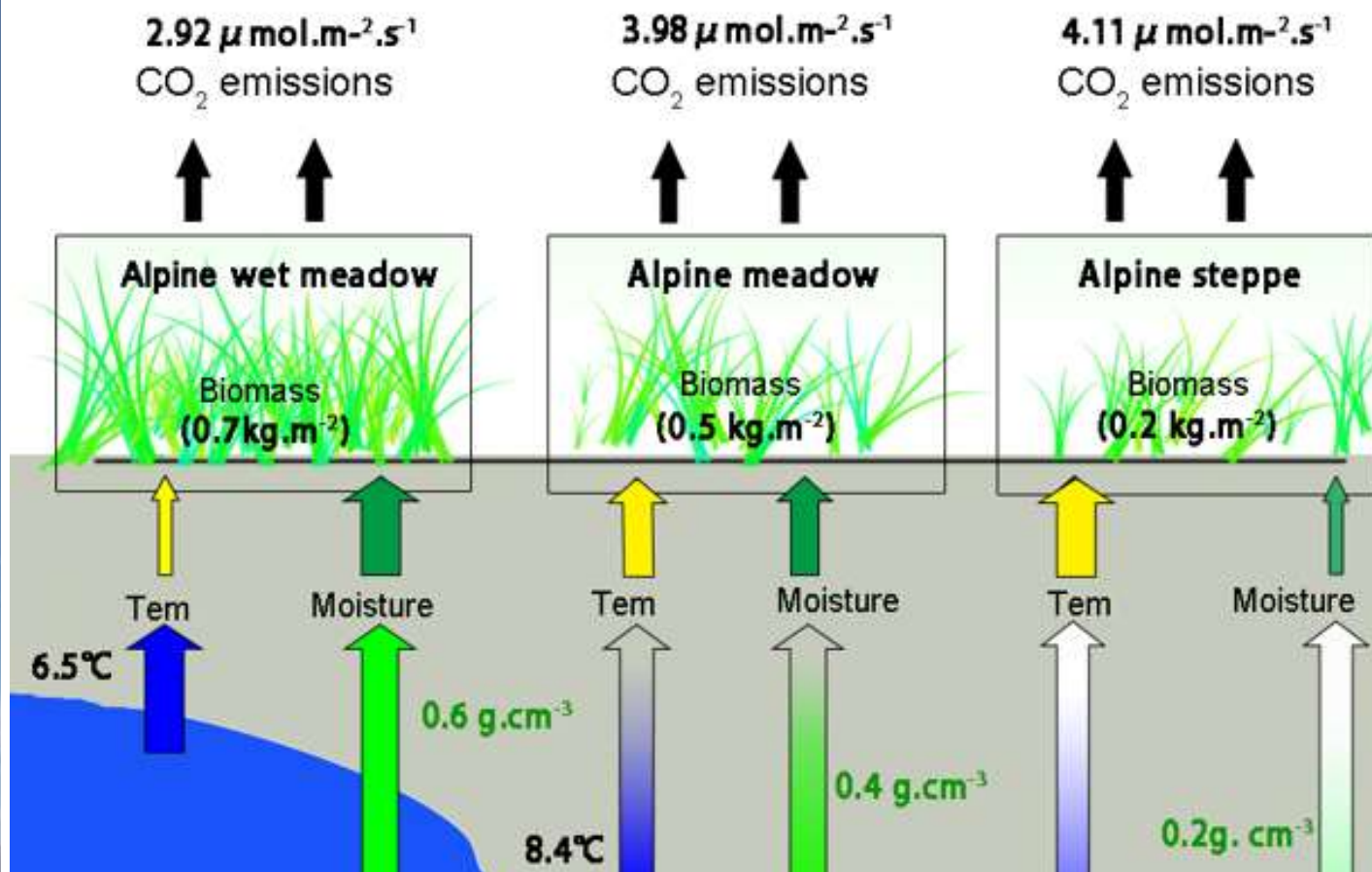
2023年7月28日@南京

通量研究在生态系统物质循环机制研究有重要意义

□ 通量指单位时间单位面积的物质交换量，是量化生态系统中物种循环的关键指标



(chinaflux.org)



(crs.ac.cn)



(li-ca.com)

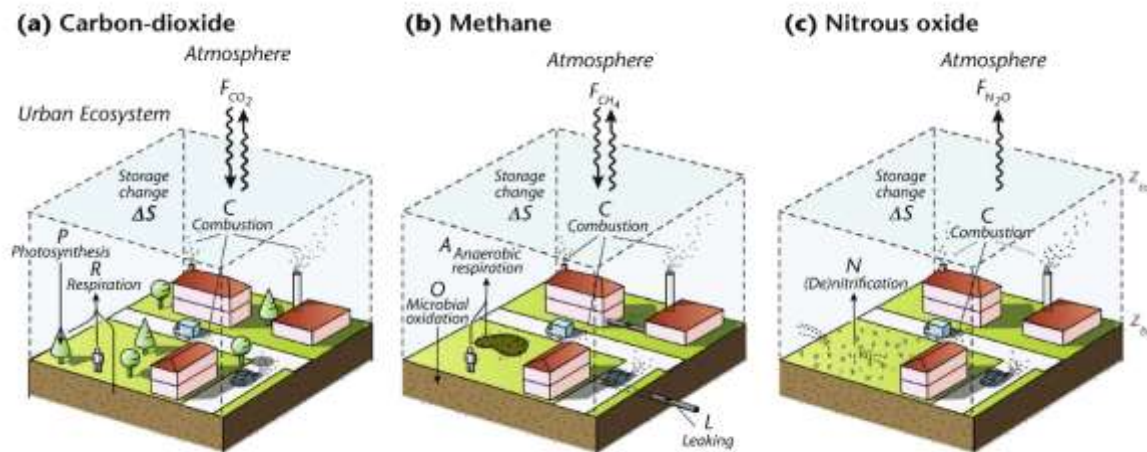
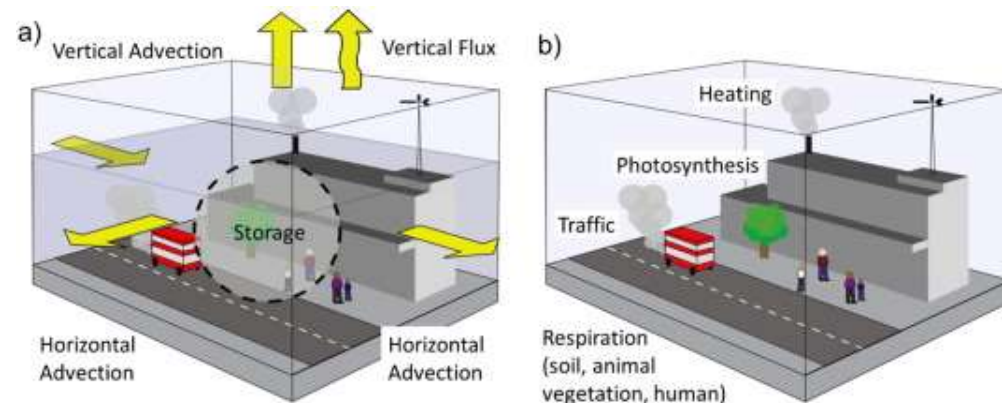
□ 为量化生态系统中物质排放、验证沉降模式和排放清单提供重要的技术支持

城市地区是生态系统的重要组成部分

- 城市是人类聚居的最高形态，形成了独特的物质循环体系
- 极高的能源消耗和广泛的人为活动，排放了大量温室气体和大气污染物

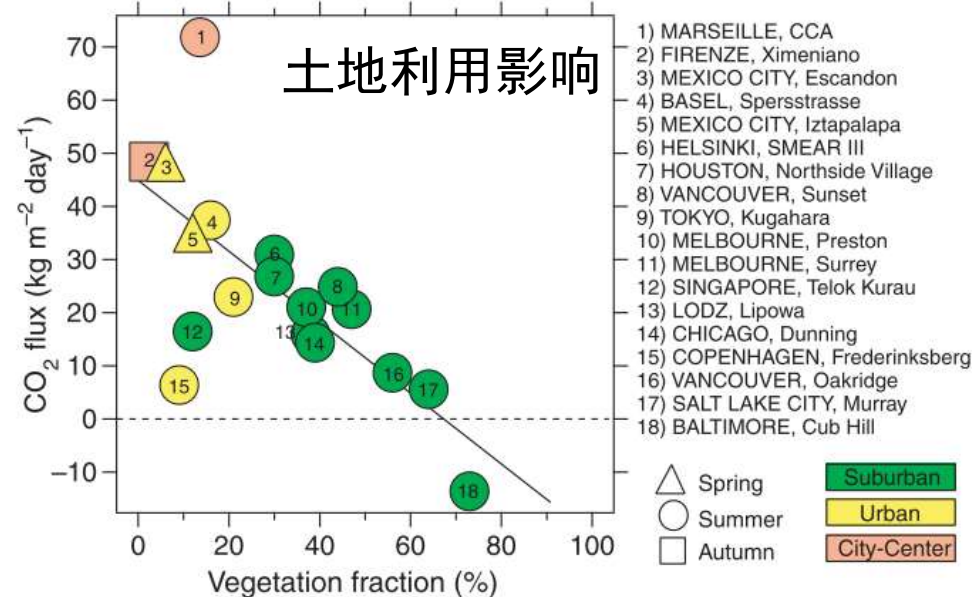
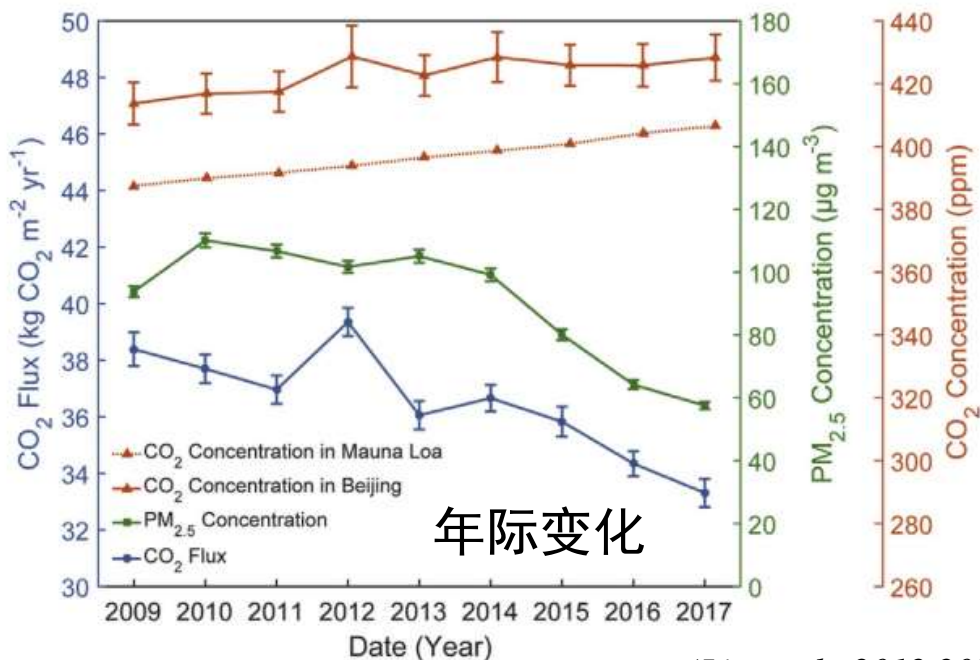
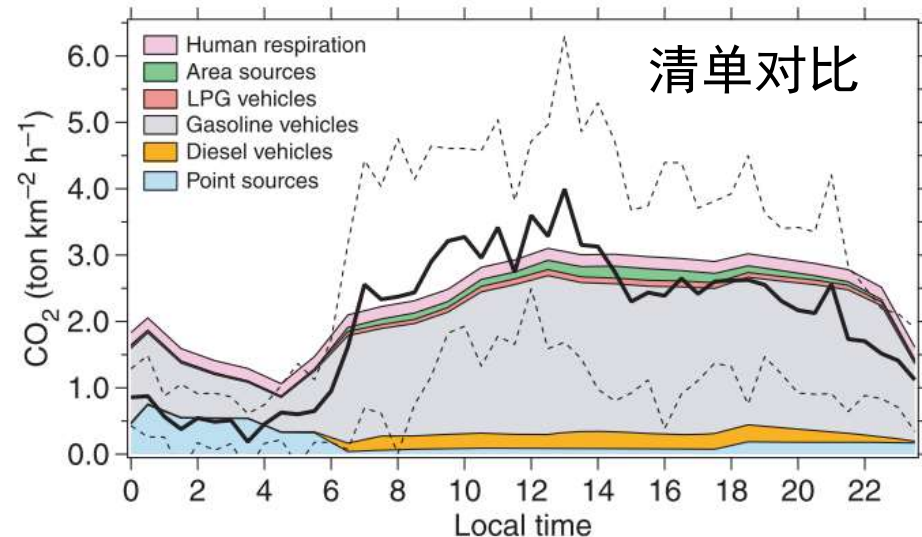
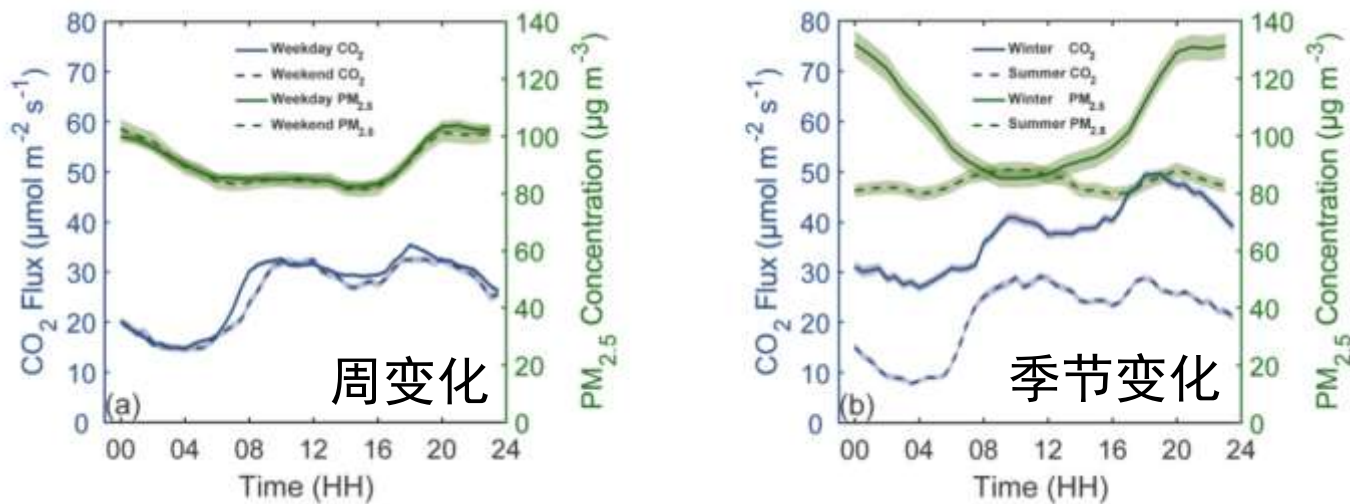


<http://outreach2018.globalcarbonatlas.org/en/content/global-cities-emissions>



- 在城市地区开展通量观测，对研究物质排放特征和人类活动环境效应具有重要意义

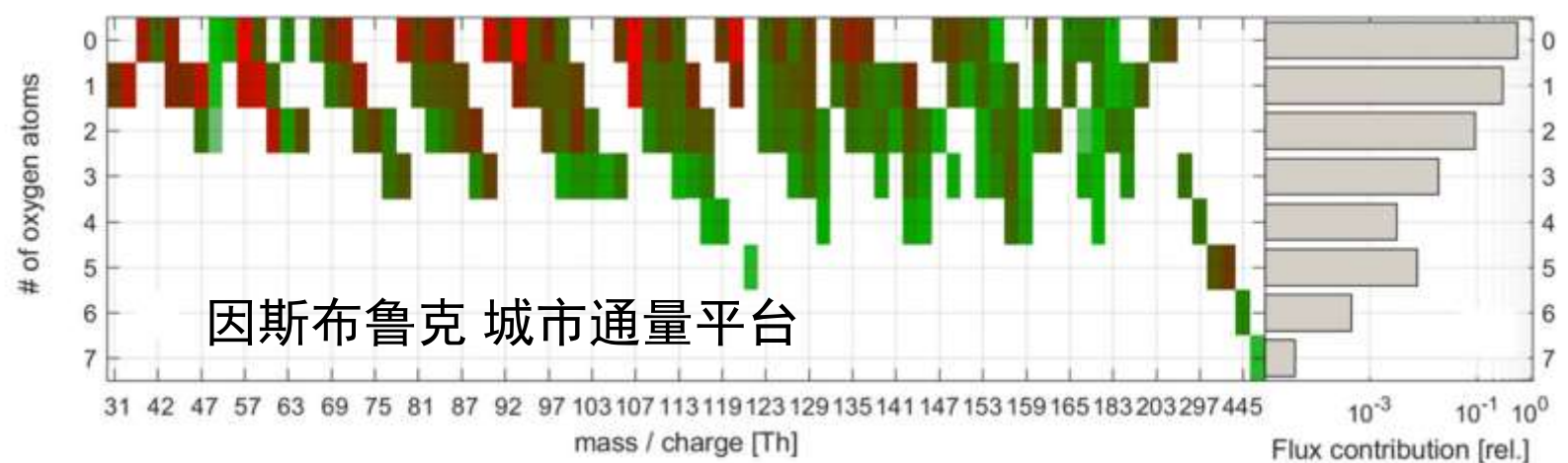
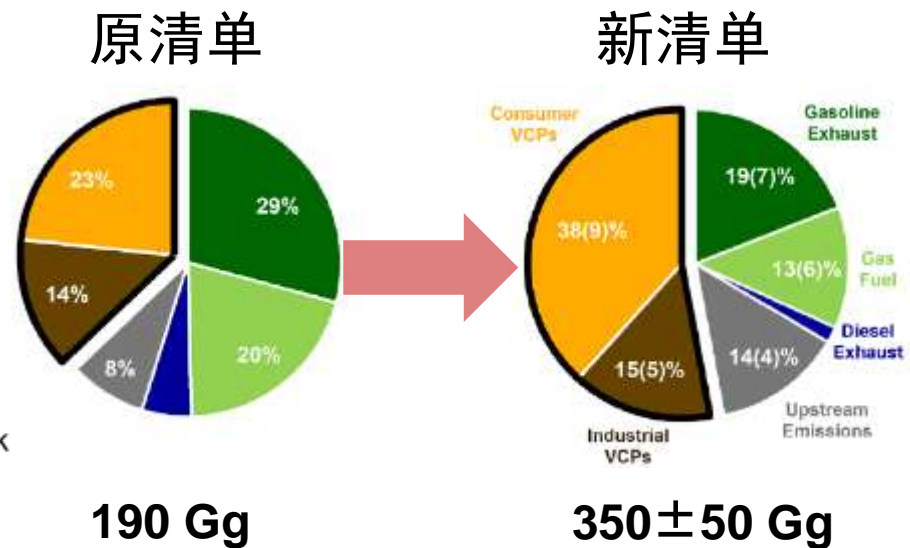
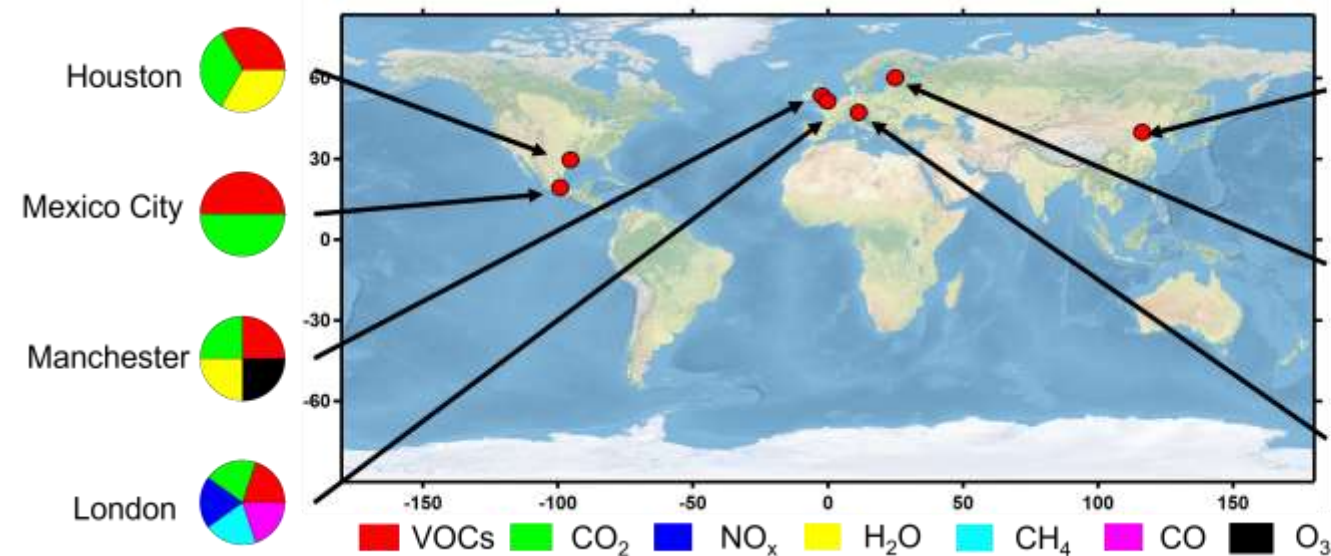
城市通量观测提升对温室气体排放变化规律的认识



(Liu et al., 2012,2020)

(Velasco et al., 2010) 4

大气活性组分通量观测鲜有开展



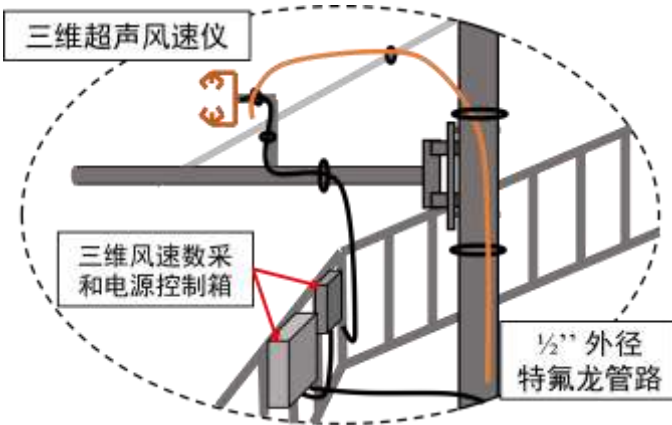
□ 城市地区含氧活性VOCs
排放被严重低估

(Karl et al., 2018 PNAS; McDonald et al., 2018 Science)

新进展： 大气活性组分的排放认识仍有较大缺失

建立基于高塔的VOCs异位通量观测技术

问题： 城市通量测量高度要求严格，高塔平台空间和配套有限，无法放置大型仪器

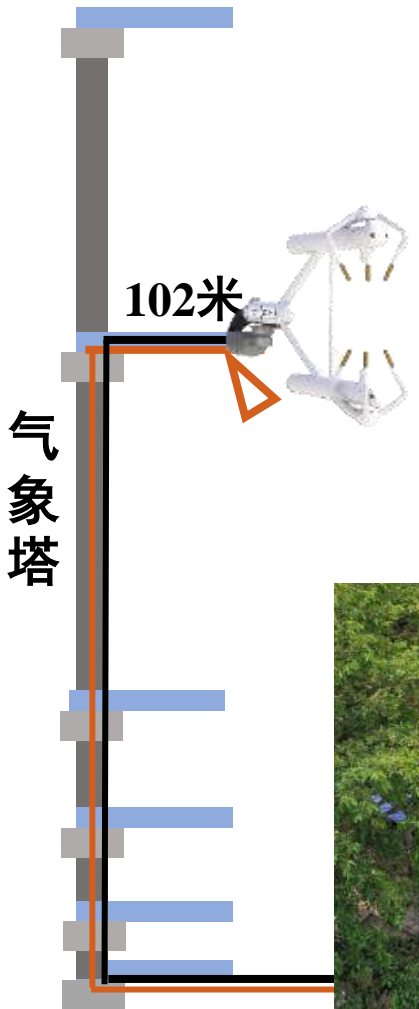


□ 开发管路引流方法，突破输送延时、压降、管壁损失等诸多技术难点，实现通量观测

获得城市大气成分高质量通量观测数据

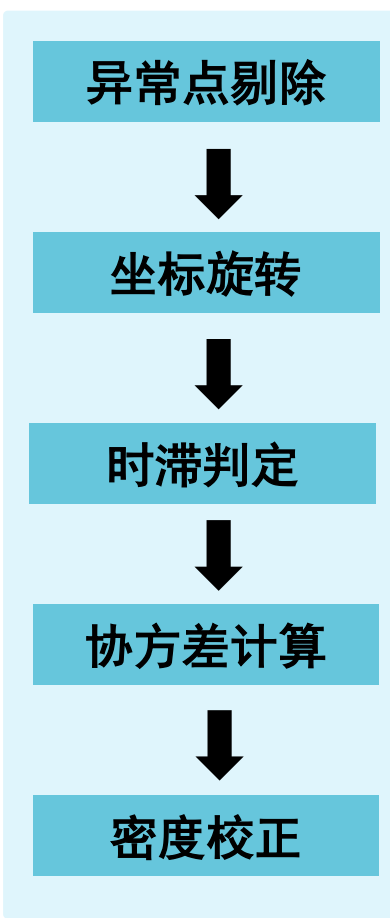
问题：通量测量技术要求严格，数据量大（千亿级数据点），处理和质控步骤多（10+）

进展：克服了异位观测中输送延时、时间校正等技术难点，形成了通量数据自动化处理

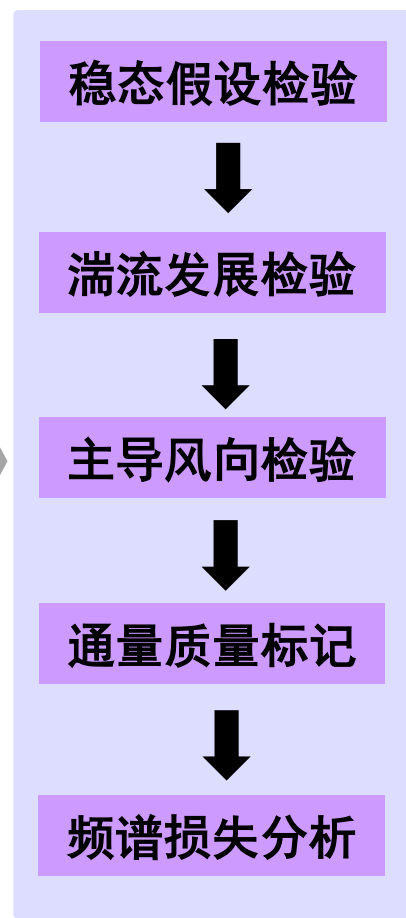


观测参数		2021	2023
VOC	芳香烃	✓	✓
	烯烃	✓	✓
	OVOCs	✓	✓
常规气体	NO _x	x	✓
	O ₃	✓	✓
	Ox	x	✓
	CO	✓	x
温室气体	CO ₂	✓	✓
	H ₂ O	✓	✓
	CH ₄	✓	✓
	N ₂ O	✓	✓

通量数据准备

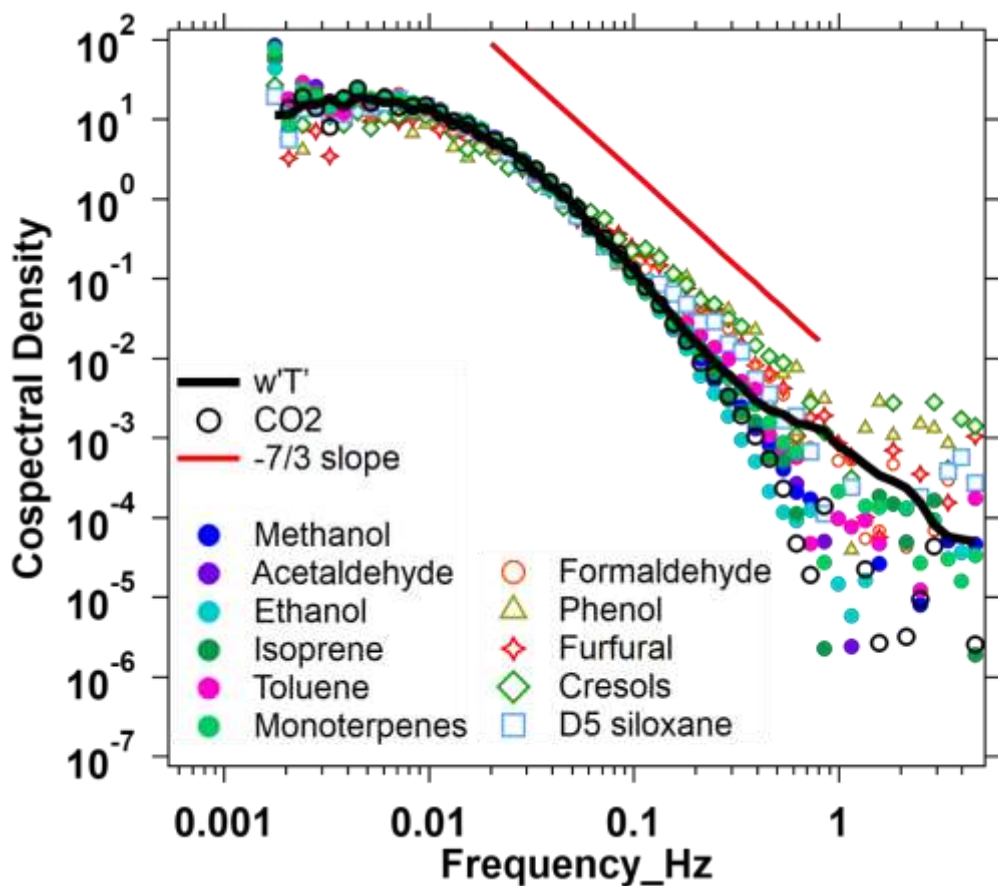


通量数据质控

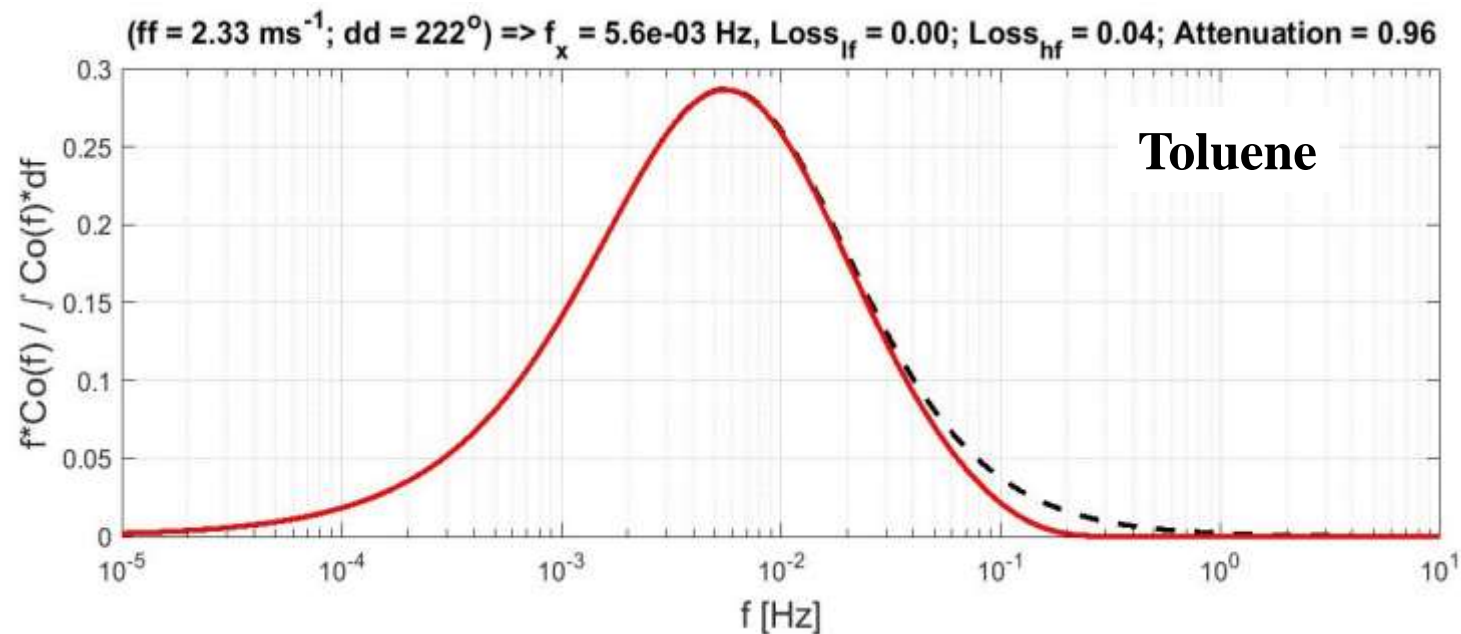


评估大气成分通量观测的高频损失

基于频谱分析评估高频段的通量损失



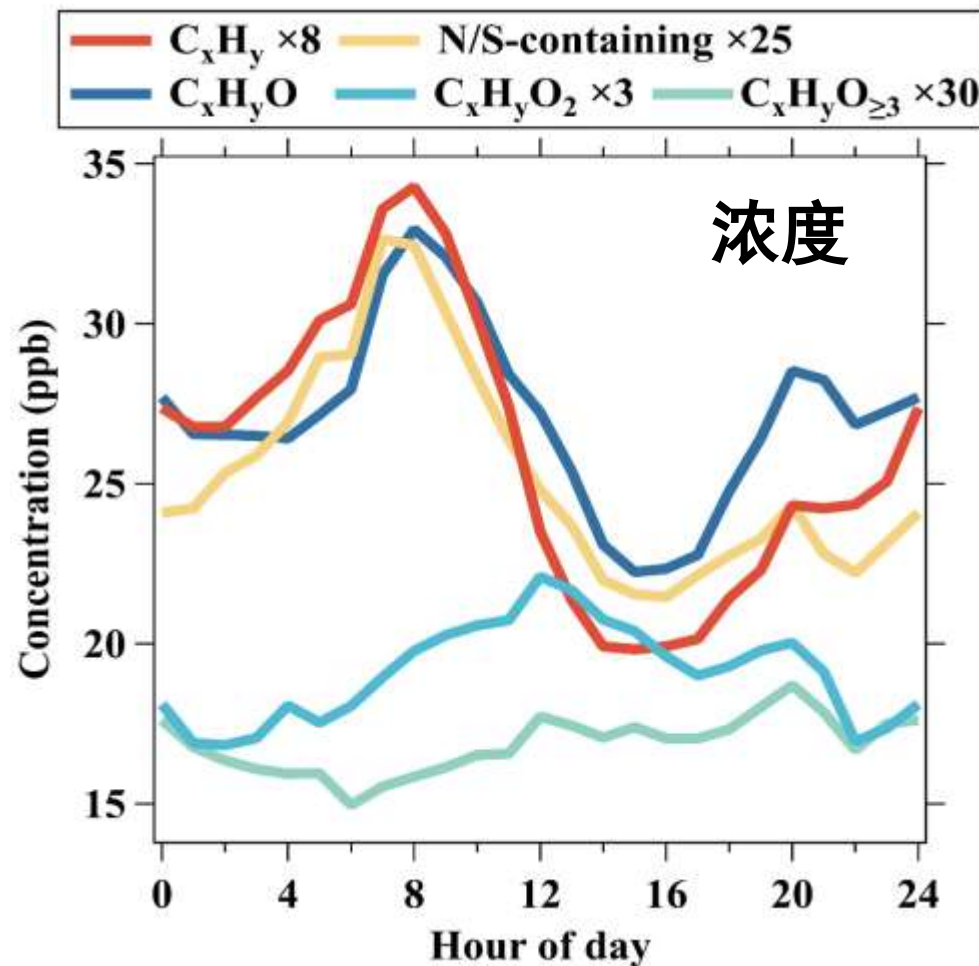
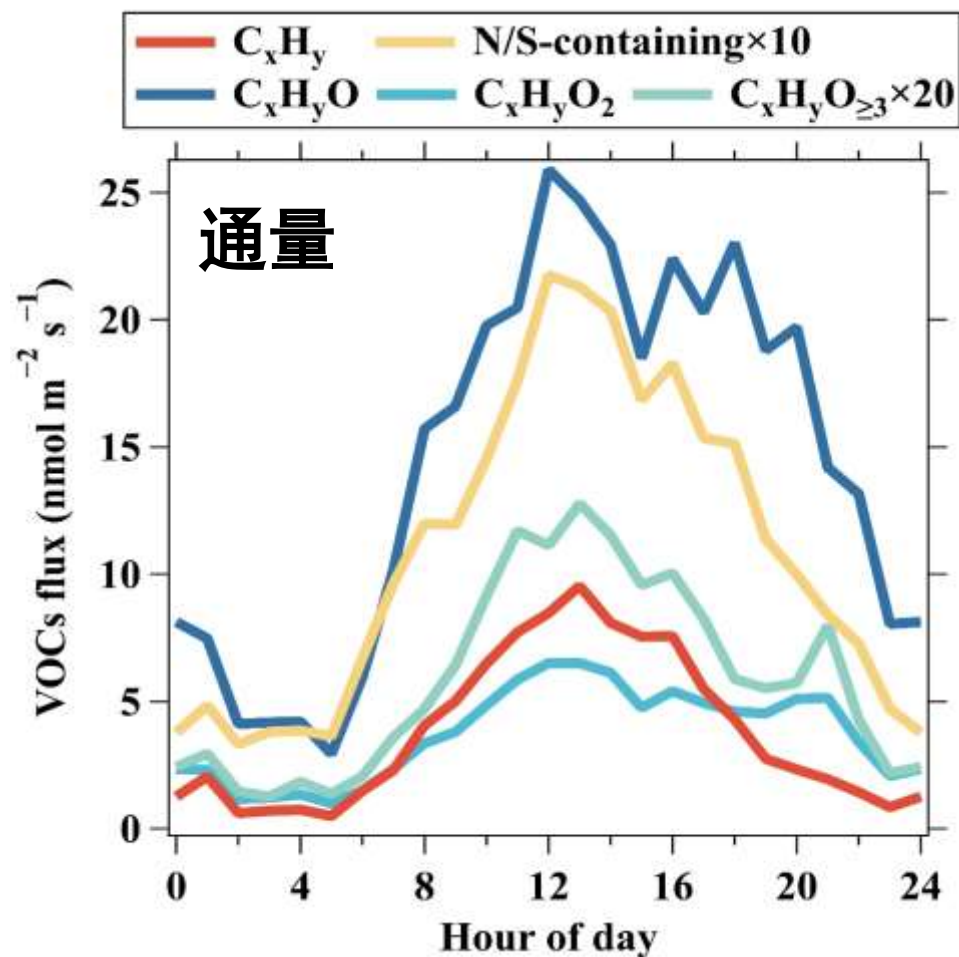
$$fCo(\eta) = A_0 \cdot \frac{\eta/\eta_x}{[1+m \cdot (\eta/\eta_x)^{2\mu}]^{2\mu} \left(\frac{m+1}{m}\right)}, m \equiv 3/4$$



惯性区间遵循了理论上的-7/3斜率，以甲苯为例，高频损失为~4%，无需修正

揭示VOCs通量和浓度变化规律的明显差异

□ 从日变化的角度探索VOCs 排放通量与浓度的规律性差异

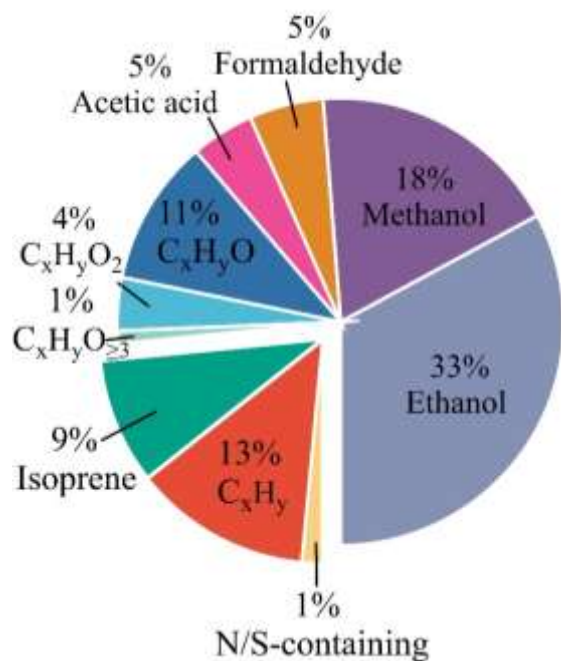


□ 与浓度不同，VOCs通量呈白天高夜间低的变化特征，与边界层演变去耦合

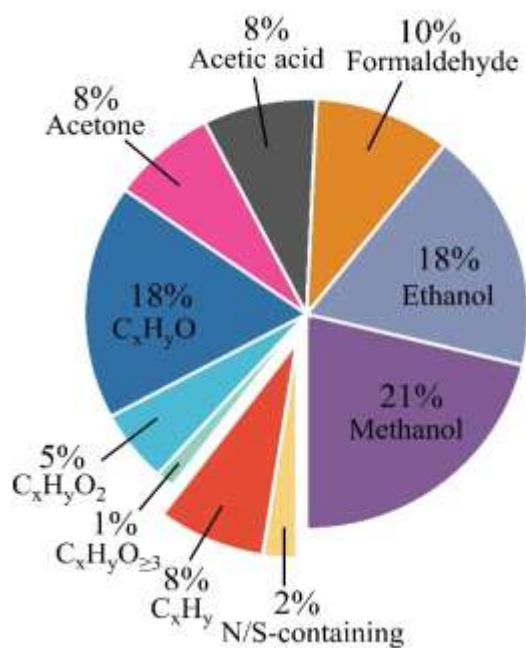
揭示VOCs通量和浓度组成的明显差异

□ 将代表排放特征的VOCs通量组成与经过大气氧化后的VOCs浓度组成对比

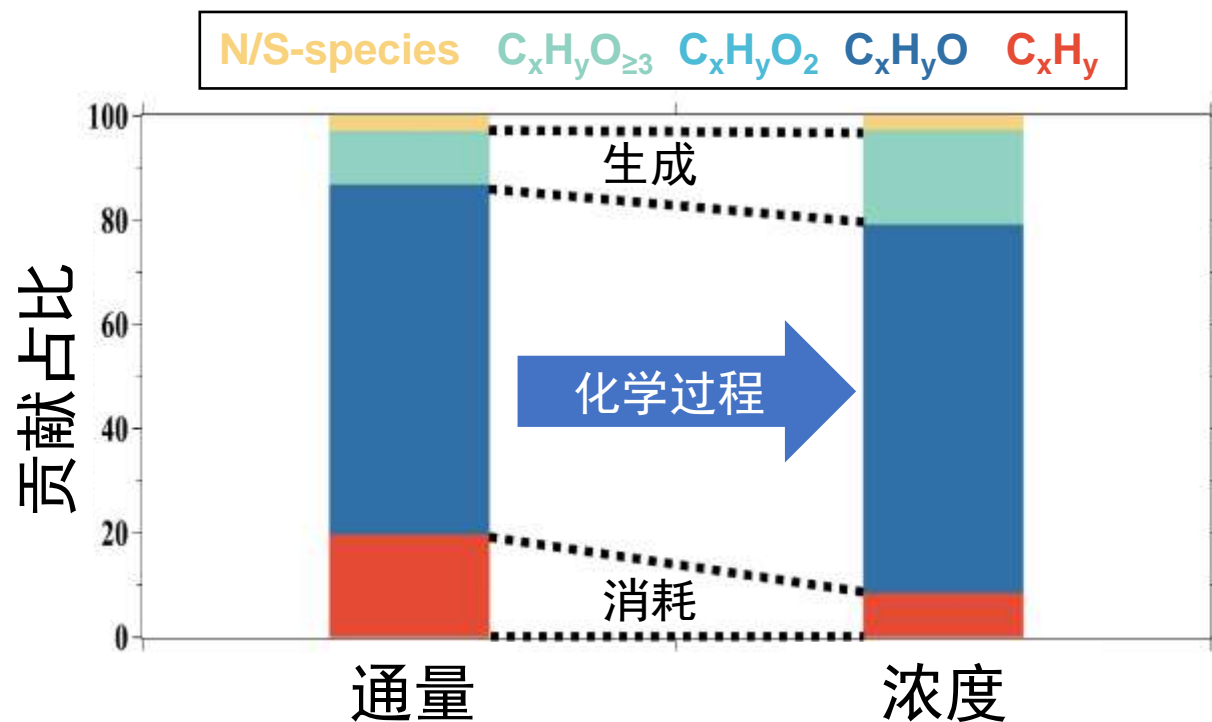
通量



浓度



通量组成到浓度组成逐渐变化



OVOCs主导了通量贡献，占比达到77%

烃类物种占比下降 ↔ 高含氧物种占比增加

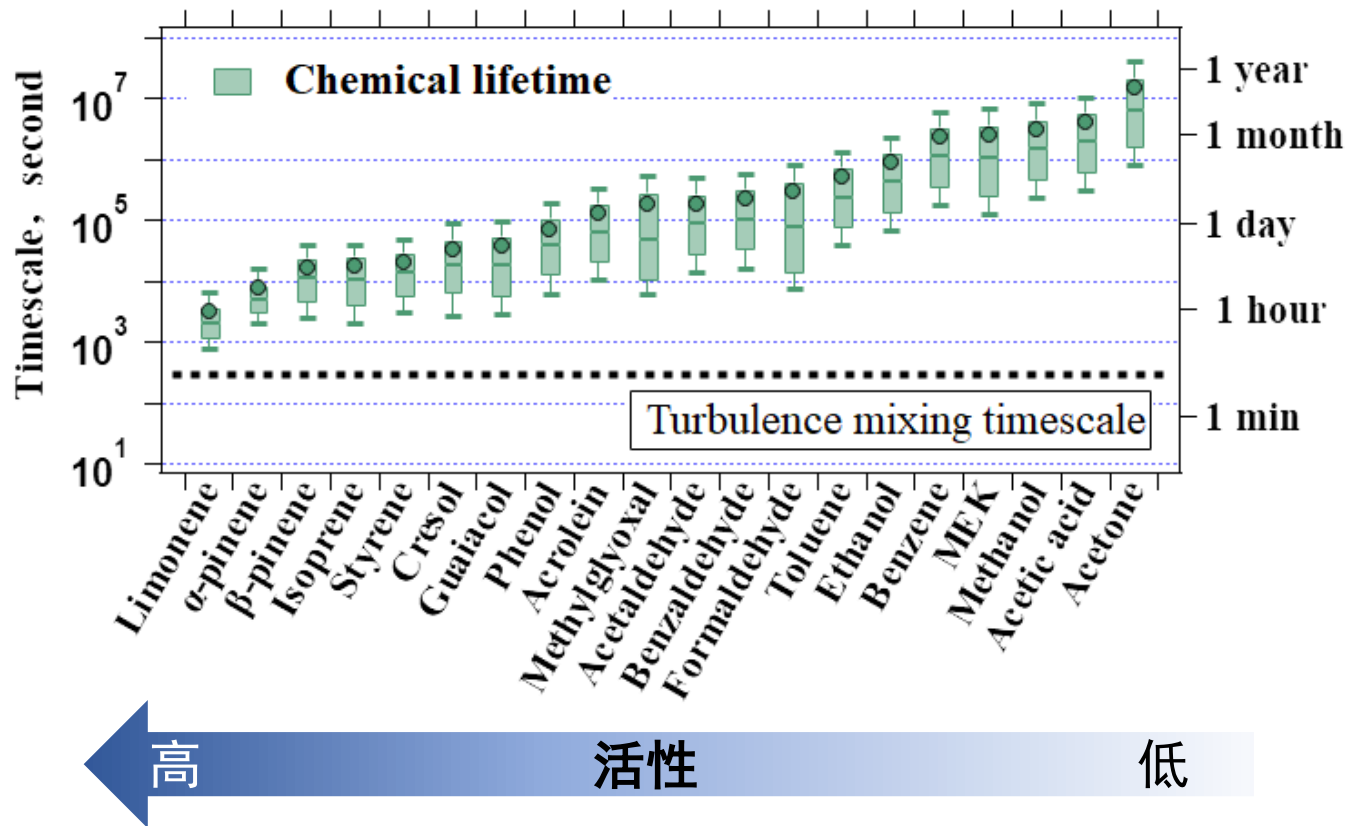
□ 组成的差异体现了VOCs的氧化进程，为更好的表征大气氧化提供了新的基线

通量测量提供一种剥离化学过程与排放/沉降过程的方法

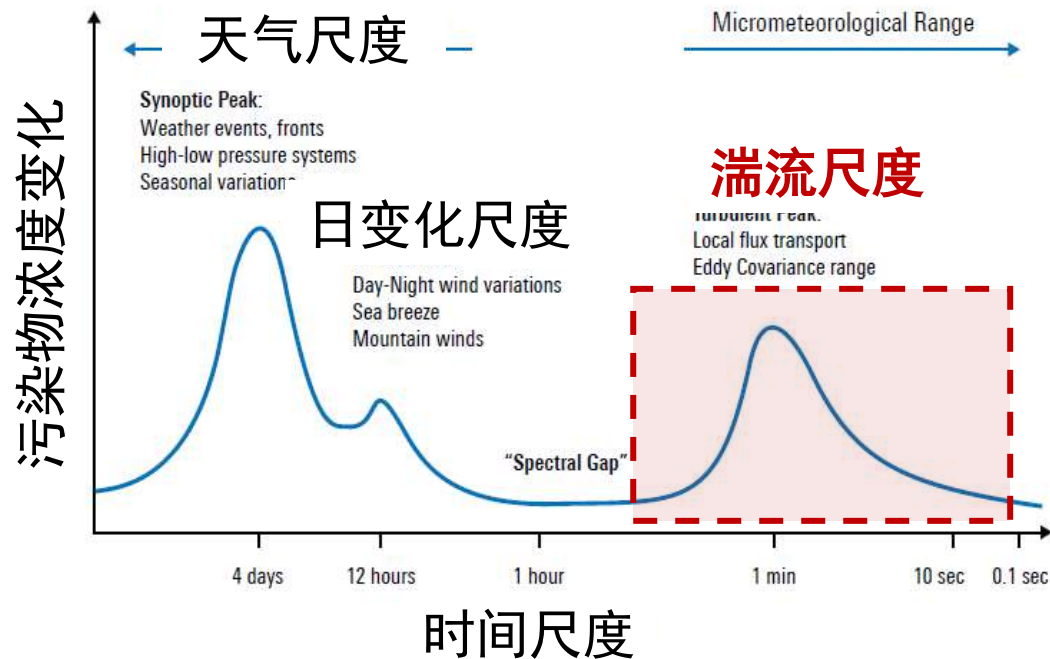
湍流混合时间尺度 $\tau_t = \frac{z}{u_*}$ 3 min左右

通量本质是一种“高通滤波”技术

$$c' = c - \bar{c}$$



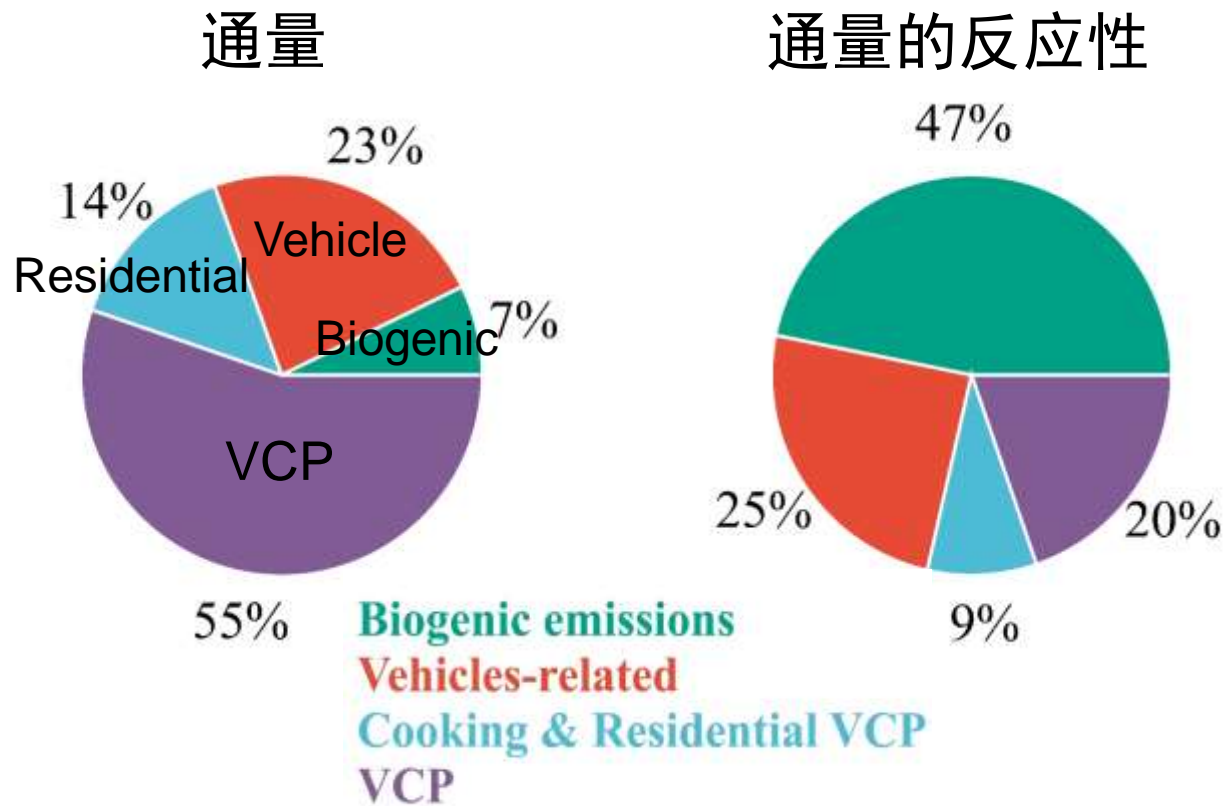
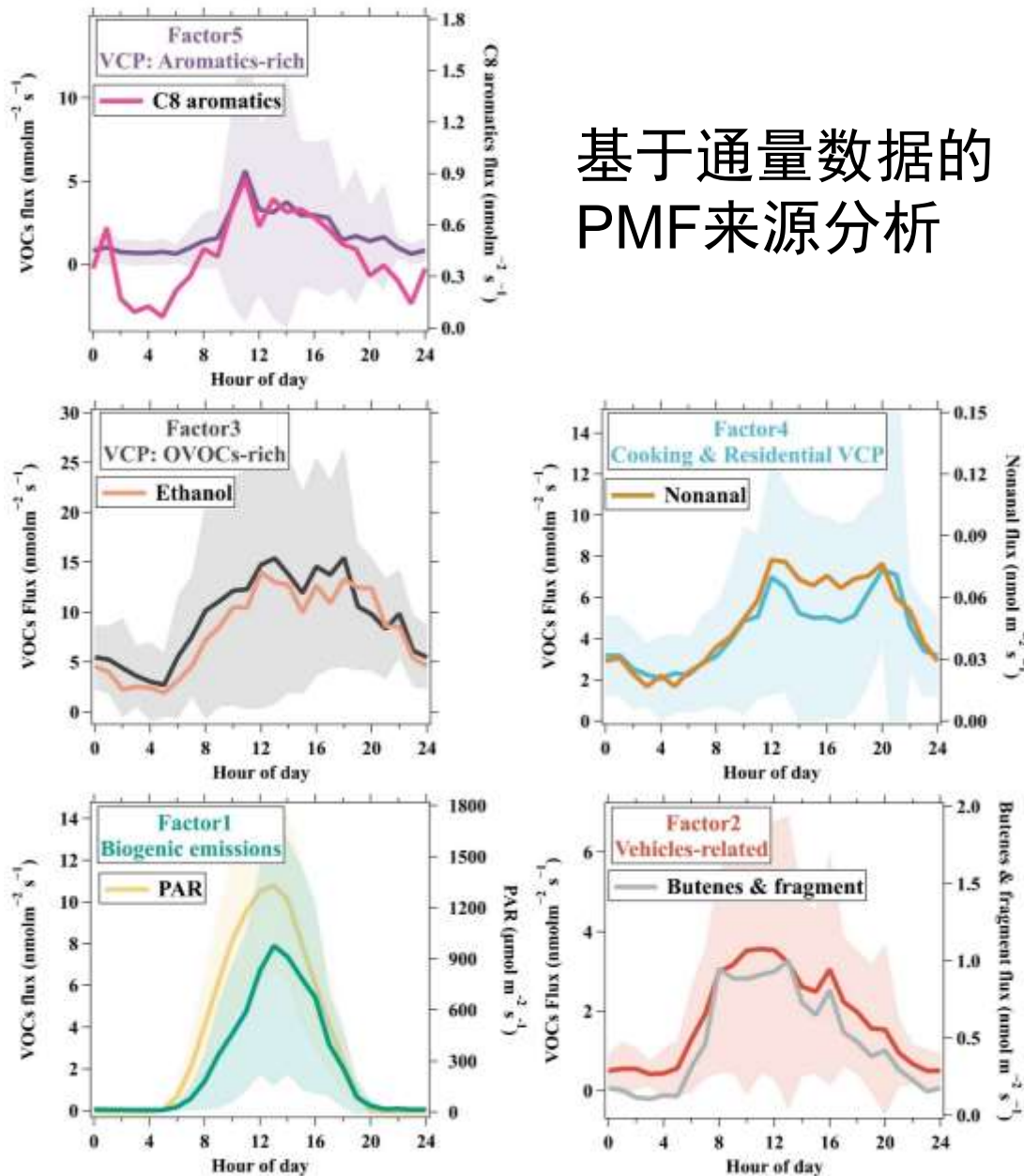
高活性VOCs物种：快速消耗



含氧VOCs：一次+二次

基于通量的来源解析指示VOCs排放结构悄然变化

基于通量数据的PMF来源分析



- 机动车相关VOCs通量排放占比小于1/4
- 溶剂挥发类排放已主导北京城区VOCs排放通量，但天然源主导通量的反应性

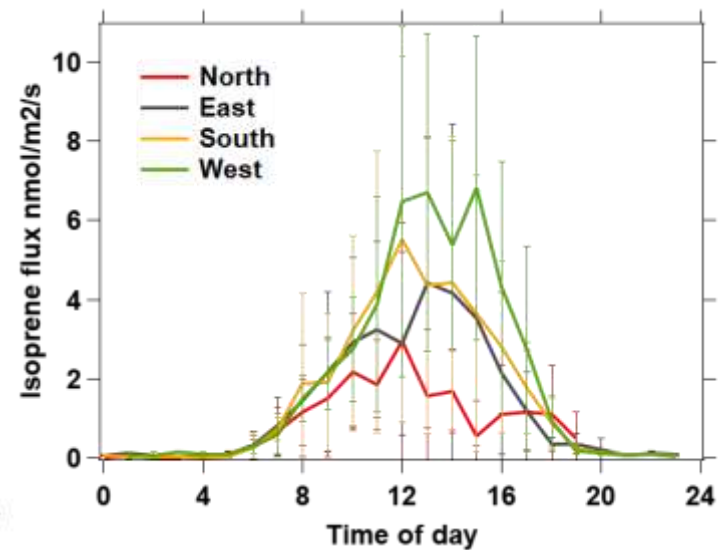
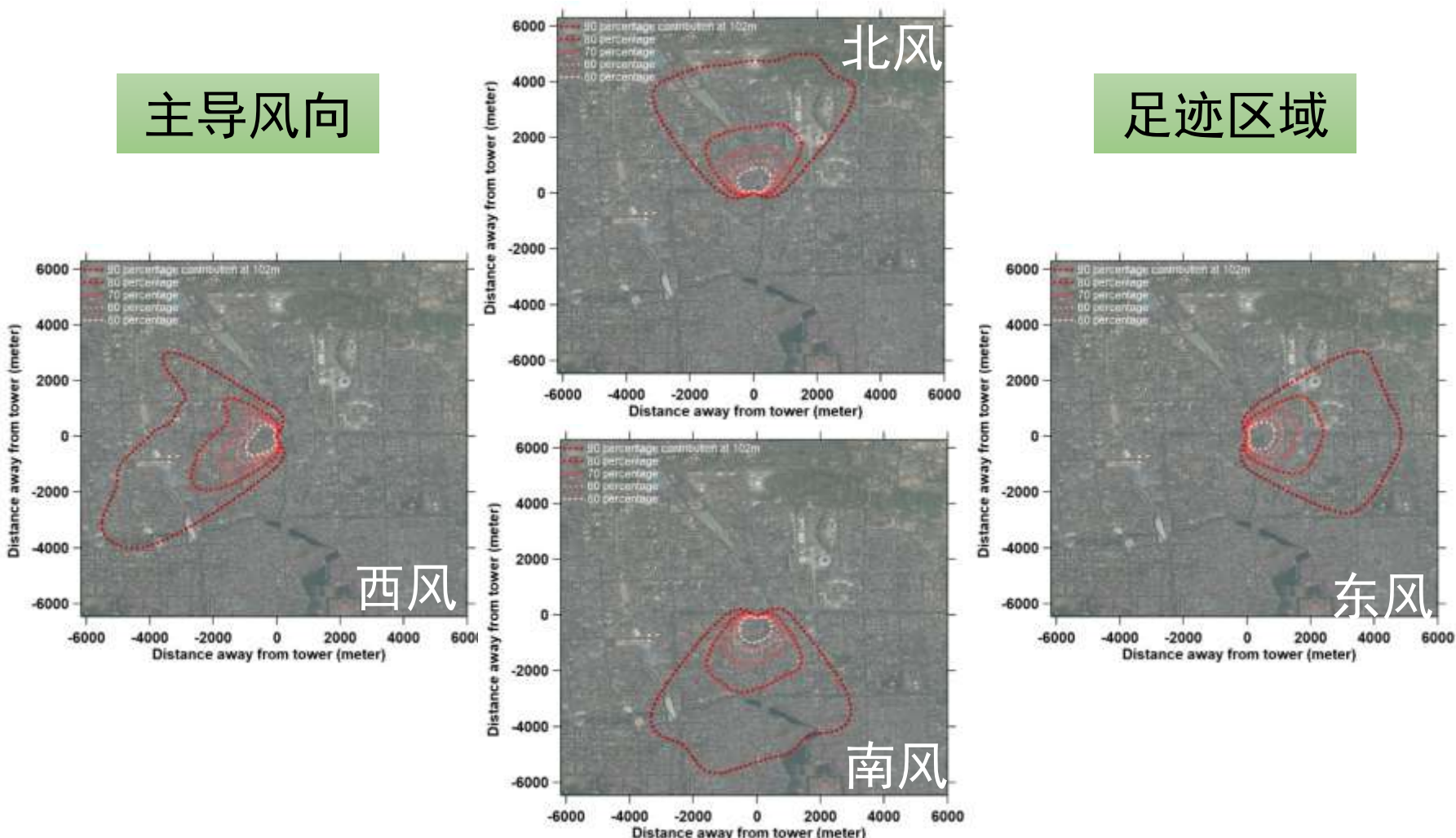
解析城市地区VOCs排放的空间异质性

□ 通过分析主导风向驱动的通量贡献溯源，探索不同贡献区域的VOCs排放特征

主导风向

足迹区域

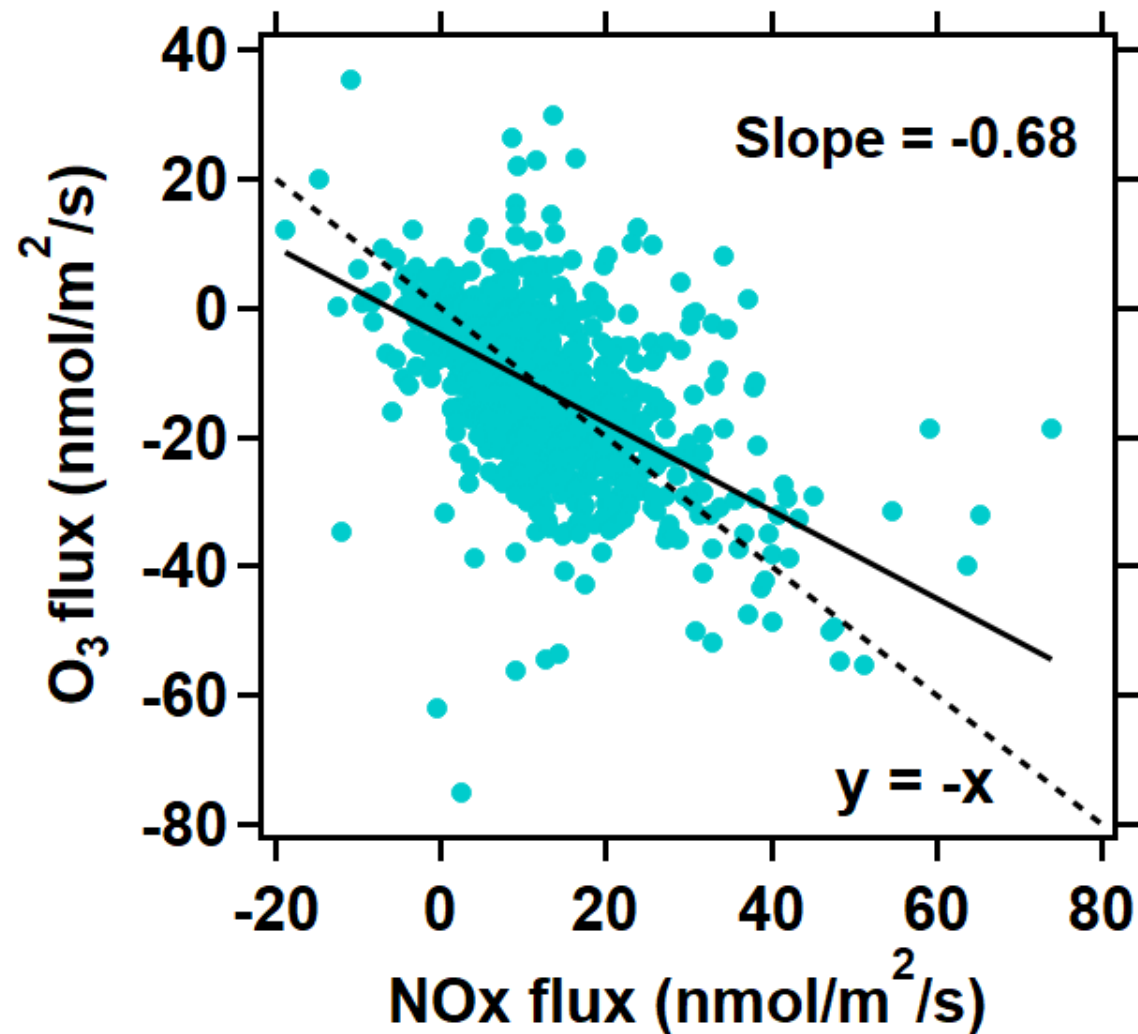
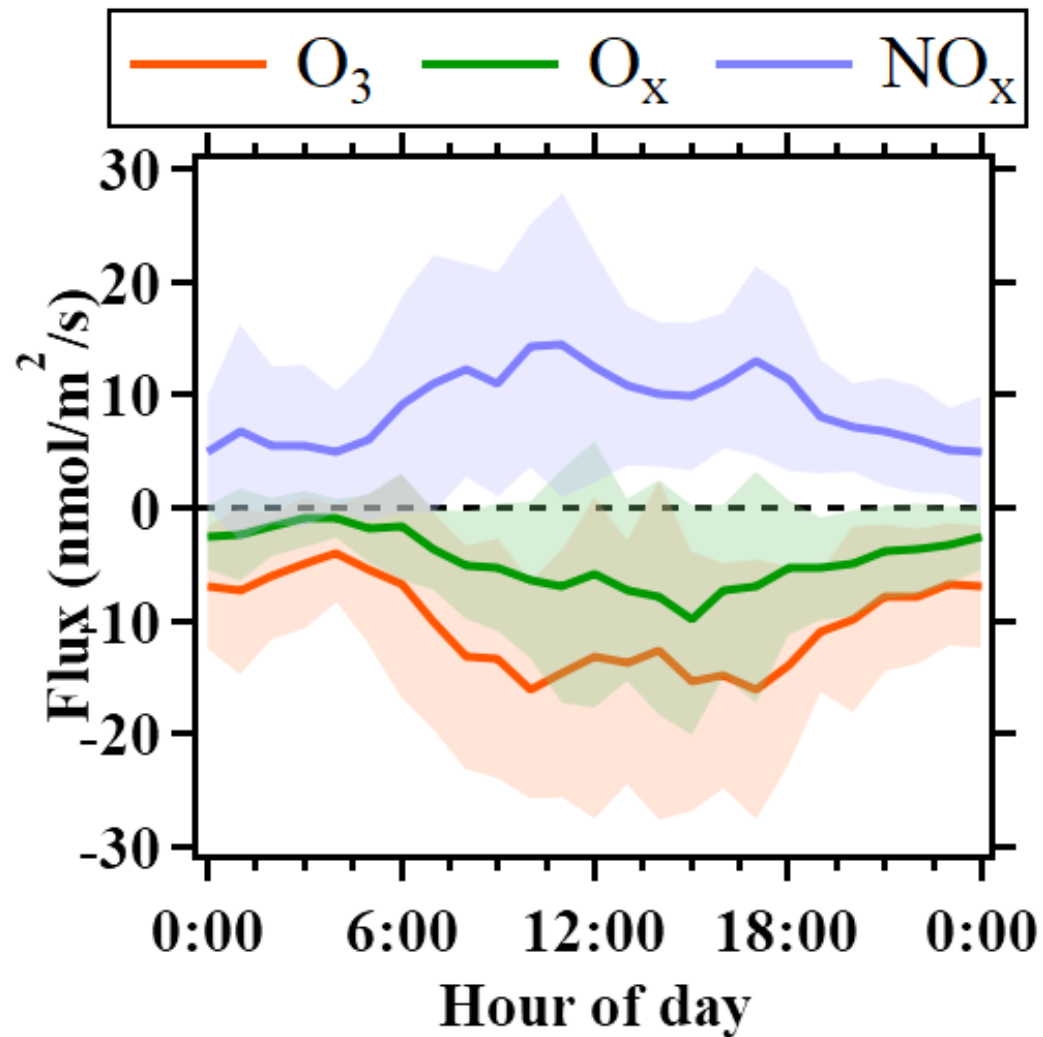
活性VOCs的排放通量具有明显的空间异质性



不同区域的通量变化代表了排放源的异质性

□ 为排放清单的时间/空间映射提供了新的技术手段和验证途径

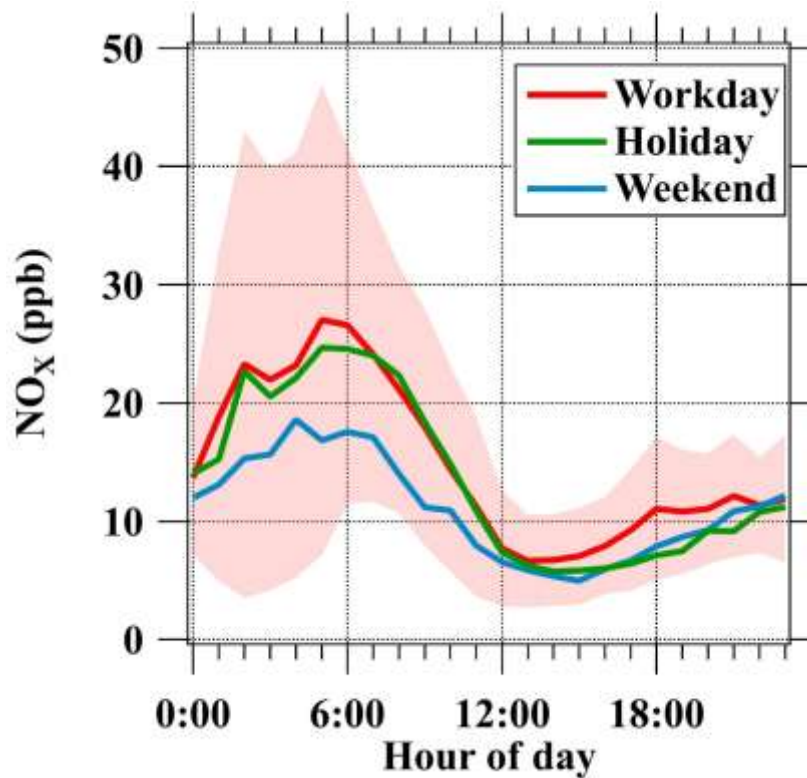
发现城市臭氧通量主要由NO_x一次排放贡献



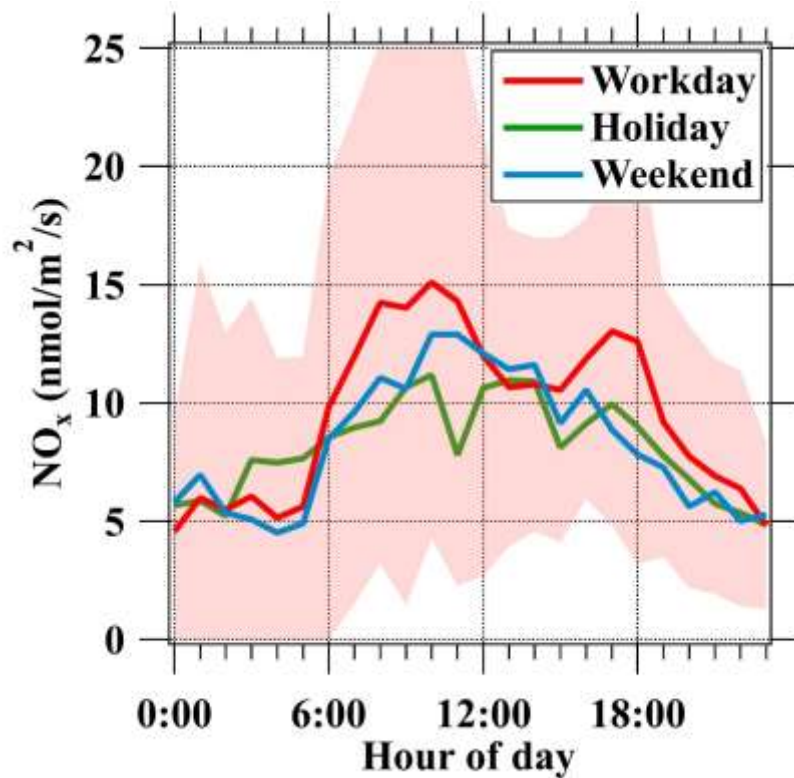
NO_x一次排放的滴定效应是臭氧负通量的主要来源

基于通量量化节假日效应对污染物排放影响

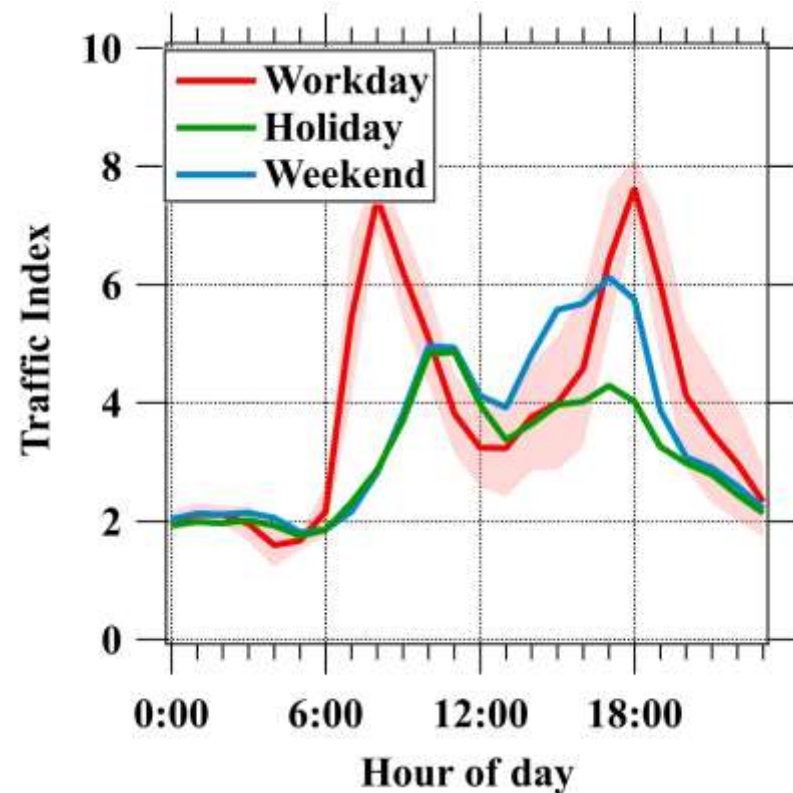
浓度



通量

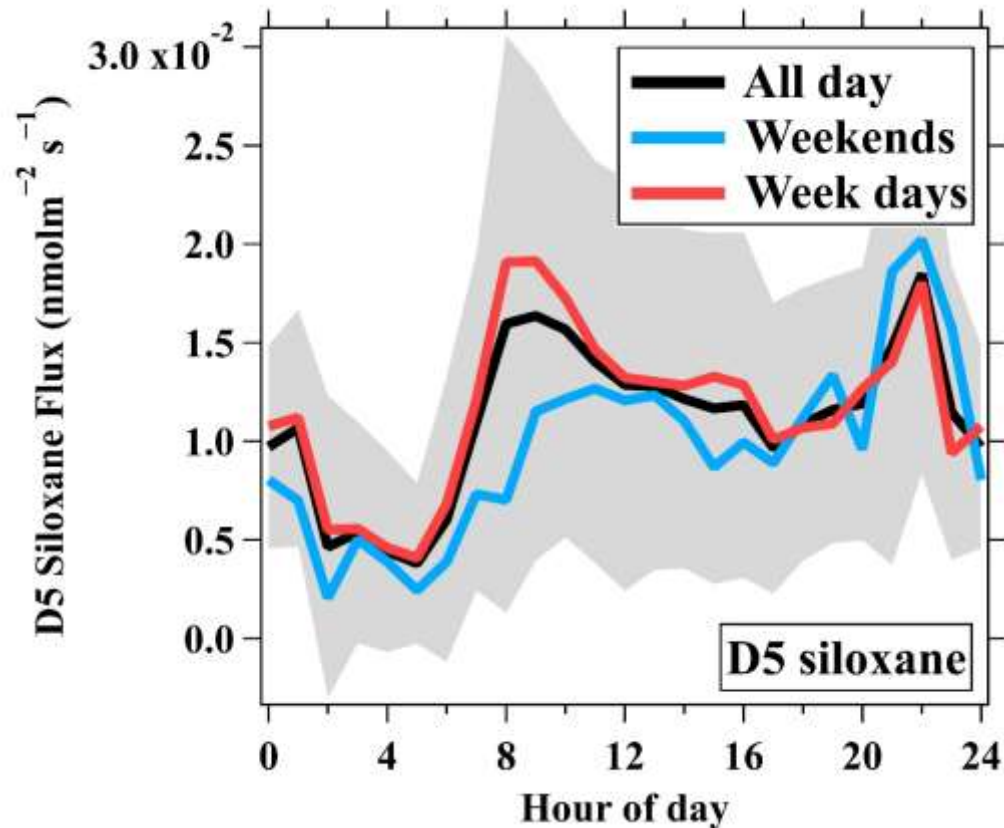
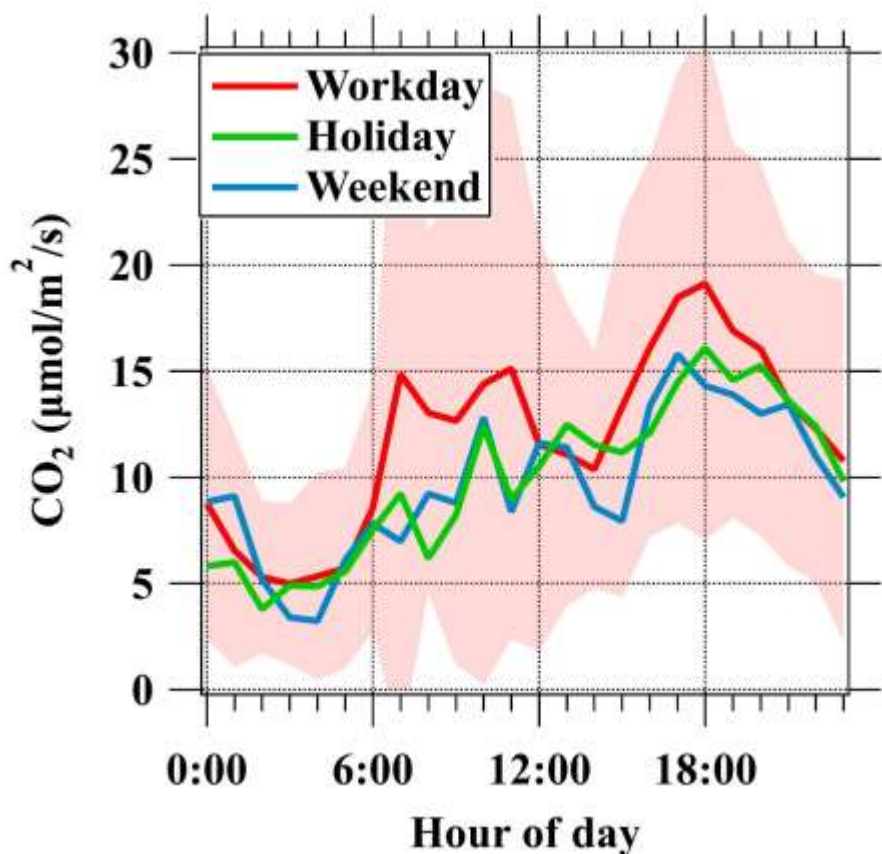


交通指数



□ 节假日NO_x通量明显低于工作日，相比浓度更加明显

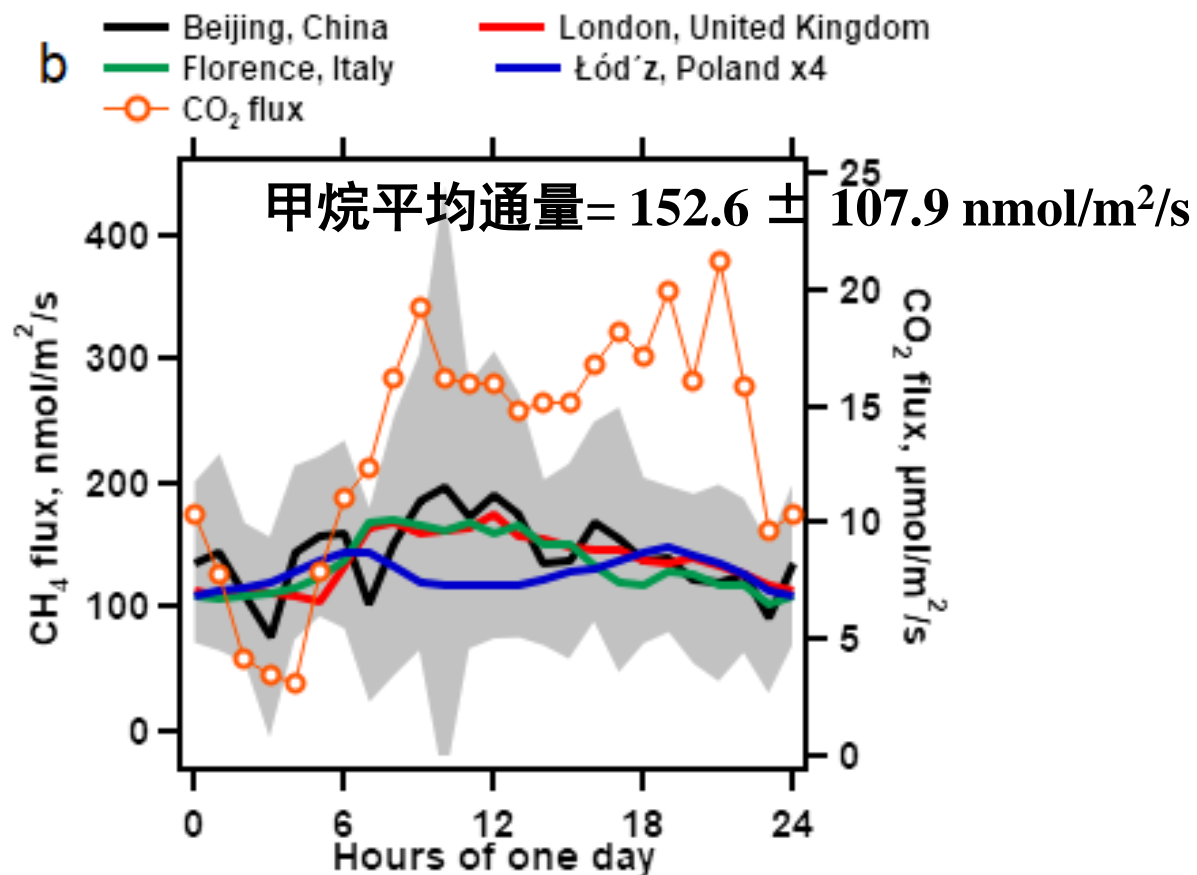
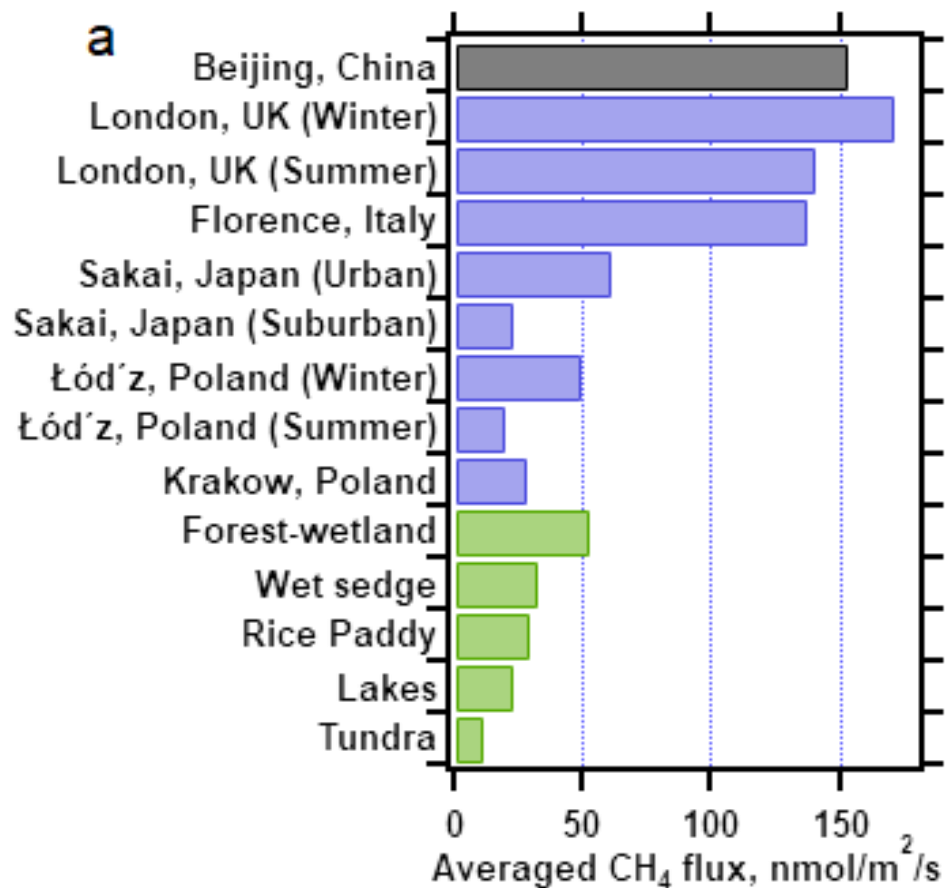
发现人为源通量排放与生活方式相关



- 非工作日CO₂和D5-硅氧烷通量较工作日有所下降
- D5-硅氧烷在早上和夜间均出现峰值，指示城市个人护理品排放

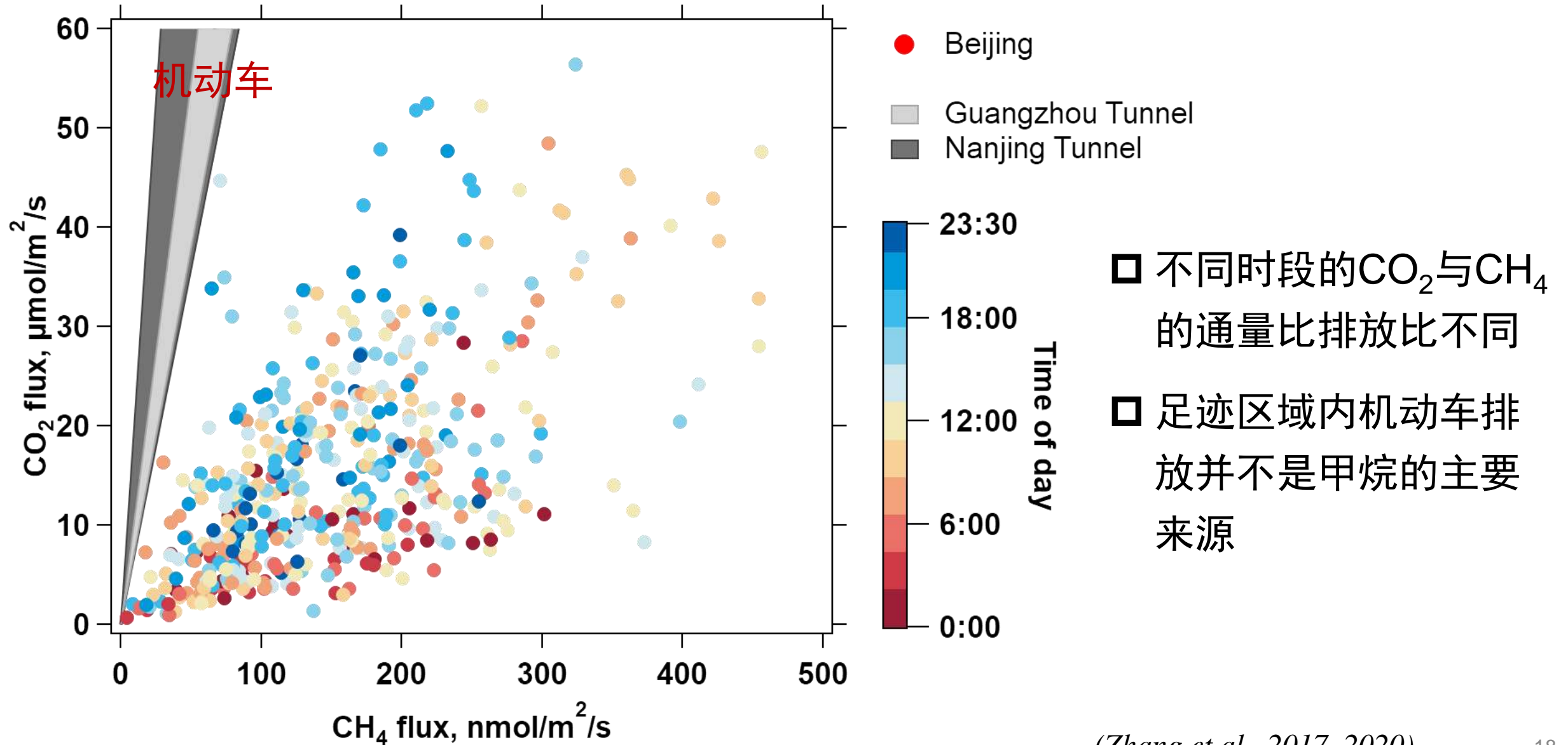
表征典型城市地区甲烷通量

□ 北京地区的甲烷通量相对较高，均为排放通量



□ 未呈现明显的日变化趋势表明区域内存在与人为活动相关性较弱的排放来源
(天然气泄露)

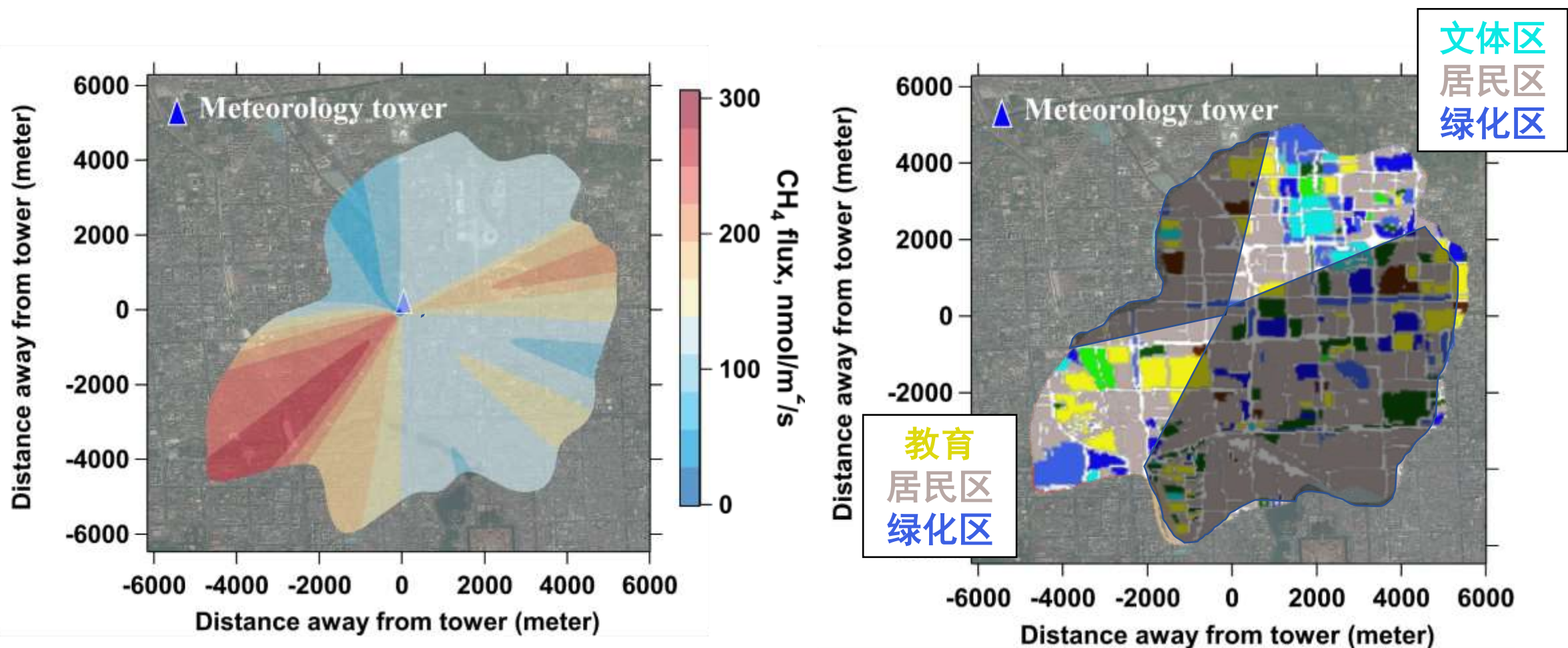
北京典型城市地区甲烷通量表征



(Zhang et al., 2017, 2020)

实现甲烷排放热点的空间映射

- 基于足迹分析和高分辨率城市土地利用数据库，靶向定位甲烷排放热点区域



<http://data.ess.tsinghua.edu.cn/>

- 文体区的甲烷通量相对较低，热点区域定位需进一步精细化分析

A photograph of the Guangzhou Tower (Canton Tower) in Guangzhou, China, set against a dramatic sunset sky with vibrant orange and red clouds. The tower is silhouetted against the bright sky, and its reflection is visible in the water in the foreground. Other city buildings are visible in the background, also silhouetted.

敬请各位专家
批评指正！

袁斌

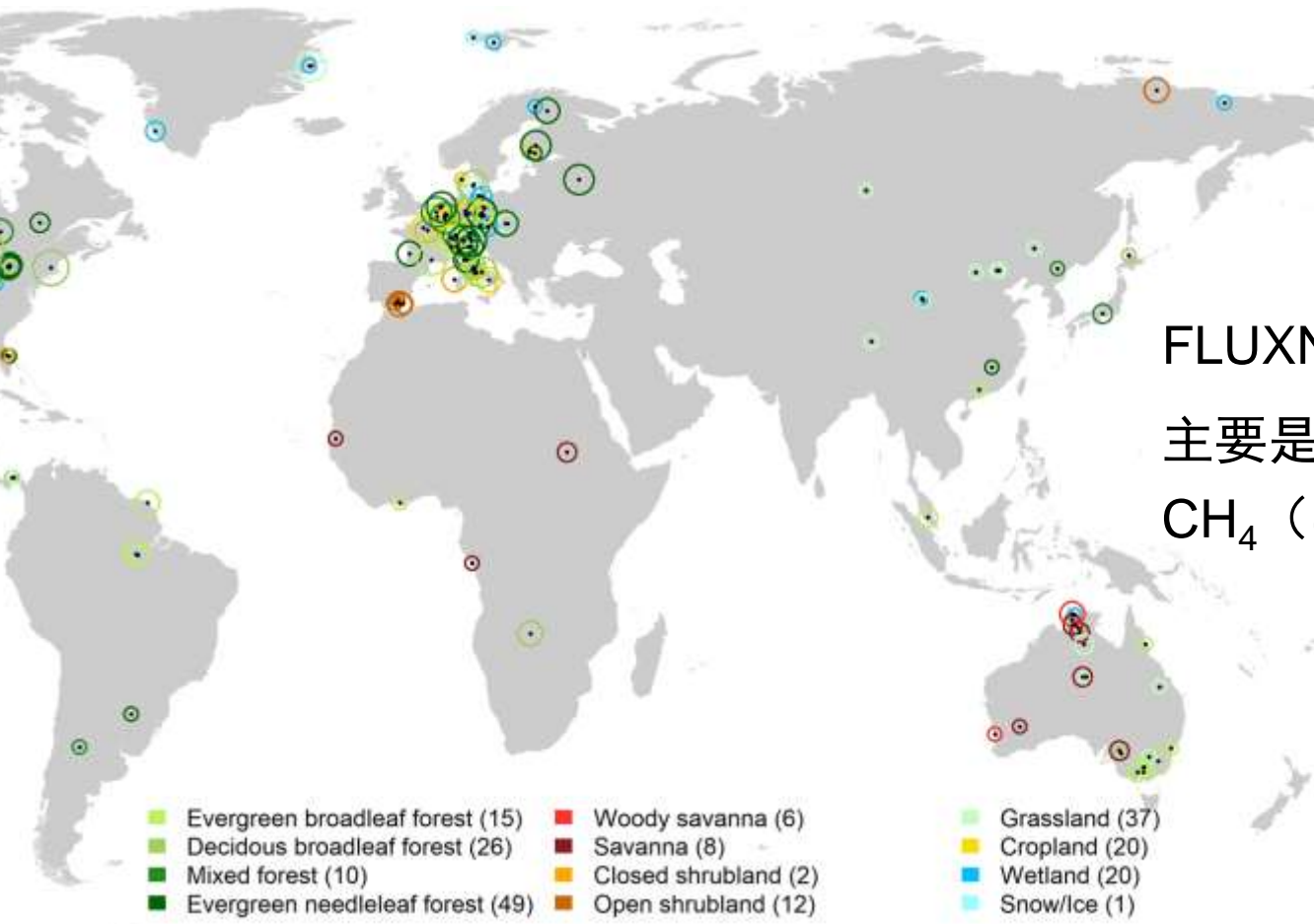
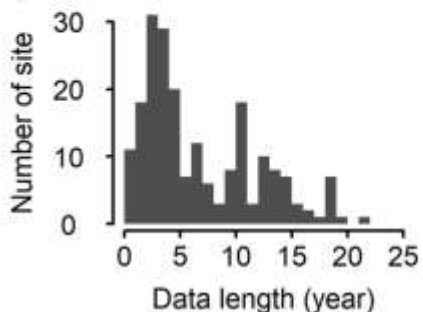
暨南大学 环境与气候研究院

byuan@jnu.edu.cn

研究背景：大气活性组分通量观测鲜有开展

- 通量指单位时间单位面积的物质交换量，为量化生态系统中物质排放、验证沉降模式和验证排放清单提供关键信息
- 大气活性组分通量观测难度大，开展非常有限，远远落后于浓度观测

Pastorello et al., 2019
Sci. Data

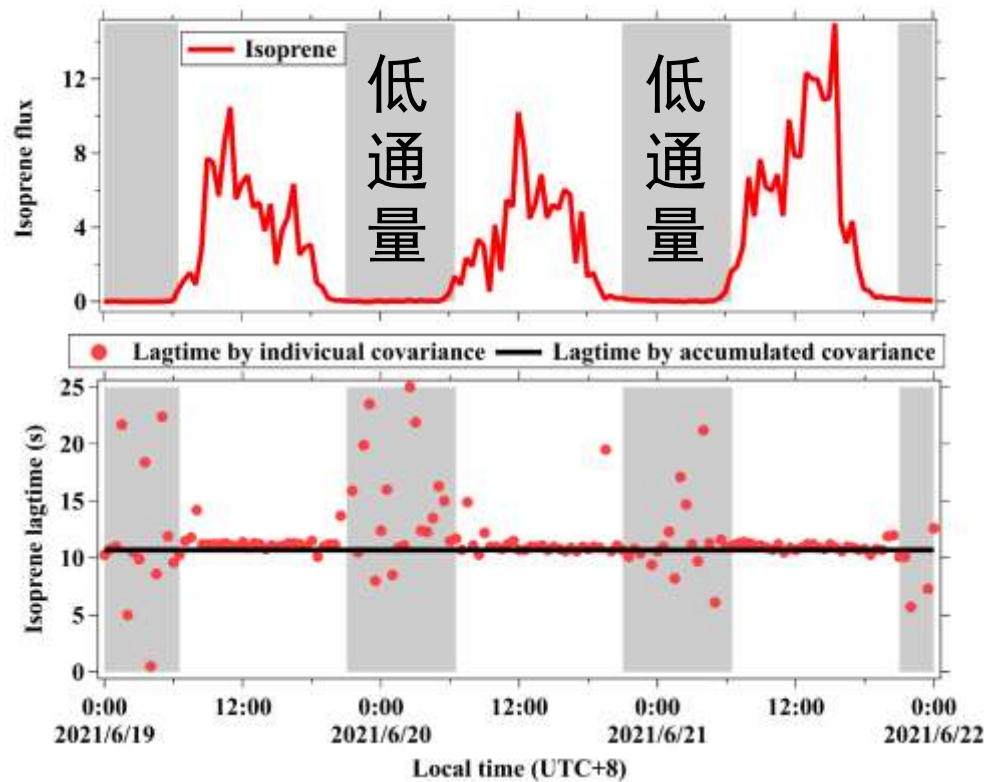


FLUXNET共~900站点
主要是CO₂和水汽，部分CH₄ (~1/3)

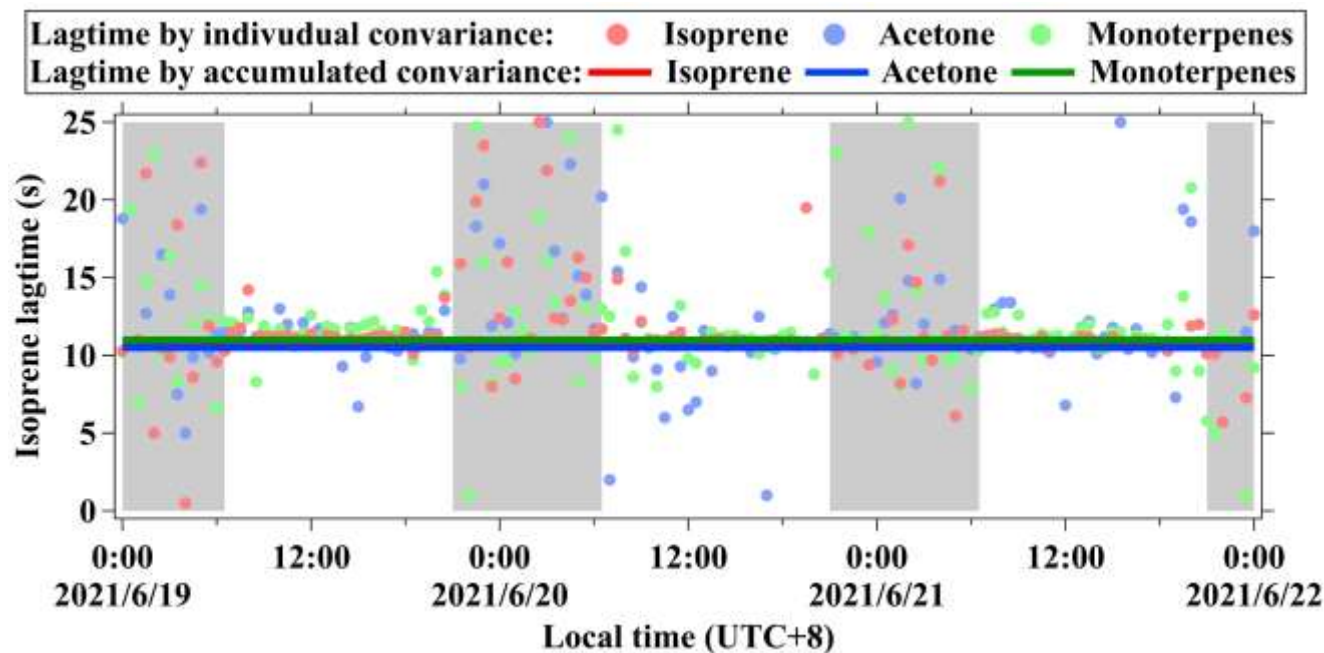
实现了不同VOCs物种通量计算的准确时滞判定

问题： VOCs通量时间变化幅度大，不同物种通量之间有数量级差异

累积时滞判定排除了通量大小对
单次时滞判定的影响

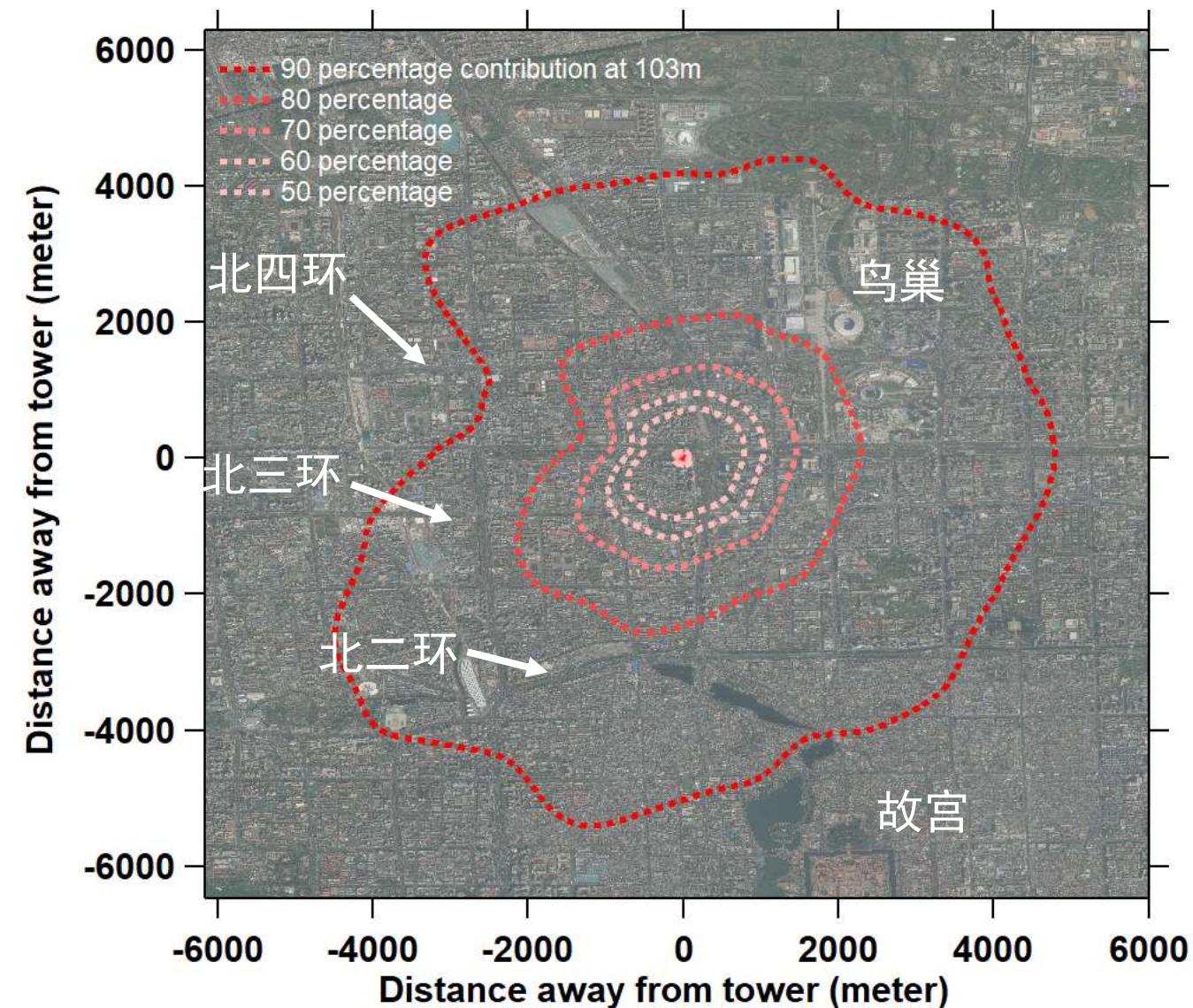


累积时滞判定使多个VOCs物种的
结果更为一致



□ 采用累积时滞判定大大减小了低通量的时滞判定误差，实现了高空微气象观测与地面高频浓度观测的异位联动

足迹分析发现通量测量结果可代表北京城区约70 km²平均排放



- 基于观测期间的微气象相关参数，采用二项参数法确定了所测通量代表的足迹区域范围(Kljun et al., 2015)

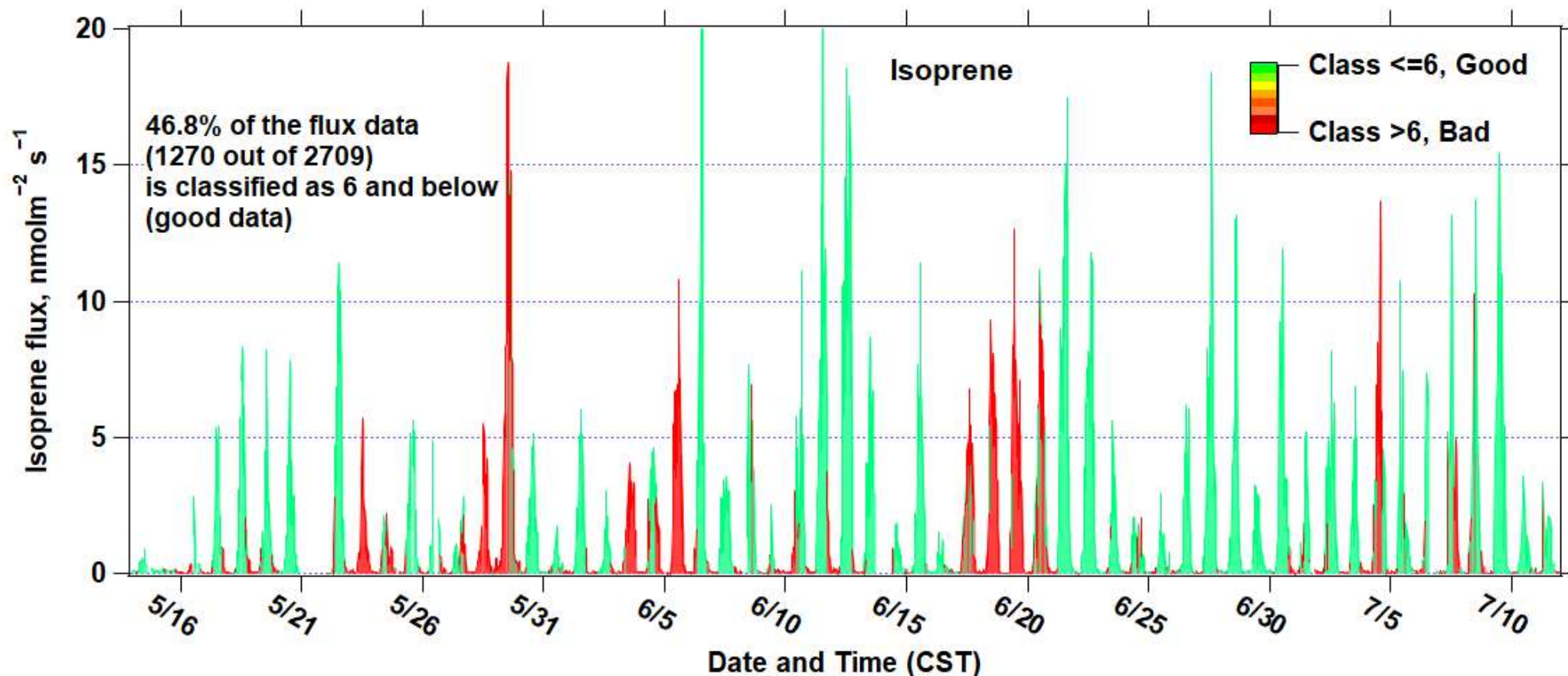
$$f(x, y) = \overline{f^y}(x) \frac{1}{\sqrt{2\pi}\sigma_y} \exp\left(-\frac{y^2}{2\sigma_y^2}\right)$$

- 观测期间的平均足迹区域为半径4.5 km左右的不规则圆形区域，覆盖了约70 km²的北京城区

等值线表明区域内源汇对所测通量的贡献，最外圈的贡献为90%，最内圈为50%

系统质控程序判定有效通量数据

- 将稳态检验、湍流发展验证和主导风向检验的分级结果整合为最终的质量标记
- 选取质量为Class 6及以下为可用于排放统计分析的有效通量数据（Good data）

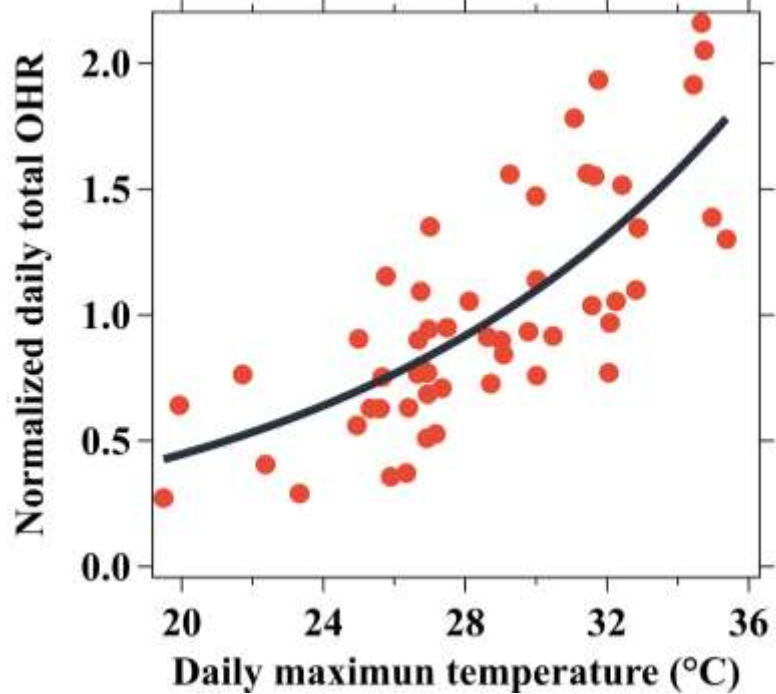


- 以异戊二烯为例，通量观测期间的有效数据（Class ≤ 6 ）为46.8%

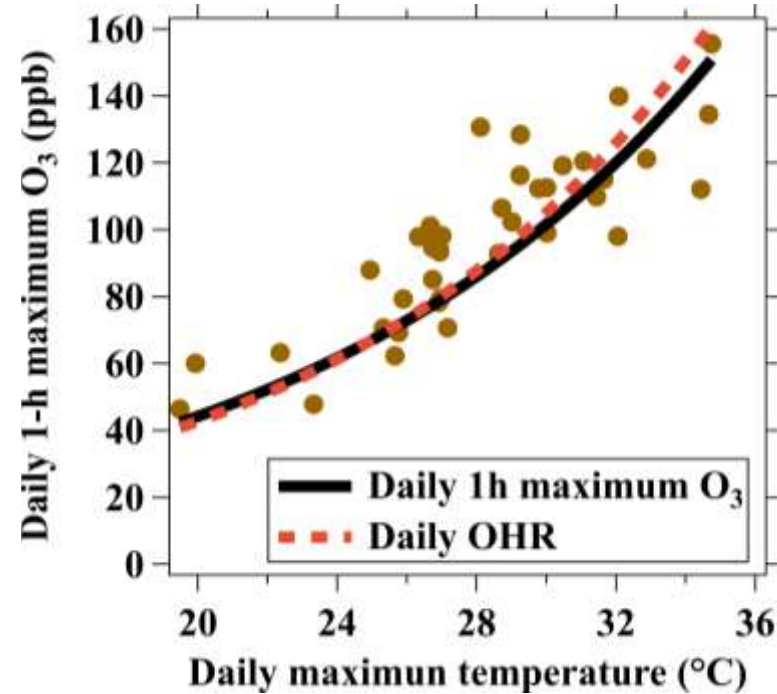
进展3：发现城市天然源排放贡献臭氧生成的直接观测证据

问题：天然源物种活性高，准确评估其环境效应是一个难点

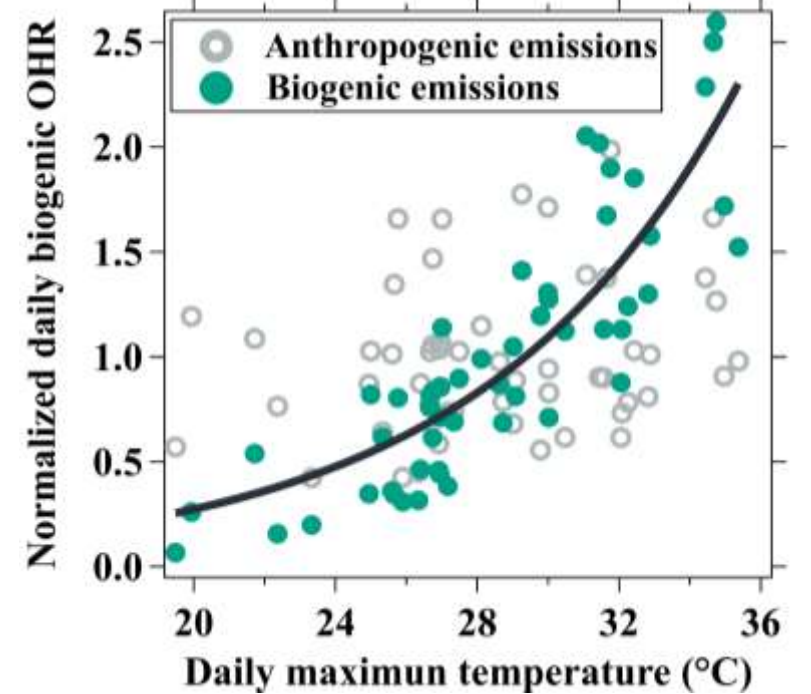
VOCs排放通量的反应性



臭氧浓度



天然源和人为源通量的反应性



- 天然源排放是驱动日间排放通量的活性随温度上升最关键的因素
- 臭氧温度响应关系与排放通量的活性基本一致，证实天然源排放对城市臭氧生成有关键作用