

DOI: 10.7524/j.issn.0254-6108.2020061501

曹夏, 周变红, 王锦, 等. 西安城区黑碳气溶胶的污染特征及来源解析[J]. 环境化学, 2020, 39(11): 3072-3082.

CAO Xia, ZHOU Bianhong, WANG Jin, et al. Characteristics and source analysis of black carbon aerosol in Xi'an Urban Area[J]. Environmental Chemistry, 2020, 39(11): 3072-3082.

## 西安城区黑碳气溶胶的污染特征及来源解析\*

曹夏<sup>1</sup> 周变红<sup>1,2\*\*</sup> 王锦<sup>1</sup> 刘文霞<sup>3</sup> 冯瞧<sup>1</sup> 张容端<sup>1</sup> 刘雅雯<sup>1</sup>

(1. 宝鸡文理学院地理与环境学院, 陕西省灾害监测与机理模拟重点实验室, 宝鸡, 721013;

2. 中国科学院地球环境研究所, 中国科学院气溶胶化学物理重点实验室, 西安, 710061; 3. 宝鸡市环境监测中心站, 宝鸡, 721006)

**摘要** 为了了解西安城区的黑碳污染特征及潜在来源, 利用 AE-31 黑碳仪于 2015 年 3 月—2016 年 2 月在西安观测的黑碳(BC)质量浓度, 得到西安市区 BC 质量浓度的变化特征, 并基于黑碳仪模型以及浓度权重轨迹分析(CWT)对 BC 排放来源和潜在源区进行了分析. 结果表明, 观测期间西安市区 BC 质量浓度的变化范围为 0.5—17.4  $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ , 平均值为  $(4.1\pm 2.9) \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ . BC 平均浓度季节变化呈现出冬季  $(5.2\pm 4.1) \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$  > 秋季  $(4.7\pm 3.7) \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$  > 春季  $(3.2\pm 2.4) \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$  > 夏季  $(2.8\pm 1.9) \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$  的递减趋势. BC 浓度与温度呈负相关, 这主要受冬季燃煤增加及不利气象条件的影响; 其与能见度、降水和风速均呈负相关. 各季节 BC 浓度日变化趋势基本一致, 主要受边界层、交通排放及人类活动的影响, 峰谷值分别出现在 06:00—09:00 和 14:00—17:00 时间段. 由黑碳仪模型可知,  $\text{BC}_{\text{f}}$  和  $\text{BC}_{\text{b}}$  在春、夏、秋、冬 4 个季节 BC 总浓度中占比分别 71.9% 和 28.1%、75.5% 和 24.5%、76.2% 和 23.8%、54.8% 和 45.2%; 由波长吸收指数(AAE)的分析可知, 春、夏、秋、冬 4 个季节的 AAE 平均值分别为  $1.22\pm 0.11$ 、 $1.11\pm 0.13$ 、 $1.16\pm 0.14$  和  $1.45\pm 0.12$ . 结合  $\text{BC}_{\text{f}}$ 、 $\text{BC}_{\text{b}}$  在 4 个季节中的贡献和 AAE 结果可知, 西安市大气中的 BC 污染主要源自于化石燃料的燃烧, 冬季生物质燃烧对 BC 的贡献增加. 由 CWT 的结果分析可知, 影响西安市 BC 高值区主要集中在西安南部和西南部.

**关键词** 黑碳气溶胶, 化石燃料, 生物质燃烧, 波长吸收指数, 浓度权重轨迹分析.

## Characteristics and source analysis of black carbon aerosol in Xi'an Urban Area

CAO Xia<sup>1</sup> ZHOU Bianhong<sup>1,2\*\*</sup> WANG Jin<sup>1</sup> LIU Wenxia<sup>3</sup> FENG Qiao<sup>1</sup>  
ZHANG Rongduan<sup>1</sup> LIU Yawen<sup>1</sup>

(1. Shaanxi Key Laboratory of Disaster Monitoring and Mechanism Simulation, College of Geography & Environment, Baoji University of Arts & Sciences, Baoji, 721013, China; 2 Key Laboratory of Aerosol Chemistry and Physics, State Key Laboratory of Loess and Quaternary Geology, Institute of Earth Environment, Chinese Academy of Sciences, Xi'an, 710061, China; 3. Environmental Monitoring Center Station of Baoji, Baoji, 721006, China)

**Abstract:** To investigate the characteristics and potential sources of black carbon (BC) pollution in

2020年6月15日收稿(Received: June 15, 2020).

\* 陕西省自然科学基金项目(2019JQ4041), 陕西省重点研发项目(2018ZDCXL-SF-02-04), 国家大气重污染成因与治理攻关项目(DQGG-05-36), 中国科学院气溶胶化学物理重点实验室项目(KLACP1903), 宝鸡市科技局项目(2018-JH16)和宝鸡文理学院重点项目(ZK2017038, ZK2018049)资助.

**Supported by** Basic Research Project of Shaanxi Provincial Natural Science(2019JQ4041), the Key Research and Development Program of Shaanxi Province(2018ZDCXL-SF-02-04), Key Projects on the Causes and Control of Heavy National Atmospheric Pollution(DQGG-05-36), Project of Key Laboratory of Aerosol Chemistry and Physics of Chinese Academy of Sciences(KLACP1903), Project of Baoji City Science and Technology Bureau(2018-JH-16) and Key Projects of Baoji College of Arts and Sciences(ZK2017038, ZK2018049).

\*\* 通讯联系人, Tel: 17719516968, E-mail: bhz620@163.com

**Corresponding author,** Tel: 17719516968, E-mail: bhz620@163.com

Xi'an, the mass concentrations of BC were measured from March 2015 to February 2016 in a urban site using AE-31 Aethalometer were used to obtain the characteristics of the variation of BC mass concentrations in Xi'an City, and the BC emission sources and potential source areas were analyzed based on the aethalometer model and concentration weighted trajectory analysis (CWT). The results showed that BC mass concentrations varied from 0.5 to 17.4  $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$  during the sampling period, with a mean value of  $(4.1\pm 2.9)\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ . The seasonal averaged BC concentrations showed a decreased trend of winter  $(5.2\pm 4.1)\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3} >$  autumn  $(4.7\pm 3.7)\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3} >$  spring  $(3.2\pm 2.4)\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3} >$  summer  $(2.8\pm 1.9)\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ . BC was negatively correlated with temperature, which is mainly affected by the increase in coal burning in winter and adverse weather conditions, and it was negatively correlated with visibility, precipitation and wind speed. In general, diurnal variations of BC are consistent among different seasons, suggesting BC concentrations were mainly influenced by the boundary layer, traffic emissions and human activities. The peak and valley values appeared in the time period of 06:00—09:00 and 14:00—17:00 in all seasons, respectively. According to the "aethalometer model" method,  $\text{BC}_{\text{ff}}$  account for 71.9%, 75.5%, 76.2% and 54.8%, while  $\text{BC}_{\text{bb}}$  account for 28.1%, 24.5%, 23.8% and 45.2% of the total BC concentrations in spring, summer, autumn and winter, respectively. The analysis of Absorption Angstrom Exponent (AAE) showed that the averaged AAEs of spring, summer, autumn and winter are  $1.22\pm 0.11$ ,  $1.11\pm 0.13$ ,  $1.16\pm 0.14$  and  $1.45\pm 0.12$ , respectively. Combined the contributions of  $\text{BC}_{\text{ff}}$ ,  $\text{BC}_{\text{bb}}$  in four seasons and the results of AAEs, we conclude that the BC in Xi'an mainly come from fossil fuels combustion. Moreover, the contribution of biomass burning to BC increased in winter. The concentration-weighted trajectory (CWT) analysis result showed that the south and southwest directions of Xi'an are the potential source regions for high concentration of BC.

**Keywords:** black carbon aerosol, fossil fuel, biomass burning, absorption angstrom exponent, concentration weight trajectory analysis.

黑碳气溶胶 (black carbon, BC) 是化石燃料、生物质和生物燃料等不完全燃烧的产物<sup>[1-2]</sup>. 近些年来, 发展中国家快速工业化和城市化导致了空气污染的越来越严重, 这与发达国家之前所经历的类似, 颗粒物污染不仅影响着空气质量, 还影响着人类的身体健康<sup>[3-6]</sup>. BC 气溶胶在气候变化、能见度损害和人类健康方面发挥重要作用<sup>[7-9]</sup>. BC 气溶胶对全球变暖起着重要的作用<sup>[10-11]</sup>. 随着环境的不断恶化, 在北极<sup>[12]</sup> 和南极<sup>[13]</sup> 等地区也观测到了 BC, 且国内对于长三角<sup>[14-16]</sup>、京津冀<sup>[17-18]</sup> 以及珠三角地区<sup>[19-20]</sup> 的研究增多. 谢锋等<sup>[17]</sup> 利用潜在源贡献函数 (PSCF) 和浓度权重轨迹分析法 (CWT) 对南京市 2019 年 1 月 2 日—2019 年 5 月 31 日 BC 来源进行分析, 发现 BC 来源以本地源为主; 王璐等<sup>[21]</sup> 利用成都市 2017 年 12 月至 2018 年 11 月测量的 BC 浓度, 对其黑碳浓度的变化进行分析, 发现 BC 浓度日变化呈早晚双峰型; 肖思晗等<sup>[22]</sup> 和程丁等<sup>[23]</sup> 通过对南京北郊和深圳城郊区 BC 的吸收波长指数的分析, 发现大气中的 BC 污染主要是受化石燃料燃烧的影响; 赵锦慧等<sup>[24]</sup> 利用武汉市 2015 年 7 月—2016 年 6 月 BC 质量浓度及气象数据, 发现 BC 质量浓度与温度和能见度呈负相关. 张昕等<sup>[25]</sup> 利用 2016 年 8 月—2017 年 7 月期间乌鲁木齐河源区 BC 气溶胶的监测数据, 分析其与气象因子间的相关性, 发现当湿度  $> 55\%$  时, BC 浓度明显偏低. 杨晓旻等<sup>[26]</sup> 利用南京市 BC 气溶胶数据分析发现, BC 浓度表现出较强的季节性, 春季和冬季较高, 夏季达到最低. 齐孟姚等<sup>[27]</sup> 对 2013 年 3 月—2017 年 2 月邯郸市黑碳气溶胶浓度与风速进行分析, 发现黑碳气溶胶浓度随风速的变大而降低.

西安市地处关中平原偏南地区, 北临黄土高原和渭河, 南邻秦岭地带, 随着城市工业化的发展, 对当地的环境造成了一定的污染<sup>[28]</sup>. 朱崇抒等<sup>[29]</sup> 和杜川利<sup>[30]</sup> 等分别对 2006 年 3 月—2007 年 2 月西安和 2011 年夏季西安远郊泾河的 BC 浓度进行了观测, 分析得出 BC 浓度变化与风速、风向、混合层高度以及人类活动有关. 刘立忠等<sup>[31]</sup> 分析了 2013 年 9 月—2015 年 5 月 BC 浓度与气象因素及  $\text{PM}_{2.5}$  的关系, 并对 BC 浓度与气温、降水和风速进行相关性分析. Cao 等<sup>[32]</sup> 对西安市 2003 年 9 月至 2005 年 8 月的 BC 气溶胶进行分析, 研究发现当风速小于  $2.3\text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  至  $3.0\text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  时, BC 和风速呈反比, BC 污染来源主要是本地

源.Zhang 等<sup>[33]</sup>利用 2016 年西安市观测的 BC 数据,对其进行潜在源贡献函数(PSCF)分析,研究表明 BC 主要来源于本地排放.

本文利用 2015 年 3 月—2016 年 2 月西安市的 BC 质量浓度资料,对 BC 浓度进行统计分析,获得了西安市 BC 浓度的日、月、季节变化特征,利用黑碳仪模型和浓度权重轨迹分析法对 BC 源地进行解析.

## 1 实验部分(Experimental section)

### 1.1 观测点位和时段

本次观测时段为 2015 年 3 月—2016 年 2 月,于西安市大气环境质量综合实验室楼顶进行观测,其采样头距地面约 15 m.采样点周边属于城市典型的居住区、商业区、餐饮区和交通区的混合区.观测点位周边无明显的工业源,可以较好地代表西安市市民日常生活环境的空气质量.

本文利用 2015 年 3 月—2016 年 2 月西安市 BC 气溶胶数据、温度、风速等气象资料,分析了 BC 质量浓度的变化特征,且利用黑碳仪模型和浓度权重轨迹分析法对 BC 排放来源及潜在源区进行分析.

### 1.2 研究方法

#### 1.2.1 仪器与数据

本研究采用 AE-31 型黑碳仪(Magee,美国),该仪器共有 7 个测量通道,波长分别为 370、470、520、590、660、880、950 nm,采用 880 nm 波段的采样结果作为 BC 质量浓度.黑碳仪的切割粒径为 2.5  $\mu\text{m}$ ,其时间分辨率为 5 min,记录每个测量周期间透射光强信号( $I$ )的变化,进行衰减(ATN)计算,公式如下:

$$\text{ATN} = 100 \times \ln \frac{I_0}{I} \quad (1)$$

其中, $I$ 和 $I_0$ 分别为滤带采样点处和参照点处的光强度.当滤带上采样点收集的气溶胶达到一定的量时,透过光的光学衰减量达到设置的阈值时,黑碳仪会自动地将滤带推进到新的位置进入下一个采样周期.气溶胶在滤膜上的光吸系数 $\delta_{\text{ATN}}$ 计算公式如下:

$$\delta_{\text{ATN}} = \Delta \text{ATN} \times \frac{A}{V} \quad (2)$$

其中, $A$ 是气溶胶沉积物的斑点面积, $\Delta \text{ATN}$ 是指某一个测量周期与上一个测量周期期间的采样点光学衰减量的增量, $V$ 是每个测量周期通过滤膜的空气体积,气溶胶的吸收系数 $\delta_{\text{abs}}$ 和气溶胶在滤膜上的衰减系数 $\delta_{\text{ATN}}$ 有一定的关系,由 Weingartner 提出的校正算法求出<sup>[34]</sup>:

$$\delta_{\text{abs}} = \frac{\delta_{\text{ATN}}}{C_{\text{ref}} \times R(\text{ATN})} \quad (3)$$

其中, $C_{\text{ref}}$ 是多次散射校正常数; $R(\text{ATN})$ 是用于校正载荷效应 ATN 的函数,可由下列公式计算得出<sup>[35]</sup>:

$$R(\text{ATN}) = \left( \frac{1}{f} - 1 \right) \frac{\ln(\text{ATN}\%) - \ln(10\%)}{\ln(50\%) - \ln(10\%)} + 1 \quad (4)$$

式中, $f$ 是可以调的,为了实现数据不连续性的最小化.本次研究中黑碳仪数据采用的 $f$ 是 1.20、 $C_{\text{ref}}$ 是 3.48<sup>[36]</sup>,使用 Aethlometer date processor 程序实现数据的订正<sup>[37]</sup>.文中的箱线图使用 Histbox 程序<sup>[37]</sup>绘制.

研究中的温度、能见度、湿度、降水、风速等气象数据均来源于西安市气象局网站 <http://www.xaweather.com/>,数据均经过订正处理.

#### 1.2.2 黑碳模型

黑碳仪模型的原理是基于 Sandradewi 等<sup>[38]</sup>的模型,此模型表明光吸收系数是生物质燃烧和矿物质燃烧的和,有利于了解这两种排放源对 BC 的贡献以及其变化特征.该模型中生物质燃烧产生的 BC 吸收系数对短波(370 nm 或 470 nm)的吸收作用远强于对长波(880 nm 或 940 nm)的吸收作用<sup>[39]</sup>,假设矿物和生物燃料分别遵从 $\lambda^{-1}$ 和 $\lambda^{-2}$ 的光谱依赖性.故某一波段下 BC 的吸收总和公式如下:

$$\delta_{\text{abs}}(\lambda) = \delta_{\text{abs}}(\lambda)_{\text{ff}} + \delta_{\text{abs}}(\lambda)_{\text{bb}} \quad (6)$$

式中, $\delta_{\text{abs}}(\lambda)_{\text{ff}}$ 表示化石燃料排放产生 BC 的吸收系数, $\delta_{\text{abs}}(\lambda)_{\text{bb}}$ 表示生物质燃烧产生 BC 的吸收系数. $\delta_{\text{abs}}$ 、波长及化石燃料和生物质燃烧对应的波长指数满足下面公式:

$$\frac{\delta_{\text{abs}}(370)_{\text{ff}}}{\delta_{\text{abs}}(880)_{\text{ff}}} = \left(\frac{370}{880}\right)^{-\alpha_{\text{ff}}} \quad (7)$$

$$\frac{\delta_{\text{abs}}(370)_{\text{bb}}}{\delta_{\text{abs}}(880)_{\text{bb}}} = \left(\frac{370}{880}\right)^{-\alpha_{\text{bb}}} \quad (8)$$

其中,假设  $\alpha_{\text{ff}}$  为 1,  $\alpha_{\text{bb}}$  为 2;结合(6)—(8)式能够分别推算出化石燃料和生物质燃烧排放所产生的 BC 总质量浓度。

### 1.2.3 吸收波长指数

波长吸收指数(absorption ångström exponent, AAE)可以用来分析气溶胶的吸光特性,它是由两个不同波长( $\lambda_1$  和  $\lambda_2$ )的吸收系数比值和波长比值求出的负指数。

$$\frac{\delta_{\text{abs},\lambda_1}}{\delta_{\text{abs},\lambda_2}} = \left(\frac{\lambda_1}{\lambda_2}\right)^{-\text{AAE}} \quad (9)$$

通过公式(9)可知 AAE 可写成:

$$\text{AAE}(\lambda_1, \lambda_2) = -\frac{\ln(\delta_{\text{abs},\lambda_1}) - \ln(\delta_{\text{abs},\lambda_2})}{\ln(\lambda_1) - \ln(\lambda_2)} \quad (10)$$

### 1.2.4 浓度权重轨迹分析法

浓度权重轨迹分析法(CWT)是一种计算轨迹的权重浓度,反映不同源区对观测点污染程度的方法。在 CWT 分析中,每个网格都有一个权重浓度,通过计算轨迹经过该网格时对应观测点 BC 质量浓度的平均值来实现<sup>[40-41]</sup>:

$$C_{ij} = \frac{\sum_{l=1}^M C_l \cdot m_{ijl}}{\sum_{l=1}^M m_{ijl}} \cdot W(n_{ij}) \quad (11)$$

式中,  $C_{ij}$  是网格( $i, j$ )上的平均权重浓度;  $l$  是经过网格( $i, j$ )的轨迹之一;  $C_l$  是轨迹  $l$  经过网格( $i, j$ )时对应的 BC 浓度;  $m_{ijl}$  是轨迹  $l$  在网格( $i, j$ )停留的时间,  $n_{ij}$  是所有轨迹点数,  $W(n_{ij})$  是权重函数,当  $n_{ij}$  小于 3 倍平均轨迹端点数时,使用权重降低不确定性,故跟研究参考 Wang 等<sup>[42]</sup>的研究结果,具体公式如下:

$$W(n_{ij}) = \begin{cases} 1.00, & 3 n_{\text{ave}} < n_{ij} \\ 0.70, & 5 n_{\text{ave}} < n_{ij} \leq 3 n_{\text{ave}} \\ 0.42, & n_{\text{ave}} < n_{ij} \leq 1.5 n_{\text{ave}} \\ 0.17, & n_{ij} \leq n_{\text{ave}} \end{cases} \quad (12)$$

## 2 结果与讨论(Results and discussion)

### 2.1 基本气象要素和 BC 浓度时间序列变化特征

图 1 显示了研究期间西安市 BC 浓度、温度、相对湿度、能见度、降水量以及风速的时间序列变化图。可以看出,BC 浓度的变化范围为  $0.5\text{--}17.4 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ ,平均值为  $(4.1\pm 2.9) \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ ,其中 BC 浓度最大值出现在冬季,为  $17.4 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ ,且冬季 BC 浓度变化幅度最大。西安市 BC 浓度季节变化呈现冬季高,夏季低,冬季 BC 浓度的平均值为  $(5.2\pm 4.1) \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ ,是夏季平均值  $(2.8\pm 1.9) \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$  的 1.9 倍,春季和秋季 BC 浓度平均值分别为  $(3.2\pm 2.4) \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$  和  $(4.7\pm 3.7) \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 。温度变化幅度最为显著,其变化范围为  $-6.3\text{--}33.7 \text{ }^\circ\text{C}$ ,均值为  $(15.1\pm 9.6) \text{ }^\circ\text{C}$ ,其中夏季温度较高  $19.5\text{--}33.7 \text{ }^\circ\text{C}$ ,而冬季较低  $-6.3\text{--}13.8 \text{ }^\circ\text{C}$ ;整个观测期间相对湿度值变化范围为  $17\%\text{--}96\%$ ,平均值为  $61\%\pm 17\%$ ,其中 11 月相对湿度整体较高 ( $>61\%$ );能见度变化幅度较为明显,变化范围为  $1\text{--}33 \text{ km}$ ,平均值为  $(12\pm 7) \text{ km}$ ;降水量夏季明显高于其他季节,夏季累计降水量可达到  $76 \text{ mm}$ ,约占观测期间总降水量的  $33\%$ 。风速整体变化范围为  $0.9\text{--}7.3 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ ,平均风速为  $(2.3\pm 0.9) \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ 。

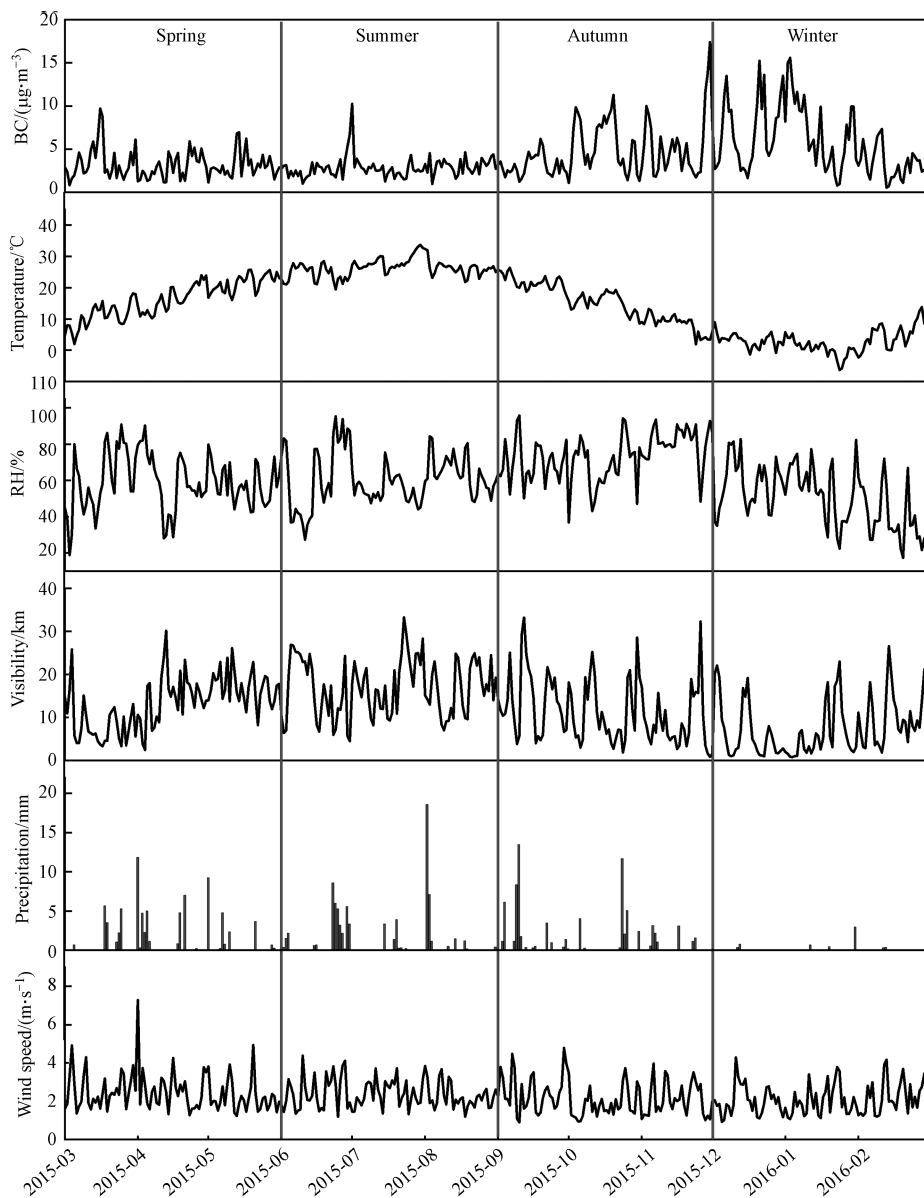


图1 BC质量浓度、温度、相对湿度、能见度、降水和风速的时间序列变化

Fig.1 Time series changes of BC mass concentration, temperature, relative humidity, visibility, precipitation and wind speed

为了进一步研究 BC 浓度和气象要素之间的关系,对 BC 浓度与温度、能见度、降水以及风速进行相关性分析,见图 2。由图 2(a)可知,BC 浓度和温度呈负相关,这可能是冬季受居民取暖及气象特点的影响,导致 BC 浓度升高。由图 2(b)可知,BC 浓度和能见度呈现负相关,主要是由于 BC 气溶胶对光具有吸收作用,会使能见度降低<sup>[43]</sup>。BC 浓度值和降水量呈负相关,见图 2(c),表明降水对黑碳气溶胶有一定的清除作用<sup>[44]</sup>。图 2(d)为 BC 浓度与风速的关系图,从图中可以看出,风速越大,BC 浓度相对较小,BC 浓度与风速呈负相关,表明风速较大时有利于 BC 气溶胶的扩散。

## 2.2 不同季节 BC 浓度日内变化特征

图 3 为不同季节 BC 浓度的日内变化趋势图,箱线图上下表示 95 和 5 分位数,箱体上下边表示 75 和 25 分位数,箱体中心线表示中位数,圆圈表示平均值。观测期间 BC 浓度日变化基本一致,峰值均出现在 06:00—09:00,与上班高峰期对应,谷值均出现 14:00—17:00。清晨太阳刚刚开始加热地面,夜间稳定的边界层结构还未破坏,故不利于大气污染物的扩散,且 06:00 之后为上班高峰期,交通排放源增加,故 BC 浓度在 06:00—09:00 出现峰值。之后随着车流量的减少,午后太阳辐射逐渐增强,边界层高度持

续抬高,有利于 BC 的扩散,故 14:00—17:00 达到一天的谷值.17:00 之后,BC 浓度升高幅度增大,这可能与下班高峰期,车流量增大,及人类活动有关,导致 BC 浓度排放量随之增加,夜间 00:00—次日凌晨 05:00 BC 浓度相对稳定,略微降低,这与夜间人为活动减少有关.和其他季节相比,冬季峰值出现的时间要晚 1—2 h,这主要与冬季日照时长较其他季节相对较短,影响了当地人类活动规律有关.

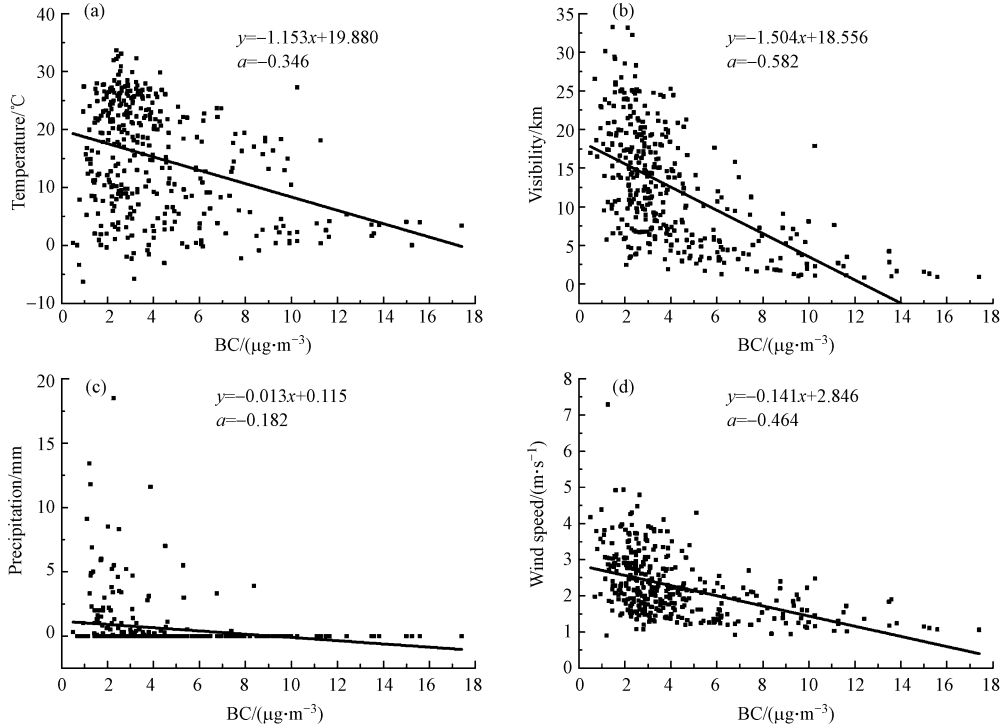


图 2 BC 浓度与温度、能见度、降水和风速间的关系

Fig.2 Relationships between BC concentration and temperature, visibility, precipitation and wind speed

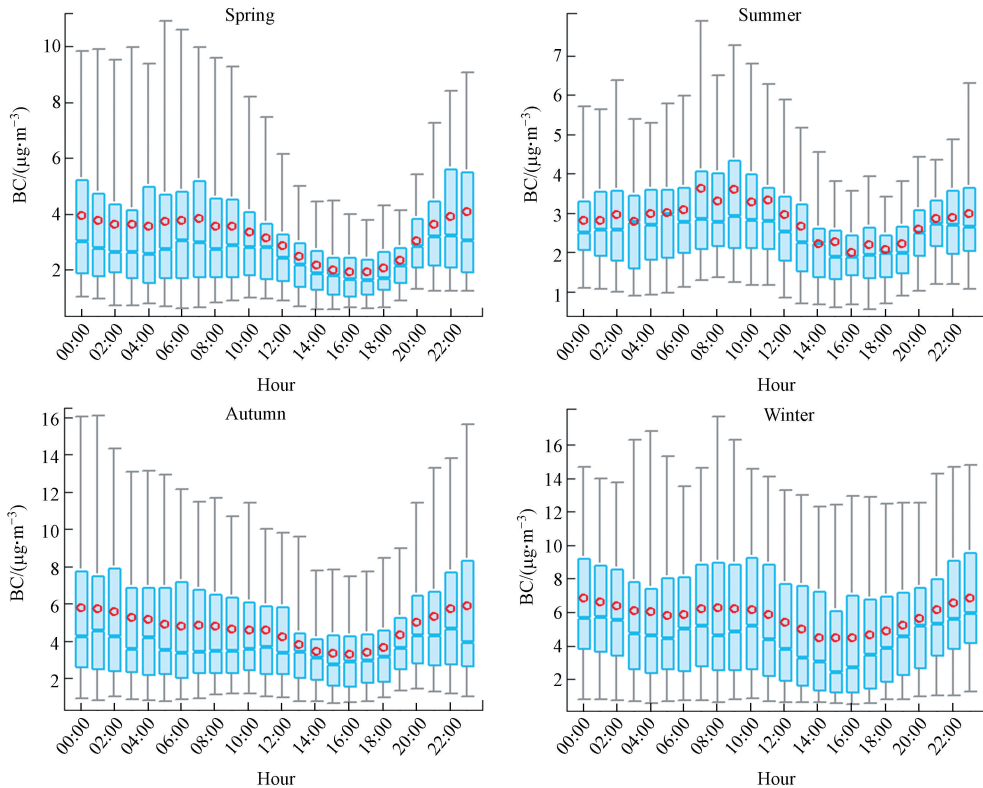


图 3 西安市不同季节 BC 浓度的日内变化

Fig.3 Intraday variations of BC concentration in different seasons in Xi'an

### 2.3 BC 的排放来源解析

图 4 为化石燃料排放产生的 BC ( $BC_{ff}$ )、生物质燃烧产生 BC ( $BC_{bb}$ ) 的浓度和 AAE 日变化情况。 $BC_{ff}$  日均值为  $(0.84 \pm 0.15) \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ ,  $BC_{bb}$  日均值为  $(0.39 \pm 0.15) \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ .  $BC_{ff}$  在春季、夏季、秋季和冬季 BC 总浓度中占比分别 71.9%、75.5%、76.2% 和 54.8%,  $BC_{bb}$  的占比分别为 28.1%、24.5%、23.8% 和 45.2%, 这表明西安市大气中 BC 主要来源于化石燃料的排放; 从图 4(a) 中可以看出,  $BC_{ff}$  在冬季时占比和  $BC_{bb}$  基本接近, 其所占 BC 总浓度比值基本接近, 冬季  $BC_{bb}$  值较高, 可能与本地冬季供暖、生物质燃烧以及受来自周边地区生物质燃烧气流的影响有关。

有研究<sup>[38,45-46]</sup>指出, 当 AAE 值接近 1 时, BC 主要来源于化石燃料的燃烧, 当 AAE 值接近 2 时, BC 主要来源于生物质的燃烧. 观测期间西安市春季、夏季、秋季和冬季 AAE 的平均值分别为  $1.22 \pm 0.11$ 、 $1.11 \pm 0.13$ 、 $1.16 \pm 0.14$  和  $1.45 \pm 0.12$ , 总体平均值约为  $1.23 \pm 0.19$ . 整体来看 AAE 值接近于 1, 故该地区 BC 主要源自于化石燃料的燃烧; 冬季 AAE 值相对较高, 结合黑碳仪模型可知, 冬季  $BC_{bb}$  占比明显高于其他季节, 可能与冬季居民取暖、生物质燃烧有关。

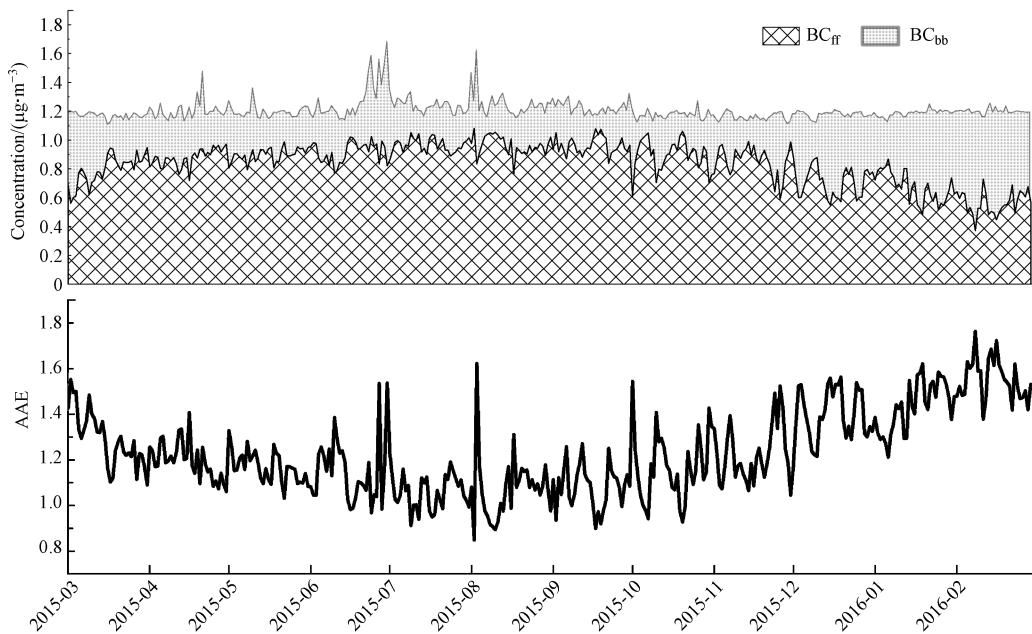


图 4  $BC_{ff}$  浓度、 $BC_{bb}$  浓度和 AAE 日变化趋势

Fig.4 Daily change trends of  $BC_{ff}$  concentration,  $BC_{bb}$  concentration and AAE

表 1 为不同地区 AAE 的对比. 由表 1 可知, 西安的 AAE 值与广州市<sup>[47]</sup>, 乌鲁木齐<sup>[26]</sup> 等基本相近, 广州市观测站点处于居住、交通、商业发达地区, 这与本研究观测点的地理位置基本一致; 高于东莞市<sup>[48]</sup> 和深圳城郊区<sup>[24]</sup> 等地区的 AAE 值, 东莞市观测点处于平原地区, 且受人类影响较小, 深圳城郊区观测点受交通影响较小, 故其低于本研究 AAE 值; 西安的 AAE 值低于南京市<sup>[49]</sup>, 南京市观测点周边有几条主要道路存在明显的交通污染, 故本研究的 AAE 值低南京市。

### 2.4 西安市黑碳源地分析

为探究西安市 BC 气溶胶除受本地化石燃料和生物质燃烧外, 其他方向气流远距离输送是否对 BC 浓度有影响. 故利用浓度权重轨迹分析法 (CWT) 对西安市不同季节 BC 浓度的潜在源区及其贡献进行分析. 本研究采用美国国家海洋和大气研究中心 (National Oceanic and Atmospheric Administration, NOAA) 提供的全球数据同化系统 (GDAS, global data assimilation system) 数据, 结合 TrajStat 软件对西安市研究区每日气流来源进行 72 h 后向轨迹反演, 本研究采用 500 m 作为研究区大气边界层的平均流场高度, 以此来表明研究区周围气流的运动特征. 研究期间西安市各季节 BC 的 CWT 计算结果如图 6. 由图 6 可知, 春季 CWT 高值区主要集中在西安西南部和南部区域; 夏季 CWT 整体较小, BC 源区贡献整体不超过  $3.6 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ , 高值区主要集中在西安南部; 秋季 CWT 的高值区主要分布在西安南部和西南部, 较

大值为  $4.0\text{--}7.0\ \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ ; 冬季 CWT 的高值区主要分布在西安西南部, 西安西南部潜在源区对 BC 的贡献超过  $9.0\ \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ . 由此可知, 西安市 BC 高贡献源区主要集中分布在西安南部和西南部地区, 这些地区属郊区, 有生物质燃烧<sup>[50]</sup>.

表 1 不同地区测得的 AAE 值

Table 1 AAE values measured in different regions

地点 Location	日期 Date	波长范围 Wavelength range/nm	AAE Absorption Ångström Exponent	文献 References
西安	2015-03—2016-02	370—950	$1.23\pm 0.19$	本研究
广州市	2015-10—2015-11	470—950	$1.16\pm 0.08$	[47]
	2016-04—2016-05		$1.08\pm 0.05$	
乌鲁木齐	2016-08—2017-07	470—660	$1.2\pm 0.26$	[26]
东莞市	2009-01—2019-12	470—700	1.02	[48]
深圳竹子林	2014-01—2015-06	470—660	$0.92\pm 0.08$	[24]
深圳西涌			$0.94\pm 0.16$	
南京	2012—2013	470—660	$1.56\pm 0.23$	[49]

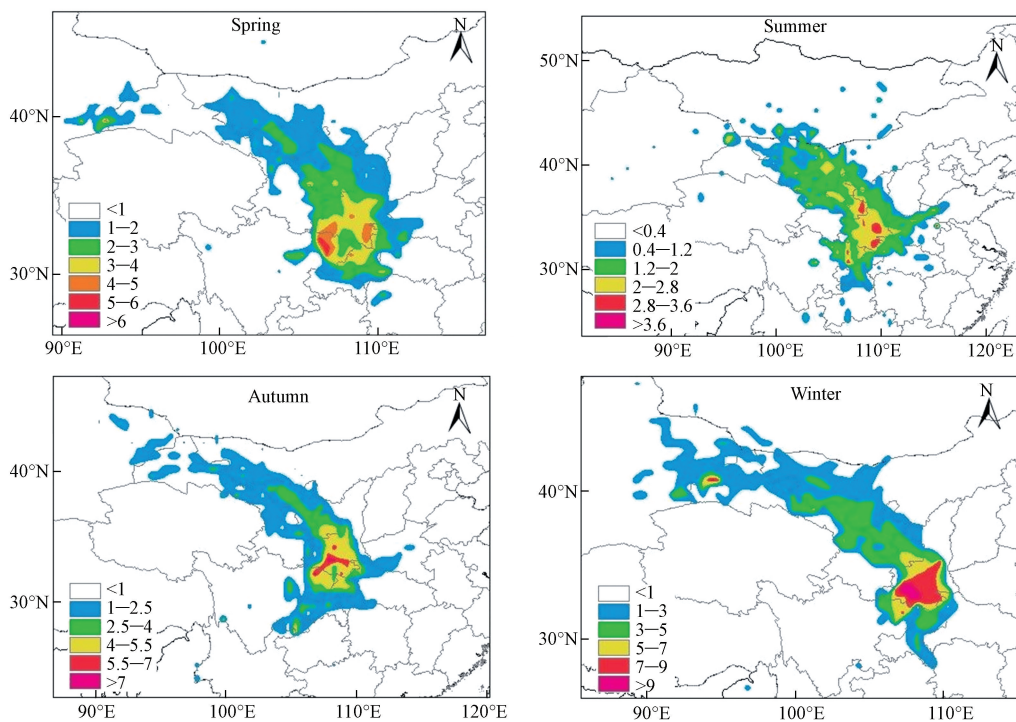


图 5 不同季节 BC 的浓度权重轨迹分析(CWT)

Fig.5 Concentration weight trajectory analysis (CWT) of BC in different seasons

### 3 结论 (Conclusion)

(1) 观测期间西安市 BC 浓度的变化范围为  $0.5\text{--}17.4\ \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ , 平均值为  $(4.1\pm 3.4)\ \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ . 其季节变化呈现出冬季高, 夏季低, 冬季 BC 平均浓度为  $(5.2\pm 4.1)\ \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ , 是夏季平均值  $(2.8\pm 1.9)\ \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$  的 1.9 倍, 春季 BC 平均浓度为  $(3.2\pm 2.4)\ \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ , 秋季 BC 平均浓度值为  $(4.7\pm 3.7)\ \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ . BC 浓度与能见度、降水和风速均呈负相关, 与温度也呈负相关, 这主要与冬季燃煤增多及不利气象条件有关. BC 浓度各季节日内变化趋势基本一致, 峰值均出现在 06:00—09:00, 谷值均出现 14:00—17:00 时间段, 这与当地的人类日常活动有关.



(2)由黑碳仪模型可知,BC<sub>ff</sub>在春季、夏季、秋季和冬季 BC 总浓度中占比分别 71.9%、75.5%、76.2% 和 54.8%,BC<sub>bb</sub>的占比分别为 28.1%、24.5%、23.8%和 45.2%;春季、夏季、秋季和冬季 AAE 平均值分别为 1.22±0.11、1.11±0.13、1.16±0.14 和 1.45±0.12,总体平均值约为 1.23±0.19;由 BC<sub>ff</sub>,BC<sub>bb</sub>在 4 个季节中的贡献和 AAE 结果分析可知,西安市大气中 BC 主要来源于化石燃料的燃烧,冬季生物质燃烧的影响不容忽视。

(3)浓度权重轨迹分析(CWT)表明,西安市 BC 污染的主要源区为西安南部以及西南部区域,主要本地源对西安市 BC 贡献较高。

致谢:感谢西安市大气监测超级站的支持。

#### 参考文献 (References)

- [ 1 ] WANG J, LIU D, GE X, et al. Characterization of black carbon-containing fine particles in Beijing during wintertime[J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2019, 19(1): 447-458.
- [ 2 ] 许黎,王亚强,陈振林,等.黑碳气溶胶研究进展 I:排放、清除和浓度[J].*地球科学进展*, 2006(4): 352-360.  
XU L, WANG Y Q, CHEN Z L, et al. Progress of black carbon aerosol research I: Emission, removal and concentration[J]. *Advances in Earth Science*, 2006(4): 352-360 (in Chinese).
- [ 3 ] HUANG R J, ZHANG Y, BOZZETTI C, et al. High secondary aerosol contribution to particulate pollution during haze events in China[J]. *Nature*, 2014, 514(7521): 218-222.
- [ 4 ] SEINFELD J H. Air pollution: A half century of progress[J]. *American Institute of Chemical Engineers*, 2004, 50(6): 1096-1108.
- [ 5 ] WANG Y, ZHANG R Y & SARAVANAN R. Asian pollution climatically modulates midlatitude cyclones following hierarchical modeling and observational analysis[J]. *Nature Communications*, 2014, 5: 1098.
- [ 6 ] CAO J J. Pollution status and control strategies of PM<sub>2.5</sub> in China[J]. *Journal of Earth Environment*, 2012, 3: 1030-1036.
- [ 7 ] BOND T C. Bounding the role of black carbon in the climate system: A scientific assessment [J]. *Journal of Geophysical Research Atmospheres*, 2013, 118(11): 5380-5552.
- [ 8 ] DING A J, HUANG X, NIE W, et al. Enhanced haze pollution by black carbon in megacities in China[J]. *Geophysical Research Letters*, 2016, 43(6): 2873-2879.
- [ 9 ] LEE A K Y, RIVELLINI L H, CHEN C L, et al. Influences of primary emission and secondary coating formation on the particle diversity and mixing state of black carbon particles[J]. *Environmental Science & Technology*, 2019, 53(16): 9429-9438.
- [ 10 ] LIU C, XU X, YIN Y, et al. Black carbon aggregates: A database for optical properties[J]. *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, 2019, 222/223: 170-179.
- [ 11 ] XIAO S, WANG Q Y, CAO J J, et al. Long-term trends in visibility and impacts of aerosol composition on visibility impairment in Baoji, China[J]. *Atmospheric Research*, 2014, 149: 88-95.
- [ 12 ] HUANG L, GONG S L, SHARMA S, et al. A trajectory analysis of atmospheric transport of black carbon aerosols to Canadian high Arctic in winter and spring (1990-2005) [J]. *Atmospheric Chemistry & Physics*, 2010, 10(11): 1716-1726.
- [ 13 ] GRAF H F, SHIRSAT S V, ÖPPENHEIMER C, et al. Continental Scale Antarctic deposition of sulphur and black carbon from anthropogenic and volcanic sources[J]. *Atmospheric Chemistry & Physics*, 2010, 10(5): 2457-2465.
- [ 14 ] ZHUANG B L, WANG T J, LIU J, et al. Continuous measurement of black carbon aerosol in urban Nanjing of Yangtze River Delta, China [J]. *Atmospheric Environment*, 2014, 89: 415-424.
- [ 15 ] 王洪强,贺千山,陈勇航,等.2008—2012 年上海黑碳浓度变化特征分析[J].*环境科学*, 2014, 35(4): 1215-1222.  
WANG H Q, HE Q S, CHEN Y H, et al. Analysis of characteristics of black carbon concentration in Shanghai from 2008 to 2012 [J]. *Environmental Science*, 2014, 35(4): 1215-1222 (in Chinese).
- [ 16 ] 谢锋,林煜棋,宋文怀,等.南京北郊黑碳气溶胶分布特征及来源[J].*环境科学*, 2020, 41(10): 4392-4401.  
XIE F, LIN Y Q, SONG W H. et al. Distribution characteristics and source of black carbon aerosols in the northern suburbs of Nanjing [J]. *Environmental Science*, 2020, 41(10): 4392-4401 (in Chinese).
- [ 17 ] GAO R X, NIU S J, ZHANG H, et al. A comparative study on black carbon aerosol observations in regions of Beijing and Lhasa in 2006 [C]//Conference on Remote Sensing and Modelling of Ecosystems for Sustainability IV, 2007.
- [ 18 ] XIE C, XU W, WANG J, et al. Vertical characterization of aerosol optical properties and brown carbon in winter in urban Beijing, China [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2019, 19(1): 165-179.
- [ 19 ] WU D, WU C, LIAO B, et al. Black carbon over the South China Sea and in various continental locations in South China [J]. *Atmospheric Chemistry & Physics*, 2013, 13(24): 12257-12270.
- [ 20 ] CHEN X, ZHANG Z, ENGLING G, et al. Characterization of fine particulate black carbon in Guangzhou, a megacity of south China [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2014, 5(3): 361-370.

- [21] 王璐,袁亮,张小玲,等.成都地区黑碳气溶胶变化特征及其来源解析[J].环境科学,2020,41(4):1561-1572.  
WANG L, YUAN L, ZHANG X L, et al. Characteristics and source apportionment of black carbon in Chengdu [J]. Environmental Science, 2020,41(4):1561-1572(in Chinese).
- [22] 肖思晗,于兴娜,朱彬,等.南京北郊黑碳气溶胶的来源解析[J].环境科学,2018,39(1):9-17.  
XIAO S H, YU X N, ZHU B, et al. Source apportionment of black carbon aerosol in the North Suburb of Nanjing [J]. Environmental Science, 2018, 39(1): 9-17(in Chinese).
- [23] 程丁,吴晟,吴兑,等.深圳市城区和郊区黑碳气溶胶对比研究[J].中国环境科学,2018,38(5):1653-1662.  
CHEN D, WU C, WU D, et al. Comparative study on the characteristics of black carbon aerosol in urban and suburban areas of Shenzhen [J]. China Environmental Science, 2018, 38(5): 1653-1662(in Chinese).
- [24] 赵锦慧,何超,李小莉,等.武汉市黑碳气溶胶质量浓度空间分布的主导因素分析[J].生态环境学报,2018,27(6):1089-1098.  
ZHAO J H, HE C, LI X L, et al. Leading factor analysis of horizontal and vertical distribution of black carbon aerosol in Wuhan [J]. Ecology and Environmental Sciences, 2018, 27(6): 1089-1098(in Chinese).
- [25] 张昕,李忠勤,明镜,等.乌鲁木齐河源区黑碳气溶胶浓度特征及其来源分析[J].环境科学学报,2019,39(1):212-221.  
ZHANG X, LI Z Q, MING J, et al. Characteristics of black carbon aerosol and source apportionment at the headwater of Urumqi River [J]. Acta Scientiae Circumstantiae, 2019, 39(1): 212-221(in Chinese).
- [26] 杨晓曼,施双双,张晨,等.南京市黑碳气溶胶时间演变特征及其主要影响因素[J].环境科学,2020,41(2):620-629.  
YANG X M, SHI S S, ZHANG C, et al. Time evolution characteristics and main influencing factors of black carbon aerosol in Nanjing [J]. Environmental Science, 2020, 41(2): 620-629(in Chinese).
- [27] 齐孟姚,王丽涛,张城瑜,等.邯郸市黑碳气溶胶浓度变化及影响因素分析[J].环境科学学报,2018,38(5):1751-1758.  
QI M Y, WANG L T, ZHANG C Y, et al. Variation of black carbon aerosol concentration and its influencing factors in Handan City, Hebei Province [J]. Acta Scientiae Circumstantiae, 2018, 38(5): 1751-1758(in Chinese).
- [28] 牛晓婧.西安市明城墙区域慢行交通系统研究[D].西安:长安大学,2015.  
ZHU X J. Study on the slow traffic system in Ming City area of Xi'an [D]. Xi'an: Chang'an University, 2015(in Chinese).
- [29] 朱崇抒,曹军骥,沈振兴,等.西安黑碳气溶胶的污染特征及其成因分析[J].中国粉体技术,2009,15(2):66-71.  
ZHU C S, CAO J J, SHEN Z X, et al. Variability of black carbon aerosol and analysis of influence factors over Xi'an atmosphere [J]. China Powder Science and Technology, 2009, 15(2): 66-71(in Chinese).
- [30] 杜川利,余兴,李星敏,等.西安泾河夏季黑碳气溶胶及其吸收特性的观测研究[J].中国环境科学,2013,33(4):613-622.  
DU C X, YU X, LI X M, et al. Observed summer variation and absorption characteristics of black carbon at Xi'an suburban [J]. China Environmental Science, 2013, 33(4): 613-622(in Chinese).
- [31] 刘立忠,王宇翔,么远,等.西安市黑碳气溶胶浓度特征及与气象因素和常规污染物相关性[J].中国环境监测,2016,32(5):45-50.  
LIU L Z, WANG Y X, YAO Y, et al. Concentration characteristics and the correlations of black carbon aerosols with meteorological factors and conventional pollutants in Xi'an [J]. Environmental Monitoring in China, 2016, 32(5): 45-50(in Chinese).
- [32] CAO J J, ZHU C S, CHOW J C, et al. Black carbon relationships with emissions and meteorology in Xi'an, China [J]. Atmospheric Research, 2009, 94(2): 194-202.
- [33] ZHANG Q, SHEN Z X, NING Z, et al. Characteristics and source apportionment of winter black carbon aerosols in two Chinese megacities of Xi'an and Hong Kong [J]. Environmental Science & Pollution Research, 2018, 25(33): 33783-33793.
- [34] WEINGARTNER E, SAATHOFF H, SCHNAITER M, et al. Absorption of light by soot particles; Determination of the absorption coefficient by means of aethalometers [J]. Journal of Aerosol Science, 2003, 34(10):1445-1463.
- [35] VIRKKULA A, MÄKELÄ T, HILLAMO R, et al. A simple procedure for correcting loading effects of Aethalometer Data [J]. Journal of the Air & Waste Management Association, 2007,57(10):12-14.
- [36] WU D, WU C, LIAO B, et al. Seasonal variation of black carbon over the South China Sea and in various continental locations in South China [J]. Atmospheric Chemistry and Physics Discussions, 2013,13(7):17375-17405.
- [37] WU C, WU D, YU J Z. Quantifying black carbon light absorption enhancement by a novel statistical approach [J]. Atmospheric Chemistry & Physics, 2018, 18(1):289-309.
- [38] SANDRADEWI J, PRÉVÔT A S, SZIDAT S, et al. Using aerosol light absorption measurements for the quantitative determination of wood burning and traffic emission contributions to particulate matter [J]. Environmental Science & Technology, 2008,42(9):3316-3323.
- [39] KIRCHSTETTER T W, NOVAKOV T, HOBBS P V. Evidence that the spectral dependence of light absorption by aerosols is affected by organic carbon [J]. Journal of Geophysical Research, 2004,109 (D21): D21208.
- [40] 李莉,蔡黎琳,周敏.2013年12月中国中东部地区严重灰霾期间上海市颗粒物的输送途径及潜在源区贡献分析[J].环境科学,2015,36(7):2327-2336.  
LI L, CAI J L, ZHOU M. Potential source contribution analysis of the particulate matters in Shanghai during the heavy haze episode in eastern and middle China in December, 2013 [J]. Environmental Science, 2015, 36(7): 2327-2336(in Chinese).
- [41] KOMPALLI S K, BABU S S, MOORTHY K K, et al. Aerosol black carbon characteristics over Central India; Temporal variation and its

- dependence on mixed layer height[J]. *Atmospheric Research*, 2014, 147: 27-37.
- [42] WANG Y Q, ZHANG X Y, DRAXLER R R. TrajStat: GIS-based software that uses various trajectory statistical analysis methods to identify potential sources from long-term air pollution measurement data[J]. *Environmental Modelling & Software*, 2009, 24(8): 938-939.
- [43] 王绪鑫, 马雁军, 向旬, 等. 鞍山黑碳气溶胶观测[J]. *环境化学*, 2010, 29(6): 1091-1095.  
WANG X X, MA Y J, XIANG X, et al. Observational of black carbon aerosol in Anshan[J]. *Environmental Science*, 2010, 29(6): 1091-1095 (in Chinese).
- [44] 黄观, 刘伟, 刘志红, 等. 黑碳气溶胶研究概况[J]. *灾害学*, 2015, 30(2): 205-214.  
HUANG G, LIU W, LIU Z H, et al. A research overview of Black Carbon Aerosols[J]. *Journal of Catastrophology*, 2015, 30(2): 205-214.
- [45] KIRCHSTETTER T W. Evidence that the spectral dependence of light absorption by aerosols is affected by organic carbon[J]. *Journal of Geophysical Research Atmospheres*, 2004, 109(D21): 1-12.
- [46] RUSSELL P B, BERGSTROM R W, SHINOZUKA Y, et al. Absorption angstrom exponent in AERONET and related data as an indicator of aerosol composition[J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2010, 10(3): 1155-1169.
- [47] 程丁, 吴晟, 吴兑, 等. 广州市城区干湿季黑碳气溶胶污染特征及来源分析[J]. *环境科学学报*, 2018, 38(6): 2223-2232.  
CHENG D, WU C, WU D, et al. Characteristics of black carbon aerosols in urban Guangzhou: Influencing factors in dry and rainy seasons [J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 2018, 38(6): 2223-2232 (in Chinese).
- [48] 陈慧忠, 吴兑, 廖碧婷, 等. 东莞与帽峰山黑碳气溶胶浓度变化特征的对比[J]. *中国环境科学*, 2013, 33(4): 605-612.  
CHEN H Z, WU D, LIAO B J, et al. Compare of black carbon concentration variation between dongguan and maofengshan[J]. *China Environmental Science*, 2013, 33(4): 605-612 (in Chinese).
- [49] ZHUANG B L, WANG T J, LIU J, et al. Absorption coefficient of urban aerosol in Nanjing, west Yangtze River Delta, China [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2015, 15(23): 13633-13646.
- [50] SUN J, SHEN Z, CAO J, et al. Particulate matters emitted from maize straw burning for winter heating in rural areas in Guanzhong Plain, China; Current emission and future reduction[J]. *Atmospheric Research*, 2017, 184: 66-76.