

文章编号: 1001-8166(2006)04-0352-09

## 黑碳气溶胶研究进展: 排放、清除和浓度\*

许黎<sup>1</sup>, 王亚强<sup>2</sup>, 陈振林<sup>3</sup>, 罗勇<sup>1</sup>, 任万辉<sup>4</sup>

(1. 中国气象局气候研究开放实验室 北京 100081; 2. 中国气象科学研究院大气成分观测与服务研究中心, 北京 100081; 3. 中国气象局 北京 100081; 4. 沈阳市环境监测中心 辽宁 沈阳 110016)

**摘要:** 黑碳气溶胶是近几年非常活跃的一个研究课题, 因为黑碳气溶胶吸收太阳和地球大气的辐射, 对全球气候变暖有重要的影响。中国黑碳气溶胶的排放和浓度比同纬度的高, 在全球气候变暖的大背景下, 中国黑碳气溶胶一直受到国外的关注。综述了国内外黑碳气溶胶研究的最新进展, 受篇幅的限制, 文章分两篇, 第一篇是黑碳气溶胶的排放、清除和浓度, 第二篇是黑碳气溶胶的气候效应和拓展的研究领域。从黑碳排放的估算和大气浓度的测量方法进行描述, 列出有关的测量结果, 对黑碳气溶胶的排放和大气浓度进行国内外的初步比较分析。还对黑碳气溶胶排放和浓度测量误差进行了讨论, 并对今后黑碳气溶胶研究提出了几点建议。

**关键词:** 黑碳气溶胶 排放 清除 浓度

中图分类号: X513 文献标识码: A

### 1 引言

黑碳气溶胶是化石和生物质燃料不完全燃烧向大气排放的颗粒物, 在大气、土壤、冰雪、海洋和湖泊沉积物中都能发现它的存在。按照政府间气候变化专门委员会(IPCC)第三次评估报告<sup>[1]</sup>对黑碳气溶胶的科学定义, 根据光吸收、化学反应和/或热稳定性测量定义的一类气溶胶, 它主要由烟炱、木炭以及可以吸收辐射的耐火有机物组成。

黑碳气溶胶粒子的尺度主要在 0.01 ~ 1.0  $\mu\text{m}$  的细粒子区, 它不会由大气中其它的化学反应过程生成或清除。黑碳气溶胶不像硫酸盐气溶胶那样具有单一的化学成分, 可以说是一种混合物。典型黑碳气溶胶的形态具有链式球形小粒子, 除了富含 C 元素外, 还含有地壳粒子元素, 如 Si、Fe、K 和 Mn 等, 它与地壳粒子的主要区别是粒子尺度很小, 直径在亚微米范围, 形态多为圆形, 因为粒子在燃烧过程中将不规则的边缘烧溶, 残留下规则的和耐火的有机物。图 1 是我们捕获到的北京近地面的黑碳粒子

的形态<sup>[2]</sup>。与大气  $\text{CO}_2$ 、 $\text{CH}_4$ 、 $\text{O}_3$  等气体相比, 黑碳粒子有更宽的吸收波段, 从紫外到红外都有吸收带, 黑碳粒子通过吸收太阳、地球大气的辐射而影响地—气系统的能量收支进而影响气候。黑碳粒子表面在大气中为非均相反应和气—粒转化过程提供一个活性载体并起到催化的作用。黑碳粒子的表面可以吸附一些污染物质, 如  $\text{SO}_2$ 、 $\text{O}_3$  等, 还可以吸附一些有毒、有害物质如多环芳烃族(致癌、致畸、致突变)经呼吸系统进入人体, 在大气环境中重要的作用。表 1 列出了颗粒物的大小和进入人体呼吸系统的部位, 由此可见, 黑碳粒子都能进入到人体的肺部。鉴于大气黑碳气溶胶的这些基本特性, 它会导致气候系统能量的变化, 又能影响大气环境质量和人类健康, 是近几年非常热门的研究课题之一。

著名的“雾都伦敦”现象引起了科学家们对黑碳气溶胶的关注, 当时只考虑它的环境影响并没有注意到更深层次的作用。1973 年 Smith 等<sup>[3]</sup>最早发现海洋沉积物中黑碳的存在。Masiello 等<sup>[4]</sup>从  $^{14}\text{C}$  的测量结果推断, 黑碳可能占到海洋碳贮存的 4%

\* 收稿日期: 2005-09-26; 修回日期: 2006-02-20.

\* 基金项目: 中国气象局气候变化专项“黑碳气溶胶的气候效应及其政策意义”(编号: LC2003C-7, CCSF2005-3-DH10)资助。  
作者简介: 许黎(1950-), 女, 江苏苏州人, 副研究员, 主要从事大气组分的测量和分析研究。E-mail: xuli@cm.a.gov.cn

~22%, 他们的另一个重要结果是:不论在土壤还是在海洋中,黑碳在中间贮场停留的时间都很长,大约在2 400~13 900年。所以,从海洋、湖底沉积物和冰芯中的黑碳信息可以获得历史上大的燃烧事件,根据沉积物和冰芯中的吸光成分来确定燃烧物的年代,即是地球火灾很好的示踪物。



图1 典型的链式黑碳粒子<sup>[2]</sup>

Fig.1 Typical chain black carbon particles

表1 颗粒物直径和在人体滞留的部位  
Table 1 Particle diameter and stay tissue

粒子直径(μm)	滞留部位
1.1	可穿过肺泡
1.1~2.0	肺部沉积
2.0~3.3	气管、支气管沉积
3.3~7.0	喉部、气管区沉积

国际上黑碳气溶胶的测量和研究开展得较早,美国科学家从20世纪70年代开始黑碳气溶胶的系统测量,80年代该工作得到国际上的广泛重视,WMO组织的全球大气监测网(GAW)将黑碳气溶胶作为一个重要的气溶胶观测项目从1989年起开始监测其变化,中国科学家们也从80年代开始进行北京冬季取暖期燃煤排放的黑碳气溶胶的测量研究,90年代在瓦里关、临安等全球和区域本底站开展测量。近十几年,黑碳气溶胶的研究得到了广泛的重视和长足的发展,浓度测量从大气中的黑碳到海洋、湖泊沉积物和冰芯中的黑碳;并由海洋沉积物中的黑碳的浓度研究其参与碳循环,对气候效应的模式模拟研究也从温度到降水,还从环境质量和人体健康等拓展到多方位的研究。

## 2 黑碳气溶胶的排放和清除

黑碳气溶胶的排放很难直接测量,通常是在实验室从燃烧物质和排放的黑碳气溶胶推算燃烧物质量与排放量之间的关系,即排放因子,将实验室的推算结果应用到实际大气中,粗略估算黑碳气溶胶的

排放。

IPCC 2001 报告<sup>[1]</sup>给出2000年全球化石燃料燃烧排放的黑碳气溶胶为6.6 Tg/a(范围6~8 Tg/a),生物质燃烧排放5.7 Tg/a(范围5~9 Tg/a),飞机尾气排放0.006 Tg/a,可以看到生物质燃烧排放估算值的范围最大,因为除了人为燃烧的生物质(作物秸秆)还有自然燃烧过程(森林大火)等的排放,这类的排放源不能很好地统计,不确定性也较大。报告还给出了年平均黑碳源强的全球分布(图2)。全球年平均黑碳的源强分布有4个极大值区,最大的源强位于欧洲(0.2~0.5 kg/(km<sup>2</sup>·h)),其次是中国的东部(0.05~0.1 kg/(km<sup>2</sup>·h)),另两个排放源分别位于南美洲和非洲(0.02~0.05 kg/(km<sup>2</sup>·h))。张立盛<sup>[5]</sup>用美国Lawrence Livermore National Laboratory的对流层化学输送模式计算了烟尘气溶胶的全球分布,结果显示,有很明显的3个大值区,最大的是南美洲,其柱浓度为~1.6 mg/m<sup>2</sup>,其次是非洲和南亚,数值均为~1.0 mg/m<sup>2</sup>。张立盛的模拟结果中没有欧洲的高值中心,另几个高值中心的位置也有区别。由于其模式输入的原始数据来源不同、计算排放的年份不同、模式本身也有差别,这两个结果之间不能直接比较,但有一点是相同的,即南美、非洲和亚洲有高值区。

欧洲1995—1998年平均排放的黑碳为482~511 Gg<sup>[6]</sup>,英国近40年黑碳的排放量从1962年约350 Gg起,到1999年约58 Gg,呈现逐年下降的趋势<sup>[7]</sup>。印度1996—1999年平均化石燃料黑碳排放量为100 Gg,其中58%来自柴油机排放,生物质燃料排放250 Gg<sup>[8]</sup>。

我国是燃煤大国,原煤燃烧过程是化石燃料燃烧排放黑碳的主要来源,此外,我国部分农村有燃烧农作物秸秆的习惯,庄稼收割后,作物秸秆在田里燃烧,草木灰作为肥料返回田里,作物的燃烧过程一方面向大气排放废气,另一方面排放黑碳颗粒物,这是我国黑碳气溶胶生物源的主要来源之一。Streets等<sup>[10,11]</sup>对中国1995年和2000年的黑碳排放量进行了估算,按照他们的计算结果,1995年中国向大气排放的黑碳为1 342 Gg,其中83%来自煤和生物质燃烧;2000年中国的黑碳排放量为1 050 Gg,比1995年的排放明显减少,30×30的网格化排放源分布见图3,预计2020年向大气排放1 224 Gg,与1995年相比减少9%,这减少的量中50%源于能源的改变。中国大气中的黑碳气溶胶主要分布在华北、华南和长江中下游地区,河北南部地区排放量最

大。值得指出,中国黑碳的排放量不能简单地直接与国外的排放数值相比,应该考虑排放数据的时间、面积、人口等的不同,同时期、相同的统计原数据和方法的排放通量相对而言是一个可参考的数值。目前还没有这样的数据供我们进行这样的对比。实际上,当今的估算值还存在较大的不确定性,主要来源于排放因子。化石燃料和生物质燃烧排放的黑碳通过排放因子计算,用实验室的实验数据推算区域

或全球黑碳的排放,其局限性是不言而喻的,而排放因子受气象条件的影响也会带来误差。

吴润等<sup>[12]</sup>分析了生物质燃烧排放的黑碳占总黑碳的百分比,其结果是:印度半岛上空占 30% ~ 45%;中南半岛 55% ~ 75%;中国东部占 30% ~ 40%。数据表明,东南亚黑碳来源中生物质燃烧占到了相当的比例,应该引起足够的重视。

黑碳气溶胶的清除过程有大气的干、湿沉降两

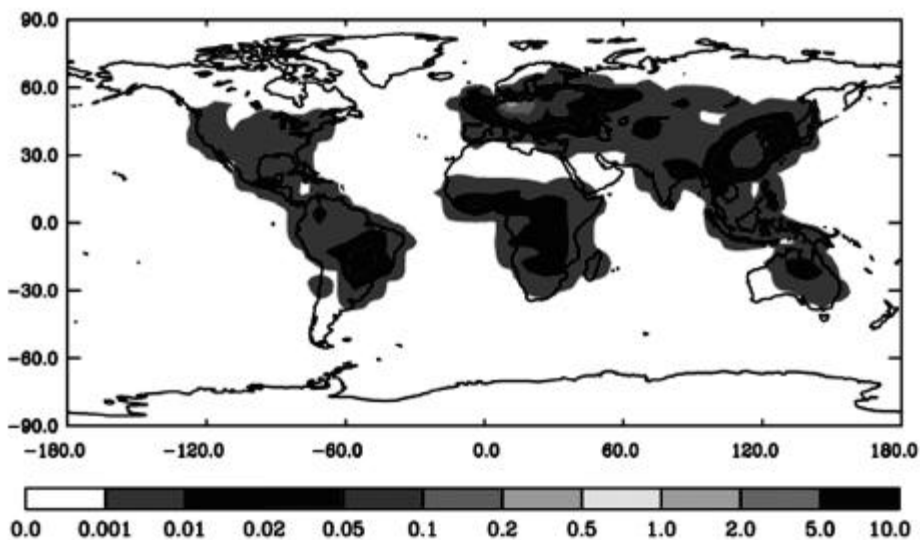


图 2 人为排放黑碳气溶胶全球年平均源强( $\text{kg}/(\text{km}^2 \cdot \text{h})$ )<sup>[1]</sup>

Fig. 2 Annual average source strength of global anthropogenic black carbon aerosol ( $\text{kg}/(\text{km}^2 \cdot \text{h})$ )<sup>[1]</sup>

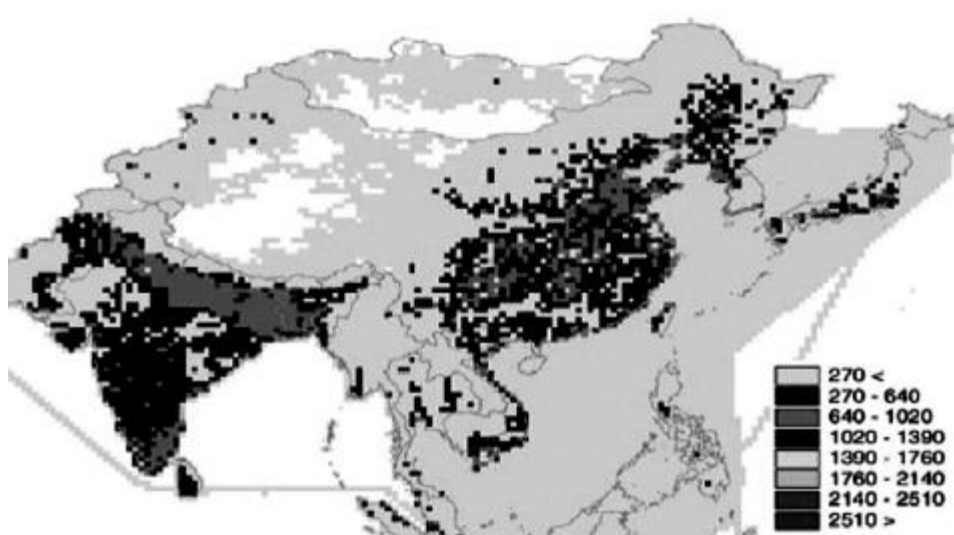


图 3 2000 年中国黑碳排放源分布( $\text{Mg}/\text{a}$ )<sup>[11]</sup>

Fig. 3 Black carbon emission distribution of China in 2000 ( $\text{Mg}/\text{a}$ )<sup>[11]</sup>

种途径。气溶胶粒子的干沉降通量定义为单位时间、表面积上沉积的气溶胶粒子的质量数,常用单位是  $\mu\text{g}/(\text{cm}^2 \cdot \text{s})$ 。气溶胶粒子的干沉降通量由重力沉降通量和向地面的湍流输送通量构成,前者取决于地表附近一定高度上气溶胶粒子的湍流扩散系数和气溶胶粒子的浓度梯度,后者取决于气溶胶粒子的降落速度和地表附近气溶胶粒子的浓度。气溶胶粒子的降落速度与粒子的大小、密度和形状有关。对于黑碳气溶胶细粒子,是湍流输送起主要作用。与微量气体类似,在实践中常用动量或热量的湍流扩散系数来近似地代替粒子的湍流扩散系数,通过测量确定不同高度上的平均风速、风速脉动值和气溶胶粒子浓度,就可以计算气溶胶粒子的湍流沉降速度。因此,气溶胶粒子的干沉降速率取决于粒子本身的属性、大气的状态和地表特征。按照 Kasten<sup>[13]</sup> 报告,在 5 km 高度,半径 1  $\mu\text{m}$  左右的粒子其沉降速度为 0.55 m/h,而天气尺度空气分子的沉降速度为 100.0 m/h。气溶胶的这一特征也使大气中的颗粒物可以通过大气环流向下游方向输送。

大气的湿清除过程分为雨冲刷和水冲刷两类。把最终形成降水的云的形成过程所造成的大气微量成分清除叫做雨冲刷,而把云底以下降落的雨滴对大气微量成分的清除叫做水冲刷。云一旦形成降水,它对大气成分的清除作用是雨冲刷和水冲刷共同起作用的结果。湿沉降过程能有效地清除所有尺度的可溶性粒子以及极小的和极大的不可溶粒子。实际上,我们对湿清除过程的机理和它们的量化还很难描述,通常用参数化的方式,Junge<sup>[14]</sup> 给出了雨冲刷清除过程的参数化:

$$k_1 = C * E / L \quad (1)$$

式中  $k_1$  是云水中吸收的颗粒物浓度,  $C$  是云所在位置颗粒物在云形成之前的质量浓度,  $L$  是云中液态水含量,  $E$  颗粒物清除效率。

综上所述,黑碳气溶胶是通过干、湿沉降过程从大气中消失的,其寿命比温室气体要短得多,且空间分布极不均匀,这正是黑碳及其他类气溶胶研究的困难之处。

### 3 黑碳气溶胶的大气浓度

黑碳气溶胶浓度的测量主要有光学和热学两种方法,光学方法通过黑碳吸收光辐射的原理,从光强的减弱程度来反演空气中黑碳的浓度。热学方法则先收集颗粒样品,在实验室加热到一定温度,通过测量释放出的碳来确定黑碳的浓度。除了以上两种比

较流行的测量方法,目前还有光—声和遥感测量方法,光—声学测量的原理是,在声波段,一个光脉冲频率重复照射在气溶胶粒子,其吸收光能的粒子会释放能量,加热空气,并使空气膨胀,继而产生声波,测量声波的振幅便可获得粒子的吸收量即粒子的浓度,这种方法主要的缺陷是分辨率低且设备费用昂贵,遥感测量方法主要是激光雷达和太阳光度计,其原理是通过反演颗粒物的复折射指数的虚部,推导粒子的吸收系数,从而得到黑碳粒子的浓度,这个测量方法的缺点是反演的精度不够和设备要求高。黑碳的光学仪器有美国加州玛基科学公司生产的全型号黑碳灰度仪,热学分析仪器有美国沙漠研究所研制的热光碳分析仪等。

20 世纪 90 年代以来,国际上开展了多项大规模的气溶胶观测实验,如北美地区的 RACE (Radiative Aerosol Characterization Experiment),大洋地区的 ACE-I (Aerosol Characterization experiment),欧洲和非洲地区的 ACE-II (Aerosol Characterization Experiment),印度的 INDOEX (Indian Ocean Experiment) 以及全球大气监测网 (GAW) 的观测项目,黑碳气溶胶都是实验中的重要观测和研究对象。

黑碳气溶胶的测量有全球或区域本底监测站和城市或乡村观测站两大类。我国最早系统地开展大气黑碳气溶胶浓度测量的要算全球大气本底观测站瓦里关,黑碳灰度计的测量从 1991 年 8 月开始。温玉璞等<sup>[15]</sup> 在全球本底大气监测站瓦里关测量的大气黑碳气溶胶浓度 1991—1995 年平均黑碳浓度为  $\sim 135 \text{ ng}/\text{m}^3$  (范围 70  $\sim 330 \text{ ng}/\text{m}^3$ ); 加拿大全球本底大气监测站 Alert 为  $\sim 70 \text{ ng}/\text{m}^3$ <sup>[16]</sup>; 澳大利亚全球本底大气监测站 Cape Grim  $\sim 15 \text{ ng}/\text{m}^3$ <sup>[17]</sup>; 爱尔兰 Mace Head 站的多数测量浓度  $< 100 \text{ ng}/\text{m}^3$ <sup>[18]</sup>; 南极海岸 McMurdo 站 1995 年 11 月至 1996 年 2 月平均的黑碳浓度为  $20 \text{ ng}/\text{m}^3$ <sup>[19]</sup>。按照汤洁等<sup>[20]</sup> 的报告,瓦里关大气黑碳气溶胶浓度 1994 年 7 月至 1995 年 12 月平均为  $130 \sim 300 \text{ ng}/\text{m}^3$ , 并呈现夏季低、冬春季高的季节变化特征。由此可见,位于内陆高原的瓦里关全球本底大气监测站较同类型监测站的测量值高。英国黑碳浓度 150 个站 1995—1998 年和 1998—2000 年平均值为 2.2 和 1.8  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  (从燃煤排放 BC 转变为柴油机排放 BC 为主)<sup>[17]</sup>; 博茨瓦纳污染轻微的乡村 1999 年冬季黑碳浓度  $0.99 \mu\text{g}/\text{m}^3$ <sup>[21]</sup>。瑞典 2000 年 3 月城市大气中黑碳浓度  $0.91 \mu\text{g}/\text{m}^3$ <sup>[21]</sup>。王庚辰等<sup>[22]</sup> 测量的 1996—2001 年间秋末冬初北京地区大气黑碳浓度

表 2 各地黑碳气溶胶的测量浓度  
Table 2 Concentration of Black carbon aerosol measurement in various regions

观测点	观测站的环境	观测时间	黑碳浓度( $\text{ng}/\text{m}^3$ )	文献
瓦里关	全球本底大气监测站	1991.08 ~1995.01	~135 (70 ~330)	[15]
		1994.07 ~1995.12	50 ~600	[20]
		1996—2000	56 ~660	[25]
Alert	加拿大全球本底站	1989—1990	~70 (0 ~300)	[16]
Cape Grim	澳大利亚全球本底站	1981—1987	~15	[17]
Mace Head	爱尔兰全球本底站	1998.04 ~09	27	
		1998.10 ~1999.03	90	[18]
		1999.04 ~09	155	
McMurdo	南极海岸	1995.11 ~1996.02	20	[19]
Barrow	美国全球本底站	1988—1993	1 ~300	
Mauna Loa	美国全球本底站	1990—1993	2 ~100	[26]
Amundsen Scott	美国南极极点站	1987—1990	0.02 ~50	
Jungfraujoch	瑞士 欧洲背景站	1995.07 ~1997.06 /	20 ~610 /80 ~720	[27]
		1998.07 ~08		
Kosan	韩国区域本底	1994—1997	80 ~430	[23]
浙江临安	区域本底	1991.09 ~11	2 300	[20]
		2000.08 ~2001.02	1 440 ~7 510	[25]
北京上甸子	区域本底	1999.09 ~2000.03	200 ~3 300	[25]
斯洛文尼亚	Krvavec 区域本底	1996—1997	150 ~450	[34]
La Reunion 岛	印度洋西南部海岛(法属)	2000.05	90 ~650	[29]
		1996—1998	270 ~650	[30]
Aspvreten	瑞典乡村站	1996.06 07	50 ~170	[27]
		1992.09 ~10	3 300	
北京	大气所气象铁塔	1996—1999 4 年的 10 ~11 月	25 600	[22]
		2000—2001 2 年的 10 ~11 月	15 900	
Seoul	韩国首都	1994	4 860 ~9 860	[23]
北京市区	城市 取暖期	1983	30 000	[24]
Halifax	加拿大城市	1995—1996	540 ~1 740	[31]
四川温江	郊区	1999—2000	1 800 ~12 100	
西藏拉萨	郊区	1998.06 ~10	300 ~4 800	[25]
广州	城市	2002 年夏季	5 900	[32]
西安	城市	2003.09 ~2004.04	500 ~101 300	[33]
连云港	城市	2003 年夏季	3 800	
通辽	科尔沁沙地边缘	2003 年夏季	2 000	[34]
英国	150 个站平均	1995—1998	2 200	
		1998—2000	1 800	[7]
美国	Mount Gibbs 美国东南代表区	1980 's	1 000	
		1997, 1998 年冬季	28.1 ~107.4	
		1998.05	375.0	[35]
		1998.06	103.3 ~327.4	
芬兰	首都赫尔辛基	1996.11 ~1997.06	1 000 ~1 500	[36]
巴西	Sao Paulo 城市	1998.01 ~03	4 100	[37]
		1997.06 ~09	7 600	
印度	Hyderabad 城市	2003.01 ~07	旱季 500 ~68 000	
			雨季 500 ~45 000	[38]
斯洛文尼亚	Ljubljana 城市	1990—1991	100 ~500	[39]
肯尼亚	Nairobi 首都	2000.03	2 300	[40]

平均为  $22.37 \mu\text{g}/\text{m}^3$  ( $0.61 \sim 72.48 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ) 他们将这段时间段的黑碳浓度作为北京的背景浓度, 因为还

没有进入北京的取暖期。韩国汉城 1994 年的黑碳浓度为  $4.86 \sim 9.86 \mu\text{g}/\text{m}^3$  [23]。北京 1983 年冬季取

暖期平均黑碳浓度可达  $30 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 。测量数值表明,中国大气黑碳浓度稍高于国外同类型站,严格地说,这些数据不能做绝对比较,因为测量时间和测量的设备不同,但是,数值的大小还是能说明一些问题。众所周知,中国是一个燃煤大国,另一方面,中国是一个经济快速发展的国家,人类活动如交通和生物质燃烧排放的黑碳较国外高。表2列出了收集到的全球/区域本底或城市/乡村站的黑碳浓度。由表2可以看出,大气中黑碳浓度的变化范围很大,同一站浓度因时间不同也有量级之差,这主要与排放源的输送、气象条件等因素有关。

大气中黑碳浓度明显受城市交通的影响,芬兰的测量结果<sup>[36]</sup>显示,上班日BC  $1.5 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ,周六  $1.38 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ,周日和国假  $1.0 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ;上班高峰时  $2.7 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ;下班高峰时  $1.9 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 。他们进一步分析了黑碳气溶胶浓度来源及输送,其中长距离输送有  $0.4 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ,其余为本地源;BC 占总细粒子 19%。印度 2003 年 1~7 月 Hyderabad 市也呈现出类似的结果<sup>[33]</sup>,工作日高于周末;上、下班高峰时是下午时分的 2 倍;并且雨季和旱季分别为  $0.5 \sim 45$  和  $0.5 \sim 68 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ,显示出雨冲刷的作用。Kleefeld 等<sup>[18]</sup>测量了 Mace Head 站 1998 年 4 月至 1999 年 9 月的黑碳浓度,将这 1 年半的资料分成 3 个时间段:4~9 月作为夏季,9~3 月作为冬季,2 年的夏季又分别试验清洁的海洋气溶胶样品和海洋/陆地交替的气溶胶样品,分析其浓度并给出黑碳占总有机碳的比例,浓度见表 2 中数值,它们占总有机碳的比例分别为 4%、28% 和 22%,同样是 4~9 月,1998 年和 1999 年黑碳的浓度和占总碳的份额有很大的差别(4% 和 22%)。这是海洋和海洋/陆地气溶胶受排放源影响带来的差别。王庚辰等<sup>[22]</sup>给出的 1996—1998 年、2000—2001 年黑碳气溶胶浓度的日变化,其特征为 7~10 时、20~24 时浓度明显高于下午时分(13~16 时),并认为浓度与人类活动和气象条件(逆温层等)有关。

图 4 是王庚辰等<sup>[22]</sup>从 1992 年、1996—2001 年日平均黑碳浓度推算的年平均浓度及其年际变化,图中显示北京大气中黑碳浓度从 21 世纪有了明显的减少,这可能与北京冬季取暖从燃煤改为燃天然气等一些能源结构的变化有一定的关联。

黑碳气溶胶浓度的垂直分布至今没有看到测量结果,有一些模式的模拟,模式垂直分布的初始值是根据地面浓度随高度指数衰减,其后由模式的扩散、湍流系数算得。目前,水平、垂直的扩散和湍流模拟

得很粗糙,通常在一定的大气层取一平均值。如朱厚玲<sup>[41]</sup>的模式,水平扩散系数取  $45 \text{ m}^2/\text{s}$ ,垂直湍流扩散系数 1 km 以下取  $10 \text{ m}^2/\text{s}$ ,1 km 以上取  $12 \text{ m}^2/\text{s}$ ,由于她的模式中垂直分层不是等间距,近地面层薄,上层厚,模拟获得对流层 1~5.5 km 黑碳浓度比近地面低很多,然而季节变化很明显,输送的作用更大。吴润等<sup>[12]</sup>模拟了对流层近 5 年东亚春季黑碳气溶胶的分布和输送,发现 850~700 hPa 大气层是黑碳主要的输送层,中国 25°N 以南受中南半岛生物质燃烧排放的影响,同时,从越南、泰国、缅甸东部的输送影响广西、广东、香港等地,并继续向东影响台湾南部后进入太平洋。

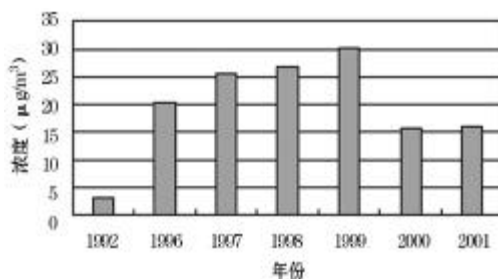


图 4 北京大气中黑碳粒子年平均浓度的变化(1992 年,1996—2001 年)<sup>[22]</sup>

Fig.4 Annual variation of black carbon concentration in Beijing (1992, 1996-2001)

中国科学院广州地球化学研究所对我国南沙海域的海底沉积物进行提取<sup>[42]</sup>,分析了 17962 柱样品 32 ka 年以来的沉积记录,结果表明:柱状沉积物中的黑碳含量平均为 0.098%,变化范围为 0.022%~0.325%,在总有机碳中占 14.7%,范围为 3.1%~44.6%。

贾国东等<sup>[43]</sup>分析了南沙海区末次冰期以来黑碳的沉积记录,发现黑碳的长期堆积速率有明显的变化且有规律,在 10 ka BP 以前的末次冰期中,黑碳的堆积速度较高,平均为  $0.0203 \text{ g}/(\text{cm}^2 \cdot \text{ka})$ ;在末次冰期的间冰期,黑碳的堆积速度较低;而在 18 ka 的盛冰期黑碳的堆积速度明显偏高,信息还表明,该时期火灾发生频繁,这些数据说明黑碳气溶胶的浓度与气候有明显的相关。沉积物中黑碳同位素的分析表明:在冰期或全新世期间,我国南海海底沉积物的黑碳的前体物中草本植物为主,木本植物的贡献不大。

#### 4 不确定性

黑碳气溶胶研究中的不确定性非常大,本文所

涉及到的黑碳源、汇和大气浓度是黑碳气溶胶研究的基础,它们的不确定性直接影响到其后的研究。如上所述,黑碳气溶胶的排放是根据实验室测量的化石燃料和生物质燃料燃烧排放获得其排放因子的,由于燃烧过程排放的黑碳粒子比较低,测量精度的要求比较高,具备这样条件的实验室还很有限,所以估算排放量时,只能用有限的排放因子来估算,生物质燃烧的排放因子不确定性更大,因为生物质燃烧可以是木本或草本植物等,它们又受气象条件的影响比较大,所以将实验室获得的排放因子推广到实际大气中会有误差。如 Streets 等<sup>[10]</sup>估算的中国黑碳气溶胶排放用的是北美 80 年代的排放因子,由于使用的燃烧器具和燃烧条件不尽相同,用他们的排放因子计算中国的排放肯定存在误差,Streets 也承认存在很大的不确定性。他提出,他们估算的黑碳排放量中间值(1 342.0 Gg)与最大值(10 720.4 Gg)之间可以相差近 8 倍,尽管其不确定性大得惊人,但是相关的人员还是用他的结果,因为我们没有这方面的资料。黑碳气溶胶的垂直分布更是无从知晓,只是假设其随高度指数衰减,继而由大气的扩散、传输获得时间、空间点的值,其中的误差不言自明。

大气的干、湿沉降是黑碳气溶胶的汇,在干、湿沉降中沉降速率是其关键,然而,目前的模式研究中简单地取均值,不随时间和空间变化。无疑,这会带来误差,黑碳气溶胶源、汇的不确定性将随着测量技术的改进而减小。

黑碳气溶胶浓度测量方法本身也存在误差,难点在于气溶胶中的有机和无机成分的分离,其次,收集颗粒样品,样品膜上的颗粒物会脱落,这样的分析结果代表实际大气的状况是否具有很好的代表性,况且,黑碳在大气中的浓度本身就是—个非常不均匀的量,而不同的测量技术如光学和热测量技术也会带来不一致,热测量方法中存在有机物高温分解及其它气溶胶干扰带来的误差<sup>[44,45]</sup>。而光学方法最大的问题是将光吸收信号转换为黑碳浓度并没有普遍适用的标准<sup>[46]</sup>,因为吸收特性与粒子的年龄、尺度分布等有关,此外,少数吸收光辐射的沙尘和土壤颗粒以及颗粒的后向散射也会引入到光衰减量中。理论上,两种测量方法应该有较好的线性相关,但不同站点需要设置不同的衰减系数才能使两种方法测量的黑碳浓度比较一致<sup>[46,47]</sup>。也有一些研究显示光学和热学测量方法的结果有较大的差异<sup>[48]</sup>。所以,准确测量黑碳气溶胶也有待于科学和测量技

术水平的进一步提高。

## 5 结 语

综上,黑碳气溶胶有较多不确定的因子,最近几年有很多该领域的工作,旨在提高和改进对黑碳气溶胶的认知水平。中国在这方面的研究还很有限,尤其在源排放和大气浓度的测量方面。受测量设备的限制,中国只有几个站(如瓦里关大气本底站、临安区域本底站、北京市、西安市等)进行黑碳浓度的测量,并且除了瓦里关大气本底站是连续测量外,其它站大多是受项目的资助,与项目共生存,这与我国辽阔的疆域不太相称,更不能满足研究的需求。中国黑碳气溶胶一直受到国外学者的密切关注,因为中国大气黑碳气溶胶的浓度比同纬度同类型站的测量值高,而黑碳气溶胶的气候效应又是非常敏感的气候变化课题,然而,中国科学家也只能听凭外国科学家对中国黑碳气溶胶的评述而无言以对。这迫切需要我们做工作,从测量到模式模拟,以期了解中国黑碳气溶胶排放和浓度以及我们在减少黑碳排放方面所能做的工作。

## 参考文献(References):

- [1] IPCC. Third Assessment Report, Climate Change 2001: The Scientific Basis[R]. New York: Cambridge University Press, 2001.
- [2] Xu Li, Okada K, Zhang Peng, et al. An observational study of physical and chemical characteristics of atmospheric aerosol particles from late Spring to early Autumn over the Beijing area[J]. Chinese Journal of Atmospheric Sciences, 2002, 26(3): 401-411. [许黎,冈田菊夫,张鹏,等.北京地区春末—秋初气溶胶理化特性的观测研究[J].大气科学,2002,26(3):401-411.]
- [3] Smith D M, Griffin J J, Goldberg E D. Elemental carbon in marine sediments: A baseline for burning[J]. Nature, 1973, 241: 268-270.
- [4] Masiello C A, Druffel E R M. Black carbon in deep-sea sediments[J]. Science, 1998, 280: 911-913.
- [5] Zhang Lisheng. The Simulation and Estimation of the Radiation Effects of Sulfate and Soot Aerosol[D]. Beijing: Institute of Atmospheric Physics, Chinese Academy of Sciences, 1999. [张立盛.硫酸盐和烟尘气溶胶辐射强迫的模拟和估算[D].北京:中国科学院大气物理研究所,1999.]
- [6] Dentener G, Ryall D B, Jennings S G, et al. Black carbon aerosol and carbon monoxide in European regional polluted air mass at Mace Head, Ireland during 1995-1998[J]. Atmospheric Environment, 2001, 35: 6371-6378.
- [7] Novakov T, Hansen J E. Black carbon emissions in the United Kingdom during the past four decades: An empirical analysis[J]. Atmospheric Environment, 2004, 38: 4155-4163.
- [8] Reddy M S, Venkataram A C. Inventory of aerosol and sulphur di-

- oxide emissions from India : - Fossil fuel combustion [ J ]. *Atmospheric Environment* , 2002 , 36 : 677-697 .
- [ 9 ] Reddy M S , Venkataran C . Inventory of aerosol and sulphur dioxide emissions from India : - Biomass combustion [ J ]. *Atmospheric Environment* , 2002 , 36 : 699-712 .
- [ 10 ] Streets D G , Gupta S , W aldhoff S T , et al . Black carbon emissions in China [ J ]. *Atmospheric Environment* , 2001 , 35 : 4 281-4 296 .
- [ 11 ] Streets D G , Bond T C , Carmichael G R , et al . An inventory of gaseous and primary aerosol emissions Asia in the year 2000 [ J ]. *Journal of Geophysical Research* , 2003 , 108 ( D21 ) : 809 .
- [ 12 ] Wu Jian , Fu Congbin . Simulation research of distribution transportation and radiative effects of black carbon aerosol in recent five spring season over East Asia region [ J ]. *Chinese Journal of Atmospheric Sciences* , 2005 , 29 ( 1 ) : 111-119 . [ 吴涧, 符淦斌. 近五年来东亚春季黑碳气溶胶分布输送和辐射效应的模拟研究 [ J ]. *大气科学* , 2005 , 29 ( 1 ) : 111-119 . ]
- [ 13 ] Kasten F . Falling speed of aerosol particles [ J ]. *Journal of Applied Meteorology* , 1968 , 7 : 944-947 .
- [ 14 ] Junge C E . *Air Chemistry and Radioactivity* [ M ]. New York : Academic Press , 1963 .
- [ 15 ] Wen Yupu , Xu Xiaobin , Tang Jie , et al . Element characteristics and sources of the atmospheric aerosol in Waiguan , Qinghai province [ J ]. *Journal of Applied Meteorological Science* , 2001 , 12 ( 4 ) : 400-408 . [ 温玉璞, 徐晓斌, 汤洁, 等. 青海瓦里关大气气溶胶元素富集特征及其来源 [ J ]. *应用气象学报* , 2001 , 12 ( 4 ) : 400-408 . ]
- [ 16 ] Hopper J F , W oolhy D E J , Barrie L A , et al . Atmospheric observations of aerosol black carbon , carbon-dioxide , and methane in the high Arctic [ J ]. *Atmospheric Environment* , 1994 , 28 : 3 047-3 054 .
- [ 17 ] Heintzenberg J , Bigg E K . Tropospheric transport of trace substances in the Southern hemisphere [ J ]. *Tellus* , 1990 , 42B : 355-363 .
- [ 18 ] Kieffer S , Hoffer A , Krivacsy Z , et al . Importance of organic and black carbon in atmospheric aerosols at Mace Head , on the West Coast of Ireland ( 53°11'00"N , 9°15'40"W ) [ J ]. *Atmospheric Environment* , 2002 , 36 : 4 479-4 490 .
- [ 19 ] Hansen A D A , Lowenthal D H , Chow J C , et al . Black carbon aerosol at McMurdo station , Antarctica [ J ]. *Journal of Air and Waste Management Association* , 2001 , 51 ( 4 ) : 593-600 .
- [ 20 ] Tang Jie , Wen Yupu , Zhou Lingxi . Observation research of the black carbon aerosol in clean atmosphere regions of western China [ J ]. *Journal of Applied Meteorological Science* , 1999 , 10 ( 2 ) : 160-169 . [ 汤洁, 温玉璞, 周凌曦. 中国西部大气清洁地区黑碳气溶胶的观测研究 [ J ]. *应用气象学报* , 1999 , 10 ( 2 ) : 160-169 . ]
- [ 21 ] Moloi K , Chimidza S , Lindgren E S , et al . Black carbon , mass and elemental measurements of airborne particles in the village of Serowe , Botswana [ J ]. *Atmospheric Environment* , 2002 , 36 : 2 447-2 457 .
- [ 22 ] Wang Gengchen , Kong Qinxin , Ren Lixin , et al . Black carbon aerosol and its variations in the urban atmosphere in Beijing area [ J ]. *The Chinese Journal of Process Engineering* , 2002 , 2 ( suppl ) : 284-288 . [ 王庚辰, 孔琴心, 任丽新, 等. 北京地区大气中的黑碳气溶胶及其变化 [ J ]. *过程工程学报* , 2002 , 2 ( 增刊 ) : 284-288 . ]
- [ 23 ] Kim Y P , Moon K C , Lee J H . Organic and elemental carbon in the fine particles at Kosan , Korea [ J ]. *Atmospheric Environment* , 2000 , 34 : 3 309-3 317 .
- [ 24 ] Su Weihan , Zhang Qiupeng , Song Wenzhi , et al . Atmospheric soot aerosol research in coal-burning areas [ J ]. *Environmental Chemistry* , 1985 , 4 ( special issue ) : 134-136 . [ 苏维翰, 张秋彭, 宋文质, 等. 燃煤地区大气气溶胶烟炱的研究 [ J ]. *环境化学* , 1985 , 4 ( 专辑 ) : 134-136 . ]
- [ 25 ] Qin Shiguang , Tang Jie , Wen Yupu . Black carbon and its importance in climate change studies [ J ]. *Meteorology* , 2001 , 27 ( 11 ) : 3-7 . [ 秦世广, 汤洁, 温玉璞. 黑碳气溶胶及其在气候变化研究中的意义 [ J ]. *气象* , 2001 , 27 ( 11 ) : 3-7 . ]
- [ 26 ] Bodhaine B A . Aerosol absorption measurements at Barrow , Mauna Loa and the south pole [ J ]. *Journal of Geophysical Research* , 1995 , 100 ( D5 ) : 8 967-8 975 .
- [ 27 ] Krivacsy Z , Hoffer A , Sarvari Z , et al . Role of organic and black carbon in the chemical composition of atmospheric aerosol at European background sites [ J ]. *Atmospheric Environment* , 2001 , 35 : 6 231-6 244 .
- [ 28 ] Bizjak M , Turic J , Lenjak M , et al . Aerosol black carbon and ozone measurements at Mt. Kravec EMEP / GAW station , Slovenia [ J ]. *Atmospheric Environment* , 1999 , 33 : 2 783-2 787 .
- [ 29 ] Bhugwant C , Braud P . Simultaneous measurements of black carbon , PM<sub>10</sub> , ozone and NO<sub>x</sub> variability at a locally polluted island in the Southern Tropics [ J ]. *Journal of Atmospheric Chemistry* , 2001 , 39 : 261-280 .
- [ 30 ] Bhugwant C , Cachier H , Bessafi M , et al . Impact of traffic on black carbon aerosol concentration at a Réunion Island ( Southern Indian Ocean ) [ J ]. *Atmospheric Environment* , 2000 , 34 : 3 463-3 473 .
- [ 31 ] Chylek P , Videen D , Ngo R G , et al . Effect of black carbon on the optical properties and climate forcing of sulfate aerosol [ J ]. *Journal of Geophysical Research* , 1995 , 100 : 3 25-3 32 .
- [ 32 ] Cao JJ , Lee SC , Ho K F , et al . Spatial and seasonal variations of atmospheric organic carbon and elemental carbon in Pearl River Delta Region , China [ J ]. *Atmospheric Environment* , 2004 , 38 : 4 447-4 456 .
- [ 33 ] Li Yang , Cao Junji , Zhang Xiaoyi , et al . Variability of black carbon aerosol over Xian atmosphere [ J ]. *The Chinese Journal of Process Engineering* , 2004 , 4 ( suppl ) : 742-749 . [ 李杨, 曹军骥, 张小曳, 等. 西安大气中黑碳气溶胶的演化特征 [ J ]. *过程工程学报* , 2004 , 4 ( 增刊 ) : 742-749 . ]
- [ 34 ] Zhang X Y , Wang Y Q , Wang D , et al . Characterization and sources of regional-scale transported carbonaceous and dust aerosols from different pathways in coastal and sandy land areas of China [ J ]. *Journal of Geophysical Research* , 2005 , 110 : D1501 , doi:10.1029/2004JD005457 .



- [ 35 ] Im J-S, Saxena V K, Wenny B N. Temporal trends of black carbon concentrations and regional climate forcing in the southeastern United States [ J ]. *Atmospheric Environment*, 2001, 35 : 3 293-3 302.
- [ 36 ] Pakkanen T A, Kerminen V-M, Ojanen C H, et al. Atmospheric black carbon in Helsinki [ J ]. *Atmospheric Environment*, 2000, 34 : 1 497-1 506.
- [ 37 ] Castanho Andrea D A, Artaxo P. Wintertime and summertime São Paulo aerosol source apportionment study [ J ]. *Atmospheric Environment*, 2001, 35 : 4 889-4 902.
- [ 38 ] Latha K M, Badarinarth K V S. Black carbon aerosols over tropical urban environment—A case study [ J ]. *Atmospheric Research*, 2003, 69 : 125-133.
- [ 39 ] Bizjak M, Cigler R, Hansen A D A, et al. Diurnal concentrations of black carbon and some other air pollutants in Ljubljana, Slovenia [ J ]. *Atmospheric Environment*, 1993, 27A : 1 347-1 350.
- [ 40 ] Gatari M J, Boman J. Black carbon and total carbon measurements at urban and rural sites in Kenya, East Africa [ J ]. *Atmospheric Environment*, 2003, 37 : 1 149-1 154.
- [ 41 ] Zhu Houling. The Study on the Temporal and Spatial Distribution of Black Carbon Aerosol in China [ D ]. Beijing: Chinese Academy of Meteorological Sciences, 2003. [ 朱厚玲. 我国地区黑碳气溶胶时空分布研究 [ D ]. 北京: 中国气象科学院, 2003.]
- [ 42 ] Hu Jianfang, Jia Guodong, Peng Ping'an, et al. Reconstruction of surface ocean water pCO<sub>2</sub>(aq) in Nansha area, the South China Sea during the last 30 ka [ J ]. *Chinese Science Bulletin*, 2003, 48(2) : 199-203. [ 胡建芳, 贾国东, 彭平安, 等. 30ka 来南沙海区表层水的 PCO<sub>2</sub> 记录 [ J ]. *科学通报*, 2003, 47(21) : 1 667-1 670.]
- [ 43 ] Jia Guodong, Peng Ping'an, et al. Sheng Guoying. The sedimentary records of black carbon in Nansha sea area since the last glaciation [ J ]. *Chinese Science Bulletin*, 2000, 45(17) : 1 594-1 596. [ 贾国东, 彭平安, 盛国英, 等. 南沙海区末次冰期以来黑碳的沉积记录 [ J ]. *科学通报*, 2000, 45(6) : 646-650.]
- [ 44 ] Martins J V, Artaxo P, Lioussé C, et al. Effects of black carbon content, particle size, and mixing on light absorption by aerosols from biomass burning in Brazil [ J ]. *Journal of Geophysical Research*, 1998, 103(D24) : 32 041-32 050.
- [ 45 ] Reid J S, Hobbs P V, Lioussé C, et al. Comparisons of techniques of measuring shortwave absorption and black carbon content of aerosols from biomass burning in Brazil [ J ]. *Journal of Geophysical Research*, 1998, 103 : 32 031-32 040.
- [ 46 ] Lioussé C, Cachier H, Jennings S G. Optical and thermal measurements of black carbon aerosol content in different environments: Variation of the specific attenuation cross-section, sigma (s) [ J ]. *Atmospheric Environment*, 1993, 27A : 1 203-1 211.
- [ 47 ] Babich P, Davey M, Allen G, et al. Method comparisons for particulate nitrate, elemental carbon, and PM<sub>2.5</sub> mass in seven US cities [ J ]. *Journal of Air and Waste Management Association*, 2000, 50(7) : 1 095-1 105.
- [ 48 ] Hiltzenberger R, Jennings S G, Larson S M, et al. Intercomparison of measurement methods for black carbon aerosols [ J ]. *Atmospheric Environment*, 1999, 33 : 2 823-2 833.

## Progress of Black Carbon Aerosol Research I :

### Emission, Removal and Concentration

XU Li<sup>1</sup>, WANG Ya-qiang<sup>2</sup>, CHEN Zhen-lin<sup>3</sup>, LUO Yong<sup>1</sup>, REN Wan-hui<sup>4</sup>

(1. Laboratory for Climate Studies, China Meteorological Administration, Beijing 100081, China; 2. Centre for Atmosphere Watch and Services, Chinese Academy of Meteorological Sciences, Beijing 100081, China; 3. China Meteorological Administration, Beijing 100081, China; 4. Shenyang Environment Monitoring Center, Shenyang 110016, China)

**Abstract:** Black carbon (BC) aerosol recently is a very active research topic, because it has similar effect to global climate warming with green house gases due to its ability of absorbing solar and atmospheric radiation. The emission and concentration of BC aerosol in China are higher than those in other regions of the same latitude. Therefore, more attention has been paid to the BC aerosol in China by scientists than in other countries. The recent progress of BC aerosol research is presented in the two review papers due to length limitation. The emission, removal and concentration of BC aerosol are described in this paper, and the climate effect and developing research domain are discussed in our companion paper. The emission amount of China in 2000 was 1 050 Gg, which is lower than 1 342 Gg in 1995. The reduction in BC emission can be resulted partly due to energy change, including larger use of gas rather than raw coal. The atmospheric concentration of BC in cities was a little higher than in the cities overseas, such as in Beijing (3.3 ~ 25.6 μg/m<sup>3</sup>), Xian (0.5 ~ 101.3 μg/m<sup>3</sup>), etc. The BC concentration in the sediments from the South China Sea is also shown. In the present paper, we compare and analyze the emission and concentration of BC among China and other regions of the world, and the uncertainty in BC aerosol research is also discussed.

**Key words:** Black carbon aerosol; Emission; Cleanup; Concentration.