

近 20 年中国近海和海岸带大气黑碳干湿沉降及源解析

冯辰龙^{1,5}, 邢建伟^{1,2,3,4}, 袁华茂^{1,2,3,4}, 宋金明^{1,2,3,4}, 李学刚^{1,2,3,4}, 马骏^{1,2,4}

(1. 中国科学院海洋生态与环境科学重点实验室, 中国科学院海洋研究所, 山东 青岛 266071; 2. 青岛海洋科学与技术试点国家实验室海洋生态与环境科学功能实验室, 山东 青岛 266237; 3. 中国科学院大学, 北京 100049; 4. 中国科学院海洋大科学研究中心, 山东 青岛 266071; 5. 青岛科技大学化学与分子工程学院, 山东 青岛 266061)

摘要: 作为一种在大气中普遍存在的碳质气溶胶成分, 黑碳因可对生态环境产生深远影响而备受关注。对海洋大气黑碳沉降的深入认识有助于进一步明确海洋碳循环过程。目前对中国近海和海岸带大气黑碳沉降的研究工作少且零散, 相关研究数据不足以探求其规律。对该区域近 20 年来已报道的大气黑碳数据进行系统梳理和再分析, 利用整合的数据集成估算沉降通量并分析其空间分布特征, 最后评述了目前黑碳的源解析方法并评估了该区域大气黑碳的来源, 对未来近海大气黑碳研究作了展望。结果表明: ①中国近海和海岸带陆域大气黑碳浓度平均值分别约为 1.95 ± 1.28 和 $5.05 \pm 2.62 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$, 具有显著的人为污染特征, 由北向南, 海岸带陆域黑碳浓度近似呈“V”形分布, 最低值位于南黄海沿岸, 而近海区则大致呈递减趋势; ②中国近海和沿海陆域大气黑碳的总沉降通量分别为 413.2 ± 137.1 和 $1422.7 \pm 721.1 \text{mg} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{a}^{-1}$, 以湿沉降为主, 南北差异明显, 主要受控于降水过程和陆源排放强度; 我国近海黑碳大气沉降量可占全球海洋黑碳总沉降量的 16%; ③化石燃料源贡献了中国海岸带大气黑碳总排放量的 62%~84%, 因此, 应注重从减少化石燃料源使用的角度控制大气黑碳污染。今后, 应注重不同源解析方法间的集成和互校, 并加强黑碳在地球不同储库间的迁移、转化和埋藏机制研究。近海和海岸带大气环境中的黑碳有着多方面的影响, 其沉降入海并以惰性形式埋藏对增强海洋碳汇有着重大意义。

关键词: 大气黑碳浓度; 中国近海和海岸带; 空间分布; 沉降通量; 源解析

中图分类号: P79 **文献标识码:** A **文章编号:** 1000-3096(2023)2-0071-15

DOI: 10.11759/hyxx20221024001

大气气溶胶是由固体或液体小质点等颗粒物分散并悬浮在大气中形成的多相体系, 其化学组分异常复杂。碳质气溶胶是大气气溶胶的重要组成部分, 主要由有机碳、黑碳(或元素碳)和碳酸盐组成, 其中黑碳(Black Carbon, BC)(或元素碳, EC)是含碳物质不完全燃烧的产物, 是一类从焦化物质到木炭再到烟炱的连续统一体^[1], 目前尚无明确统一的定义。人们对黑碳的认识始于 20 世纪 50 年代的伦敦烟雾事件^[2]。“黑碳”一词最初由 Novakov 提出^[3], 当时定义为燃烧产生的具有石墨态结构的黑色颗粒碳。由于近代以来工业文明的快速发展, 人们在生产和生活中排放了大量的黑碳, 继而在全球范围的传输下广泛存在于大气、土壤、沉积物、水体、冰雪等自然环境中^[4], 这使它成为全球碳循环中的一种重要物质形式。黑碳具有的高熔点、强吸光性和生物化学惰性性质也使得黑碳成为相关专业科学工作者关

注的焦点。相比于有机碳, 黑碳可以吸收从紫外到红外波段的辐射, 从而降低大气能见度; 同时, 黑碳具有的辐射强迫效应使之成为导致温室效应的重要物质之一^[5-6]。黑碳还可以作为云凝结核通过影响云的形成、存在时间和云层厚度等影响降水^[7-8], 改变局部地区的天气和气候, 导致气候变暖和极端天气频

收稿日期: 2022-10-24; 修回日期: 2022-12-07

基金项目: 山东省自然科学基金项目(ZR2019BD068); 国家自然科学基金项目(41906035); 中国科学院海洋研究所“汇泉青年学者”人才项目; 中国博士后科学基金(2019T120613)

[Foundation: Project supported by the Shandong Province Natural Science Foundation, No. ZR2019BD068; The National Natural Science Foundation of China, No. 41906035; The “Huiquan Young Scholar” Talent Program supported by the Institute of Oceanology, Chinese Academy of Sciences; China Postdoctoral Science Foundation, No. 2019T120613]

作者简介: 冯辰龙(2000—), 男, 山东菏泽人, 硕士研究生, 主要从事近海大气黑碳沉降研究, E-mail: 2113130048@qq.com; 邢建伟(1988—), 通信作者, 男, 河南安阳人, 特聘研究员, 博士, 主要从事海洋大气环境化学与海洋生物地球化学研究, E-mail: jwxing@qdio.ac.cn

发。黑碳还具多孔结构,有较强的吸附作用,在大气环境中能吸附其他污染物并作为其催化剂加快二次污染物的生成^[9]。此外,黑碳本身也是一种大气污染物,会对人类健康构成威胁,长期接触可引发心血管疾病和肺功能障碍等^[10-11]。黑碳因可对气候、生态环境和人类健康构成巨大威胁而引起人们的高度关注,同时黑碳具有的生物化学惰性使其在自然界中保存万年以上。在海洋沉积物中埋藏的黑碳在短时间尺度上可视作离开了海洋碳循环体系,这一行为降低了大气中的碳含量,减少了对气候和环境的影响。因此,亟待厘清大气黑碳的来源、丰度和沉降特征以寻求控制生态环境恶化的方法。

全球近海和海岸带区域是黑碳研究的热点区域。海岸带区域是全球人口密集区,也是大气黑碳的主要排放源区。近海大陆架是包括黑碳在内大多数陆源物质的汇,从陆地输入的80%的物质沉积于此,因此,探究黑碳在此区域的行为对黑碳的研究以及全球碳循环都有着非同寻常的意义^[12]。中国近海和海岸带区域是世界两大入海沙尘之一的亚洲沙尘及其裹挟的人为大气污染物进入太平洋的必经之地,中国东部沿海地区又是全球黑碳最重要的贡献源之一^[13],因而对该区域大气黑碳的全面认识是十分必要的。

近20年来,随着人们对黑碳的重视程度不断加深,中国部分重点海岸带陆域站点(如上海、广州)已有针对大气黑碳较为全面的研究工作,但多数站点仅有较短时间段的监测数据,在时间分布上无连续性,且多为对大气颗粒物中物质组成研究的附属观测(即并未将其作为主要观测指标)。另外,对于近海区域的大气黑碳,因受客观条件的限制,相关的研究更是少之又少,尤其是关于大气黑碳的干湿沉降通量方面。因此,目前对于中国近海和海岸带区域大气黑碳的认识极为缺乏系统性和全面性。在此基础上,本文系统梳理和总结近20年来对中国近海和海岸带区域大气黑碳浓度的报道,对此区域的大气黑碳浓度数据予以集成处理和再分析,尝试探究中国近海和海岸带大气总悬浮颗粒物(TSP)中黑碳的浓度和干湿沉降通量,并阐明其空间分布规律,在此基础上首次评估了我国近海大气黑碳沉降对全球海洋大气沉降黑碳储库的贡献,并综述了目前海岸带区域大气黑碳源解析的研究进展,最后对未来大气黑碳的研究提出展望。研究结果可明晰中国近海和海岸带区域大气黑碳的丰度、干湿沉降特征及碳汇

意义,明确近海和海岸带大气黑碳的主要来源,加深对气溶胶中黑碳的全面认识和对全球碳循环过程的理解,并对针对性开展大气黑碳污染防治提供指导建议。

1 中国近海和海岸带大气黑碳浓度及其空间分布特征

1.1 大气黑碳的浓度特征

我国对大气黑碳的监测始于20世纪80年代,我国科学家开展了对北京、上海等大城市大气黑碳浓度的短期观测^[14]。90年代之后,对大气黑碳的研究驶入了快车道,对黑碳的观测也不仅限于城市站点,在西部地区和部分海洋、海岛站点等也开展了相应的监测。特别是我国第一个全球大气本底基准站瓦里关山观象台的建立和对黑碳气溶胶的持续观测,为大气黑碳浓度特征的探究提供了可以参考的基准数据。对于近海区域的大气黑碳,汤洁等^[15]和赖鑫等^[16]分别在中国第三次和第四次北极科考航线中观测得到南黄海和黄东海区域的大气黑碳质量浓度分别为0.32和1.03 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$,高出北极地区浓度值近百倍,显示出陆源输送是影响海洋大气黑碳浓度的关键因素。2012年,杜丽等^[17]对西沙永兴岛细颗粒物($\text{PM}_{2.5}$)中的黑碳进行了短期观测,得出其大气黑碳浓度值平均约为0.6 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 。这些研究都为深入认识我国近海大气黑碳的特征和制定区域环境保护对策提供了数据支撑和科学依据。经过近几十年的探索和发展,目前已有不少关于我国海岸带区域大气黑碳浓度的研究,特别是在北京、南京、上海和广州等大城市,均开展了较为全面的监测。尽管如此,这些研究结果多为单个孤立的数据和结论,缺乏时间上的连续性和空间上的相关性,从而为探究其中更深层次的地球化学规律带来了诸多不便,也极大地限制了这些研究成果的价值体现和进一步应用。为此,本文汇总了近20年来我国近海和海岸带近30个站点大气黑碳观测数据,探究大气黑碳浓度在我国近海和海岸带的空间分布规律。为便于统计,同时结合目前文献中已报道的站点,将中国海岸带划分为环渤海区域、南黄海沿岸、长江三角洲、台湾海峡沿岸、南海北部沿岸5个区域。在中国近海,则根据已有的报道,划分为渤海(砵矶岛、长岛)和南黄海、东海(小洋山)以及南海北部(西沙永兴岛)等区域。数据处理方面,由于各站点报道的数据时间跨度不一,对于多年份

的报道结果,取多年平均值。此外,本文要探究的为 TSP 中的黑碳浓度,因相关站点研究数据参差不齐,部分站点报道的黑碳浓度数据仅为可吸入颗粒物(PM₁₀)或细颗粒物 PM_{2.5} 中的观测值,为此需要将其折算为大气 TSP 中的黑碳浓度。在关于天津^[18]和东海小洋山^[19]的研究中报道了两地大气中各粒径颗粒物的黑碳数据,据此计算出其含量比例,并近似认为中国近海和海岸带区域分别同天津和东海小洋山大气中的黑碳在 PM_{2.5}、PM₁₀ 和 TSP 中具有相同的含量比例,以此对其它区域缺失的大气 TSP 黑碳数据进行统一折算以便于对比。需要指出的是,由于对黑碳的概念认知尚不一致,目前大气

黑碳仍无广泛认可的标准检测方法,所收集的研究数据中其检测方法也不尽相同,主要有光学法(AE 系列黑碳仪和光度计)和热光法(热光透射 TOT 和热光反射 TOR 热光碳分析仪)。不同的检测方法之间不可避免地存在系统误差,此问题目前尚无有效解决方法。尽管如此,本研究尽可能遵从方法的一致性原则选择研究站点,最大限度减少方法的不一致性带来的系统误差,获得的相关结果对评估我国近海和海岸带区域大气黑碳浓度和干湿沉降水平仍具有非常重要的积极意义。表 1 列出了对中国近海和海岸带区域不同站点大气黑碳浓度的统计分析结果。

表 1 中国近海和海岸带区域各站点大气黑碳浓度及与背景站点的对比

Tab. 1 Atmospheric black carbon concentration and comparison with background stations in the offshore and coastal zones of China

区域	站点	大气黑碳平均浓度/($\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$)	年份	检测方法	参考文献
环渤海区域	大连	3.22±0.04	2008; 2014	光学法	[20-21]
	唐山	13.00	2009—2011	热光法	[22]
	香河	8.29	2013—2015	光学法	[23]
	北京	5.74±0.72	2006—2015	光学法	[24-26]
	天津	9.67±0.78	2007—2008; 2010—2013	热光法光学法	[18-27]
	惠民	3.22	2018—2019	光学法	[28]
	东营	7.40	2011	热光法	[29]
南黄海沿岸	青岛	2.60±0.83	2018; 2020	热光法	[30-31]
	连云港	2.10	2016—2017	光学法	[32]
长江三角洲	南京	3.77±0.34	2012; 2015—2019	光学法	[33-36]
	常州	3.07	2013—2015	光学法	[37]
	苏州	3.30	2012	光学法	[38]
	上海	3.09±1.54	2010—2012; 2016—2017	光学法	[39-41]
	杭州	7.60	2011—2012	光学法	[42]
	宁波	4.89±1.23	2009—2010	热光法	[43-44]
台湾海峡沿岸	福州	3.06±0.16	2007—2008; 2011—2013	热光法	[45-46]
	厦门	3.42±1.46	2009—2013	热光法	[44, 47]
	高雄	4.93	2006—2010	光学法	[48]
	东莞	5.27	2009	光学法	[49]
南海北部沿岸	深圳	5.13±2.94	2009; 2014—2015	光学法	[50-51]
	广州	4.73±1.80	2004—2012; 2015—2016	光学法	[52-53]
	海口	3.55	2011—2012	热光法	[44]
岛屿和近海 走航站点	渤海(陀矶岛)	4.36	2011—2012	热光法	[54]
	渤海(长岛)	2.91	2015	光学法	[55]
	南黄海	1.45	2018	热光法	[30]
	黄东海	1.03	2010	光学法	[16]

续表

区域	站点	大气黑碳平均浓度/($\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$)	年份	检测方法	参考文献
岛屿和近海	东海(小洋山)	1.05	2005—2009	光学法	[19]
走航站点	南海北部(永兴岛)	0.89	2015	光学法	[17]
背景站点	瓦里关	0.30	2000—2011	—	[56]
	冲绳	0.18	2010—2013	光学法	[57]
海岸带陆域均值	—	5.05 ± 2.62	2004—2020	—	本文汇总
近海均值	—	1.95 ± 1.28	2005—2012; 2015; 2018	—	本文汇总

注:表中“—”表示论文中不涉及该项内容

由表 1 数据分析得出,中国海岸带区域陆域部分大气黑碳浓度平均值为 $5.05\pm 2.62 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ (因高雄和海口两站点所处岛屿面积大、人口多,故以陆地站点计),显著高于瓦里关山的中国大气黑碳本底浓度值($0.30 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$),亦显著高于青藏高原纳木错站($0.061 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$)和珠峰站($0.154 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$)大气黑碳的水平^[58]。这一区域有唐山、香河、北京、天津、东营、杭州、东莞和深圳 8 地高于均值,其中唐山、天津、东营和杭州 4 地大气黑碳浓度明显偏高。与此同时,与瓦里关山本底站点浓度值和城市站点的大气本底黑碳浓度值如北京($2.2 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$)^[24]、东莞($2.3 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$)^[49]和深圳($1.07 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$)^[50]等相比,中国海岸带陆域大气黑碳质量浓度平均值亦显著偏高,约为其 2~17 倍,特别是唐山、深圳等重工业城市站点或高度城市化的站点大气黑碳浓度远远高出本底值,表明中国海岸带陆域大气黑碳浓度受到高强度人类活动排放的影响。海岛定点与近海走航观测的大气黑碳质量浓度平均值为 $1.95\pm 1.28 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$,约为海岸带陆域水平的 39%,但亦显著高于深海站点——冲绳的大气黑碳水平($0.18 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$),表明中国近海大气环境尤其是大气黑碳浓度亦受到人为源排放的显著影响。中国海岸带陆域大气黑碳质量浓度最高值出现在河北唐山,达 $13 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$,陆域最低值在江苏连云港,为 $2.1 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$,最高值约为最低值的 6 倍多。在近海区域,位于黄渤海分界线处的砵矾岛大气黑碳质量浓度($4.36 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$)最高,最低值出现在南海北部西沙永兴岛,由于受人类活动影响较小,其大气黑碳质量浓度仅有 $0.89 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 。渤海砵矾岛大气黑碳浓度约为南海北部西沙永兴岛的 4.9 倍。由此可见,中国近海和海岸带区域不同站点大气黑碳浓度差别很大,这主要与陆源排放强度和大气清除速率有关。整体上,从大气黑碳的角度来看,近 20 年来中国近海和海岸带区域大气环境在很大程度上受到了人类活动

的强烈影响,部分区域呈现强污染特征。

1.2 中国近海和海岸带区域大气黑碳浓度的空间分布特征

空间分布特征可以更好的反映不同区域受陆源人为排放的影响程度,对科学制定污染物减排和防控大气污染具有重要参考价值。为展现中国海岸带区域大气黑碳浓度的空间分布规律,由北向南对比环渤海区域、南黄海沿岸、长江三角洲、台湾海峡沿岸和南海北部沿岸 5 个区域以显示不同区域间大气黑碳的浓度特征(图 1)。由图 1 可以看出,中国海岸带区域大气黑碳浓度的空间分布近似呈“V”形分布,以环渤海区域为峰值,以南黄海沿岸为谷值,南方三区域(长江三角洲、台湾海峡沿岸和南海北部沿岸)浓度相近且居于中等水平。环渤海区域大气黑碳浓度最高(平均浓度 $7.22\pm 3.27 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$),7 个站点中有 5 个超出陆域平均水平,表明其受到了高强度人为活动排放物的污染。环渤海区域为我国典型的重工业集聚区,境内分布有京津唐和辽中南两大工业基地,特别是唐山和天津两地,工业排放显著。同时,环渤海区域位于中国近海和海岸带区域最北端,气候较为寒冷,冬季集中供暖时间长,燃煤采暖也导致了大量的黑碳排放。此外,环渤海区域降水较少,多年平均降水量不足 600 mm,仅约为淮河以南区域年降水量的 1/3~1/2,较少的降水量致使排放到大气中的大量黑碳不能被及时地清除。综上,巨大的工业和民用排放强度以及相对较小的大气清除能力共同导致了环渤海区域的高浓度大气黑碳。需要指出的是,该区域唐山、天津和东营 3 站点有异常高值,分别为典型重工业城市唐山和天津的大量工业源排放和东营的农业生产活动秸秆焚烧排放所致,而且上述 3 个地区与环渤海区域整体间也存在着相互输送的影响^[22, 27, 29],这也是该区域大气黑碳浓度呈现高值的一个重要原因。

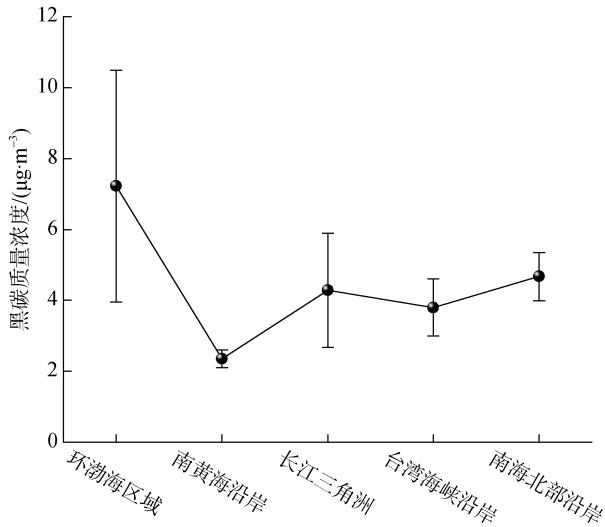


图1 中国海岸带陆域各区域大气黑碳浓度的空间分布变化
Fig. 1 Spatial variation of atmospheric black carbon concentration in different regions of the continental coastal zone of China

与环渤海区域相比,南黄海沿岸由于缺乏大型城市群且远离典型的重工业基地,污染强度相对较小^[44],区域大气黑碳质量浓度仅为 $2.35 \pm 0.25 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$;同时,南黄海沿岸的年降水量相对较高,有利于黑碳的及时清除,因此大气黑碳浓度处于最低水平。

南京站点以南,位于中国南方的长江三角洲、台湾海峡沿岸和南海北部沿岸3个区域站点的大气黑碳浓度相差不大(浓度均值分别为 4.28 ± 1.61 、 3.80 ± 0.81 和 $4.67 \pm 0.68 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$),多在 $3 \sim 5 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 左右,居于环渤海和南黄海沿岸两区域之间。这主要受控于经济和气候两方面因素:一方面,南方城市群密集、人口密度大、经济基础雄厚、产业发达,但南方主导性产业偏第二、第三产业,重工业污染相对较少且没有北方的冬季集中统一燃煤供暖^[53],这在很大程度上导致了相对较少的大气黑碳排放;另一方面,南方区域多为亚热带/热带季风气候,湿润多雨,相比北方,较高的年均降水量和较多的降水日数也更利于大气中黑碳的清除,在一定程度上降低了大气中黑碳的浓度^[50]。上述因素共同作用,使得南方3区域大气黑碳浓度在中国海岸带处于中等水平。对于个别大气黑碳浓度偏高站点,如长江口附近杭州站点,可能为受机动车尾气排放和生物质燃烧影响较高的缘故^[42]。台湾海峡东岸高雄站点大气黑碳质量浓度达 $4.93 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$,明显高于台湾海峡西岸的厦门站点。与同样拥有近300万人口的海口站点相比,高雄站点大气黑碳浓度也明显偏高,可能受到了采样站点附近工业园区的

工业生产活动和交通排放的显著影响^[48]。分析认为,导致高雄站点大气黑碳浓度显著偏高的另一个重要因素为高雄可能在一定程度上受台湾其他城市排放的影响。台湾省人口和GDP分别约为海南省的2.5倍和6倍,在二者面积相近的情况下更多的人口和更为发达的经济自然也导致了更多的污染物排放,大气黑碳的区域间传输也在很大程度上提高了高雄站点的黑碳浓度。南海北部沿岸东莞、深圳和广州3地城市化程度高,人口众多,机动车保有量非常大,其大气黑碳主要来源于城区机动车尾气排放和周边区域的工业排放^[49-50, 52]。

在中国近海,以陀矶岛和长岛、南黄海、小洋山以及西沙永兴岛分别代表渤海、南黄海、东海、南海北部4大海区,其大气黑碳平均质量浓度分别为 3.64 、 1.45 、 1.05 和 $0.89 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$,呈明显北高南低的趋势。其中,渤海作为中国的内海,且面积最小,受周边陆域人类活动影响最大,故较其他3海区具有最高的大气黑碳浓度。由北向南,中国近海大气黑碳浓度降低趋势明显,这一方面受源排放强度和清除量主导,另一方面,也与地理环境密不可分。愈往南,海区的开阔性愈为明显,与大洋的联通也愈加通畅,相对而言受人类活动排放的影响愈小。由此导致大气黑碳浓度在中国近海呈现较为明显的由北向南逐渐降低的梯度特征。

2 中国近海和海岸带区域大气黑碳的沉降通量

广泛存在于自然界中的黑碳最终流向于深层土壤和沉积物,大气和水体是连接2个汇的储库。近海区域陆地和大气是与海洋物质交换的活跃地带,很大部分的黑碳也于此由大气或间接经过河流进入海洋继而埋藏进沉积物中。从大气进入海洋的沉降通量指示着这个过程进行速率。由于黑碳的生物化学惰性,被埋藏后的黑碳在短时间尺度上可被视为离开了碳循环体系,这将降低大气中的碳含量,在一定程度上控制温室效应的加剧。不过当前对此部分的直接研究非常薄弱,仍处于起始阶段,特别是针对近海和海岸带区域,仅有极少数相关的研究工作。如2016年,方引^[59]利用环渤海区域数个站点大气黑碳浓度数据对渤海大气黑碳的沉降通量进行估算,得出总沉降通量平均为 $3.38 \pm 2.84 \text{ mg}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{d}^{-1}$ 。Bao等^[60]利用气溶胶和海水中水溶性黑碳(WSCB)的浓度数据估算在2015年春季沙尘暴期间黄海和东海

WSBC 的平均干沉降量为 $0.072 \pm 0.042 \text{ Gg} \cdot \text{d}^{-1}$, 且首次估算出全球海洋大气沉降的溶解黑碳(干湿沉降总和)约为 $1.8 \pm 0.83 \text{ Tg} \cdot \text{a}^{-1}$, 显示为海洋溶解黑碳的显著来源之一。目前对我国近海和海岸带区域大气黑碳的干、湿沉降通量的认知还极为有限, 更不用说对大气黑碳沉降通量的空间分布特征的理解了。在我国近海乃至世界近海, 对这一领域的研究也十分薄弱。

干、湿沉降是黑碳在大气和海洋 2 个碳储库之间交换的主要途经, 其沉降通量的计算是对 2 个碳库之间交换速率的量化评估, 对进一步评估大气黑碳在海洋的沉积和埋藏及其生物地球化学循环过程具有重要意义^[61-63]。鉴于此, 利用本文第 1 部分整合的中国近海和海岸带大气黑碳的浓度数据, 首次对这一区域的大气黑碳干湿沉降通量进行估算, 在此基础上阐明其空间分布特征, 以期能加深对近海和海岸带区域黑碳的地球化学行为的认识, 为以后的深入研究工作提供基础数据。

大气黑碳的沉降速率不仅与黑碳气溶胶颗粒的粒径大小以及大气黑碳浓度有关, 还受到降水频率和持续时间、风速以及清除机制效率等的影响, 故沉降通量的计算通常分为干沉降和湿沉降两部分来计算, 即:

$$F = F_d + F_w, \quad (1)$$

$$F_d = 315.36 \cdot V_d \cdot C, \quad (2)$$

$$F_w = 10^{-6} \cdot P \cdot W \cdot C, \quad (3)$$

式(1)中 F 、 F_d 和 F_w 分别指代大气黑碳总沉降通量、干沉降通量和湿沉降通量($\text{mg} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{a}^{-1}$)。式(2)中 V_d 为干沉降速率($\text{cm} \cdot \text{s}^{-1}$)。对于中国近海和海岸带区域的大气颗粒物干沉降速率, 在 Jurado 等^[64]基于 2001 年数据绘制的全球海洋总干沉积速率图中约处于 $0.05 \sim 0.25 \text{ cm} \cdot \text{s}^{-1}$ 之间。结合其他研究数据^[59, 65-67], 本文中设定渤海区域大气黑碳的干沉降速率为 $0.15 \text{ cm} \cdot \text{s}^{-1}$ 、南黄海区域 $0.1 \text{ cm} \cdot \text{s}^{-1}$ 、长江口以南至珠江三角洲为 $0.28 \text{ cm} \cdot \text{s}^{-1}$ 、珠江以南的南海区域为 $0.1 \text{ cm} \cdot \text{s}^{-1}$ 。 C 为近地面大气中的黑碳质量浓度($\mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$), 取用本文第 1 部分中(表 1)的数据。式(3)中 P 为该地年降水量($\text{mm} \cdot \text{a}^{-1}$)。由于缺乏实测数据, 本文所取用数据为相关站点所在行政区域的年均降水量。南黄海和黄东海走航取南黄海年降水量, 小洋山站点取上海和宁波年均降水量中值, 永兴岛站点取南海北部年降水量。本文采用的各站点具体年降水量数据详见表 2。 W 为冲刷比, 本文取 2×10^5 , 无量纲^[64]。此外, 式(2)(3)中 315.36 和 10^{-6} 为单位转换系数。利用(1)(2)(3)式分别计算出中国近海和海岸带区域大气黑碳的干、湿和总沉降通量, 结果列于表 2。

表 2 中国近海和海岸带各站点大气黑碳干、湿沉降通量、总沉降通量和年降水量

Tab. 2 Dry, wet, and total deposition fluxes of atmospheric black carbon and annual precipitation at each station in the offshore and coastal zones of China

站点	干沉降通量/ $(\text{mg} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{a}^{-1})$	湿沉降通量/ $(\text{mg} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{a}^{-1})$	总沉降通量/ $(\text{mg} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{a}^{-1})$	年降水量/ $(\text{mm} \cdot \text{a}^{-1})$
大连	152.3	394.8	547.1	613
唐山	615.0	1 362.4	1 977.4	524
香河	392.2	911.9	1 304.1	550
北京	271.5	720.3	991.8	627
天津	457.4	1 112.1	1 569.5	575
惠民	152.3	379.6	531.9	589
东营	350.0	851.0	1 201.0	575
青岛	82.0	344.3	426.3	662
连云港	66.2	386.4	452.6	920
南京	332.9	834.3	1 167.2	1 107
常州	271.1	665.6	936.7	1 084
苏州	291.4	726.0	1 017.4	1 100
上海	272.8	741.6	1 014.4	1 200
杭州	671.1^a	2 202.5^a	2 873.6^a	1 449
宁波	431.8	1 929.6	2 361.4	1 973
福州	270.2	871.9	1 142.1	1 425

续表

站点	干沉降通量/($\text{mg}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{a}^{-1}$)	湿沉降通量/($\text{mg}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{a}^{-1}$)	总沉降通量/($\text{mg}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{a}^{-1}$)	年降水量/($\text{mm}\cdot\text{a}^{-1}$)
厦门	302.0	820.8	1 122.8	1 200
高雄 ^b	435.3	1 717.6	2 152.9	1 742
东莞	435.3	2 152.9	2 618.2	2 043
深圳	435.3	2 020.3	2 507.7	1 830
广州	435.3	1 659.5	2 075.4	1 762
海口 ^b	112.0	1 195.6	1 307.6	1 684
渤海(陀矾岛)	206.2	471.8	678.1	541
渤海(长岛)	137.7	314.9	452.6	541
南黄海	45.7	290.0	335.7	1 000
黄东海	32.5	206.0^a	238.5^a	1 000
东海(小洋山)	92.7	333.2	425.9	1 587
南海北部 (西沙永兴岛)	28.1^a	320.4	348.5	1 800
海岸带陆域均值	331.7	1 090.9	1 422.7	1 147
近海观测均值	90.5	322.7	413.2	1 078

注: a. 加粗数值为极值; b. 高雄和海口以陆域站点计

如表 2 所示, 经对已有报道的数据提取和再分析, 估算得到中国近海和海岸带区域大气黑碳干沉降通量范围为 28.1~671.1 $\text{mg}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{a}^{-1}$, 均值分别为 90.5 ± 64.4 和 331.7 ± 157.8 $\text{mg}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{a}^{-1}$; 湿沉降通量范围为 206.0~2 202.5 $\text{mg}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{a}^{-1}$, 均值分别为 322.7 ± 78.7 和 $1 090.9\pm 588.7$ $\text{mg}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{a}^{-1}$; 总沉降通量范围为 238.5~2 873.6 $\text{mg}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{a}^{-1}$, 均值分别为 413.2 ± 137.1 和 $1 422.7\pm 721.1$ $\text{mg}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{a}^{-1}$, 多数站点大气黑碳的沉降通量处于 1 500 $\text{mg}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{a}^{-1}$ 左右或以下水平。

空间分布显示, 以南京为界(包括南京), 南方陆域 13 站点大气黑碳年总沉降通量均值为 1 715.2 $\text{mg}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{a}^{-1}$, 约为南京以北 9 个站点均值 1 000.2 $\text{mg}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{a}^{-1}$ 的 1.7 倍, 呈现出明显的南高北低趋势。分区域对比发现, 中国海岸带陆域大气黑碳总沉降通量表现出南黄海沿岸 (439.5 ± 13.5 $\text{mg}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{a}^{-1}$) < 环渤海区域 ($1 160.4\pm 468.3$ $\text{mg}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{a}^{-1}$) < 台湾海峡沿岸 ($1 472.6\pm 481.1$ $\text{mg}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{a}^{-1}$) < 长江三角洲 ($1 561.8\pm 764.2$ $\text{mg}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{a}^{-1}$) < 南海北部沿岸 ($2 127.2\pm 514.7$ $\text{mg}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{a}^{-1}$) 的趋势(图 2)。由大气沉降通量的计算公式来看, 沉降通量在整体空间分布上受干沉降速率、降水量和大气黑碳浓度的影响。对比大气黑碳浓度的分布趋势, 同时因长江口至珠江口一带干沉降速率较大, 加之长江以南区域年降水量高达江北区域的 2~3 倍, 故在总沉降通量上呈现南方远高于北方的特征。

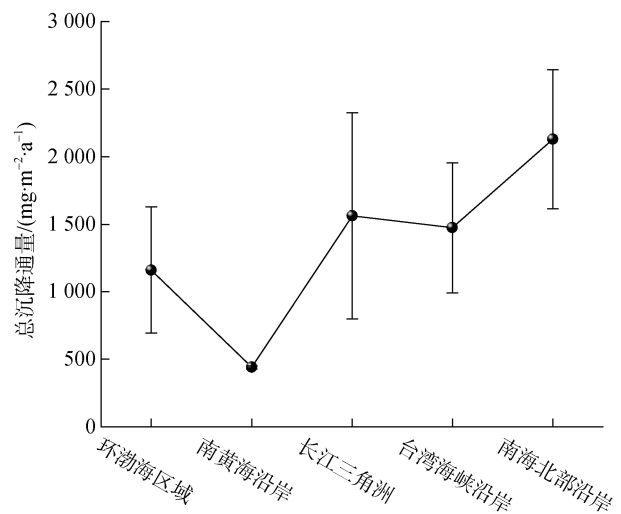


图 2 中国海岸带陆域各区域大气黑碳总沉降通量的空间分布特征

Fig. 2 Total deposition flux of atmospheric black carbon and its spatial distribution in the coastal zone of China

在中国近海区域, 渤海、南黄海、东海和南海北部 4 大海区站点大气黑碳浓度差异较大, 故其总的沉降趋势与黑碳的浓度趋势相近: 渤海具有最大的沉降通量, 达 565.3 $\text{mg}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{a}^{-1}$; 南黄海黑碳浓度较小, 沉降通量也处于最低水平, 为 287.1 $\text{mg}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{a}^{-1}$; 东海和南海北部分别为 425.9 和 348.5 $\text{mg}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{a}^{-1}$, 居

于中等水平。总体上,中国近海大气黑碳的湿沉降通量达干沉降的 3.8 倍,占总沉降通量的 77%,处于 Suman 等^[68]给出的全球黑碳沉降估算中湿沉降 73%~95%的占比范围内。

利用资料再分析得到的海岛站点和近海走航大气黑碳总沉降通量均值为 $413.2 \text{ mg} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{a}^{-1}$,以此代表整个中国近海区域的大气黑碳总沉降通量均值,据此估算中国近海大气黑碳的年沉降量:年总沉降量=年平均沉降通量 \times 面积。以中国近海总面积 $4.70 \times 10^6 \text{ km}^2$ 估算,则每年有约 1.94 Tg(以碳计)黑碳通过干、湿沉降途径由大气进入海洋储库。与 Jurado 等^[69]给出的大气黑碳在全球海洋的模拟沉降总量 $12 \text{ Tg} \cdot \text{a}^{-1}$ 相比,中国近海以占全球海洋 1.3%的面积贡献了全球海洋 16%的大气黑碳沉降量,主要与较高的陆源排放强度有关。估算中以近岸站点的大气黑碳沉降通量代替整体中国近海或使计算所得的沉降量偏大,导致数据具有一定的不确定性。尽管如此,作为首次对中国近海大气黑碳总沉降通量的估算,这一数据仍在一定程度上体现了中国近海在全球海洋大气黑碳沉降中的突出地位,可能会对全球海洋碳汇产生较大贡献。对此,需要开展进一步的持续观测。

3 大气黑碳的来源解析

对于黑碳的来源有不同的分类方式,按类型可分为天然源(火山喷发、海底热液等)和人为源。此二者中前者排放具有较高的偶然性和区域性,而后者排放具有广泛性和持续性,因此一般认为人为排放是大气黑碳的主要来源。由燃烧物的不同可将大气黑碳分为生物质燃烧源、化石燃料燃烧源等。从排放途径又可分为工业源、机动车尾气排放源和生活排放源等。此外,还可以按来源区域分为本地源和外来源。对大气黑碳定性和定量的来源解析有助于厘清大气黑碳的收支平衡和建立大气黑碳排放清单,可以为在源头上控制黑碳的排放提供依据。

目前对黑碳来源具有较多的解析方法,表 3 中归纳了大气黑碳的几种常用的基于受体模型的源解析方法和原理。目前碳同位素法是黑碳溯源最准确有效、应用最广泛的方法之一,可用于各种环境下的黑碳溯源,其中 $\Delta^{14}\text{C}$ 法可对化石燃料源和生物质源进行定量分析, $\delta^{13}\text{C}$ 法可以鉴定黑碳的不同生物质源。当然,碳同位素法也存在一些不便之处,如所需样品量大、测试价格昂贵和易受人类核试验影响等,制约了该方法的推广应用。波长吸收指数法常与光

学原理的黑碳检测仪器并用,如在使用黑碳仪测量黑碳浓度时,仪器在特定波长下工作会得出波长吸收系数 α ,据表 3 中式(4)即可得出波长吸收指数。此方法虽然简便易行,但结果较为粗略,且在使用其他仪器检测黑碳时不适用。多环芳烃(PAHs)作为黑碳的同源物质标志物,对黑碳溯源具有很好的指示性,目前也有较多的应用,但在一定程度老化的空气或水体等介质中由于多环芳烃的降解而需要引入新的参数来校正其比值,这将会增大最终结果的误差。利用大气中氮、硫氧化物和金属离子浓度与黑碳的相关性也是黑碳溯源常用的方法之一,在长江三角洲地区南京^[34]和上海^[41]得到了应用,识别出机动车尾气排放,尤其是柴油车排放是这些地区大气黑碳的主要来源。这一方法尽管较为简便,但在夏季,高强度的光照会引发氮、硫氧化物的光化学反应,并且大量的降水也会冲刷掉大气中大多数的酸性气体和金属离子,使得其同黑碳的相关性显著降低,从而极大地增强了方法的不确定性,因而限制了该方法的应用。另外也可根据黑碳的形态特征对黑碳进行溯源,通过显微镜法和扫描电镜/透射电镜方法,对预处理过的样品中黑碳粒子的形态进行直接观测分析,对比不同的形貌来区分来源。此方法直观,但非常耗费时间且在前处理过程中会遗失一部分粒径较小的黑碳。综上,大气黑碳的溯源虽有多种方法且各有优势,但每种方法都有着一定的适用性和局限性,且上述基于受体模型的源解析方法忽略了黑碳在大气传输中所存在的光化学和生物降解过程对黑碳指标的影响^[70],这是基于受体模型方法所固有的缺陷。对此可以集成扩散模型对黑碳来源进行综合分析以提高其溯源的准确性。最后,在大气黑碳的源解析工作中,应对各类条件下不同方法的适用性进行综合评估,选择最优的源解析方法。同时,为克服不同方法间的局限性,应尽可能结合多种方法进行集成分析,相互印证和支撑,以获得相对准确和更为接近实际的结论。

综合已报道文献对中国海岸带区域的大气黑碳来源进行讨论分析,表 4 为各站点大气黑碳源解析方法和结果的汇总。由表 4 可以看出,我国海岸带陆域大气黑碳主要来源为化石燃料燃烧和生物质燃烧,所有站点化石燃料燃烧均为其主要来源,约占到全部来源的 61.5%~83.5%。与张楠等^[71]给出的 2008 年中国大陆地区黑碳的化石燃料源排放估算值(63.6%)相比,其贡献比重略高。在区域上,北方地区由于冬

季集中供暖会有更多的燃煤源贡献,如天津煤炭燃烧源贡献甚至高达 45.25%,当然其中不乏工业源的贡献,但仍可在一定程度上说明中国海岸带南、北方大气黑碳来源的差异;在季节上,因冷期分散采暖

导致生物质燃烧源贡献在冬季较为显著,如北京冷期生物质燃烧源贡献在比例上约高出全年平均 5%^[72]。另外因农业活动中的秸秆焚烧,在春秋作物收获时期也会有短期的生物质燃烧源贡献增加的现象。

表 3 黑碳源解析方法和原理

Tab. 3 Analytical methods and principles of black carbon source apportionment

方法	原理
	波长吸收指数由 2 个不同波长吸收系数的比值和波长比值求出的负指数,即:
	$AAE(\lambda_1, \lambda_2) = -\frac{\ln(\alpha_{\lambda_1}) - \ln(\alpha_{\lambda_2})}{\ln\lambda_1 - \ln\lambda_2}, \quad (4)$
波长吸收指数法	AAE(λ_1, λ_2)表示波长吸收指数, λ_1 和 λ_2 表示波长, 单位 nm, α_{λ_1} 和 α_{λ_2} 表示 λ_1, λ_2 波长下光的吸收系数。不同来源的黑碳在结构和形态上存在差异在不同波长下具有不同的吸光系数 α , 可据公式算得 AAE 数值。化石燃料燃烧产生的黑碳 AAE 值约在 1 左右, 小于生物质燃烧源的 1.8~1.9 ^[73] 。
碳同位素法	碳同位素法包括 $\delta^{13}\text{C}$ 稳定同位素和 $\Delta^{14}\text{C}$ 放射性同位素 2 种方法, 是黑碳溯源可靠的方法, 其原理为不同来源的黑碳所含碳同位素丰度不同或在黑碳不同的产生方式中碳同位素分馏现象存在差异而在黑碳中表现出不同的碳同位素丰度。 $\delta^{13}\text{C}$ 法可以根据 C3、C4 植物和海洋生物间 ^{13}C 丰度不同鉴定黑碳的不同生物质源; $\Delta^{14}\text{C}$ 法为生物质燃烧所产生的黑碳中 ^{14}C 含量与大气含量接近, 而埋藏年数远大于 ^{14}C 半衰期的化石燃料燃烧所产生的黑碳中无 ^{14}C 的存在 ^[74] 。
同源物质标志物法	典型的黑碳同源物质为多环芳烃(PAHs), PAHs 在来源上与黑碳同为不完全燃烧的产物, 具有与黑碳相似的结构并易被黑碳吸附, 故可用 PAHs 做标志物指示黑碳的来源。在此方法中苯并芘、苯并荧蒹、二苯蒹等可指示尾气排放源黑碳, 苯并蒹、苯并芘、蒽等可指示煤炭燃烧源黑碳, 荧蒹、芘等可指示生物质燃烧源黑碳 ^[75] 。
同源物质比值法	利用一些与黑碳产生方式相同的物质与黑碳的比值或相关性来确定某一来源所贡献的黑碳的量, 如 NO_2 可指示尾气源的排放, SO_2 可指示燃煤的排放, K^+ 可指示生物质燃烧源的排放, Zn^{2+} 、 Cu^{2+} 可指示工业源的排放等。
形态特征法	黑碳产生时的温度、燃烧物形式等条件不同, 黑碳的形态会有非常大的差异性。一般主要由生物质燃烧产生的木炭/焦炭形式的黑碳会保留部分燃烧物的结构(如纤维结构), 且粒径相对较大, 形态不规则; 而主要来自化石燃料来源的烟炱则具有较高的芳香度, 粒径小, 通常为球状链式连接存在 ^[76] 。

表 4 大气黑碳源解析方法和来源贡献

Tab. 4 Black carbon source apportionment method and source contribution

站点	源解析方法	来源贡献	参考文献
北京	碳同位素法	全年化石燃料源 79%±6%, 生物质燃烧源 19%; 冷期尾气排放源 50%±7%, 煤炭燃烧源 25%±4%, 生物质燃烧源 24%	[72]
天津	碳同位素法	液化化石燃料源 29.25%, 煤炭燃烧源 45.25%, 生物质燃烧源 25.5%	[77]
海宁	碳同位素法	液化化石燃料源 44%, 煤炭燃烧源 26%, 生物质燃烧源 30%	[77]
南京北郊	CO、NO ₂ 与 BC 比值法	柴油车尾气为主要贡献源, 工业源也是主要来源之一, 但不显著	[34]
上海	CO、NO ₂ 与 BC 比值法	主要为尾气排放源和工业燃煤源贡献, 且尾气排放源更显著	[41]
上海	同源物质标志物法(PAHs)	尾气排放源 35%, 煤炭燃烧源 26.5%, 生物质燃烧源 38.5%	[78]
大连	波长吸收指数法	主要为化石燃料源贡献, 其中 12 月至次年 4 月, 化石燃料源与生物质燃烧源贡献相当	[20]
南京北郊	波长吸收指数法	化石燃料源 81%, 生物质燃烧源 19%	[35]
东莞	波长吸收指数法	主要源于化石燃料源	[49]
深圳	波长吸收指数法	主要源于化石燃料源	[50]
连云港	模型分析	化石燃料源 83.5%, 生物质燃烧源 16.5%	[32]

可以看出,由于能源消费结构不合理,我国近几十年来在能源消费上过度依赖化石燃料,导致大量的黑碳释放到大气中,这对我国乃至全球生态环境都造成了影响。鉴于此,在未来大气黑碳污染治理中,在从全方位着手的同时,应尤为重视控制化石燃料的消耗,提倡推广应用新能源,并对农业生产活动中的秸秆焚烧等生物质燃烧排放全面禁止,以最大限度减少黑碳的排放。

4 总结与展望

大气黑碳作为一种性质复杂的碳质气溶胶对生态环境和人类健康都有着强烈的危害,对其在大气中的浓度、大气沉降至海洋的通量及其来源的科学认识有助于减轻其带来的负面影响,为当今面临的严峻复杂的气候和环境问题提供新的解决思路。通过对近 20 年来有关中国近海和海岸带区域大气黑碳研究成果的梳理、归纳和再分析,对这一区域的大气黑碳丰度、干湿沉降通量及其空间分布特征和来源进行了系统总结和评述,获得了一系列新发现。中国海岸带陆域大气黑碳浓度由北向南近似呈“V”形分布,近海区域渤海、南黄海、东海和南海北部四大海域大气黑碳平均浓度呈明显北高南低的趋势。中国近海和海岸带区域受人类活动影响很大,大气污染程度高。大气黑碳在中国近海和海岸带区域的总沉降通量均值分别约为 413.2 ± 137.1 和 $1422.7 \pm 721.1 \text{ mg} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{a}^{-1}$,湿沉降是大气黑碳的主要沉降形式,可占到总沉降量的 77%,且主要发生在具有更多降水的南方区域。利用近海平均沉降通量($413.2 \text{ mg} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{a}^{-1}$)进行估算,得到中国近海区域黑碳的年沉降总量约为 1.94 Tg,对比大气黑碳在全球海洋的模拟沉降总量,中国近海以占全球海洋 1.3%的面积贡献了全球海洋 16%的大气黑碳沉降量,凸显出中国近海极高的大气黑碳污染水平,亟待加强治理。汇总中国海岸带陆域大气黑碳的源解析结果,指出该区域大气黑碳主要来源于化石燃料和生物质燃烧,且具有一定的季节和区域性差异,其中化石燃料燃烧的贡献可达 61.5%~83.5%,显示出我国能源结构失衡且过多地依赖化石燃料的现状。因此,必须从改变不合理的能源消费结构入手,大力开发并普及应用新能源,从而科学解决这一难题。

目前对中国近海和海岸带区域大气黑碳的研究较为零散,缺乏系统性,存在较多的问题和不足。例如在黑碳的检测上,受客观条件的限制,如小城市、

郊区、海岛、海湾和近海海域等站点在样品的采集上缺乏时间上的连续性,多采用月份样品代替季节的黑碳浓度水平,这会给研究结果带来较大的偶然性和不确定性,显著降低了观测结果的代表性。对于黑碳源解析,目前的解析方法大多具有一定的局限性,单一的溯源方法较难精准获取其来源信息,且极度缺乏对大气黑碳精细化溯源等的研究工作。此外,目前对于大气黑碳去向和归宿的相关过程认识也存在很大的不足,特别是对与大气碳库交换最显著的海洋碳储库,受现实条件的限制而缺少对两储库间黑碳交换通量的全球多站点观测结果。

针对上述研究现状和不足,今后的研究应尤为注重以下几个方面:首先,对于黑碳的常态化监测,应注重开展多形式(固定站点、走航)、长周期的常态化大气黑碳观测,发展大气黑碳干沉降模式,获得不同天气状态和多种复杂条件下的大气黑碳干沉降速率,以获得更为准确的大气黑碳沉降通量。此外,对于大气黑碳的来源解析,未来在进一步研发新型源解析方法的同时,应趋向于多种方法联合甄别,使各方法间相互印证和检验,提高溯源的精准度。最后,对大气黑碳从产生到传输、沉降、降解和埋藏以及在各储库间流通的定性和定量认识也亟待加强。海洋作为地球上最大的碳库,是大气黑碳最重要的汇。随着未来我国经济社会的持续快速发展,大气黑碳对海洋的输入作用势必会进一步增强,由此带来的一系列生态环境问题也亟待厘清。当今我国海洋大气黑碳沉降的研究才刚起步,许多难题尚待在不断完善检测方法、系统开展常态化观测研究和发展精细化源解析方法的过程中逐步解决。未来,海洋大气黑碳沉降及其溯源的研究依然任重而道远。

参考文献:

- [1] MASIELLO C A. New directions in black carbon organic geochemistry[J]. *Marine Chemistry*, 2004, 92: 201-213.
- [2] 穆燕,秦小光,刘嘉麒,等. 黑碳的研究历史与现状[J]. *海洋地质与第四纪地质*, 2011, 31(1): 143-155. MU Yan, QIN Xiaoguang, LIU Jiaqi, et al. A review of black carbon study: history and current status[J]. *Marine Geology and Quaternary Geology*, 2011, 31(1): 143-155.
- [3] NOVAKOV T. The role of soot and primary oxidants in atmospheric chemistry[J]. *Science of The Total Environment*, 1984, 36: 1-10.
- [4] GOLDBERG E D. Black carbon in the environment[M].

- New York: Wiley, 1985: vii-xi.
- [5] JACOBSON M Z. Strong radiative heating due to the mixing state of black carbon in atmospheric aerosols[J]. *Nature*, 2001, 409: 695-697.
- [6] CHUNG S H, SEINFELD J H. Climate response of direct radiative forcing of anthropogenic black carbon[J]. *Journal of Geophysical Research-Atmospheres*, 2005, 110(D11): 11102-11102.
- [7] KOCH D, GENIO A D. Black carbon semi-direct effects on cloud cover: review and synthesis[J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2010, 10(16): 7324-7346.
- [8] MENON S, HANSEN J, NAZARENKO L, et al. Climate effects of black carbon aerosols in China and India[J]. *Science*, 2002, 297(5590): 2250-2253.
- [9] 曹军骥, 占长林. 黑碳在全球气候和环境系统中的作用及其在相关研究中的意义[J]. *地球科学与环境学报*, 2011, 33(2): 177-184.
CAO Junji, ZHAN Changlin. Research significance and role of black carbon in the global climate and environmental systems[J]. *Journal of Earth Sciences and Environment*, 2011, 33(2): 177-184.
- [10] LUBEN T J, NICHOLS J L, DUTTON S J, et al. A systematic review of cardiovascular emergency department visits, hospital admissions and mortality associated with ambient black carbon[J]. *Environment International*, 2017, 107: 154-162.
- [11] 朱晓晶, 钱岩, 李晓倩, 等. 2021, 黑碳气溶胶的研究现状: 定义及对健康、气候等的影响[J]. *环境科学研究*, 2021, 34(10): 2536-2546.
ZHU Xiaojing, QIAN Yan, LI Xiaoqian, et al. Research status of black carbon aerosol: definitions and impacts on health, climate and other welfare[J]. *Research of Environmental Sciences*, 2021, 34(10): 2536-2546.
- [12] 宋金明, 李学刚, 袁华茂, 等. 渤海东海生源要素的生物地球化学[M]. 北京: 科学出版社, 2019: 1-870.
SONG Jinming, LI Xuegang, YUAN Huamao, et al. Biogeochemistry of biogenic elements in the Bohai, Yellow and East China Seas[M]. Beijing: Science Press, 2019: 1-870.
- [13] 王戎. 黑炭的全球排放和大气迁移及其暴露风险和辐射强迫评估[D]. 北京: 北京大学, 2013.
WANG Rong. Global emission inventory and atmospheric transport of black carbon, and evaluation of the associated exposure risk and direct radiative forcing[D]. Beijing: Peking University, 2013.
- [14] 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.
QIN Shiguang, TANG Jie, WEN Yupu. Black carbon and its importance in climate change studies[J]. *Meteorology*, 2001, 27(11): 3-7.
- [15] 汤洁, 卞林根, 颜鹏, 等. 中国第三次北极科学考察走航路线上空黑碳气溶胶的观测研究[J]. *海洋学报*, 2011, 33(2): 62-68.
TANG Jie, BIAN Lingen, YAN Peng, et al. The observational study of black carbon aerosol over the cruise during the Third National Arctic Research Expedition of China[J]. *Acta Oceanologica Sinica*, 2011, 33(2): 62-68.
- [16] 赖鑫, 卞林根, 汤洁, 等. 中国第四次北极科考航线上黑碳和臭氧的变化特征[J]. *环境科学学报*, 2012, 32(9): 2203-2209.
LAI Xin, BIAN Lingen, TANG Jie, et al. Variation characteristics of black carbon and ozone over the cruise during the Fourth Chinese National Arctic Research Expedition[J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 2012, 32(9): 2203-2209.
- [17] 杜丽, 孟晓艳, 李钢, 等. 西沙永兴岛黑碳浓度特征初探[J]. *中国环境监测*, 2013, 29(5): 69-72.
DU Li, MENG Xiaoyan, LI Gang, et al. Preliminary analysis of concentration variations of black carbon[J]. *Environmental Monitoring in China*, 2013, 29(5): 69-72.
- [18] KONG S F, HAN B, BAI Z P, et al. Receptor modeling of PM_{2.5}, PM₁₀ and TSP in different seasons and long-range transport analysis at a coastal site of Tianjin, China[J]. *Science of the Total Environment*, 2010, 408(20): 4681-4694.
- [19] 吴天. 中国东海近海大气气溶胶的陆源特征、污染混合机理及干沉降量的估算[D]. 上海: 复旦大学, 2010.
WU Tian. Terrigenous characteristics, pollution mixing mechanism and estimation of dry deposition of atmospheric aerosols over the East China Sea[D]. Shanghai, Fudan University, 2010.
- [20] 徐洁. 大连市黑碳气溶胶观测研究及来源分析[J]. *河北环境工程学院学报*, 2020, 30(3): 51-55.
XU Jie. Observations and source apportionment of black carbon in Dalian[J]. *Journal of Hebei University of Environmental Engineering*, 2020, 30(3): 51-55.
- [21] 王扬锋, 马雁军, 陆忠艳, 等. 辽宁地区大气黑碳气溶胶质量浓度在线连续观测[J]. *环境科学研究*, 2011, 24(10): 1088-1096.
WANG Yangfeng, MA Yanjun, LU Zhongyan, et al. In situ continuous observation of atmospheric black carbon aerosol mass concentration in Liaoning Region[J]. *Research of Environmental Sciences*, 2011, 24(10): 1088-1096.
- [22] 郭育红, 辛金元, 王跃思, 等. 唐山市大气颗粒物 OC/EC 浓度谱分布观测研究[J]. *环境科学*, 2013, 34(7): 2497-2504.
GUO Yuhong, XIN Jinyuan, WANG Yuesi, et al. Observation of size distribution of atmospheric OC/EC in Tangshan, China[J]. *Environmental Science*, 2013, 34(7): 2497-2504.

- [23] RAN L, DENG Z Z, WANG P C, et al. Black carbon and wavelength dependent aerosol absorption in the North China Plain based on two-year aethalometer measurements[J]. *Atmospheric Environment*, 2016, 142: 132-144.
- [24] 张骁, 汤洁, 武云飞, 等. 2006—2012年北京及周边地区黑碳气溶胶变化特征[J]. *中国粉体技术*, 2015, 21(4): 23-35.
ZHANG Xiao, TANG Jie, WU Yunfei, et al. Variations of black carbon aerosol observed in Beijing and surrounding area during 2006—2012[J]. *China Powder Science and Technology*, 2015, 21(4): 23-35.
- [25] 于丽萍, 李栋, 杜传耀, 等. 2013年北京黑碳气溶胶浓度特征及影响因素分析[C]//2014中国环境科学学会学术年会论文集. 成都: 中国环境科学学会, 2014: 1-7.
YU Liping, LI Dong, DU Chuanyao, et al. Characteristics and influencing factors of black carbon aerosol concentration in Beijing in 2013[C]//Proceedings of 2014 Annual Conference of Chinese Society for Environmental Sciences. Chengdu: Chinese Society of Environmental Sciences, 2014: 1-7.
- [26] 张宸, 程兴, 赵天良, 等. 不同季节气象条件对北京城区高黑碳浓度变化的影响[J]. *环境科学学报*, 2017, 37(6): 2255-2264.
ZHANG Chen, CHENG Xing, ZHAO Tianliang, et al. Impact of meteorological conditions on high black carbon concentrations in urban area of Beijing in different seasons[J]. *Acta Scientiae Circumstantiate*, 2017, 37(6): 2255-2264.
- [27] 姚青, 郝天依, 蔡子颖, 等. 天津黑碳气溶胶潜在来源分析与健康风险评估[J]. *中国环境科学*, 2020, 40(12): 5221-5228.
YAO Qing, HAO Tianyi, CAI Ziying, et al. Potential source analysis and health risk assessment of black carbon aerosol in Tianjin City[J]. *China Environmental Science*, 2020, 40(12): 5221-5228.
- [28] 张玉洁, 涂爱琴, 张武, 等. 山东惠民黑碳气溶胶变化特征及来源分析[J]. *海洋气象学报*, 2021, 41(2): 86-96.
ZHANG Yujie, TU Aiqin, ZHANG Wu, et al. Variation characteristics and source analysis of black carbon aerosols in Huimin, Shandong[J]. *Journal of Marine Meteorology*, 2021, 41(2): 86-96.
- [29] YAO L, YANG L X, YUAN Q, et al. Sources apportionment of PM_{2.5} in a background site in the North China Plain[J]. *Science of the Total Environment*, 2016, 541: 590-598.
- [30] 曹飞艳. 青岛和南黄海 PM_{2.5}的化学成分、来源解析、吸光特征[D]. 济南: 山东大学, 2020.
CAO Feiyan. Chemical and light absorption characteristics of particulate matters and their source apportionment over Qingdao and South Yellow Sea[D]. Jinan: Shandong University, 2020.
- [31] 张笑荣. 山东省不同站点大气中的黑碳浓度及其光学特性研究[D]. 济南: 山东大学, 2021.
ZHANG Xiaorong. The study of black carbon concentration and optical properties at different sites of Shandong Province[D]. Jinan: Shandong University, 2021.
- [32] 陈程, 花艳, 王瑜, 等. 连云港黑碳气溶胶污染特征研究[J]. *环境监控与预警*, 2018, 10(2): 45-48.
CHEN Cheng, HUA Yan, WANG Yu, et al. The research on pollution characteristics of black carbon aerosol in Lianyungang[J]. *Environmental Monitoring and Forewarning*, 2018, 10(2): 45-48.
- [33] 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.
- [34] 张林. 2017—2019年南京北郊黑碳气溶胶污染特征及影响因素[D]. 南京: 南京信息工程大学, 2020.
ZHANG Lin. Characteristics and influence factors of black carbon particles in suburban Nanjing from 2017 to 2019[D]. Nanjing: Nanjing University of Information Science and Technology, 2020.
- [35] XIAO S H, YU X N, ZHU B, et al. Characterization and source apportionment of black carbon aerosol in the Nanjing Jiangbei New Area based on two years of measurements from Aethalometer[J]. *Journal of Aerosol Science*, 2020, 139: 105461.
- [36] 肖思晗, 于兴娜, 朱彬, 等. 南京北郊黑碳气溶胶污染特征及影响因素分析[J]. *环境科学*, 2016, 37(9): 3280-3289.
XIAO Sihan, YU Xingna, ZHU Bin, et al. Characteristics of black carbon aerosol and influencing factors in Northern Suburbs of Nanjing[J]. *Environmental Science*, 2016, 37(9): 3280-3289.
- [37] 叶香, 赵亚芳, 杨卫芬, 等. 常州市黑碳气溶胶污染特征分析[J]. *安徽农学通报*, 2018, 24(22): 120-123.
YE Xiang, ZHAO Yafang, YANG Weifen, et al. Analysis of characteristics of black carbon aerosol in Changzhou City[J]. *Anhui Agricultural Science Bulletin*, 2018, 24(22): 120-123.
- [38] 丁铭, 邹强, 葛顺, 等. 苏州市黑碳气溶胶的污染特征分析[J]. *中国环境监测*, 2014, 30(6): 67-71.
DING Ming, ZOU Qiang, GE Shun, et al. Study on atmospheric black carbon aerosols concentration in Suzhou City[J]. *Environmental Monitoring in China*, 2014, 30(6): 67-71.
- [39] FENG J L, ZHONG M, XU B H, et al. Concentrations, seasonal and diurnal variations of black carbon in PM_{2.5} in Shanghai, China[J]. *Atmospheric Research*, 2014, 147/148: 1-9.

- [40] ZHA S P, CHENG T T, TAO J, et al. Characteristics and relevant remote sources of black carbon aerosol in Shanghai[J]. *Atmospheric Research*, 2014, 135/136: 159-171.
- [41] 彭霞. 上海市近地面大气黑碳浓度时空分布特征及影响因素分析[D]. 上海: 华东师范大学, 2018.
PENG Xia. Spatiotemporal variation characteristics of black carbon and its influencing factors over Shanghai[D]. Shanghai: East China Normal University, 2018.
- [42] 徐昶, 沈建东, 叶辉, 等. 杭州黑碳气溶胶污染特性及来源研究[J]. *中国环境科学*, 2014, 34(12): 3026-3033.
XU Chuang, SHEN Jiandong, YE Hui, et al. Characteristics and source of black carbon aerosol pollution in Hangzhou[J]. *China Environmental Science*, 2014, 34(12): 3026-3033.
- [43] LIU D, LI J, ZHANG Y L, et al. The use of levoglucosan and radiocarbon for source apportionment of PM_{2.5} carbonaceous aerosols at a background site in East China[J]. *Environmental Science and Technology*, 2013, 47(18): 10454-10461.
- [44] HONG X, BI X H, ZHENG W W, et al. Particulate matter mass and chemical component concentrations over four Chinese cities along the western Pacific coast[J]. *Environmental Science and Pollution Research*, 2014, 22(3): 1940-1953.
- [45] XU L L, CHEN X Q, CHEN J S, et al. Seasonal variations and chemical compositions of PM_{2.5} aerosol in the urban area of Fuzhou, China[J]. *Atmospheric Research*, 2012, 104/105: 264-272.
- [46] WU S P, SCHWAB J, YANG B Y, et al. Two-years PM_{2.5} observations at four urban sites along the coast of Southeastern China[J]. *Aerosol and Air Quality Research*, 2015, 15(5): 1799-1812.
- [47] ZHANG F W, ZHAO J P, CHEN J S, et al. Pollution characteristics of organic and elemental carbon in PM_{2.5} in Xiamen, China[J]. *Journal of Environmental Sciences*, 2011, 23(8): 1342-1349.
- [48] CHENG Y H, LIN C C, LIU J J, et al. Temporal characteristics of black carbon concentrations and its potential emission sources in a southern Taiwan industrial urban area[J]. *Environmental Science and Pollution Research*, 2014, 21(5): 3744-3755.
- [49] 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 Huizhong, WU Dui, LIAO Biting, et al. Compare of black carbon concentration variation between Dongguan and Maofengshan[J]. *China Environmental Science*, 2013, 33(4): 605-612.
- [50] 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.
CHENG Ding, WU Sheng, WU Dui, 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.
- [51] 孙杰, 孙天乐, 何凌燕. 深圳市环境空气中黑碳气溶胶的污染特征研究[J]. *中国测试*, 2012, 38(3): 8-11.
SUN Jie, SUN Tianle, HE Lingyan. Pollution characteristics of black carbon aerosol in ambient air of Shenzhen[J]. *China Measurement and Test*, 2012, 38(3): 8-11.
- [52] 程丁. 珠三角典型城市黑碳气溶胶污染特征及影响因素分析[D]. 广州: 暨南大学, 2018.
CHENG Ding. Characteristics of black carbon aerosol and its influencing factors in typical cities of the PRD[D]. Guangzhou: Jinan University, 2018.
- [53] 吴兑, 廖碧婷, 陈慧忠, 等. 珠江三角洲地区的灰霾天气研究进展[J]. *气候与环境研究*, 2014, 19(2): 248-264.
WU Dui, LIAO Biting, CHEN Huizhong, et al. Advances in studies of haze weather over Pearl River Delta[J]. *Climatic and Environmental Research*, 2014, 19(2): 248-264.
- [54] WANG X P, CHEN Y J, TIAN C G, et al. Impact of agricultural waste burning in the Shandong Peninsula on carbonaceous aerosols in the Bohai Rim, China[J]. *Science of the Total Environment*, 2014, 481: 311-316.
- [55] 张霞, 余益军, 解淑艳, 等. 全国大气背景地区黑碳浓度特征[J]. *中国环境检测*, 2018, 34(1): 32-40.
ZHANG Xia, YU Yijun, XIE Shuyan, et al. The characteristic of black carbon concentration at national ambient air background stations[J]. *Environmental Monitoring in China*, 2018, 34(1): 32-40.
- [56] 赵玉成, 刘鹏, 王剑琼, 等. 1991~2011年瓦里关全球大气本底监测事实[J]. *青海环境*, 2014, 24(1): 32-35.
ZHAO Yucheng, LIU Peng, WANG Jianqiong, et al. Facts of the Waliguan Global atmospheric background monitoring from 1991 to 2011[J]. *Journal of Qinghai Environment*, 2014, 24(1): 32-35.
- [57] MORI T, KONDO Y, OHATA S, et al. Wet deposition of black carbon at a remote site in the East China Sea[J]. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 2014, 119(17): 10485-10498.
- [58] LI C L, YAN F P, KANG S C, et al. Re-evaluating black carbon in the Himalayas and the Tibetan Plateau: concentrations and deposition[J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2017, 17(19): 11899-11912.
- [59] 方引. 渤海黑碳的区域地球化学行为[D]. 烟台: 中国科学院烟台海岸带研究所, 2016.
FANG Yin. Regional geochemical behavior of black

- carbon in Bohai and Yellow Seas, China[D]. Yantai: Yantai Institute of Coastal Zone Research, Chinese Academy of Sciences, 2016.
- [60] BAO H Y, NIGGEMANN J, LUO L, et al. Aerosols as a source of dissolved black carbon to the ocean[J]. *Nature Communications*, 2017, 8: 510.
- [61] MATSUDA K, SASE H, MURAO N, et al. Dry and wet deposition of elemental carbon on a tropical forest in Thailand[J]. *Atmospheric Environment*, 2012, 54: 282-287.
- [62] XING J W, SONG J M, YUAN H M, et al. Atmospheric wet deposition of dissolved organic carbon to a typical anthropogenic-influenced semi-enclosed bay in the western Yellow Sea, China: Flux, sources and potential ecological environmental effects[J]. *Ecotoxicology and Environmental Safety*, 2019, 182: 109371.
- [63] 宋金明, 李学刚, 袁华茂, 等. 海洋生物地球化学[M]. 北京: 科学出版社, 2020.
SONG Jinming, LI Xuegang, YUAN Huamao, et al. *Marine Biogeochemistry*[M]. Beijing: Science Press, 2020.
- [64] JURADO E, JAWARD F M, LOHMANN R, et al. Atmospheric dry deposition of persistent organic pollutants to the Atlantic and inferences for the global oceans[J]. *Environmental Science and Technology*, 2004, 38(21): 5505-5513.
- [65] 李敏桥, 林田, 郭天锋, 等. 长江口大气多氯联苯干湿沉降通量[J]. *环境科学学报*, 2019, 39(8): 2717-2724.
LI Minqiao, LIN Tian, GUO Tianfeng, et al. Atmospheric dry and wet depositional fluxes of polychlorinated biphenyls over the Yangtze River Estuary[J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 2019, 39(8): 2717-2724.
- [66] LAO Q B, JIAO L P, CHEN F J, et al. Polychlorinated biphenyls (PCBs) in atmospheric particles at an isolated Island (Pingtan Island) in Fujian Province, China[J]. *Atmosphere*, 2018, 9(2): 59.
- [67] YUE Q, ZHANG K, ZHANG B Z, et al. Occurrence, phase distribution and depositional intensity of dichlorodiphenyltrichloroethane (DDT) and its metabolites in air and precipitation of the Pearl River Delta, China[J]. *Chemosphere*, 2011, 84(4): 446-451.
- [68] SUMAN D O, KUHLBUSCH T A J, LIM B, et al. Marine sediments: a reservoir for black carbon and their use as spatial and temporal records of combustion[J]. *Sediment Records of Biomass Burning and Global Change*, 1997, 51: 271-293.
- [69] JURADO E, DACHS J, DUARTE C M, et al. Atmospheric deposition of organic and black carbon to the global oceans[J]. *Atmospheric Environment*, 2008, 42(34): 7931-7939.
- [70] LI M, BAO F X, ZHANG Y, et al. Role of elemental carbon in the photochemical aging of soot[J]. *Proceedings of the National Academy of Sciences*, 2018, 115(30): 7717-7722.
- [71] 张楠, 覃栋, 谢绍东. 中国黑碳气溶胶排放量及其空间分布[J]. *科学通报*, 2013, 58(19): 1855-1864.
ZHANG Nan, TAN Li, XIE Shaodong. Black carbon aerosol emissions and their spatial distribution in China[J]. *Science China Press*, 2013, 58(19): 1855-1864.
- [72] ZHANG Y L, SCHNELLE-KREIS J, ABBASZADE G, et al. Source apportionment of elemental carbon in Beijing, China: insights from radiocarbon and organic marker measurements[J]. *Environmental Science and Technology*, 2015, 49(14): 8408-8415.
- [73] SANDERADEWI J, PREVOT A S H, 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 and Technology*, 2008, 42(9): 3316-3323.
- [74] 姜帆, 刘俊文, 黄志炯, 等. 黑碳气溶胶的稳定和放射性碳同位素研究进展[J]. *科学通报*, 2020, 65(35): 4095-4106.
JIANG Fan, LIU Junwen, HUANG Zhijiong, et al. Progress of the stable carbon and radiocarbon isotopes of black carbon aerosol[J]. *Chinese Science Bulletin*, 2020, 65(35): 4095-4106.
- [75] LARSEN R K, BAKER J E. Source apportionment of polycyclic aromatic hydrocarbons in the urban atmosphere: a comparison of three methods[J]. *Environmental Science and Technology*, 2003, 37(9): 1873-1881.
- [76] 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 Guan, LIU Wei, LIU Zhihong, et al. A research overview of black carbon aerosols[J]. *Journal of Catastrophology*, 2015, 30(2): 205-214.
- [77] FANG W Z, DU K, ANDERSSON A, et al. Dual-isotope constraints on seasonally resolved source fingerprinting of black carbon aerosols in sites of the four emission hot spot regions of China[J]. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 2018, 123(11): 735-747.
- [78] WANG Q, FENG W H, LIU M, et al. Atmospheric elemental carbon deposition from urban and suburban sites of Shanghai: Characteristics, sources and comparison with aerosols and soils[J]. *Atmospheric Pollution Research*, 2021, 12(2): 193-199.

Atmospheric dry and wet deposition of black carbon and source apportionment in offshore and coastal zones of China over the past 20 years

FENG Chen-long^{1, 5}, XING Jian-wei^{1, 2, 3, 4}, YUAN Hua-mao^{1, 2, 3, 4},
SONG Jin-ming^{1, 2, 3, 4}, LI Xue-gang^{1, 2, 3, 4}, MA Jun^{1, 2, 4}

(1. Key Laboratory of Marine Ecology and Environmental Sciences, Institute of Oceanology Chinese Academy of Sciences, Qingdao 266071, China; 2. Marine Ecology and Environmental Science Laboratory, Pilot National Laboratory for Marine Science and Technology (Qingdao), Qingdao 266237, China; 3. University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China; 4. Center for Ocean Mega-science, Chinese Academy of Sciences, Qingdao 266071, China; 5. School of Chemical and Molecular Engineering, Qingdao University of Science and Technology, Qingdao 266061, China)

Received: Oct. 24, 2022

Key words: atmospheric black carbon concentration; China's offshore and coastal zone areas; spatial distribution; deposition flux; source apportionment

Abstract: Black carbon, as a ubiquitous carbonaceous aerosol component in the atmosphere, has attracted a lot of attention because of its profound effects on the ecological environment. A better understanding of the black carbon deposition in the ocean will aid in clarifying the process of ocean carbon cycling. However, there have been few investigations on the atmospheric black carbon deposition in China's offshore and coastal zones, and the relevant research data are insufficient to explore its regularity. As a result, the relevant data on atmospheric black carbon concentration in this region for the past 20 years were reanalyzed, the deposition fluxes were calculated using the integrated data, and then the spatial distribution characteristics were analyzed. Finally, the existing black carbon source apportionment methodologies were examined, and the primary sources of atmospheric black carbon in this region were generally estimated. On this premise, the future study of atmospheric black carbon in offshore is discussed. The results showed the following: (1) The average atmospheric black carbon concentrations in the offshore and coastal areas of China were about 1.95 ± 1.28 and $5.05 \pm 2.62 \mu\text{g}/\text{m}^3$, respectively, with the remarkable characteristics of anthropogenic pollution. The black carbon concentration in the coastal areas showed a V-shaped distribution from north to south; the smallest values were found along the South Yellow Sea coast, while in the offshore areas, it showed a decreasing trend. (2) The overall deposition fluxes of atmospheric black carbon across China's offshore and coastal areas were 413.2 ± 137.1 and $1422.7 \pm 721.1 \text{ mg}/(\text{m}^2 \cdot \text{a})$, respectively, with remarkable differences between the North and South of China. Wet deposition is the major routine for the scavenging of atmospheric black carbon, which is primarily controlled by the precipitation process and source emission intensity. The calculated atmospheric subsidence of black carbon in China's offshore can account for $\sim 16\%$ of that in the global ocean. (3) In China's coastal zone, fossil fuel sources produced $\sim 62\%$ – 84% of the total atmospheric black carbon emissions. As a result, more emphasis should be placed on reducing the use of fossil fuels by controlling atmospheric black carbon emissions. In the future, the integration and mutual correction of different source apportionment methods should receive more attention. Finally, the study on the migration, transformation, and burial mechanisms of black carbon in different reservoirs of the earth should be strengthened. The black carbon in the offshore and coastal zones is influenced by a variety of factors. Its subsidence and inert burial in the marine sediments will enhance the marine carbon sink.

(本文编辑: 赵卫红)