

蔡竟,支国瑞,陈颖军,等. 中国秸秆焚烧及民用燃煤棕色碳排放的初步研究[J]. 环境科学研究, 2014, 27(5): 455-461.

CAI Jing, ZHI Guorui, CHEN Yingjun, et al. A preliminary study on brown carbon emissions from open agricultural biomass burning and residential coal combustion in China[J]. Research of Environmental Sciences, 2014, 27(5): 455-461.

## 中国秸秆焚烧及民用燃煤棕色碳排放的初步研究

蔡 竟<sup>2</sup>, 支国瑞<sup>1\*</sup>, 陈颖军<sup>3</sup>, 孟 凡<sup>1</sup>, 薛志钢<sup>1</sup>, 李 剑<sup>2</sup>, 方 引<sup>3</sup>

1. 中国环境科学研究院, 环境基准和风险评估国家重点实验室, 北京 100012

2. 南昌航空大学环境与化学工程学院, 江西 南昌 330063

3. 中国科学院烟台海岸带研究所, 山东 烟台 264003

**摘要:** 近年来的研究表明, 在 BC(黑碳)和 OC(有机碳)之间, 还存在着一种有弱吸光能力的 OC, 因大多显棕黄色而被称为 BrC (brown carbon 棕色碳)。广泛存在的秸秆焚烧和冬季大量民用燃煤的使用, 使国内 BrC 排放严重, 但鲜见对其排放量的测算。采用七波段黑碳仪(aethalometer)方法, 对夏季小麦秸秆焚烧过程及冬季民用炉燃煤过程产生的烟气进行现场监测。根据 BrC 与 BC 的光谱关联性差别, 分化出  $R_{\text{BrC/BC}}$  (总光学衰减中 BrC 和 BC 的相对贡献)。结果表明: 麦秆焚烧和民用燃煤烟气的  $R_{\text{BrC/BC}}$  分别为  $1.754 \pm 0.278$  和  $0.183 \pm 0.142$ 。借助  $R_{\text{BrC/BC}}$  值, 结合现有的 BC 排放清单(2000 年), 初步推算出中国民用燃煤和秸秆田间焚烧 BrC 的排放总量(以 BC 当量计, 下同)为  $(270.6 \pm 101.6)$  Gg, 接近同期 BC 排放量的一半; 其中秸秆焚烧的 BrC 排放量为  $(175.4 \pm 27.8)$  Gg, 约占二者总量的 65%; 民用燃煤的 BrC 排放量为  $(95.2 \pm 73.7)$  Gg, 约占 35%。该研究结果可为更全面的 BrC 排放测算奠定基础, 并为研究 BrC 的大气化学及辐射强迫提供依据。

**关键词:** 农业秸秆; 民用燃煤; BrC(棕色碳); 排放量估算

中图分类号: X51 文章编号: 1001-6929(2014)05-0455-07

文献标志码: A DOI: 10.13198/j.issn.1001-6929.2014.05.01

## A Preliminary Study on Brown Carbon Emissions from Open Agricultural Biomass Burning and Residential Coal Combustion in China

CAI Jing<sup>2</sup>, ZHI Guo-rui<sup>1</sup>, CHEN Ying-jun<sup>3</sup>, MENG Fan<sup>1</sup>, XUE Zhi-gang<sup>1</sup>, LI Jian<sup>2</sup>, FANG Yin<sup>3</sup>

1. State Key Laboratory of Environmental Criteria and Risk Assessment, Chinese Research Academy of Environmental Sciences, Beijing 100012, China

2. School of Environmental and Chemical Engineering, Nanchang Hangkong University, Nanchang 330063, China

3. Yantai Institute of Coastal Zone Research, Chinese Academy of Sciences, Yantai 264003, China

**Abstract:** Recent studies suggest that, between ordinary organic carbon (OC, non-light-absorbing) and black carbon (BC, strongly light-absorbing) in atmospheric carbonaceous aerosols, there are some light-absorbing organic carbon aerosols collectively termed brown carbon (BrC). Although China has large BrC emissions from residential coal combustion and open agricultural biomass burning, there are little specific BrC emissions or testing data available. A 7-wavelength aethalometer was used to monitor the light-absorbing features of primary aerosols emissions from summertime open burning of wheat straw and from wintertime combustion of residential coal. Based on distinctions in the spectral dependence between BrC and BC (the Ångström index is theoretically 1.0 for BC and is greater than 1.0 for BrC), the relative shares of BrC and BC ( $R_{\text{BrC/BC}}$  ratio) were calculated. The results show that the value was  $1.754 \pm 0.278$  for wheat straw and  $0.183 \pm 0.142$  for residential coal. Based on the  $R_{\text{BrC/BC}}$  ratios obtained, preliminary estimates of China's BrC emissions from residential coal and open agricultural biomass burning in 2000 were calculated with the help of corresponding BC emissions reported in previous

studies. The yearly sum of BrC emissions from residential coal and open agricultural biomass burning was  $270.6 \pm 101.6$  Gg (BC equivalent) in China, with  $(175.4 \pm 27.8)$  Gg or approximately 65% attributable to field agricultural biomass and  $(95.2 \pm 73.7)$  Gg or approximately 35%, to residential coal. These findings would establish a foundation for a more comprehensive measurement of BrC emissions in the future as well as studies of

收稿日期: 2013-11-21 修订日期: 2014-03-02

基金项目: 国家自然科学基金项目(41173121, 41373131); 国家环境保护公益性行业科研专项(201209007)

作者简介: 蔡竟(1988-), 男, 福建漳州人, caijing1988@163.com.

\* 责任作者, 支国瑞(1968-), 男, 河南安阳人, 研究员, 博士, 主要从事大气排放源、碳气溶胶和短寿命气候污染物研究, zhigr@cares.org.cn

BrC in atmospheric chemistry and radiation forcing.

**Key words:** agricultural biomass; residential coal; brown carbon (BrC); emissions estimate

碳气溶胶是大气气溶胶的重要组成部分,不仅危害人类健康,还深刻影响地球辐射平衡和气候变化<sup>[1-3]</sup>。通常将大气碳气溶胶分成性质迥然不同的2个类别:①有强烈吸光作用的BC(black carbon,黑碳)气溶胶,是气溶胶中最具致暖潜力的组分<sup>[4-6]</sup>;②没有明显吸光能力的OC(organic carbon,有机碳)气溶胶,包含大量有机颗粒物,与大多数无机气溶胶一起通过对太阳辐射的散射作用而对大气有致冷效应<sup>[7-8]</sup>。然而,近年的研究表明,这种分类方式并不完全符合实际,碳气溶胶实际上是一个没有明显BC-OC界限的连续体<sup>[9-11]</sup>。在有强烈吸光作用的BC和没有吸光作用的普通OC之间,还有一类有一定吸光能力的OC,因为大多显棕黄色,2006年被正式称为BrC(brown carbon,棕色碳)<sup>[12]</sup>。可见,BrC并不是一种固定的、纯净的物质,而是所有吸光OC的总称,所以很难确定BrC固定的官能团组成,但多环芳烃、类腐殖质及生物聚合物均可能是大气BrC气溶胶的重要组成部分<sup>[10]</sup>。BrC成为继BC以后,需要加以特别关注的另一类吸光碳。

与BC吸光效率一般遵守波长倒数( $\lambda^{-1}$ )的规律不同,随着波长的降低特别是接近紫外区以后,BrC的吸光能力上升更快,这是其有别于BC的关键特征<sup>[9,13]</sup>。由于BrC本质上是有机物,因此基于化学或热稳定性的分析方法将该类物质归入普通OC的范畴;而基于膜上衰减的光学测定法,如最常见的黑碳仪(aethalometer)方法,通常采用近红外的波长监测气溶胶的吸光系数,而BrC在这里几乎没有吸收,因此也无法反映其存在<sup>[9,14]</sup>。综上,基于上述方法获得的碳气溶胶光学数据在用于传统的气候、传输模式及排放清单中时,由于缺乏对BrC的考虑,从而影响了结果的准确性、全面性和客观性<sup>[15]</sup>。因此,有必要开展包括BrC排放量估算在内的相关研究。

BrC主要来源于化石燃料或生物质的低温和低效燃烧,也有一部分来源于生物排放及非均相或多相大气过程<sup>[9,12,16-21]</sup>。中国能源结构以煤为主,每年仅小型炉具供居民采暖就需燃煤数千万t<sup>[22]</sup>;同时,农业秸秆就地焚烧陋习长期存在,屡禁不止。这2类燃烧过程受条件所限,均存在较为严重的不完全燃烧现象,导致大量碳气溶胶排放,并与其他空气污染物一起造成严重空气污染<sup>[23-24]</sup>。因此,关注中国的BrC问

题,首先需要关注秸秆焚烧和民用煤燃烧过程的排放。

该研究利用BrC与BC的光谱关联性差别,借助气溶胶七波段黑碳测定仪,对夏季麦收期间的小麦秸秆焚烧及冬季民用炉燃煤过程进行现场测试,建立了民用燃煤和麦秆焚烧烟气中BrC与BC排放的 $R_{BrC/BC}$ (相对贡献);借用麦秆烟气的 $R_{BrC/BC}$ 作为所有农业秸秆的 $R_{BrC/BC}$ ,依托现有的BC排放清单,初步推算出中国民用燃煤和秸秆开放焚烧过程中BrC的排放量,期为今后进一步开展BrC排放、表征及影响研究打下基础。

## 1 研究方法

### 1.1 主要仪器

现场烟气光学吸收(衰减)测量采用气溶胶七波段黑碳测定仪(AE-31, Magee Scientific, USA)进行。黑碳测定仪共7个波长(950、880、660、590、520、470和370 nm),烟气经过仪器的石英纤维滤带时,颗粒物被阻留在滤带上。通过测量滤带前后的光强变化,计算碳气溶胶在不同波长的吸收特征<sup>[25]</sup>。

烟气样品采用便携式颗粒采样器(MiniVol TAS, AirMetrics, USA)采集。滤膜样品OC和EC(elemental carbon,元素碳)含量的测定采用热/光法碳分析仪(DRI Model 2001A)。采用Palas烟气稀释器(DP-10000)进行燃煤烟道气的稀释,可选稀释倍数为10、100、1 000、10 000。

### 1.2 烟气的吸光作用测试和滤膜采集

#### 1.2.1 秸秆

中国北方地区的夏、秋作物主要是小麦和玉米。在小麦收割季节,为了方便夏种和夏管,有大量秸秆被就地焚烧。现场测试于2013年6月9—12日在河南、河北两省展开。在每一个测试地点,启动气溶胶七波段黑碳测定仪,设置读数周期为3 min,仪器完成自检后进入连续自动记录状态。在气溶胶七波段黑碳测定仪正常运行的过程中,启动便携式颗粒采样器进行颗粒物样品采集,持续30~60 min。根据采样器要求,气溶胶七波段黑碳测定仪及便携式颗粒采样器的入口气流流速均为5 L/min,以保证气溶胶切割粒径均为 $2.5 \mu\text{m}$ ( $\text{PM}_{2.5}$ )。由于在收获季节,经常是一大片区域均处于焚烧烟气的笼罩之中,所以只要将相关设备载入这个区域,就可以监测相应的吸光碳(含

BC 和 BrC) 光学性质, 无须关注位置、风向等因素。

### 1.2.2 民用煤

碳气溶胶的排放与煤种(成熟度)有密切关系<sup>[26-28]</sup>, 因此选用无烟煤和烟煤 2 种成熟度的煤, 其中在烟煤中选择低、中、高挥发分 3 种代表样品。依据 GB/T 212—2001《煤的工业分析方法》测定煤质分析数据, 结果见表 1。每种煤均测试了 2 种燃烧形式: ① 3~6 cm 的原煤块, 这是原煤散烧的常见形式; ② 混合黏土后的煤饼, 属型煤的一种。研究<sup>[27, 29]</sup>表明, 型煤的使用可以减少 BC 及 OC 的排放。

表 1 民用燃煤的工业分析

Table 1 Industrial analysis of residential coals %

煤产地及代码	种类	$M_{ad}$	$A_{ad}$	$V_{daf}$	$w(FC_{ad})$
河南安阳 (AY)	无烟煤	1.75	10.31	8.09	80.83
河南新安 (XA)	低挥发分烟煤	0.90	10.28	20.74	70.40
陕西府谷 (FG)	中挥发分烟煤	5.01	14.08	30.22	56.46
陕西榆林 (YL)	高挥发分烟煤	1.16	14.02	35.44	54.76

注:  $M_{ad}$  为空干基水分;  $A_{ad}$  为空干基灰分;  $V_{daf}$  为干燥无灰基挥发分;  $FC_{ad}$  为空干基固定碳。

该研究燃煤炉具分 2 种: ① 直燃型。其燃烧方式较为简单和直接, 但由于烟气在可燃烧区停留时间较短, 因此不利于热能利用和完全燃烧。② 反烧回程式。其在设计上增加了燃煤路程及与循环水的热交换机会, 不仅利于煤的完全燃烧, 而且有利于热量的高效利用。这些炉具安置在河南省安阳市郊区的一个家庭里, 以模拟当地家用微型小锅炉的使用。

烟气稀释与采集: 烟煤烟气排放非常严重, 碳气溶胶浓度较高, 须进行一定程度的稀释后才能供后续的监测、采样。通过稀释系统配置的动力装置, 从烟囱管道中导出一定量的烟气, 经稀释器时, 根据需要选择稀释倍数(1、10 和 100, 具体数值以采样滤膜的承载能力来定)进行稀释, 然后完成黑碳仪监测及滤膜采集。

炉具引燃方法同文献[27]。启动气溶胶七波段黑碳测定仪, 设置读数周期为 3 min, 仪器完成自检后进入连续自动记录状态。在气溶胶七波段黑碳测定仪正常运行的过程中, 开启稀释系统, 以便携式颗粒采样器作动力源, 使烟气通过特制的大滤膜夹具(8"×10"石英滤膜,  $l=2.54$  cm)并沉积于滤膜上。向炉中加入煤(煤块或煤饼), 采样时间一般持续 90~180 min, 中间根据燃烧和采样需要, 分数次添加燃煤。根据采样器要求, 气溶胶七波段黑碳测定仪及

便携式颗粒采样器的入口气流流速均为 5 L/min, 以保证气溶胶切割粒径均为 2.5  $\mu\text{m}$  ( $\text{PM}_{2.5}$ )。为了避免烟气在稀释前因降温而出现水汽冷凝, 对稀释器前的采样管路包裹了加热套。

### 1.3 滤膜样品分析

滤膜样品采用 IMPROVE (interagency monitoring of protected visual environments network) 温度程序<sup>[30-31]</sup>通过热/光法碳分析仪进行  $\rho(\text{OC})$  /  $\rho(\text{EC})$  分析, OC 与 EC 之和为 TC (总碳)。

### 1.4 数据处理与分析

#### 1.4.1 $\mathring{A}$ (Ångström 波长指数) 的计算

BrC 光学特殊性在于其对可见光和近红外区域的吸收能力远弱于 BC, 但是在接近紫外光区, 其吸光能力明显增强, 表现出与 BC 截然不同的波长关联性<sup>[9, 18, 32]</sup>, 即:

$$\alpha = K \times \lambda^{-\mathring{A}} \quad (1)$$

式中:  $\alpha$  为质量吸收效率,  $\text{m}^2/\text{g}$ ;  $K$  为包含气溶胶质量浓度的常数;  $\lambda$  为光的波长, nm;  $\mathring{A}$  为光吸收的 Ångström 指数。作为气溶胶光吸收中光谱变化强度的一个量度, 对于典型的 BC 气溶胶(如柴油车尾气 and 一般现代城市气溶胶),  $\mathring{A} = 1$ <sup>[33-35]</sup>; 而对于含有明显 BrC 的气溶胶  $\mathring{A} > 1$ <sup>[9, 36-37]</sup>。

ATN (light attenuation, 光学衰减度, 无量纲) 可直接从气溶胶七波段黑碳测定仪上读出, 其值取决于样品的  $III_0$  (light transmission, 光透射率):

$$\text{ATN} = -100 \ln(III_0) \quad (2)$$

式中  $I_0, I$  分别为同一光源透过空白滤膜和沉积气溶胶滤膜后的光强。当监测的气溶胶性质确定时, ATN 与  $\alpha$  呈线性关系, 即  $\text{ATN} = k \times \alpha$ , 其中  $k$  是联系 ATN 及  $\alpha$  的系数。结合式 (1), 可建立 ATN 与  $\mathring{A}$  的关系, 如式 (3) 所示:

$$\text{ATN} = K' \times \lambda^{-\mathring{A}} \quad (3)$$

式中  $K'$  为常数。通过测定得同一样品 7 个  $\lambda$  对应的 ATN 值, 然后进行幂函数曲线拟合运算, 即可获得  $\mathring{A}$ 。

#### 1.4.2 $R_{\text{BrC/BC}}$ 的计算

Kirchstetter 等<sup>[9]</sup>采用光学法研究生物质燃烧、机动车尾气排放的碳气溶胶的吸收光谱关联性, 使用多波长气溶胶吸光测量设备绘制 ATN 与  $\lambda$  的关系曲线; 其研究结果表明, 吸光性碳气溶胶的吸光能力与光波长(近紫外到近红外区域)之间存在着幂指数方程关系, 其中吸收光谱分解为 2 个来源——BC (假定其光谱性质恒定, 如  $\mathring{A} = 1$ ) 和其他吸光碳(即 BrC)。据此, 可推算出在气溶胶的混合吸光作用中 BC 和

BrC 的相对贡献. 2006 年 Andreae 等<sup>[12]</sup> 首次提出 BrC 概念时, 也推荐使用相似思路来实现 BrC 的定量监测, 并期待使用该方法建立更大数据库, 为评估 BrC 的大气光吸收作用提供可能性. 笔者也正是基于这一思想建立 BrC、BC 相对关系, 具体步骤:

第一 根据黑碳测定仪在 7 个  $\lambda$  处测定的 ATN, 以  $\lambda$  为自变量, ATN 为因变量, 进行幂函数拟合运算, 获得  $\dot{A}$  和  $K'$ , 代入式 (3), 建立  $ATN_{SUM}$  (总光学衰减) 与  $\lambda$  的函数关系式 (见图 1).

第二, 令  $\dot{A} = 1$ , 则  $ATN_{SUM}$  与  $\lambda$  的函数关系式演变成  $ATN_{BC}$  (黑碳光学衰减) 与  $\lambda$  的函数关系式 (见图 1).

第三, 采用定积分方法求出  $ATN_{SUM}$  和  $ATN_{BC}$  2 个函数在波长 370 ~ 880 nm 内各自曲线与坐标轴围成的面积, 二者面积之差代表 BrC. 按式 (4) 计算  $R_{BrC/BC}$ :

$$R_{BrC/BC} = \frac{\int (ATN_{SUM} - ATN_{BC}) d\lambda}{\int ATN_{BC} d\lambda} \quad \lambda \in (370, 880) \quad (4)$$

可以看出,  $R_{BrC/BC}$  是烟气气溶胶在 370 ~ 880 nm 波长范围内 BrC 与 BC 吸光强度的比值. 由于目前对 BrC 的研究主要面向其对辐射平衡的影响, 因此,  $R_{BrC/BC}$  对于了解不同燃烧过程碳气溶胶的排放特征及碳气溶胶的气候效应非常具有现实意义.

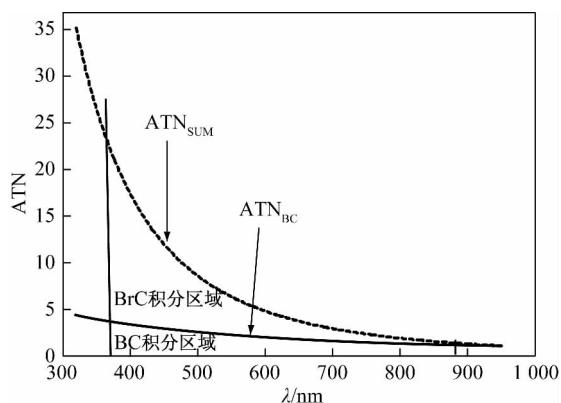


图1 BC 和 BrC 的烟气 ATN 与  $\lambda$  的关系

Fig. 1 Relationship between light attenuation (ATN) and wavelength ( $\lambda$ ) for emissions containing both BC and BrC

#### 1.4.3 BrC 排放量的计算

BrC 排放量按式 (5) 计算:

$$E = Q_{BC} \cdot R_{BrC/BC} \quad (5)$$

式中:  $Q_{BC}$  为参考清单中 BC 的年度排放量,  $Gg$  ( $10^9 g$ );  $E$  为 BrC 的年度排放量 (以 BC 当量计, 全文同),  $Gg$ .

## 2 结果与讨论

### 2.1 烟气中 BrC 的存在

采用 1.4.1 节方法, 计算麦秆焚烧和民用燃煤烟气光吸收作用的  $\dot{A}$ , 结果如表 2 所示. 由表 2 可见, 小麦秸秆烟气的  $\dot{A}$  在 2.723 ~ 3.234 之间, 平均值为 3.016, 均大于 1.00, 表明小麦秸秆焚烧产生了明确的 BrC 排放. 相比麦秆焚烧, 虽然民用燃煤的  $\dot{A}$  明显较低, 在 1.030 ~ 1.779 之间, 但平均值为 1.434, 也表明有 BrC 排放存在. 与  $\dot{A}$  类似, 麦秆焚烧的  $R_{OC/TC}$  (烟气中  $\rho(OC) / \rho(TC)$ ) 也明显高于民用煤烟气的值, 说明较高的  $R_{OC/TC}$  有利于 BrC 生成, 进而导致较高的  $\dot{A}$ . 影响 BrC 形成的因素很多, 这有待于今后的进一步研究.

表 2 烟气光吸收的 Ångström 指数 ( $\dot{A}$ ) 和  $R_{BrC/BC}$   
Table 2 Ångström index ( $\dot{A}$ ) and  $R_{BrC/BC}$  of combustion smoke

样品种类	样品编号	$\dot{A}$	$R_{BrC/BC}$	$R_{OC/TC}$	
小麦秸秆	S1	3.234	2.221	0.970	
	河南温县	S2	2.723	1.359	0.948
		S3	3.098	1.934	0.981
		S4	2.922	1.589	0.971
	河南沁阳	S5	3.036	1.702	0.979
		S6	2.967	1.645	0.977
	河北大名	S7	2.801	1.530	0.979
		S8	3.326	2.180	0.977
	河北磁县	S9	3.034	1.625	0.954
		S10	3.018	1.755	0.970
平均值		3.016	1.754	0.971	
标准偏差		0.181	0.278	0.011	
民用燃煤	无烟煤	AY-1 <sup>2)</sup>	1.281	0.047	0.989
		AY-2 <sup>2)</sup>	1.261	0.052	0.956
	烟煤	XA-1 <sup>2)</sup>	1.443	0.177	0.518
		XA-2 <sup>1)</sup>	1.545	0.290	0.616
		FG-1 <sup>2)</sup>	1.779	0.377	0.720
		FG-2 <sup>1)</sup>	1.759	0.340	0.867
		YL-1 <sup>2)</sup>	1.377	0.173	0.407
		YL-2 <sup>1)</sup>	1.030	0.007	0.388
平均值		1.434	0.183	0.683	
标准偏差		0.255	0.142	0.239	

1) 反烧回程炉; 2) 直燃炉.

### 2.2 $R_{BrC/BC}$

使用 1.4.2 节的方法计算烟气的  $R_{BrC/BC}$ , 结果见表 2. 小麦秸秆焚烧烟气的  $R_{BrC/BC}$  在 1.359 ~ 2.221 之间, 平均值为  $1.754 \pm 0.278$ , 表明小麦秸秆田间焚烧所产生的 BrC 吸光强度比相应 BC 的增高较多, 因此, 在考虑吸光碳的问题时, 绝对不能忽略这些 BrC 的影响; 对于民用燃煤, 烟气的  $R_{BrC/BC}$  最高为 0.377, 最低不足 0.01, 平均值为  $0.183 \pm 0.142$ , 表明民用燃煤使用中排放的 BrC 吸光强度远低于相应 BC 的.

使用  $R_{\text{BrC/BC}}$  既可避开 BrC 组成的多样性、不同 BrC 吸光能力的差异性, 又避开了化学定量方法的缺失性, 这为估算不同含碳燃烧物 BrC 排放特征提供了有益的信息<sup>[18, 38-40]</sup>; 然而, 该研究计算的  $R_{\text{BrC/BC}}$  值并不能理解为烟气中 BrC 与 BC 的实际质量比, 而应理解为烟气中 BrC 在 370 ~ 880 nm 范围内产生的吸光强度与相伴的 BC 吸光强度的比值。

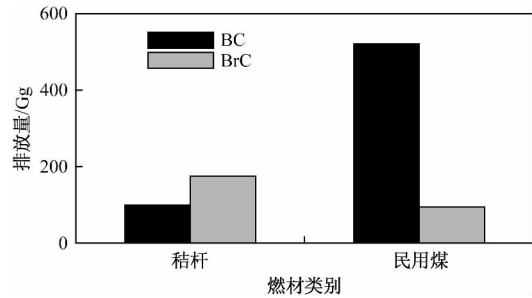
### 2.3 中国秸秆焚烧与民用燃煤的 BrC 排放估算

BrC 已成为继 BC 之后最新被关注的吸光碳概念, 至今没有普遍接受的测定方法, 也没有相应的排放清单。但是, 已被广泛认识的具有更强吸光效率的 BC 的排放清单早已出现, 并且在不断完善中, 因此可用其作为 BrC 排放量计算的参照和基础<sup>[41-44]</sup>。作为示范, 该研究参照文献[41]报道的 BC 排放清单数据(2000年的活动强度数据), 通过使用 2.2 节获得的  $R_{\text{BrC/BC}}$ , 初步计算中国民用燃煤和秸秆焚烧活动 BrC 的排放量。

需要指出, 该研究所用的秸秆仅小麦秸秆一种; 而文献[41]提供的数据却是全部秸秆的焚烧量及相应 BC 排放量。但所有类型秸秆焚烧过程均有燃烧极不完全、 $R_{\text{OC/TC}}$  相对较高、BrC 排放十分显著<sup>[12]</sup>等特点。因此, 该研究暂时以麦秆燃烧的排放特征 ( $R_{\text{BrC/BC}}$ ) 代表中国整个农业秸秆焚烧的排放特征, 从而直接估算秸秆焚烧的 BrC 排放量, 计算结果虽存在一定的不确定性, 但却是目前最合适的解决办法。今后随着国内同类研究的开展, 研究人员会取得越来越多的相关数据, 秸秆焚烧的 BrC 排放估算将会更全面、更准确。

从图 2 可以看出, 2000 年中国农田秸秆焚烧和民用煤燃烧的烟气 BrC 排放总量为  $(270.6 \pm 101.6)$  Gg, 接近相应 BC 排放量的 50% (当年民用燃煤及秸秆焚烧的 BC 排放总量为  $620.8 \text{ Gg}^{[41]}$ )。其中, 农田秸秆焚烧 BrC 排放量  $[(175.4 \pm 27.8) \text{ Gg}]$  约占二者总量的 65%, 剩余 35% 的 BrC 排放来自于民用燃煤  $[(95.2 \pm 73.7) \text{ Gg}]$ 。与工业燃煤相比, 民用燃煤燃烧条件较为简单, 也缺乏必要的污控措施, 使中国燃煤的 BrC 排放相当可观。

中国秸秆焚烧和民用燃煤存在大量的 BrC 排放表明, 如果有关的辐射和传输模式仅考虑 BC 而忽略 BrC 的光学吸收作用, 将会导致严重低估碳气溶胶对能量收入的贡献, 相应的模式输出结果会出现严重偏差。因此, 进一步提高测定可靠性及开展包括 BrC 在内的辐射效应研究是非常必要的。



注: BC 源于文献[41]所统计的 2000 年中国碳气溶胶排放数据。

图 2 基于 BC 排放的 BrC 排放量估算

Fig. 2 BC-based estimation of BrC emissions

就测定方法而言, 燃煤或生物质燃烧的排放源由于其碳气溶胶浓度较高, 可以从波长关联性方面清晰地区分 BrC 与 BC 的贡献。然而, 对于普通的环境空气, 特别是城市区域的环境空气, 由于碳气溶胶的浓度远低于排放源浓度, 加之处于滤膜上的颗粒对光的吸收作用受到滤膜本身及颗粒物自身散射作用的影响, 导致使用黑碳仪方法区分 BC 和 BrC 的能力受到削弱, 这对 BrC 的监测灵敏性和可靠性影响很大<sup>[25, 45]</sup>。因此, 为测定一般环境空气中的 BrC 存在, 需要考虑区别排放源 BrC 测量的新方法。

### 3 结论

a) 采用气溶胶七波段黑碳测定仪测量农田麦秆燃烧及民用煤燃烧烟气中碳气溶胶的吸光效应, 根据不同吸光碳气溶胶的光谱关联性差异, 采用积分法求出  $R_{\text{BrC/BC}}$  (BrC 与 BC 吸光强度的比值)。其中秸秆 (以麦秆为例) 燃烧和民用燃煤烟气的  $R_{\text{BrC/BC}}$  分别为  $1.754 \pm 0.278$  和  $0.183 \pm 0.142$ 。

b) 根据中国 2000 年碳气溶胶排放清单, 借助  $R_{\text{BrC/BC}}$ , 计算出 2000 年中国民用燃煤的 BrC 排放量达到  $(95.2 \pm 73.7) \text{ Gg}$ , 而相应的农田秸秆焚烧 BrC 排放量达到  $(175.4 \pm 27.8) \text{ Gg}$ 。表明 BrC 对环境空气的影响以及对辐射平衡的影响需要给予进一步关注。

c) 该研究可为今后进一步开展排放源的 BrC 测算提供借鉴, 而更多的测算数据也将使中国的 BrC 排放估算更加精确和可靠; 同时指出, 在开展排放源 BrC 监测的基础上, 应该寻求中国环境大气气溶胶 BrC 的监测方法。

#### 参考文献 (References):

- [1] YTTRI K E, MYHRE C L, TØRSETH K. The carbonaceous aerosol: a remaining challenge[J]. WMO Bulletin 2009, 58(1): 54-60.
- [2] BOND T C, STREETS D G, YARBBER K F, et al. A technology-

- based global inventory of black and organic carbon emissions from combustion[J]. *J Geophys Res* 2004 ,109( D14) . doi: 10. 1029/2003JD003697.
- [ 3 ] 杜利川,余兴,李星敏,等. 西安郊区泾河秋、冬季大气黑碳变化及粒径特征[J]. *环境科学研究* 2013 26( 3) :712-720.
- [ 4 ] JACOBSON M Z. Strong radiative heating due to the mixing state of black carbon in atmospheric aerosols [J]. *Nature* 2001 409: 695-697.
- [ 5 ] ZHANG Hua ,WANG Zhili ,GUO Pinwen *et al.* A modeling study of the effects of direct radiative forcing due to carbonaceous aerosol on the climate in East Asia [J]. *Advances in Atmospheric Sciences* 2009 26( 1) :57-66.
- [ 6 ] BOND T C ,DOHERTY S J ,FAHEY D W *et al.* Bounding the role of black carbon in the climate system: a scientific assessment [J]. *J Geophys Res: Atmospheres* 2013 ,118( 11) :5380-5552.
- [ 7 ] HANSEN J ,BOND T ,CAIRNS B *et al.* Carbonaceous aerosols in the industrial era [J]. *EOS ,Transactions American Geophysical Union* 2004 85( 25) :241-248.
- [ 8 ] RAMANATHAN V ,CARMICHAEL G. Global and regional climate changes due to black carbon [J]. *Nature Geoscience* 2008 1: 221-227.
- [ 9 ] KIRCHSTETTER T W ,NOVAKOV T ,HOBBS P V. Evidence that the spectral dependence of light absorption by aerosols is affected by organic carbon [J]. *J Geophysics Res: Atmospheres* 2004 ,109( D21) . doi: 10. 1029/2004JD0004999.
- [10] PÖSCHL U. Aerosol particle analysis: challenges and progress [J]. *Analytical and Bioanalytical Chemistry* 2003 375( 1) :30-32.
- [11] PÖSCHL U. Atmospheric aerosols: composition ,transformation , climate and health effects [J]. *Angewandte Chemie International Edition* 2005 44( 46) :7520-7540.
- [12] ANDREAE M O ,GELENCŠÉR A. Black carbon or brown carbon? the nature of light-absorbing carbonaceous aerosols [J]. *Atmos Chem Phys* 2006 6: 3131-3148.
- [13] YANG M ,HOWELL S G ,ZHUANG J *et al.* Attribution of aerosol light absorption to black carbon ,brown carbon and dust in China: interpretations of atmospheric measurements during EAST-AIRE [J]. *Atmos Chem Phys* 2009 9: 2035-2050.
- [14] HANSEN A D A ,ROSEN H ,NOVAKOV T. The aethalometer: an instrument for the realtime measurement of optical absorption by aerosol particles [J]. *Sci Total Environ* 1984 36: 191-196.
- [15] ALEXANDER D T L ,CROZIER P A ,ANDERSON J R. Brown carbon spheres in East Asian outflow and their optical properties [J]. *Science* 2008 321: 833-836.
- [16] BOND T C. Spectral dependence of visible light absorption by carbonaceous particles emitted from coal combustion [J]. *Geophysical Research Letters* 2001 28( 21) :4075-4078.
- [17] CLARKE A ,MCNAUGHTON C ,KAPUSTIN V *et al.* Biomass burning and pollution aerosol over North America: organic components and their influence on spectral optical properties and humidification response [J]. *J Geophys Res: Atmospheres* 2007 , 112 ( D12) . doi: 10. 1029/2006JD007777.
- [18] HOFFER A ,GELENCŠÉR A ,GUYON P *et al.* Optical properties of humic-like substances( HULIS) in biomass-burning aerosols [J]. *Atmos Chem Phys* 2006 6: 3563-3570.
- [19] GELENCŠÉR A ,HOFFER A ,KISS G *et al.* In-situ formation of light-absorbing organic matter in cloud water [J]. *Journal of Atmospheric Chemistry* 2003 45( 1) :25-33.
- [20] HEGGLIN M I ,KRIEGER U K ,KOOP T *et al.* Organics induced fluorescence in Raman studies of sulfuric acid aerosols [J]. *Aerosol Science and Technology* 2002 36( 4) :510-512.
- [21] LIMBECK A ,KULMALA M ,PUXBAUM H. Secondary organic aerosol formation in the atmosphere via heterogeneous reaction of gaseous isoprene on acidic particles [J]. *Geophysical Research Letters* 2003 30( 19) . doi: 10. 1029/2003GL017738.
- [22] 国家统计局能源统计司. 中国能源统计年鉴 2011 [M]. 北京: 中国统计出版社 2011.
- [23] 伍德侠,魏庆农,魏健琍,等. 秸秆焚烧期的碳黑气溶胶观测及研究 [J]. *环境科学* 2008 29( 12) :3304-3309.
- [24] 尹聪,朱彬,曹云昌,等. 秸秆焚烧影响南京空气质量的成因探讨 [J]. *中国环境科学* 2011 31( 2) :207-213.
- [25] ARNOTT W P ,HAMASHA K ,MOOSMÜLLER H *et al.* Towards aerosol light-absorption measurements with a 7-wavelength aethalometer: evaluation with a photoacoustic instrument and 3-wavelength nephelometer [J]. *Aerosol Science and Technology* , 2005 39( 1) :17-29.
- [26] CHEN Yingjun ,ZHI Guorui ,FENG Yanli *et al.* Measurements of black and organic carbon emission factors for household coal combustion in China: implication for emission reduction [J]. *Environ Sci Technol* 2009 43( 24) :9495-9500.
- [27] ZHI Guorui ,CHEN Yingjun ,FENG Yanli *et al.* Emission characteristics of carbonaceous particles from various residential coal-stoves in China [J]. *Environ Sci Technol* 2008 42( 9) :3310-3315.
- [28] CHEN Yingjun ,ZHI Guorui ,FENG Yanli *et al.* Measurements of emission factors for primary carbonaceous particles from residential raw-coal combustion in China [J]. *Geophysical Research Letters* , 2006 33( 20) . doi: 10. 1029/2006GL026966.
- [29] ZHI Guorui ,PENG Conghu ,CHEN Yingjun *et al.* Deployment of coal-briquettes and improved stoves: possibly an option for both environment and climate [J]. *Environ Sci Technol* 2009 43( 15) :5586-5591.
- [30] CHOW J C ,WATSON J G ,CHEN L W A *et al.* The IMPROVE\_A temperature protocol for thermal/optical carbon analysis: maintaining consistency with a long-term database [J]. *J Air Waste Manage Assoc* 2007 57( 9) :1014-1023.
- [31] CHOW J C ,WATSON J G ,PRITCHETT L C *et al.* The DRI thermal/optical reflectance carbon analysis system: description , evaluation and applications in U. S. air quality studies [J]. *Atmos Environ* 1993 27( 8) :1185-1201.
- [32] YANG X R ,WACHOLDER S ,XU Zhaoyi *et al.* CYP1A1 and GSTM1 polymorphisms in relation to lung cancer risk in Chinese women [J]. *Cancer Letters* 2004 214( 2) :197-204.

- [33] BERGSTROM R W ,RUSSELL P B ,HIGNETT P. Wavelength dependence of the absorption of black carbon particles: predictions and results from the tarfox experiment and implications for the aerosol single scattering albedo [J]. *Journal of the Atmospheric Sciences* 2002 ,59( 3) : 567-577.
- [34] BOND T C ,BERGSTROM R W. Light absorption by carbonaceous particles: an investigative review [J]. *Aerosol Science and Technology* 2006 ,40( 1) : 27-67.
- [35] SCHNAITER M ,HORVATH H ,MOHLER O ,*et al.* UV-VIS-NIR spectral optical properties of soot and soot-containing aerosols [J]. *Journal of Aerosol Science* 2003 ,34( 10) : 1421-1444.
- [36] BOND T C ,ANDERSON T L ,CAMPBELL D. Calibration and intercomparison of filter-based measurements of visible light absorption by aerosols [J]. *Aerosol Science and Technology* ,1999 , 30( 6) : 582-600.
- [37] SCHNAITER M ,GIMMLER M ,LLAMAS I ,*et al.* Strong spectral dependence of light absorption by organic carbon particles formed by propane combustion [J]. *Atmos Chem Phys* ,2006 ,6: 2981-2990.
- [38] GRABER E R ,RUDICH Y. Atmospheric HULIS: how humic-like are they? a comprehensive and critical review [J]. *Atmos Chem Phys* 2006 ,6: 729-753.
- [39] WONASCHÜTZ A , HITZENBERGER R , BAUER H , *et al.* Application of the integrating sphere method to separate the contributions of brown and black carbon in atmospheric aerosols [J]. *Environ Sci Technol* 2009 ,43( 4) : 1141-1146.
- [40] MOOSMÜLLER H ,CHAKRABARTY R K ,ARNOTT W P. Aerosol light absorption and its measurement: a review [J]. *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer* 2009 ,110( 11) : 844-878.
- [41] CAO Guoliang ,ZHANG Xiaoye ,ZHENG Fangcheng. Inventory of black carbon and organic carbon emissions from China [J]. *Atmos Environ* 2006 ,40( 34) : 6516-6527.
- [42] ZHAO Y ,ZHANG J ,NIELSEN C P. The effects of recent control policies on trends in emissions of anthropogenic atmospheric pollutants and CO<sub>2</sub> in China [J]. *Atmos Chem Phys* 2012 ,13: 487-508.
- [43] LU Z ,ZHANG Q ,STREETS D G. Sulfur dioxide and primary carbonaceous aerosol emissions in China and India ,1996-2010 [J]. *Atmos Chem Phys* 2011 ,11: 9839-9864.
- [44] KOCH D ,SCHULZ M ,KINNE S *et al.* Evaluation of black carbon estimations in global aerosol models [J]. *Atmos Chem Phys* 2009 ,9 ( 22) : 9001-9026.
- [45] COEN M C ,WEINGARTNER E ,APITULEY A ,*et al.* Minimizing light absorption measurement artifacts of the aethalometer: evaluation of five correction algorithms [J]. *Atmospheric Measurement Techniques* 2010 ,3: 457-474.

(责任编辑: 孙彩萍)