

Study on Black Carbon and Organic Carbon in Wuhan Based on Aerosol Optical Properties

Yuyao Zhang

State Key Laboratory of Remote Sensing and Information Engineering, Wuhan University, Wuhan Hubei
Email: 865326628@qq.com

Received: Apr. 10th, 2017; accepted: Apr. 27th, 2017; published: Apr. 30th, 2017

Abstract

In this paper, we retrieved BC and BrC columnar content during winter in Wuhan, based on the aerosol complex refractive index for the first time. We found that BC and BrC accounted respectively for <2% and 3% - 10% of the total aerosol volume. The average columnar mass concentrations of BC and BrC in the winter of 2010 were 10.447 mg/m² and 25.406 mg/m², respectively; in the winter of 2011, they were 5.997 mg/m² and 15.259 mg/m², respectively. The BrC/BC ratio in Wuhan was about "2.6", which indicates that the main source of city pollution is large-vehicle emissions caused by heavy traffic. According to the results from the sensitivity study, we suggest setting the complex refractive index of BC as $m = 1.95 + 0.79i$ in Wuhan, to compare data with the synchronous observation of Aethalometer AE-31.

Keywords

Black Carbon, Brown Carbon, Wuhan, Aerosol Complex Refractive Index

基于气溶胶光学特性对武汉黑碳和有机碳的研究

张宇尧

武汉大学测绘遥感信息工程国家重点实验室, 湖北 武汉
Email: 865326628@qq.com

收稿日期: 2017年4月10日; 录用日期: 2017年4月27日; 发布日期: 2017年4月30日

摘要

本文利用气溶胶的复折射指数首次反演得到武汉冬季黑碳和有机碳柱质量浓度。根据反演结果,我们得到武汉冬季气溶胶各组分中黑碳和有机碳所占的比例较小,黑碳所占比例均低于2%,有机碳略高于黑碳,所占比例在3%~10%。武汉2010年冬季黑碳的柱质量浓度均值为10.447 mg/m²,有机碳柱质量浓度的均值为25.406 mg/m²;2011年冬季黑碳的柱质量浓度均5.997 mg/m²,有机碳柱质量浓度的均值为15.259 mg/m²。根据BrC/BC的均值2.6,推测观测的气溶胶中含碳组分主要来自汽车尾气排放,与观测站点位于马路旁的实际情况相符。有机碳和黑碳不同的气溶胶复折射指数虚部假定会导致两者浓度的反演结果的不同,利用同步观测的黑碳仪数据,根据敏感性分析结果,得到黑碳的复折射指数假定为1.95/0.79最合理。

关键词

黑碳,有机碳,武汉,气溶胶复折射指数

Copyright © 2017 by author and Hans Publishers Inc.

This work is licensed under the Creative Commons Attribution International License (CC BY).

<http://creativecommons.org/licenses/by/4.0/>



Open Access

1. 引言

大气气溶胶是指悬浮在气体中的固体或液体微粒与气体载体组成的多相体系,气溶胶主要通过直接辐射强迫和间接辐射强迫影响气候系统,其中吸收性气溶胶产生的辐射强迫是全球和区域气候变化不确定性最大来源之一[1] [2] [3]。黑碳、有机碳和沙尘作为主要的三种吸收性气溶胶,通过吸收和散射太阳辐射,影响地球大气辐射收支平衡。

黑碳气溶胶来自化石燃料的不完全燃烧,作为典型的吸收性气溶胶,对从可见光到红外波段的太阳辐射都具有强烈吸收作用,对地-气系统产生正的辐射强迫,增加大气温度。此外,沙尘气溶胶对太阳辐射也存在一定的吸收作用。有机碳气溶胶包括燃烧过程直接产生的一次有机碳和挥发性有机物通过光化学反应生成的二次有机碳,在紫外和可见光波段也能进行有效的光吸收作用,而且吸收作用的强度随着波长增加而减弱,许多研究表明了有机碳吸收作用的光谱依赖性[4] [5] [6]。由于有机碳组成十分复杂,对其分子水平的认识有限,直接测量有机碳环境浓度的研究较少,有机碳的排放清单仍无从建立[7] [8]。

近年来,基于光学和微物理参数反演气溶胶化学组分的方法开始被提出。气溶胶复折射指数是描述气溶胶散射和吸收特性的一个重要参数,它是一个复数,实部表示气溶胶的散射能力,虚部描述气溶胶的吸收能力。全球气溶胶观测网 AERONET 目前在全世界范围内建立了超过 400 个观测站点,统一采用法国 CIMEL 公司生产的 CE318 太阳光度计,长期观测气溶胶的光学特性,提供了气溶胶粒子谱分布、复折射指数、单次散射反照率等一系列反演产品。Schuster 等[9]根据成分的光学特性将气溶胶简化为三成分模型:BC(黑碳)、AS(硫酸铵)、AW(水),利用气溶胶复折射指数反演得到 AERONET46 个站点的黑碳浓度。Arola 等[10]在此基础上利用有机碳虚部的光谱依赖性,将 440 nm 和 675~1020 nm 的虚部分开考虑,增加了一个输入信息量,将三成分模型扩展为四成分 BC(黑碳)、AS(硫酸铵)、AW(水)和 BrC(有机碳),反演出了生物质燃烧时期气溶胶中 BrC 的含量,首次得到全球有机碳柱浓度分布图。王玲等人[11]

也充分利用了复折射虚部波段依赖性信息, 针对北京的沙尘天气, 将气溶胶化学组成扩展为 BC (黑碳)、AS (硫酸铵)、AW (水) 和 DU (沙尘), 并反演了北京气溶胶中沙尘成分的含量。目前, 王玲等人利用该方法得到北京有机碳浓度分布, 相关研究在中国其他区域开展得较少。武汉作为华中地区经济、文化、教育中心, 气候环境问题日益严重, 研究吸收性气溶胶(主要是黑碳和有机碳, 不包括沙尘)的含量和组成, 对进一步分析其对辐射效应的影响、气溶胶污染的来源和成因都具有重要意义。

本文使用基于气溶胶的光学特性反演气溶胶成分的方法, 利用地基太阳光度计的气溶胶光学参数产品, 反演得到武汉冬季吸收性气溶胶(黑碳和有机碳)的浓度, 通过两者的比值得到该站点的吸收性气溶胶主要来自汽车尾气的排放, 最后通过参数的敏感性分析, 得到最优的参数假设。

2. 数据和方法

2.1. 数据资料

本文使用的观测数据是位于武汉大学测绘遥感信息工程国家重点实验室(经纬度)楼顶的 CE318 太阳光度计(与 AERONET 采用的观测仪器一致)。CE318 太阳光度计能够在地面测量太阳直射辐射和天空散射辐射, 观测波段包括 340、380、440、500、670、870、940、1020 nm, 所有通道的波段宽是 10 nm。所有 8 个波段都可以用于太阳直接辐射测量, 其中 440、670、870、1020 nm 4 个波段可用于天空散射辐射观测。

根据 CE318 的气溶胶参数反演产品, 武汉 2010 年和 2011 年冬季气溶胶复折射指数虚部在 440~1020 nm 波段存在明显的波段依赖性, 其数值在 440 nm 波段均大于 670~1020 nm 波段。气溶胶复折射指数虚部表征气溶胶的吸收特性, 而武汉位于江汉平原东部, 长江中游与汉水交汇处, 属于亚热带季风性湿润季候, 日照充足, 雨量充沛, 不易形成沙尘天气, 所以武汉吸收性气溶胶主要考虑黑碳和有机碳气溶胶。虽然黑碳对可见光光谱范围内均有很强的吸收作用, 但吸收能力随波段基本不变。有机碳在近紫外到可见光波段对太阳辐射产生一定的吸收, 在紫外波段对光的吸收能力随着波段变短而增强。因此, 图 1 和图 2 中显示的气溶胶复折射指数虚部的波段依赖性可以由有机碳的吸收特性来解释, 这也正是本文利用气溶胶复折射指数的光谱特性反演有机碳含量的主要依据。

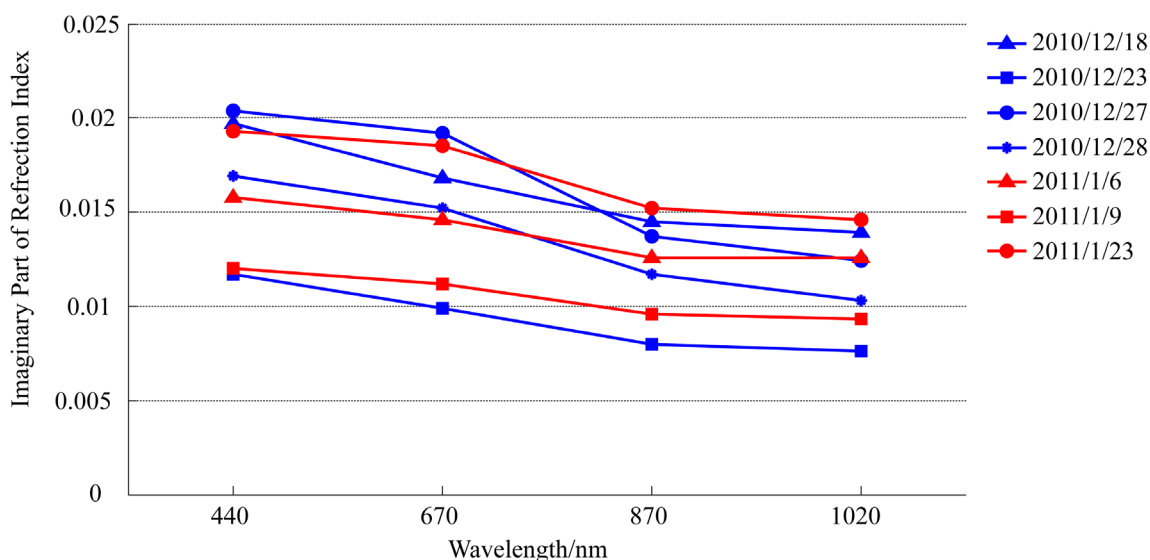


Figure 1. The imaginary part of aerosol refractive index in Wuhan 2010 winter

图 1. 2010 年武汉冬季气溶胶复折射指数虚部

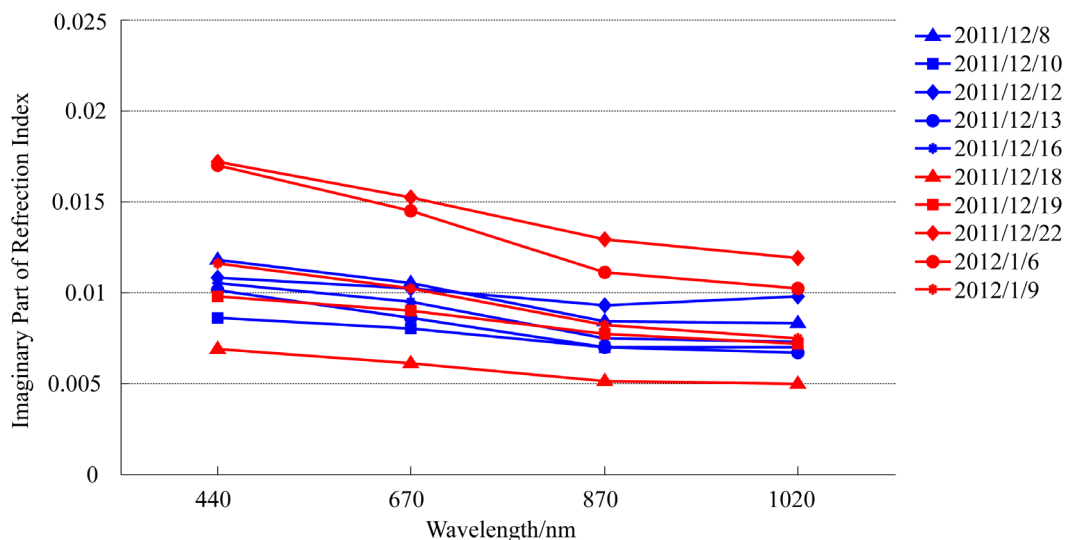


Figure 2. The imaginary part of aerosol refractive index in Wuhan 2011 winter
图 2. 2011 年武汉冬季气溶胶复折射指数虚部

2.2. 吸收性气溶胶反演算法

本文将气溶胶模型简化为 BC、AS、AW 和 BrC 四种成分，采用体积权重法计算混合气溶胶的在各个波段的复折射指数(式 1 和 2)，其中分别是第 i 种成分的复折射指数实部和体积比例，是第 i 种成分在波长的气溶胶复折射指数虚部， $i=1,2,3,4$ 分别代表 BC、AS、AW 和 BrC 四种成分， $j=1,2,3,4$ 分别代表太阳光度计 440, 670, 870, 1020 nm 四个波段。将反演得到的混合气溶胶复折射指数作为理论值，由式 (1)和式(2)得到气溶胶复折射指数的计算值，不断调整各成分的体积比例，直到理论值与计算值之间的误差最小(式(3))，即可得到 BC、AS、AW 和 BrC 四种成分在混合气溶胶所占的最佳体积比例。

其中，BC、AS、AW 和 BrC 的复折射指数参数如表 1。

通过反演得到的黑碳和有机碳的体积比例可以进一步计算得到其柱状质量浓度，计算公式如下：

$$C_i = \rho_i \cdot V_i = \rho_i \cdot f_i \cdot V_{total} = \rho_i \cdot f_i \cdot \int \frac{dV}{d \ln r} d \ln r \quad (1)$$

其中， C_i 是 i 种成分的柱质量浓度， ρ_i 是 i 种成分的密度，BC 取 1.8 g/m^3 ，BrC 取 1.2 g/m^3 ， f_i 是 i 种成分的体积，由各成分体积比例乘以总体积计算得到。为气溶胶的总体积，可以有太阳光度计获得的粒子谱分布 $dV/d \ln r$ 在所有半径范围内积分得到。

3. 结果与分析

3.1. 吸收性气溶胶反演结果

根据反演结果(图 3~6)，武汉 2010 年和 2011 年冬天吸收性气溶胶在混合气溶胶的体积比例均小于 10%，BrC 明显高于 BC，2010 年 BC 平均体积比例为 1.5%，BrC 为 6%，2011 年 BC 平均体积比例为 1%，BrC 为 4%。武汉 2010 年冬季 BC 的柱质量浓度均值为 10.447 mg/m^2 ，BrC 柱质量浓度的均值为 25.406 mg/m^2 ，BrC/BC 的均值为 2.432；2011 年冬季黑碳的柱质量浓度均 5.997 mg/m^2 ，有机碳柱质量浓度的均值为 15.259 mg/m^2 ，BrC/BC 的均值为 2.600。Arola 等人得到的北京冬季 BrC 柱质量浓度($30\sim 35 \text{ mg/m}^2$)，武汉冬季 BrC 柱质量浓度略低于北京冬季，可能是由于北方冬季取暖，需要大量燃煤，导致大气中有机碳 BrC 含量增加，而武汉地处东南方，对供暖的需求不如北京等北方城市大。BrC/BC 比值可以用来判

Table 1. The aerosol refractive index of four components
表 1. 气溶胶四组分复折射指数

	n	k
BC	1.95	0.79
AS	1.53	10^{-7}
AW	1.33	1.96×10^{-9}
BrC	1.53	0.073/0.0034 (440 nm/670 nm)

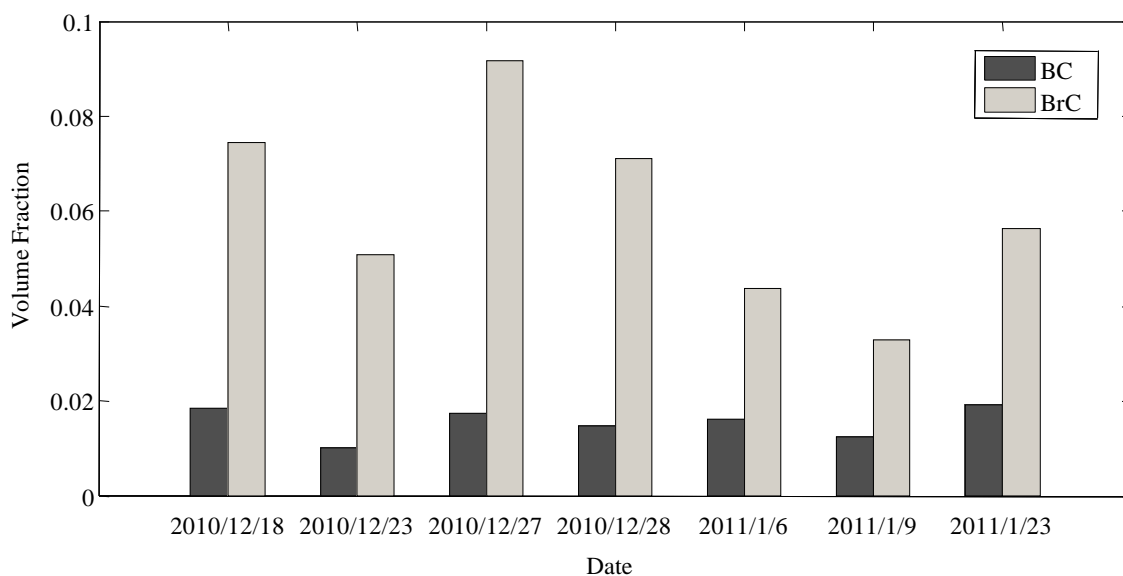


Figure 3. The volume ratio of BC and BrC in Wuhan 2010 winter
图 3. 2010 年武汉冬季黑碳和有机碳体积比

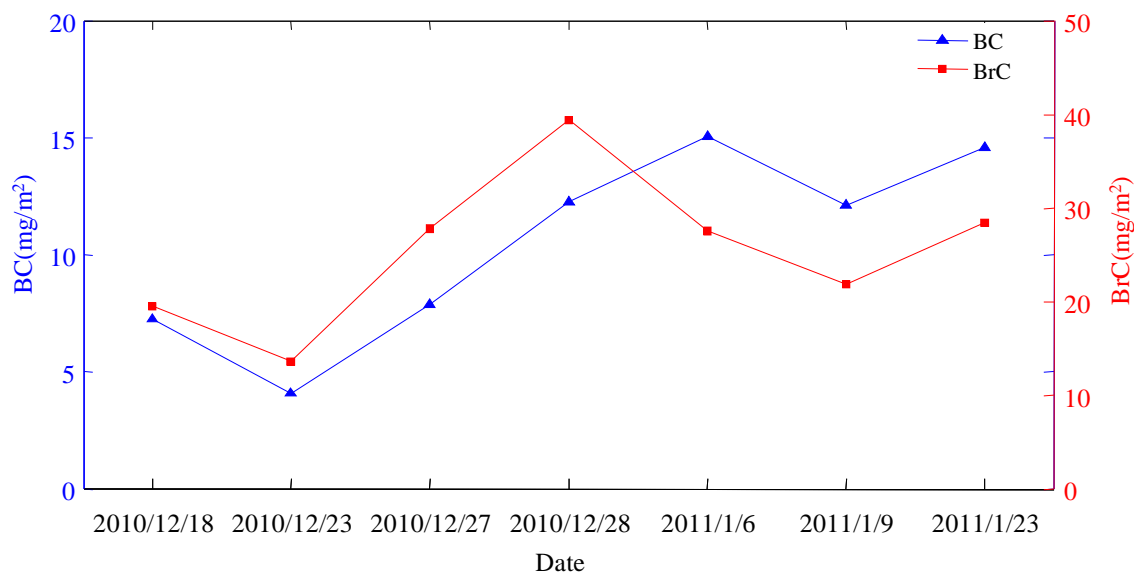


Figure 4. The column mass concentration of BC and BrC in Wuhan 2010 winter
图 4. 2010 年武汉冬季黑碳和有机碳柱质量浓度

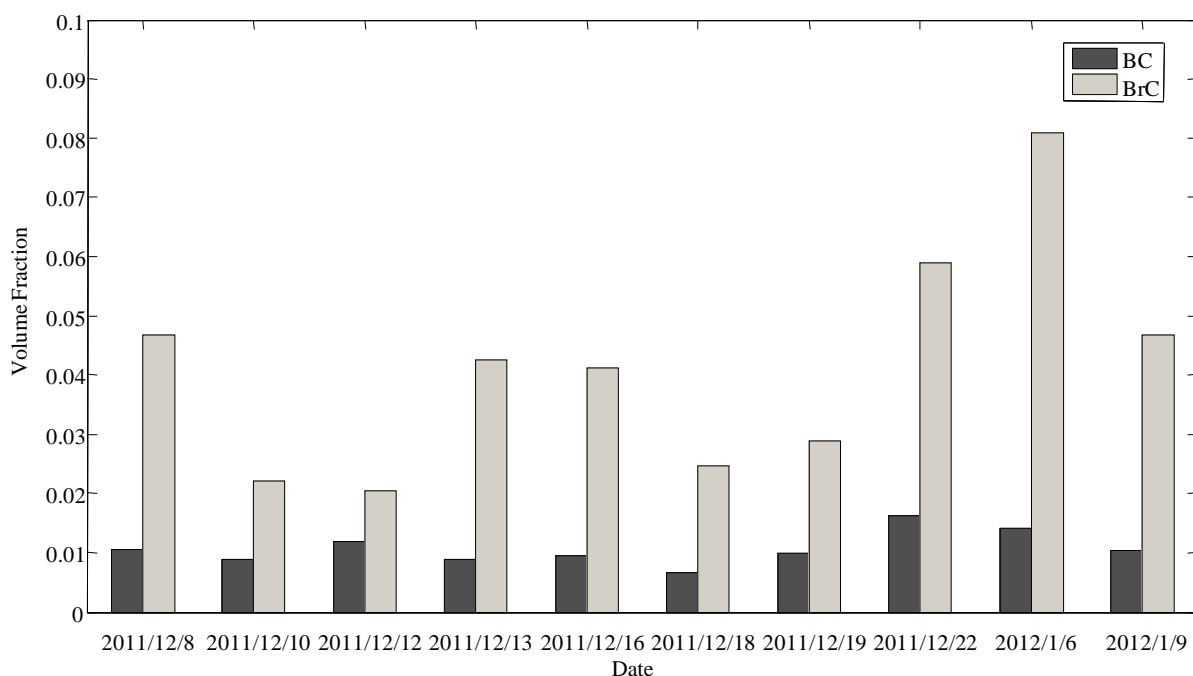


Figure 5. The volume ratio of BC and BrC in Wuhan 2011 winter

图 5. 2011 年武汉冬季黑碳和有机碳体积比

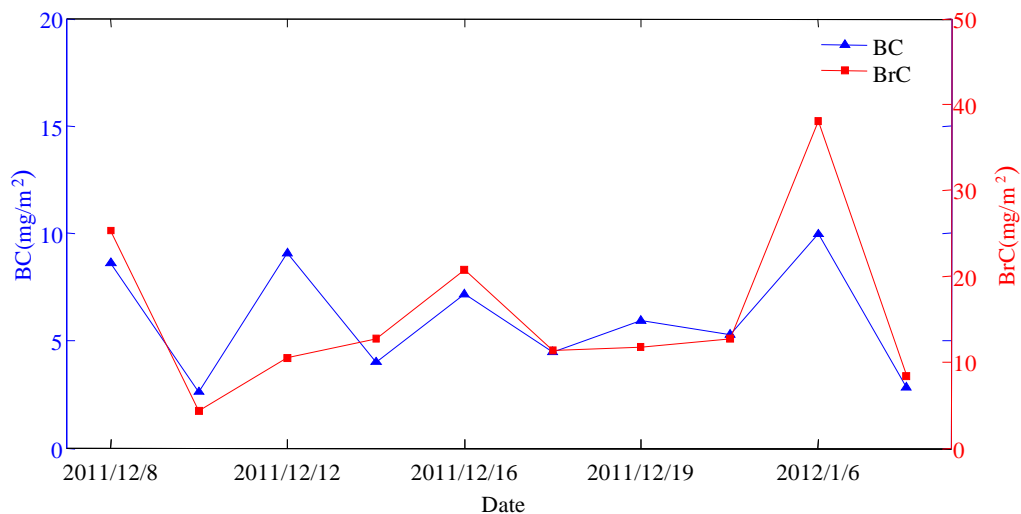


Figure 6. The column mass concentration of BC and BrC in Wuhan 2011 winter

图 6. 2011 年武汉冬季黑碳和有机碳柱质量浓度

断含碳气溶胶的来源，相关文献指出，汽车尾气排放气溶胶的 BrC/BC 比值范围为 1.0~4.2，生物质燃烧 BrC/BC 的比值为 7.7，木材燃烧 BrC/BC 的比值范围为 16.8~40.0。由于本文源数据的观测站点临近马路，车辆往来频繁，反演得到的 BrC/BC 的值位于汽车尾气排放气溶胶的比值范围是合理的。

3.2. 敏感性分析

本文反演得到的黑碳和有机碳的浓度结果与其气溶胶复折射指数相关，给定不同的参数，反演结果会有所不同。有机碳和黑碳组成和来源十分复杂，不同文献提供的有机碳和黑碳的气溶胶复折射指数，

因其样品的来源、测量方法不同而有所差异。本文选取其中代表性的几组参数(如表 2, 表 3, 其中 n 代表气溶胶复折指数的实部, k 代表气溶胶复折指数的虚部), 分析其对反演结果的敏感性, 并联合黑碳仪的同步观测, 获得最佳的参数假设。

由图 7 可知, 当有机碳复折指数虚部值越高, 其反演结果越小。由于不同地区 BrC 的来源和组成不同, 假定的复折指数虚部也应该有所不同, 但目前缺乏其他手段观测 BrC 浓度作为参数假定的选择依据, 我们只能证明不同的复折指数虚部会导致反演结果的差异, 这也是利用气溶胶光学特性反演 BrC 浓度的不确定性所在。

黑碳气溶胶复折指数同样有很大差异, Bond and Bergstrom (2007)列举了大量不同的黑碳气溶胶复折指数, 并推荐使用 1.95/0.79, 否定了之前模型研究中广泛使用的 1.75/0.44。本文对这两组参数分别进行反演, 并添加了其他两组代表性参数。同样的, 根据前两组黑碳复折指数的反演结果, 在实部相同的条件下, 虚部的假设值越高, 其反演结果越小, 而之前的黑碳复折指数 1.75/0.44, 虚部的值是最小的, 所以其反演的黑碳质量浓度是这四组数据中最高的。黑碳仪可以连续实时监测黑碳的质量浓度, 其原理是建立在收集在滤纸上的黑碳的吸收作用会造成光的衰减上, 本文的黑碳数据来自同样位于武汉大学测绘遥感信息工程国家重点实验室楼顶的 AE-31 黑碳仪, 该仪器的观测波段包括 370、470、520、590、660、880、950 nm 7 个通道, 可同时在紫外、可见光、近红外的波段范围内对黑碳进行观测。由图 8 可知, 黑碳气溶胶复折指数实部和虚部的不同都会导致反演的黑碳浓度的不同, 根据与同步观测的黑碳仪数据的比较, 可知当黑碳气溶胶复折指数给定 1.95/0.79, 与同步观测结果最接近。

Table 2. The aerosol refractive index of BrC
表 2. 有机碳气溶胶复折指数

	n	k (440/670)
BrC, Chen and Bond (2010)	1.53	0.0525/0.005
BrC, Sun <i>et al.</i> (2007), WSBrc	1.53	0.0232/0.0032
BrC, Sun <i>et al.</i> (2007), WISBrC	1.53	0.1908/0.0131
BrC, Kirchstetter <i>et al.</i> (2004)	1.53	0.073/0.0034

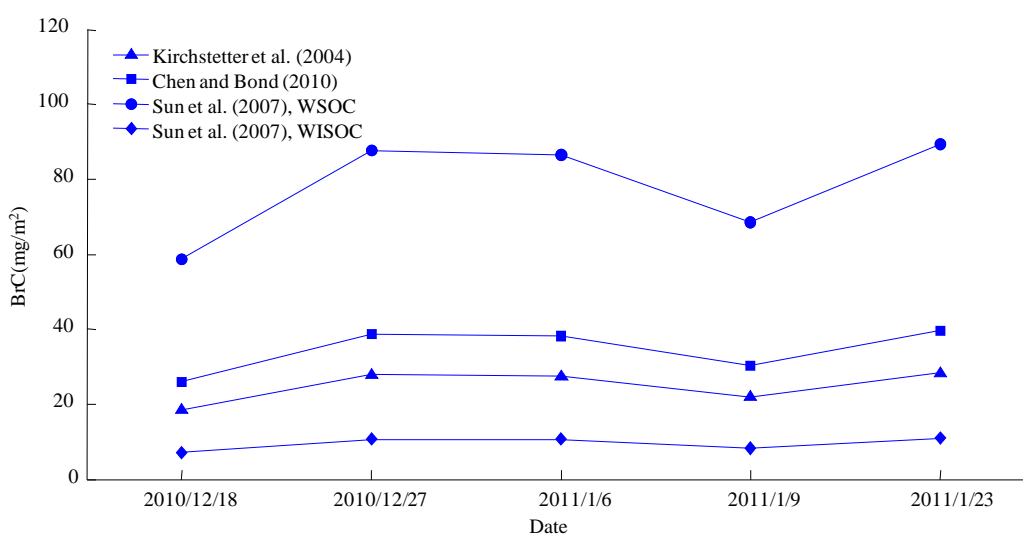


Figure 7. The sensitive study of BrC
图 7. 有机碳敏感性分析

Table 3. The aerosol refractive index of BC
表 3. 黑碳气溶胶复折射指数

	<i>n</i>	<i>k</i>
BC, Bond and Bergstrom (2007)	1.95	0.79
BC, Bergstrom (1972)	1.95	0.66
BC, Janzen (1979)	2.0	1.0
BC, Jaenicke (1988)	1.75	0.44

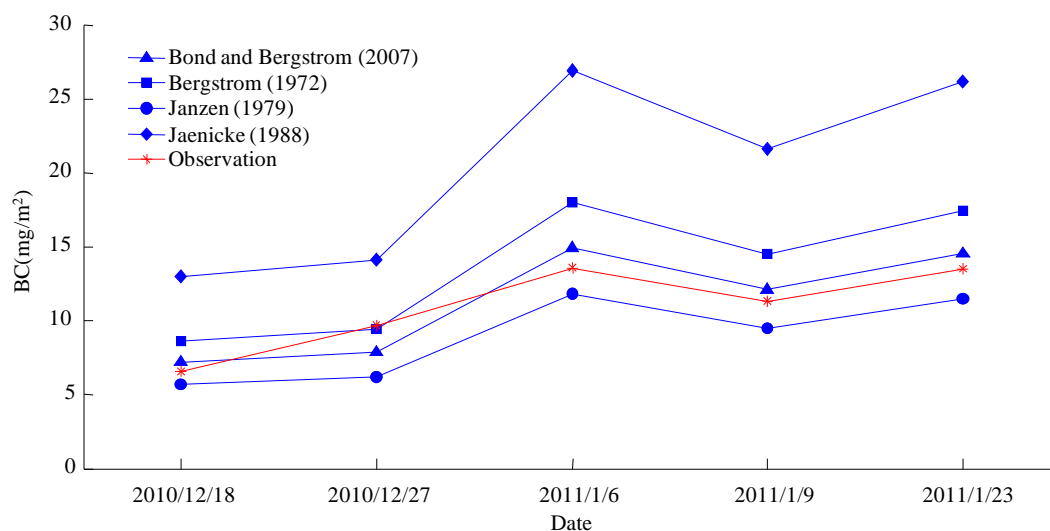


Figure 8. The sensitive study of BC
图 8. 黑碳敏感性分析

4. 结论

本文主要是利用有机碳对光吸收的波段依赖性，基于气溶胶的复折射指数对武汉 2010 年和 2011 年冬季吸收性气溶胶(有机碳和黑碳)进行研究，得到以下结论：

1) 武汉 2010 年冬季 BC 在混合气溶胶的体积比例均值为 1.5%，BrC 为 6%，2011 年冬季 BC 在混合气溶胶的体积比例均值为 1%，BrC 为 4%，武汉吸收性气溶胶在混合气溶胶的体积比例较小，而且 BrC 明显高于 BC。

2) 武汉 2010 年冬季黑碳的柱质量浓度均值为 10.447 mg/m²，有机碳柱质量浓度的均值为 25.406 mg/m²，BrC/BC 的均值为 2.432；2011 年冬季黑碳的柱质量浓度均 5.997 mg/m²，有机碳柱质量浓度的均值为 15.259 mg/m²，BrC/BC 的均值为 2.600。根据 BrC/BC，推测观测的气溶胶中含碳组分主要来自汽车尾气排放，与观测站点位于马路旁的实际情况相符。

3) 有机碳和黑碳不同的气溶胶复折射指数虚部假定会导致两者浓度的反演结果的不同，利用同步观测的黑碳仪数据，得到黑碳的复折射指数假定为 1.95/0.79 最合理。

参考文献 (References)

- [1] Jacobson, M.Z. (2001) Strong Radiative Heating Due to the Mixing State of Black Carbon in Atmospheric Aerosols. *Nature*, **409**,695-697. <https://doi.org/10.1038/35055518>
- [2] Ramanathan, V. and Carmichael, G. (2008) Global and Regional Climate Changes Due to Black Carbon. *Nature Geos-*

- science*, **1**, 221-227. <https://doi.org/10.1038/ngeo156>
- [3] Alexander, D.T.L., Crozier, P.A. and Anderson, J.R. (2008) Brown Carbon Spheres in East Asian Outflow and Their Optical Properties. *Science*, **321**, 833-836. <https://doi.org/10.1126/science.1155296>
- [4] Feng, Y., Ramanathan, V. and Kotamarthi, V.R. (2013) Brown Carbon: A Significant Atmospheric Absorber of Solar Radiation? *Atmospheric Chemistry and Physics*, **13**, 8607-8621. <https://doi.org/10.5194/acp-13-8607-2013>
- [5] Park, R.J., Kim, M.J., Jeong, J.I., *et al.* (2010) A Contribution of Brown Carbon Aerosol to the Aerosol Light Absorption and Its Radiative Forcing in East Asia. *Atmospheric Environment*, **44**, 1414-1421. <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2010.01.042>
- [6] Kirchstetter, T.W., Novakov, T. and Hobbs, P.V. (2004) Evidence that the Spectral Dependence of Light Absorption by Aerosols Is Affected by Organic Carbon. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, **109**, 21. <https://doi.org/10.1029/2004JD004999>
- [7] 闫才青, 郑玫, 张远航. 大气棕色碳的研究进展与方向[J]. 环境科学, 2014, 35(11): 4404-4414.
- [8] 支国瑞, 蔡竟, 杨俊超, 等. 棕色碳气溶胶来源, 性质, 测量与排放估算[J]. 环境科学研究, 2015, 28(12): 1797-1814.
- [9] Schuster, G.L., Dubovik, O., Holben, B.N., *et al.* (2005) Inferring Black Carbon Content and Specific Absorption from Aerosol Robotic Network (AERONET) Aerosol Retrievals *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, **110**, 10. <https://doi.org/10.1029/2004jd004548>
- [10] Arola, A., Schuster, G., Myhre, G., *et al.* (2011) Inferring Absorbing Organic Carbon Content from AERONET Data. *Atmospheric Chemistry and Physics*, **11**, 215-225. <https://doi.org/10.5194/acp-11-215-2011>
- [11] Wang, L., Li, Z., Tian, Q., *et al.* (2013) Estimate of Aerosol Absorbing Components of Black Carbon, Brown Carbon, and Dust from Ground-Based Remote Sensing Data of Sun-Sky Radiometers. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, **118**, 6534-6543. <https://doi.org/10.1002/jgrd.50356>

期刊投稿者将享受如下服务:

1. 投稿前咨询服务 (QQ、微信、邮箱皆可)
2. 为您匹配最合适的期刊
3. 24 小时以内解答您的所有疑问
4. 友好的在线投稿界面
5. 专业的同行评审
6. 知网检索
7. 全网络覆盖式推广您的研究

投稿请点击: <http://www.hanspub.org/Submission.aspx>

期刊邮箱: gst@hanspub.org