

方引,陈颖军,林田,等. 黑碳在渤海泥质区的百年沉积记录[J]. 海洋学报,2014,36(5):98—106,doi:10.3969/j.issn.0253-4193.2014.05.011

Fang Yin,Chen Yingjun,Lin Tian,et al. One hundred year sedimentary record of black carbon from mud area in Bohai Sea,China[J]. Acta Oceanologica Sinica(in Chinese),2014,36(5):98—106,doi:10.3969/j.issn.0253-4193.2014.05.011

黑碳在渤海泥质区的百年沉积记录

方引^{1,2},陈颖军^{1*},林田³,田崇国¹,潘晓辉¹,唐建辉¹

(1. 中国科学院烟台海岸带研究所 中国科学院海岸带环境过程与生态修复重点实验室 山东省海岸带环境过程重点实验室,山东烟台 264003; 2. 中国科学院大学,北京 100049; 3. 中国科学院地球化学研究所 环境地球化学国家重点实验室,贵州贵阳 550002)

摘要: 在渤海泥质沉积区采集柱状沉积物样品,分析其黑碳含量和沉积通量,结合²¹⁰Pb 年龄测定,探讨百年尺度黑碳沉积通量的时间序列变化对区域人类活动的响应。结果表明:(1)研究区黑碳含量和沉积通量分别为 0.24~0.49 mg/g [平均为(0.32 ± 0.07) mg/g]和 0.026~0.053 mg/(cm²·a)[平均为(0.040 ± 0.008) mg/(cm²·a)],黑碳含量与我国东海内陆架等海区相当,但远低于美国港湾和瑞典大陆架等污染较严重地区;(2)黑碳通量在 20 世纪 50 年代—70 年代中期和 90 年代初—90 年代末出现两个明显的峰值,分别对应于两个阶段的生物质燃烧量和煤炭、石油等化石燃料燃烧量的急剧增加;而 20 世纪 70 年代末—80 年代末较低的黑碳通量以及 21 世纪初黑碳通量下降的趋势则分别与黄河改道事件、我国能源利用技术提高及污染控制减排措施逐步实施等有关;(3)通过比较本文结果以及国内外其它海域和湖泊的研究资料,证明黑碳沉积记录可以作为一个良好的地球化学指标,用于评估人类活动对生态环境的影响历史。

关键词: 黑碳;沉积记录;柱状沉积物;泥质区;渤海

中图分类号:P736.2

文献标志码:A

文章编号:0253-4193(2014)05-0098-09

1 引言

黑碳(Black Carbon, BC)是当前气候和环境研究领域共同关注的热点,涉及到气候变化^[1]、碳循环^[2]、环境健康危害^[3]等诸多问题。黑碳来源于陆源含碳物质的不完全燃烧过程,包括生物质燃烧、煤炭燃烧和机动车尾气等^[4]。黑碳具有高度芳香结构,在自然环境中可以较长时间保存。因此,黑碳常被作为研究燃烧过程的指示物,在地质历史时期的古火事件和古环境重建中发挥着重要作用^[5]。如 Long 等^[6]利用东

太平洋 Oregon 海岸山脉中部 Little 湖泊柱状沉积物中高分辨率黑碳记录,重建了该区域过去 9 000 a 的火灾发生情况,并指出火灾发生频率与气候变化存在一定的联系。近年来利用黑碳评估人类活动影响历史的研究工作也相继开展,如最近 Han 等^[7]对巢湖柱状沉积物的研究显示,黑碳含量的垂向变化和重金属元素铅的变化相似,均与安徽省机动车尾气的排放历史保持一致。其他学者对柱状沉积物和冰芯中黑碳的研究也很好地证实了黑碳记录的重要指示意义^[8-13]。

收稿日期:2013-06-27;修订日期:2013-11-25。

基金项目:国家自然科学基金项目(41073064,41273135);中国科学院知识创新工程重要方向项目(KZCX2-YW-QN210)。

作者简介:方引(1988—),男,安徽省安庆市人,从事海岸带环境科学研究。E-mail:yfang@gic.ac.cn

*通信作者:陈颖军,研究员,从事环境地球化学研究,E-mail:yjchen@yic.ac.cn

近百年来,随着渤海周边地区人类活动(如近 30 a 来煤炭等化石燃料消耗量和机动车保有量的迅速增加)的日益加剧,渤海生态环境发生了明显变化。大量污染物通过河流和大气的输送汇聚于渤海,在较弱水力条件下,埋藏在沉积物中。研究表明,泥质沉积区是这些物质储存的重要场所,扮演着陆源物质沉积“汇”的角色,被认为是一个研究陆海相互作用理想区域^[14-15]。目前对于渤海沉积物中黑碳的研究仅限于表层沉积物^[16-17],而对柱状沉积物中的黑碳记录未见报道,因而不能从时间序列上揭示渤海黑碳的输入历史及其对环渤海社会经济活动(尤其是能源使用)历史的指示和响应。因此,本研究以渤海中部泥质区柱状沉积物中的黑碳为研究对象,通过分析百年尺度黑碳含量和沉积通量的时间序列变化规律,探讨环渤海区域人类活动对渤海生态环境的影响历史,为重建渤海健康的生态环境提供科学依据。

2 材料与方法

2.1 沉积物样品采集和定年

沉积物柱样 BS-1 于 2006 年 8 月采集,站位坐标为 38°35'N, 118°37'E(图 1),采样工具为不锈钢重力式沉积物采样器。样品采集后,在现场用洁净的不锈钢刀片按每厘米分样。分割后的样品采用预先焙烧过的铝箔进行包装并密封冷冻保存(-20℃),直至分析。

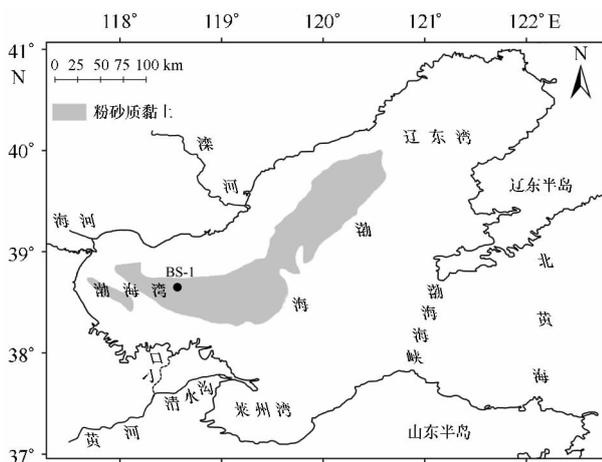


图 1 渤海柱样 BS-1 站位

沉积物定年在中国科学院南京地理与湖泊研究所湖泊与环境国家重点实验室完成,分析仪器为美国 EG & G Ortec 公司生产的由高纯锗井型探测器(Ortec HPGe GWL)与 Ortec 919 型谱控制器和 IBM 计

算机构成的 16k 多道分析器所组成的 γ 谱分析系统,具体分析流程参见文献^[18]。沉积速率计算采用 ^{210}Pb 稳恒初始放射性模式(CA 模式),即假定沉积速率在所研究的时间范围内恒定不变, ^{210}Pb 的放射性活度随沉积物埋藏深度的增加而呈指数减小。计算得到的沉积速率为 0.29 cm/a,对应沉积年代约为 1909—2006 年。

2.2 沉积物黑碳分析

化学热氧化法(CTO-375)被广泛应用于土壤和沉积物中黑碳的定量,该方法具有准确度高、重现性好等优点^[16]。实验步骤简述如下:沉积物样品经冷冻干燥、研磨均匀后,过 80 目筛。称取一定量(约 1 g)于洁净聚乙烯塑料管中,加入 5 mL 盐酸(0.5 mol/L),去除无机碳酸盐和金属氧化物。再加入 5 mL 氢氟酸(10 mol/L)和盐酸(1 mol/L)混合液(体积比为 2 : 1),去除硅酸盐和残余金属氧化物等,以浓缩黑碳。最后加入 5 mL 盐酸(10 mol/L),去除上述过程中产生的次生氟化物。湿化学处理在 60℃ 水浴中进行,每步反应时间均为 24 h,反应完毕用去离子水洗净。处理后的样品于 60℃ 烘干,磨匀;称取部分于管式电阻炉中进行热氧化处理[温度(375±1)℃,空气流量 1.2 L/min,灼烧 24 h],去除样品中的有机质(即纯化黑碳),再进行碳元素含量分析,得到沉积物中黑碳的含量(以沉积物干重计)。

2.3 质量保证和质量控制(QA/QC)

对于黑碳的定量,到目前为止还没有统一的标准物质。国际上推荐了一系列参考物质,其中包括海洋沉积物标准参考物(NIST SRM 1941b)^[19]。本研究选用其对实验数据质量进行控制,以检验样品处理流程的可靠性。在每批次约 10 个样品中加入 2 个该参考物,得到 1941b 中黑碳的平均含量为[(4.15±0.20) mg/g, n=4],与 Hammes 等^[19]的报道结果[4.10±0.80] mg/g, n=5]具有很好的一致性,表明本实验得到的沉积物黑碳分析结果和国际上同类研究数据具有良好的可比性。

3 结果和讨论

3.1 柱样 BS-1 中黑碳的含量、沉积通量及其垂向变化

柱样 BS-1 中黑碳含量和沉积通量的时间序列变化如图 2 所示。可以看出,两者都呈现出较为明显的阶段性变化特征,且变化趋势保持一致。整个沉积剖面,黑碳含量和通量的变化范围分别为 0.24~0.49

mg/g, 0.026~0.053 mg/(cm²·a), 平均为(0.32±0.07) mg/g, (0.040±0.008) mg/(cm²·a)。黑碳含量和通量的变化趋势具体表现为:(1)20 世纪 50 年代前,黑碳含量和通量平均为(0.28±0.01) mg/g, (0.030±0.001) mg/(cm²·a),即这段时期黑碳保持在稳定的低水平(或略微增加);(2)50 年代—70 年代中期,黑碳含量和通量呈现第一个峰值,分别为 0.39~0.49 mg/g, 0.043~0.053 mg/(cm²·a);(3)70 年代末,黑碳含量和通量与 50 年代前相当,至 80 年代末一直保持在较小范围波动,黑碳含量和通量平均为(0.25±0.01) mg/g, (0.027±0.002) mg/(cm²·a);(4)从 90 年代初期开始,黑碳含量和通量直线上升,至 90 年代末达到第二个峰值 0.42 mg/g, 0.045 mg/(cm²·a),略低于第一个峰值;(5)21 世纪初,黑碳含量和通量有下降趋势。与文献中报道的其他海域和湖泊相比(表 1),渤海泥质区黑碳含量与太湖^[8]、北黄海^[17]、东海内陆架^[20]和荷兰 Schelde 河口潮间带^[21]等区域相当,但远低于美国 Mystic 湖泊^[22]、Baltimore 港湾^[19]和瑞典大陆架^[23]、Stora Frillingen 湖泊^[9]等污染较严重区域。渤海黑碳通量与岱海^[8]相当,低于珠江口^[24]和瑞典大陆架^[23],但比中太平洋^[25]等大洋中心黑碳通量高出几个量级。

黑碳含量和沉积通量呈现一定的区域性差异。

造成这种差异的因素很多,包括区域黑碳排放源类型(生物质燃烧、煤炭燃烧、机动车尾气等)、排放源强、从源到汇的迁移机制、水动力条件特征、沉积物底质类型、生物扰动等。如本研究区域可以通过大气沉降、河流搬运和地表径流等多种方式汇聚黑碳,而大洋中心则基本上只能通过长距离传输。更为重要的是,基于黑碳是一种操作上的定义^[4],黑碳定量方法的选择也是一主要影响因素,这在许多研究者对黑碳参考物质的环形比对实验中得到了很好的验证^[19,26]。

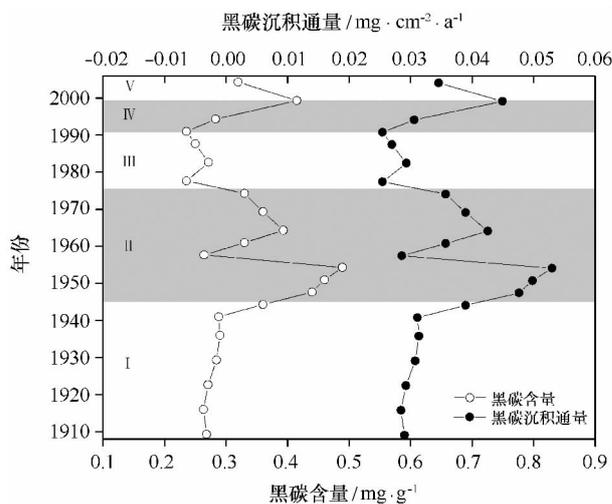


图 2 柱样 BS-1 中黑碳含量和沉积通量的时间序列变化

表 1 不同海域和湖泊沉积物中黑碳含量和沉积通量比较

研究区域	黑碳含量 /mg·g ⁻¹	黑碳沉积通量 /mg·cm ⁻² ·a ⁻¹	分析方法	参考文献
渤海泥质区	0.24~0.49 (0.32)	0.026~0.053 (0.040)	CTO-375	本研究
渤海湾近海	0.26~2.01 (0.84)	—	CTO-375	[16]
东海内陆架	0.21~0.88 (0.42)	—	CTO-375	[20]
东海	0.18~1.38	—	CTO-375	[27]
北黄海	0.10~0.93 (0.37)	—	CTO-375	[17]
胶州湾	0.10~0.93 (0.42)	—	CTO-375	[17]
巢湖	0.05~0.42 (0.16)	—	CTO-375	[7]
Schelde 河口潮间带	0.38~0.56 (0.44)	—	CTO-375	[21]
Ibeian 近海	0.47~1.63 (1.01)	—	CTO-375	[21]
Baltimore 港湾	4.10±0.80	—	CTO-375	[19]
太湖	0.31~1.09 (0.42)	0.086~0.312 (0.133)	TOR	[8]
岱海	0.12~0.35 (0.21)	0.014~0.043 (0.030)	TOR	[8]
珠江口	0.4~4.6(3.5)	0.69~2.56	Cr ₂ O ₇	[24]

续表 1

研究区域	黑碳含量 /mg · g ⁻¹	黑碳沉积通量 /mg · cm ⁻² · a ⁻¹	分析方法	参考文献
Mystic 湖泊	2~7	0.23	CTO-375	[22]
瑞典大陆架	0.58~17.66 (2.41)	0.267~8.067	CTO-375	[23]
缅因州海湾	0.11~1.7	0.086~0.190	CTO-375	[28]
Stora Frillingen 湖泊	1.82~2.95 (2.39)	0.005~0.040 (0.02)	CTO-375	[9]
南大西洋	0.4~1.7	0.0005~0.0078	CTO-375	[29]
中太平洋	0.009~0.99	0.000002~0.0002	H ₂ O ₂	[25]

注: (1)括号中的数值为平均值;(2)—表示数据未获得;(3)CTO-375指化学热氧化法,TOR指热光反射法,Cr₂O₇指K₂Cr₂O₇/H₂SO₄氧化法,H₂O₂指过氧化氢氧化法。

3.2 黑碳沉积通量变化对人类活动的指示和响应

3.2.1 20世纪50年代前

资料显示^[30],20世纪50年代前渤海周边地区传统农业受到严重打击,生物质燃烧产生的黑碳相应较少。同时,受经济发展水平和战争的影响,煤炭的开采量和消耗量也相对较少,黑碳的排放同样较少。因此,这个时期沉积物中黑碳通量处于相对较低的水平[(0.030 ± 0.001) mg/(cm² · a),图2-I]。

3.2.2 20世纪50年代至70年代中期

在20世纪50年代至70年代中期,渤海泥质区的黑碳通量出现第一个峰值(图2-II)。对比于50年代以前,50年代至70年代中期生物质和煤炭的燃烧量都呈现增加的趋势。就煤炭而言,因前期其燃烧量基数小且这一时期增加幅度不大,因而煤炭燃烧排放的黑碳总量变化不大。但相比于煤炭,这段时期“大炼钢铁”运动造成的大面积森林砍伐,必然导致生物质燃烧的黑碳排放量显著增加。此外,由于气候异常和人为管理不善,导致了大面积的森林火灾^[31-34],而渤海周边山西、河北等省即是受灾较为严重的地区。据统计,50—60年代山西省森林火灾次数维持在较高水平,超过100起/年,远高于临近年份;特别地,1953年和1954年则分别高达440和400起^[32]。河北省森林火灾的发生情况类似,高峰年为1951—1954年、1956年、1961—1963年,平均受灾面积超过1000 hm²/a,而临近年份则低于500 hm²/a;仅1951、1956和1961年,年均受灾面积超过5000 hm²^[33]。值得注意的是,火灾发生的时间与本研究黑碳通量峰值的出现时间较好地吻合,由此推断,这一时期沉积物中的黑碳被认为主要来自生物质燃烧的贡献。从Wang等^[35]对中国黑碳年排放量的估算结果看,这段时期

生物质燃烧的黑碳年排放量较临近年份高,与本研究沉积物中黑碳通量变化保持一致。综上可知,生物质燃烧量的急剧增加是20世纪50年代至70年代中期黑碳通量呈现峰值的主要原因。

3.2.3 20世纪70年代末至80年代末

1978年“改革开放”政策的实施带来中国经济的发展。虽然70年代末—80年代末环渤海地区处于经济复苏的起步阶段,但能源消耗总量和机动车保有量均有较大幅度增加(见图3),黑碳的年排放量也相应增加^[35]。但尤其值得注意的是,这段时期沉积物中的黑碳通量并没有相应增加,反而呈现较低的水平,可见较低的黑碳通量并非黑碳源强所致。最近研究表明,沉积物粒度是影响黑碳含量和分布的重要影响因素之一。如姜晓华等^[16]发现渤海湾潮间带表层沉积物“北细南粗”的粒度特征是造成黑碳含量呈现“北高南低”趋势的根本原因;Oen等^[36]对挪威德拉曼和特罗姆瑟港口沉积物的研究发现,黑碳在粘土组分中的含量明显高于粉砂和砂质组分。另外,在Cornelissen等^[37]研究的大部分沉积物中,粒径小于38 μm的沉积物组分富集了超过50%的黑碳。结合郝云超^[38]对该站点物质来源的研究可知,从1976年开始(1976年,黄河从刁口改至清水沟入莱州湾,见图1),沉积物中主量元素CaO和TiO₂的比值(CaO/TiO₂)突然降低、而化学风化常数(CIA)突然升高,指示黄河改道后黄河物质对该站点的贡献明显减少,取而代之的是滦河物质的贡献比重明显增加。而滦河物质粒度较黄河物质粒度粗^[39],直接导致1976年后沉积物中砂质组分所占的比重明显升高^[18,38],这显然不利于黑碳等微量物质的富集。因此,1976年黄河改道导致的沉积物粒度组分变化可能是70年代末—

80 年代末黑碳通量下降的主要原因。

3.2.4 20 世纪 90 年代初至 90 年代末

自 20 世纪 90 年代初期开始,渤海泥质区沉积物中黑碳通量直线上升,至 90 年代末出现第二个峰值(图 2-IV)。90 年代初期,环渤海地区进入工业化和城市化快速发展阶段。从这一时期能源消耗来看,除生物质和煤炭外,石油也成为主要能源,且煤炭和石油等化石燃料的总消耗量呈“直线式”增长趋势,同沉积物中黑碳通量变化趋势保持一致(图 3)。由此推断,煤炭和石油等化石燃料燃烧量的急剧增加是导致 90 年代初期沉积物中黑碳通量增加的根本原因。近年来的许多研究都很好证实了这一点,如 Sun 等^[24]通过同位素质量平衡计算得到化石燃料燃烧对黑碳通量的贡献比重的时间序列变化,结果表明,1900—1980 年化石燃料燃烧对黑碳的贡献为 20%~30%,而 1980 年后化石燃料燃烧对黑碳的贡献显著

增加,90 年代达到 70%~80%;Novakov 等^[40]估算了我国化石燃料燃烧产生的气溶胶黑碳的年排放通量,同样发现在 90 年代初期有一个急剧上升的趋势。此外,本研究结果和韩永明等^[8]对岱海和太湖沉积物中黑碳通量的分析结果保持一致。

需要指出的是,这个时期机动车保有量快速增长(图 3),相应地来源于机动车的黑碳排放量也呈现急剧增加的趋势^[35]。从沉积物中晕苯(机动车尾气排放的特征指示物^[41])的含量变化可以看出,90 年代之前其平均含量为 0.05 ng/g,而 90 年代其平均含量为 0.75 ng/g,增幅高达 25 倍,说明这个时期机动车尾气对黑碳埋藏具有重要贡献。此外,Zhang 等^[42]对北京市冬季 PM₁₀的分析结果显示,碳质气溶胶中 74%来源于机动车尾气的排放,而煤炭燃烧占 26%,这也在一定程度支持了机动车尾气排放对这一时期黑碳埋藏的重要影响。

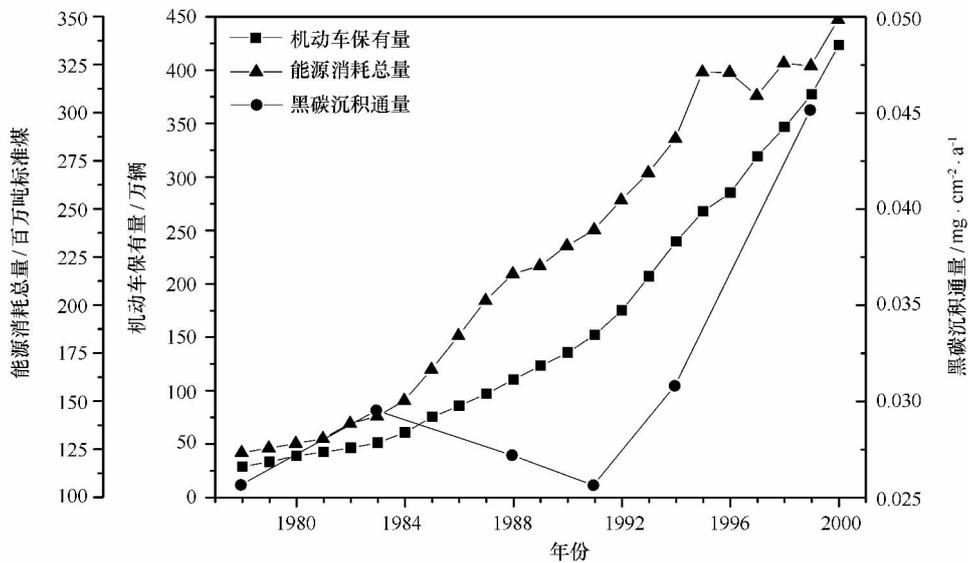


图 3 黑碳沉积通量变化与能源消耗总量和机动车保有量之间的关系

能源消耗总量数据和机动车保有量数据来自渤海周边省市(北京、天津、河北、山西、山东)各统计年鉴;能源消费总量包括原煤和原油及其制品、天然气、电力,不包括低热值燃料、生物质能和太阳能等的利用

3.2.5 21 世纪初

自 21 世纪初,渤海泥质区的黑碳通量呈现下降的趋势(图 2-V)。黑碳通量的降低,在一定程度上与近年来我国政府在黑碳减排和污染物排放控制等方面所采取的措施密切相关,如推广使用蜂窝煤技术、推广集中供暖、提高机动车尾气净化技术、干预野外开放式燃烧等^[43]。就民用燃煤而言,Chen 等^[44]和 Zhi 等^[45-46]发现通过炉具改造和使用蜂窝煤两项措

施,黑碳的排放量比使用传统煤炉和煤块降低(98±1.7)%,这基本上可以解决我国民用燃煤黑碳的排放问题。另外,风能、太阳能、核能和沼气等“清洁能源”的逐步开发和利用对我国黑碳减排也起到了积极的推动作用。许多研究者对中国黑碳年排放量进行了估算,如 Streets 等^[47-48]估算中国 1995 年的黑碳排放量为 1.342×10^3 t,2000 年的黑碳排放量为 1.050×10^3 t;Wang 等^[35]的估算结果为 1995 年为 2.005×10^3

t,2000年为 1.618×10^3 t。虽然他们的估算结果差别很大,但都指示21世纪初我国黑碳排放量有所下降,与本研究沉积物中黑碳通量下降保持一致。

3.3 国内外柱状沉积物中黑碳沉积记录的比较

近年来,国内外研究者在柱状沉积物黑碳沉积记录的反演方面取得了一系列研究成果^[7-11,13]。图4对比了我国巢湖^[7]、斯洛文尼亚 Bled 高山湖泊^[13]和瑞典 Stora Frillingen 湖泊^[9]沉积物中黑碳含量或沉积通量的时间序列变化。

对比本研究渤海和 Han 等^[7]对巢湖的研究可以看出:(1)两个区域的黑碳含量在20世纪50年代前

都保持在相对稳定的低含量水平;(2)两者在90年代后都表现为急剧增加的趋势,煤炭和石油等化石燃料消耗量的快速增加是其主要原因,且机动车尾气排放具有重要贡献;(3)渤海黑碳在50年代—70年代中期出现峰值,21世纪初出现下降的趋势,而在巢湖沉积物中表现得不明显,可能是受区域环境差异的影响。值得指出的是,90年代初黑碳含量或通量上升的趋势在我国其他海域和湖泊(如岱海和太湖^[8])中也有类似的发现。由此推断,90年代初黑碳含量或通量增加的现象在我国海域和湖泊沉积物中具有普遍性。

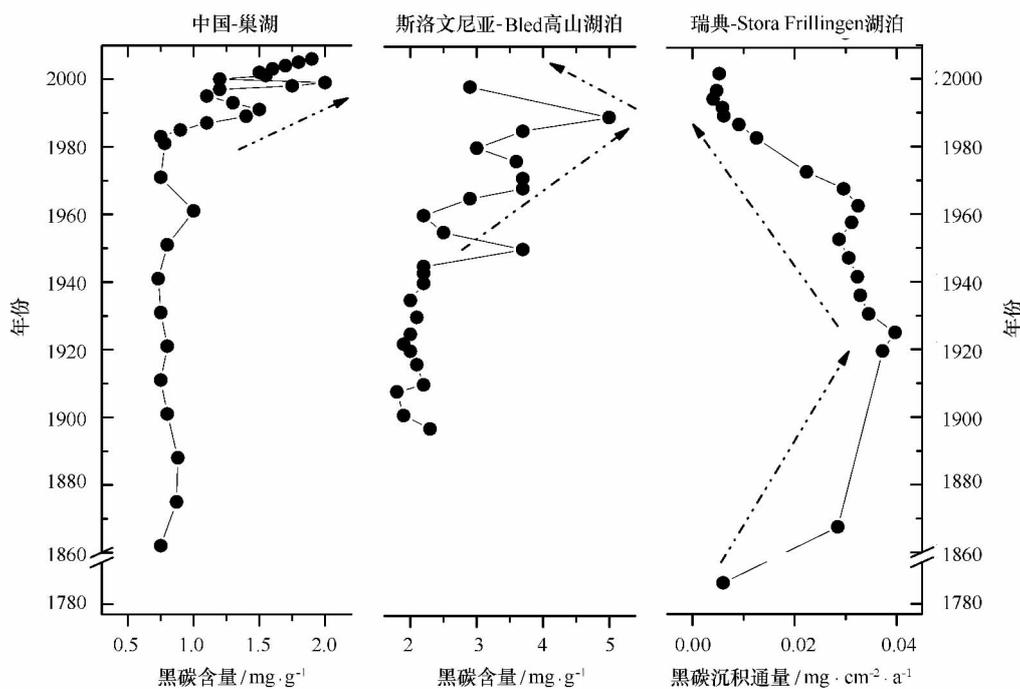


图4 国内外黑碳沉积记录的比较^[7,9,13]

国外的相关研究表明,工业化国家的湖泊沉积物中黑碳含量或沉积通量变化与我国存在较大差异。如 Elmquist 等^[9]对瑞典 Stora Frillingen 湖泊沉积物中黑碳的研究显示:黑碳在工业革命之前维持在较低通量水平 $[0.007 \text{ mg}/(\text{cm}^2 \cdot \text{a})]$,可视为该区域沉积物中黑碳通量的背景值。随着工业革命的开始,黑碳通量急剧增加,至20世纪20年代达到最大值 $[0.040 \text{ mg}/(\text{cm}^2 \cdot \text{a})]$,木材和煤大量燃烧是这个时期黑碳的主要来源。在随后近1个世纪,除50—60年代机动车数量的增加导致黑碳通量略微上升外,其余时期均表现为下降的趋势。水能(水利发电)、核能的利用,严格的颗粒污染物排放控制以及燃烧技术的提

高,使得90年代末黑碳通量水平 $[0.006 \text{ mg}/(\text{cm}^2 \cdot \text{a})]$ 与工业革命前相当。另外,Muri 等^[13]对斯洛文尼亚 Bled 高山湖泊的研究则表现为:大约从20世纪50年代,黑碳含量开始增加。随着工业化的发展和化石燃料消耗量的快速增加,70—80年代达到峰值(约5 mg/g)。从90年代开始,污染排放控制技术的提高和能源结构由煤、石油等向天然气的转变使得黑碳含量急剧下降。除此之外,Khan 等^[10]和 Kralovec 等^[11]也分别解析了美国 Green Lake、WP Pond 和伊利湖(Erie Lake)中黑碳含量变化及其指示意义。

综上所述,受区域环境差异影响,不同国家和同一国家的不同地区的沉积物中黑碳记录存在一定的

差异。但是,沉积物中的黑碳含量或沉积通量变化都可以很好地记录区域人类活动对环境输入的影响。能源变化(包括结构和消耗量)、工业化发展进程、污染物控制减排等在柱状沉积物中黑碳的含量或沉积通量变化上都有所体现。因此,本研究再次论证了黑碳是一个很好的地球化学指标,可以用于揭示人类活动对生态环境的输入历史,从而为有效地开展生态环境质量的历史演变研究提供科学依据和背景资料。

4 结论

(1)渤海泥质区柱状沉积物中黑碳的含量范围为 0.24~0.49 mg/g,平均为(0.32±0.07) mg/g;黑碳沉积通量范围为 0.026~0.053 mg/(cm²·a),平均为(0.040±0.008) mg/(cm²·a)。渤海黑碳含量与我国北黄海和东海内陆架等海域相当,但远低于美国港湾和瑞典大陆架等污染较严重海区。

(2)渤海泥质区柱状沉积物中黑碳沉积通量的时间序列变化,与不同时期渤海周边地区人类活动对渤海环境的影响历史保持一致。具体表现为:20 世纪

50 年代前,受经济发展水平影响,黑碳保持在稳定的低通量水平[0.030±0.001 mg/(cm²·a)];50 年代—70 年代中期,生物质燃烧量的急剧增加导致黑碳通量出现明显的峰值[0.043~0.053 mg/(cm²·a)];70 年代末,黄河改道使沉积物砂质组分比重变大,不利于黑碳的富集,至 80 年代末黑碳通量一直处于较低水平[(0.027±0.002) mg/(cm²·a)];90 年代初,煤炭和石油等化石燃料消耗量的快速增加,导致黑碳通量急剧上升至第二个峰值[0.045 mg/(cm²·a)],机动车对黑碳埋藏具有重要贡献;21 世纪初,污染物控制减排措施的实施和“清洁能源”的推广使用,黑碳通量有下降的趋势。

(3)通过对比本研究和国内外其他区域黑碳记录的研究可以发现,区域人类活动差异导致黑碳沉积记录的差异。但能源结构变化、工业化发展进程和污染控制减排等在柱状沉积物的黑碳含量或沉积通量变化上都有相应的记录,进一步证实了黑碳是一个很好的地球化学指标,可用于评估人类活动对生态环境的影响历史。

参考文献:

- [1] Ramanathan V, Carmichael G. Global and regional climate changes due to black carbon[J]. *Nature Geoscience*, 2008, 1(4): 221—227.
- [2] Kuhlbusch T A J. Enhanced: Black carbon and the carbon cycle[J]. *Science*, 1998, 280(5371): 1903—1904.
- [3] Nel A. Air Pollution-Related illness: Effects of Particles[J]. *Science*, 2005, 308(5723): 804—806.
- [4] Goldberg E D. Black Carbon in the Environment[M]. John Wiley and Sons, New York, 1985.
- [5] 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.
- [6] Long C J, Whitlock C, Bartlein P J, et al. A 9000-year fire history from the Oregon Coast Range, based on a high-resolution charcoal study[J]. *Canadian Journal of Forest Research*, 1998, 28(5): 774—787.
- [7] Han Y M, Cao J J, Yan B Z, et al. Comparison of elemental carbon in lake sediments measured by three different methods and 150-Year pollution history in eastern China[J]. *Environmental Science & Technology*, 2011, 45(12): 5287—5293.
- [8] 韩永明, 曹军骥, 金章东, 等. 岱海与太湖沉积物焦碳和烟炱最近 200 年历史对比研究[J]. *第四纪研究*, 2010, 30(3): 550—559.
- [9] Elmquist M, Zencak Z, Gustafsson Ö. A 700 year sediment record of black carbon and polycyclic aromatic hydrocarbons near the EMEP air monitoring station in Aspövreten, Sweden[J]. *Environmental Science & Technology*, 2007, 41(20): 6926—6932.
- [10] Khan A J, Swami K, Ahmed T, et al. Determination of elemental carbon in lake sediments using a thermal-optical transmittance (TOT) method[J]. *Atmospheric Environment*, 2009, 43(38): 5989—5995.
- [11] Kralovec A C, Christensen E R, Van Camp R P. Fossil fuel and wood combustion as recorded by carbon particles in Lake Erie sediments 1850—1998[J]. *Environmental Science & Technology*, 2002, 36(7): 1405—1413.
- [12] Ming J, Cachier H, Xiao C, et al. Black carbon record based on a shallow Himalayan ice core and its climatic implications[J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2008, 8(5): 1343—1352.
- [13] Muri G, Cermelj B, Faganeli J, et al. Black carbon in Slovenian alpine lacustrine sediments[J]. *Chemosphere*, 2002, 46(8): 1225—1234.
- [14] 郭志刚, 杨作升. 东海中陆架泥质区及其周边表层沉积物碳的分布与固碳能力的研究[J]. *海洋与湖沼*, 1999, 30(4): 421—426.
- [15] 胡利民. 大河控制性影响下的陆架海沉积有机质的“源—汇”作用—以渤、黄海为例[D]. 青岛: 中国海洋大学, 2010.
- [16] 姜晓华, 陈颖军, 唐建辉, 等. 渤海湾海岸带表层沉积物中黑碳的分布特征[J]. *生态环境学报*, 2010, 19(7): 1617—1621.
- [17] Kang Yanju, Wang Xuchen, Dai Minhan, et al. Black carbon and polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) in surface sediments of China's marginal seas[J]. *Chinese Journal of Oceanology and Limnology*, 2009, 27(2): 297—308.
- [18] Hu Limin, Guo Zhigang, Shi Xuefa, et al. Temporal trends of aliphatic and polyaromatic hydrocarbons in the Bohai Sea, China: Evidence from the sedimentary record[J]. *Organic Geochemistry*, 2011, 42(10): 1181—1193.

- [19] Hammes K, Schmidt M W I, Smernik R J, et al. Comparison of quantification methods to measure fire-derived (black/elemental) carbon in soils and sediments using reference materials from soil, water, sediment and the atmosphere[J]. *Global Biogeochemical Cycles*, 2007, 21(3): GB3016.
- [20] 林田, 方引, 陈颖军, 等. 东海内陆架沉积物中黑碳分布及其与持久性有机污染物的相关性研究[J]. *环境科学*, 2012, 33(7): 191—196.
- [21] Middelburg J J, Nieuwenhuize J, Van Breugel P. Black carbon in marine sediments[J]. *Marine Chemistry*, 1999, 65(3/4): 245—252.
- [22] Gustafsson Ö, Haghseta F, Chan C, et al. Quantification of the dilute sedimentary soot phase: Implications for PAH speciation and bioavailability[J]. *Environmental Science & Technology*, 1997, 31(1): 203—209.
- [23] Sánchez-garc A L, Cato I, Gustafsson Ö. The sequestration sink of soot black carbon in the Northern European Shelf sediments[J]. *Global Biogeochemical Cycles*, 2012, 26(1): GB1001.
- [24] Sun X S, Peng P A, Song J Z, et al. Sedimentary record of black carbon in the Pearl River estuary and adjacent northern South China Sea[J]. *Applied Geochemistry*, 2008, 23(12): 3464—3472.
- [25] Smith D M, Griffin J J, Goldberg E D. Elemental carbon in marine sediments: a baseline for burning[J]. *Nature*, 1973, 241: 268—270.
- [26] Schmidt M W I, Skjemstad J O, Czimeczik C I, et al. Comparative analysis of black carbon in soils[J]. *Global Biogeochemical Cycles*, 2001, 15(1): 163—167.
- [27] Wang X C, Li A C. Preservation of black carbon in the shelf sediments of the East China Sea[J]. *Chinese Science Bulletin*, 2007, 52(22): 3155—3161.
- [28] Gustafsson Ö, Gschwend P M. The flux of black carbon to surface sediments on the New England Continental Shelf[J]. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 1998, 62(3): 465—472.
- [29] Lohmann R, Bollinger K, Cantwell M, et al. Fluxes of soot black carbon to South Atlantic sediments[J]. *Global Biogeochemical Cycles*, 2009, 23(1): GB1015.
- [30] 周俊旗. 试论近代环渤海地区的社会变迁[J]. *天津社会科学*, 1992, 2, 97—100.
- [31] 狄颖颖, 孙仁义. 中国森林火灾研究综述[J]. *灾害学*, 2007, 22(4): 118—123.
- [32] 狄颖颖, 张爱国, 张艳丽, 等. 山西省森林火灾的年变化特点和致灾原因分析[J]. *森林防火*, 2007, 2: 19—22.
- [33] 屈宇, 马凤新, 杨艳红. 河北省森林火灾形势分析与对策[J]. *河北林果研究*, 2002, 17(3): 230—234.
- [34] 田晓瑞, 刘晓东, 舒立福, 等. 中国森林火灾周期振荡的小波分析[J]. *火灾科学*, 2007, 16(1): 55—59.
- [35] Wang R, Tao S, Wang W, et al. Black Carbon Emissions in China from 1949 to 2050[J]. *Environmental Science & Technology*, 2012, 46(14): 7595—7603.
- [36] Oen A M P, Cornelissen G, Breedveld G D. Relation between PAH and black carbon contents in size fractions of Norwegian harbor sediments[J]. *Environmental Pollution*, 2006, 141(2): 370—380.
- [37] Cornelissen G, Kukulska Z, Kalaitzidis S, et al. Relations between environmental black carbon sorption and geochemical sorbent characteristics[J]. *Environmental Science & Technology*, 2004, 38(13): 3632—3640.
- [38] 郝云超. 中国东部陆海相互作用中的元素地球化学特征及高分辨率沉积记录初探[D]. 青岛: 中国海洋大学, 2008.
- [39] 张义丰, 李凤新. 黄河、滦河三角洲的物质组成及其来源[J]. *海洋科学*, 1983, 3: 15—18.
- [40] Novakov T, Ramanathan V, Hansen J, et al. Large historical changes of fossil-fuel black carbon aerosols[J]. *Geophysical Research Letters*, 2003, 30(6): 1324.
- [41] Chen Y J, Feng Y L, Xiong S C, et al. Polycyclic aromatic hydrocarbons in the atmosphere of Shanghai, China[J]. *Environmental monitoring and assessment*, 2011, 172(1): 235—247.
- [42] Zhang R J, Cao J J, Lee S C, et al. Carbonaceous aerosols in PM₁₀ and pollution gases in winter in Beijing[J]. *Journal of Environmental Sciences*, 2007, 19(5): 564—571.
- [43] 支国瑞, 张小曳, 胡秀莲, 等. 可持续发展背景下的黑碳减排[J]. *气候变化研究进展*, 2009, 5(6): 318—327.
- [44] Chen Y J, Zhi G R, Feng Y L, et al. Measurements of emission factors for primary carbonaceous particles from residential raw-coal combustion in China[J]. *Geophysical Research Letters*, 2006, 33(20): L20815.
- [45] Zhi G R, Chen Y J, Feng Y L, et al. Emission characteristics of carbonaceous particles from various residential coal-stoves in China[J]. *Environmental Science & Technology*, 2008, 42(9): 3310—3315.
- [46] Zhi G R, Peng C H, Chen Y J, et al. Deployment of coal briquettes and improved stoves: possibly an option for both environment and climate[J]. *Environmental Science & Technology*, 2009, 43(15): 5586—5591.
- [47] Streets D G, Gupta S, Waldhoff S T, et al. Black carbon emissions in China[J]. *Atmospheric Environment*, 2001, 35(25): 4281—4296.
- [48] Streets D, Bond T, Carmichael G, et al. An inventory of gaseous and primary aerosol emissions in Asia in the year 2000[J]. *Journal of Geophysical Research*, 2003, 108(D21): 8809.

One hundred year sedimentary record of black carbon from mud area in Bohai Sea, China

Fang Yin^{1,2}, Chen Yingjun¹, Lin Tian³, Tian Chongguo¹, Pan Xiaohui¹, Tang Jianhui¹

(1. Key Laboratory of Coastal Environmental Processes and Ecological Remediation, Yantai Institute of Coastal Zone Research, Chinese Academy of Sciences; Shandong Provincial Key Laboratory of Coastal Environmental Processes, Yantai 264003, China; 2. University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China; 3. State Key Laboratory of Environmental Geochemistry, Institute of Geochemistry, Chinese Academy of Sciences, Guiyang 550002, China)

Abstract: Core sediment samples collected from the mud area of Bohai Sea (BS) were analyzed for the concentration and depositional flux of black carbon (BC). By combining with ²¹⁰Pb radionuclide dating, the relationship between centennial scale variation of BC depositional flux and human activities adjacent to the BS was discussed. The results showed that: (1) the concentration and flux of BC ranged from 0.24 to 0.49 mg/g and from 0.026 to 0.053 mg/(cm² · a), with mean values of (0.32 ± 0.07) mg/g and (0.040 ± 0.008) mg/(cm² · a), respectively. BC concentration was equivalent to those in other China seas (like the East China Sea), but significantly lower than the heavily polluted areas, such as America bays and Swedish continental shelf; (2) BC flux peaked around 1950s to mid-1970s and early 1990s to late 1990s, which each could be attributed to the sharply increased biomass burning and fossil fuels (coal and oil) combustion. However, the lower value and the decreasing trend of BC flux occurred in the period of late 1970s to late 1980s and the initial period of the 21st century could be explained by the diversion of the Huanghe River and the utilization of clean technology for energy consumption as well as pollution control strategies, respectively; (3) By comparing the present results and other studies in various seas and lakes around the world, it was confirmed that BC sedimentary record in core sediment could be used as a good geochemical indicator to reveal the influence history of anthropogenic activities on regional ecological environment.

Key words: black carbon; sedimentary record; core sediment; mud area; Bohai Sea