

百年来海州湾沉积物中黑碳分布特征及环境意义

苗继红¹, 谭志海^{1,2}, 毛龙江³, 雷秋景¹, 王雪梅¹, 袁煜博¹, 高 博¹

(1. 西安工程大学环境与化学工程学院, 陕西 西安 710048; 2. 黄土与第四纪地质国家重点实验室, 中国科学院地球环境研究所, 陕西 西安 710061; 3. 南京信息工程大学海洋科学学院, 江苏 南京 210044)

摘要: 沉积物中黑碳记录了百年来区域生物质燃烧特征变化。本文以海州湾入海潮滩采集的岩芯沉积物样品为研究对象, 采用热光反射法(TOR)分别对沉积物黑碳、焦炭和烟炱进行测定, 分析探讨海州湾近百年来生物质燃烧演变过程。利用相关性分析、主成分分析和特征比值法分析黑碳含量的历史变化和可能来源, 试图揭示该区域百年来能源结构的转变过程。结果表明, 近百年来沉积物黑碳、焦炭、烟炱质量分数垂直变化幅度较大, 分别在 $0.507\sim1.281\text{ mg}\cdot\text{g}^{-1}$, $0.395\sim1.080\text{ mg}\cdot\text{g}^{-1}$, $0.112\sim0.389\text{ mg}\cdot\text{g}^{-1}$ 范围内变化。其中, 黑碳质量分数高值出现在 20 世纪 80 年代中后期($0.873\sim1.029\text{ mg}\cdot\text{g}^{-1}$), 而低值出现在 20 世纪 20 年代到 20 世纪中叶期间($0.675\sim0.751\text{ mg}\cdot\text{g}^{-1}$)。不同区域黑碳分布比较发现, 我国东部边缘海地区比青藏高原和瑞典湖泊高出 10 倍, 但发达国家黑碳通量峰值出现时间早, 反映了黑碳沉积与区域工业化水平和人类活动相关性显著。黑碳特征比值法(char/soot)的源解析结果表明, 黑碳的来源中化石燃料燃烧占 48.8 %, 是生物质燃烧的 4.2 倍。根据相关性分析、主成分分析和 char/soot 比值结果分析, 黑碳在 1950 年以前主要来源是生物质燃烧, 在 1950 年以来煤炭燃烧、工业源、交通源比重增加, 主要和区域人口、工业总产值、能源消费等因素有关, 人类活动占据主导。研究结果为进一步理解该区域黑碳污染状况及制定未来海州湾地区的生态环境管理政策提供参考。

关键词: 黑碳; 分布特征; 源解析; 人类活动; 能源结构; 海州湾

中图分类号: P736.2

文献标识码: A

文章编号: 1000-3096(2024)4-0018-12

DOI: 10.11759/hyxx20230705001

近百年来, 人类活动对大气圈、冰冻圈和生物圈产生前所未有的影响^[1], 地球可能已经进入了一个由人类主导的地质时代, 即人类世^[2]。自从 Crutzen^[3]首次提出人类世的开始与工业革命有关以来, 许多学者利用多种手段对人类世以来全球生态环境的变化深入研究并取得了许多成果^[4-7]。人类世以来, 化石燃料燃烧在全球范围内释放了大量的黑碳和球形碳质颗粒, 1950 年左右全球同步增加, 人为沉积通量剧增^[8]。黑碳(BC), 也称元素碳(EC), 是生物质和化石燃料不完全燃烧的产物, 包括低温态焦炭(char)和高温态烟炱(soot)^[9]等多种形态, 可以在环境介质中长期保存^[10], 在全球碳循环中起重要作用^[11]。同时, 黑碳的增温效率高于二氧化碳等温室气体^[12], 减少黑碳的排放可能是短期内缓解气候变化的最好途径^[13]。现今全球黑碳排放变化的驱动因素主要是人口增长、人均能源消费量和居民能源转换等^[14]。从 1960 年到 2017 年, 我国黑碳主要来源是生物质燃烧和煤炭燃烧, 占全球人为总排放量的 25 % (达到 1 220 Gg), 其中华北

地区的人为排放量最高^[14]。因此, 黑碳是当前国内外研究人员在气候变化^[15]、碳循环^[16]等领域共同关注的热点问题。研究发现, 长江口和东海陆架沉积物中化石燃料燃烧产生的黑碳含量占 60%~80%^[17], 黑碳的分布特征主要受到人类活动和自身环境的影响^[18]。

目前, 沉积物中黑碳在测量方法^[19]、吸附机理^[20]、来源解析^[21]等方面有了相应研究成果。研究发现, 沉积物黑碳是边缘海中溶解态黑碳的主要来源^[22], 半封闭

收稿日期: 2023-07-05; 修回日期: 2023-10-16

基金项目: 国家自然科学基金面上项目(42373085); 中国科学院战略性先导 B 科技专项项目(XDB40000000); 陕西省自然科学基金基础研究项目(2023-JC-YB-226); 黄土与第四纪地质国家重点实验室开放基金(SKLLQG22023)

[Foundation: National Natural Science Foundation of China, No. 42373085; Chinese Academy of Sciences Strategic Pioneer B Science and Technology Special Project, No. XDB40000000; Natural Science Basic Research Program of Shaanxi Province, No. 2023-JC-YB-226; State Key Laboratory of Loess and Quaternary Geology Open Fund, No. SKLLQG22023]

作者简介: 苗继红(1990—), 男, 甘肃定西人, 硕士研究生, 主要从事土壤和沉积物黑碳研究, E-mail: miaojihong2021@163.com; 谭志海(1974—), 通信作者, 男, 江苏浦口人, 副教授, 博士, 主要从事全球环境变化和碳循环研究, E-mail: tonishtan@163.com

海湾是颗粒污染物的关键储层^[23]。海州湾是南黄海西部有较多河流汇入的半开阔海湾,是传统养殖、港口开发、临海工业的主要聚集地,陆源污染物对海洋生态环境造成巨大压力。人类世以来全球生态环境发生巨大变化,迫切需要厘清我国东部沿海地区黑碳沉积记录与区域能源结构的关系,有利于人们充分认识黑碳的排放历史、来源及与人类活动的响应。因此,本研究以海州湾潮滩柱状沉积物中黑碳为研究对象,结合区域社会经济发展指标和气候指标,研究了海州湾沉积物中黑碳含量和沉积通量的历史变化规律,主要目的是阐明海州湾近百年来黑碳变化与区域历史人类活动之间的关系,探讨海州湾近百年来生物质燃烧及能源结构的转变过程。

1 材料与方法

1.1 研究区域及采样点

海州湾位于江苏省东北部的一个工业港口城市连云港市(34°N~35°07'N, 118°24'E~119°48'E)附近,北起山东省日照市岚山镇佛手咀(35°05'N, 119°21'E),南至连云港市高公岛(34°45'N, 119°29'E),是黄海有较多河流汇入的一个半开阔的海湾,占地 820 km²,海岸线长 86.81 km^[24]。临洪河是流入海州湾的主要河流,绣针河、龙王河是污染物排入海洋的主要渠道。海州湾属于暖温带湿润季风性海洋气候,主导风向为东南风,年降水量在 505.5~1 374.3 mm 范围内变化,年平均降

水量为 883.6 mm^[25]。海州湾不仅是传统的水产养殖区和新的工业港区,而且在港口发展、渔业、水产养殖、旅游和航运业中发挥着重要作用^[26]。随着江苏省沿海能源结构的转变和经济快速发展,污水排放量显著增加,海洋生态系统遭到严重破坏^[27]。连云港市重工业占比高,冶金、化工、食品、建材等产业占比达到 60.0%,能源消耗大,污染物排放多,48.4%的工业危险废物,主要来自化工企业,总量达 4.9 万吨。海州湾由北向南大致可分为 3 个海岸,依次是砂质海岸、粉砂淤泥质海岸、基岩海岸,本研究区域位于海州湾中段海岸(采样点 HZ02, 34°48'64.31"N, 119°13'12.67"E)。

1.2 实验方法

本研究样品采用 2014 年 10 月由南京信息工程大学在海州湾潮滩潮间带中上部采集的柱状岩芯 HZ02 (长 124 cm, 主要成分为粉砂), 2 cm 间隔切片, 连续取样 62 个。柱状岩芯 ²¹⁰Pb_{ex} 含量(80~170 Bq/kg), ¹³⁷Cs 同位素测定(¹³⁷Cs 值介于 0~4 Bq/kg)、平均沉积速率计算(从表层到底部依次为 0.71 cm·a⁻¹、1.15 cm·a⁻¹、1.02 cm·a⁻¹)和年代框架构建等实验方法和相关数据参照前人研究结果^[28]。沉积物 ¹³⁷Cs 的时标计年结果有 3 个明显的特征峰值(深度在 20 cm、46 cm 和 52 cm 处)分别与特征年(1986 年、1979 年、1963 年)具有良好的对应关系,利用公式计算岩芯沉积速率,从而推算出沉积年代^[28],岩芯沉积物测年结果与深度的特征关系如图 1 所示。

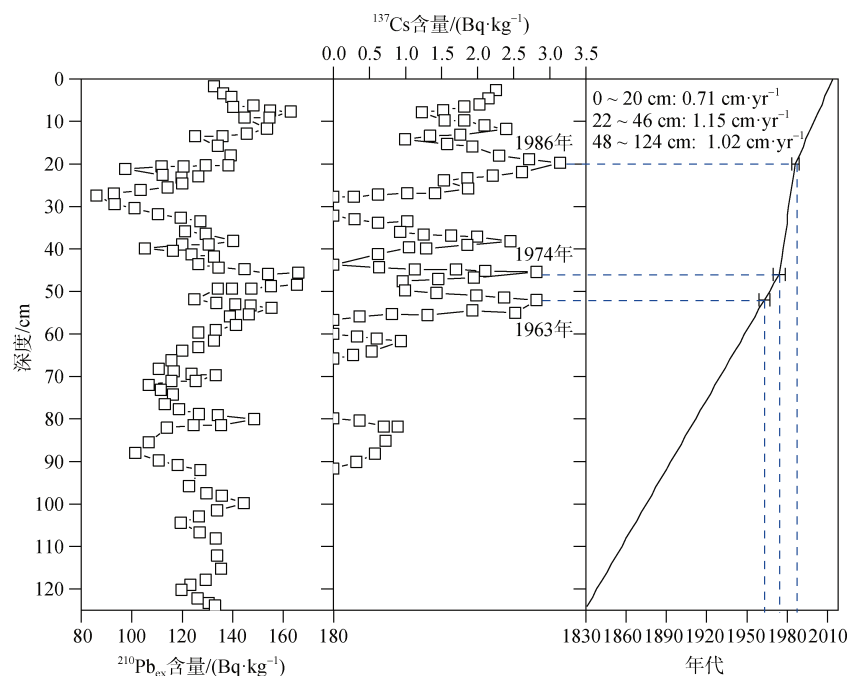


图 1 岩芯沉积物测年结果与深度的特征关系

Fig. 1 Characteristic relationship between core sediment dating results and depth

黑碳(BC)测定在中国科学院地球环境研究所黄土与第四纪地质国家重点实验室完成。称 0.3 g 自然风干, 研磨过 200 目筛的岩芯样品, 经过 HCL 和 HF 酸处理去除无机碳酸盐, 硅酸盐矿物以及金属氧化物, 45 °C 下烘干后对土样滤膜打孔, 采用热光反射法 (thermal/optical reflectance (TOR) method)^[29], 使用 DRI Model 2001 Thermal/Optical Carbon Analyzer 碳分析仪(采用 IMPROVE 协议)测量 62 个样品的黑碳质量分数。根据黑碳质量分数(C_{BC} , $\text{mg}\cdot\text{g}^{-1}$)、平均沉积速率($\omega = 0.25 \text{ cm}\cdot\text{a}^{-1}$)、沉积物干密度($\rho = 1.19 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$)和沉积物孔隙度($\Phi = 0.75$, 无量纲)计算黑碳沉积通量(F_{BC} , $\text{mg}\cdot\text{cm}^{-2}\cdot\text{a}^{-1}$), 计算公式为 $F_{BC} = C_{BC}\cdot\rho\cdot\omega\cdot(1-\Phi)$ 。黑碳在不同温度下通入氦气(He), 生成 4 个有机碳组分(OC1, OC2, OC3, OC4); 通入 2% O_2 和 98% He 的混合气体, 在不同温度下生成 3 个元素碳组分(EC1, EC2, EC3), 其中 EC1 的部分热解碳定义为 POC。用 633 nm He/Ne 激光全程照射样品, 监测样品对激光的反射光强的变化, 将反射光强回到初始光强的时刻定义为 EC 的起始点^[30], 从 EC1 中分离出 POC^[29], EC 定义为在 He/ O_2 环境中加热释放的碳的总和减去 POC^[19], POC 的量定义为激光反射率达到初始值的碳^[31]。焦炭定义为 $\text{EC}_{\text{char}} = \text{EC1} - \text{POC}$, 烟炱定义为 $\text{EC}_{\text{soot}} = \text{EC2} + \text{EC3}$ ^[31], $C_{BC} = C_{\text{char}} + C_{\text{soot}}$ 。

1.3 质量保证与质量控制

化学预处理之后样品的滤膜处理(是否均匀分布)

是影响黑碳测量准确度的关键步骤。本研究每 10 个样品做一个空白样和重复样($n = 7$, 所有重量均为干重), 空白组未检测到黑碳质量分数。每次测量以前使用已知的标准 CH_4 进行气检(两次气检的偏差小于 5%), 使用推荐的标准样品检测仪器的稳定性(差值要求在推荐值的 5%以内), 黑碳相对标准偏差小于 6%, 焦炭和烟炱相对标准偏差小于 10%^[32]。

1.4 数据处理

本文用 Arc GIS 10.2 绘制研究区域采样点位置图, 用 Rstudio 软件对变量做相关性分析图, 利用 Origin 2019b 软件绘制质量分数变化图。利用 SPSS26 对原始变量 Z-score 标准化后做主成分分析, KMO 检验统计量为 $0.698 > 0.600$, 说明变量之间存在相关性, 同时, Bartlett 球形检验结果显著性水平 $P = 0.000 < 0.050$, 因此原始数据满足主成分分析的条件。由于所检索数据的单位和统计标准不同, 文中引用其他区域的黑碳含量用质量分数表示, 其与沉积通量的数据进行单位换算(密度), 单位统一为 $\text{mg}\cdot\text{g}^{-1}$ 和 $\text{mg}\cdot\text{cm}^{-2}\cdot\text{a}^{-1}$, 以便数据比较, 文中所涉及的黑碳含量均用质量分数表示。

2 结果与讨论

2.1 海州湾沉积物中黑碳含量的历史变化

海州湾近百年沉积物黑碳、焦炭、烟炱含量的垂直变化情况如图 2 所示, 整体上黑碳、焦炭、烟炱

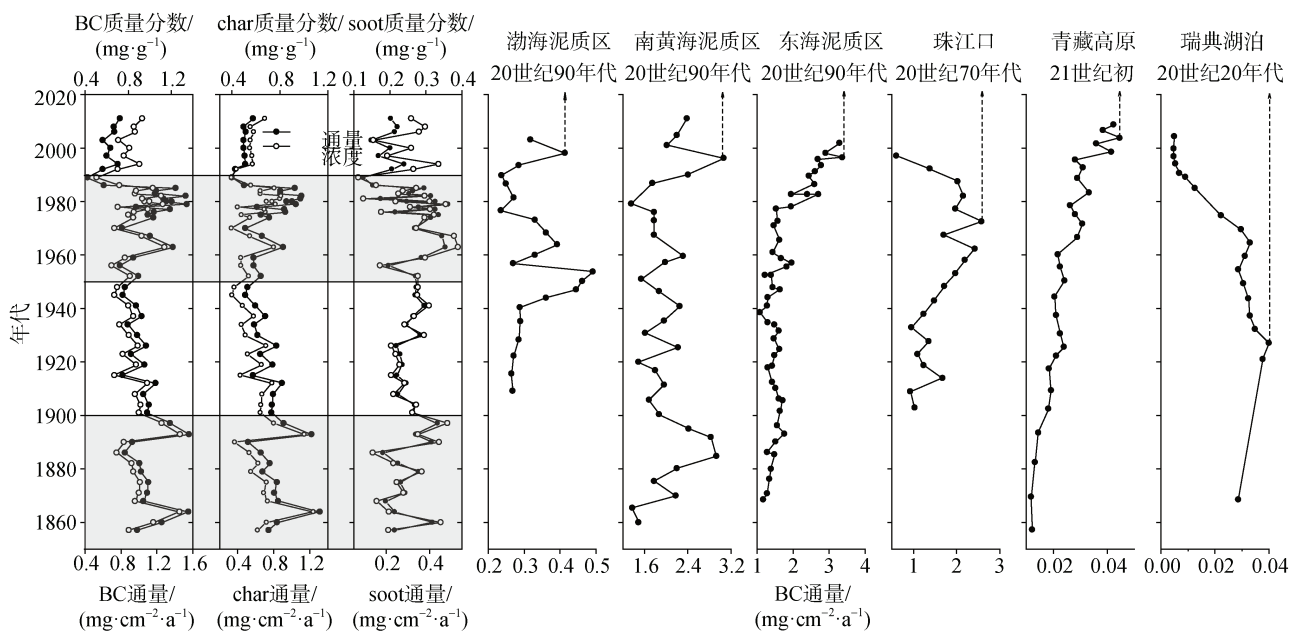


图 2 沉积物中黑碳、焦炭、烟炱含量和沉积通量的历史变化特征及区域对比情况

Fig. 2 Historical characteristics and regional comparisons of black carbon, char, and soot content and fluxes in sediments

呈现出明显的波峰和波谷趋势,高含量出现在 20 世纪 80 年代中后期,低含量出现在 20 世纪 20 年代到 20 世纪中叶期间。焦炭与黑碳的垂直分布保持一致,占比 55.9%~86.4%,质量分数范围为 0.395~1.080 $\text{mg}\cdot\text{g}^{-1}$ (均值 $0.610\pm0.139 \text{ mg}\cdot\text{g}^{-1}$); 烟炱与黑碳的垂直分布存在差异,占比是 13.6%~44.1%,质量分数范围为 0.112~0.389 $\text{mg}\cdot\text{g}^{-1}$ (均值 $0.254\pm0.063 \text{ mg}\cdot\text{g}^{-1}$)。从整个岩芯垂直分布来看,黑碳质量分数为 0.507~1.281 $\text{mg}\cdot\text{g}^{-1}$ (均值 $0.864\pm0.140 \text{ mg}\cdot\text{g}^{-1}$),研究结果明显低于海州湾入海河流表层沉积物(0.079~4.678 $\text{mg}\cdot\text{g}^{-1}$,均值 1.005 $\text{mg}\cdot\text{g}^{-1}$)^[33]。入海河流附近人类活动频繁,可能导致黑碳富集,河流输入可能是影响潮间带和近海黑碳含量的重要因素之一。研究发现,渤海湾西海岸入海河流沉积物中黑碳质量分数(22.8 $\text{mg}\cdot\text{g}^{-1}$)明显高于潮间带(0.9 $\text{mg}\cdot\text{g}^{-1}$)^[34],这与海州湾的研究结果一致,一定程度上解释了入海河流对陆源黑碳输入的重要影响。

在 1900 年以前,海州湾沉积物黑碳、焦炭、烟炱含量波动较大,黑碳和焦炭整体变化一致,黑碳质量分数为 0.696~1.281 $\text{mg}\cdot\text{g}^{-1}$ (均值 $0.797\pm0.192 \text{ mg}\cdot\text{g}^{-1}$)。在 1900—1950 年较长时期内海州湾沉积物中的黑碳质量分数从 0.977 $\text{mg}\cdot\text{g}^{-1}$ 降低至 0.697 $\text{mg}\cdot\text{g}^{-1}$,与 1900 年之前相比较,焦炭质量分数降低,烟炱质量分数在 0.210~0.309 $\text{mg}\cdot\text{g}^{-1}$ 之间变化(图 2)。在 1950—1990 年海州湾沉积物中的黑碳含量增长趋势明显,在改革开放以后黑碳质量分数达到峰值(1.120 $\text{mg}\cdot\text{g}^{-1}$),其质量分数是 1960 年的 1.5 倍,烟炱质量分数达到 0.355 $\text{mg}\cdot\text{g}^{-1}$; 1990 年以来黑碳、焦炭、烟炱整体都处于较低水平,相比较 1950—1990 年,焦炭含量降低了 64.9%。因此,在整个岩芯剖面,海州湾近百年以来沉积物中焦炭含量呈逐年降低趋势,同时烟炱含量增加了 54.5%,但近年来都处于较低水平。

2.2 不同区域沉积物中黑碳的分布特征对比

前人研究发现,沉积物中的黑碳含量可能会被输入其中的有机物和矿物质稀释^[35],黑碳沉积通量比黑碳含量更能反映黑碳的真实输入。因此,本文对比分析了不同时期我国东部边缘海区域(海州湾、渤海湾、珠江口、南海西沙群岛、东海泥质区、南黄海泥质区)、青藏高原及瑞典 Stora-Frillingen 湖泊的黑碳沉积通量变化情况(图 2)。从整个岩芯垂直分布来看,海州湾黑碳与渤海泥质区(0.236~0.490 $\text{mg}\cdot\text{cm}^{-2}\cdot\text{a}^{-1}$)^[36]在同一数量级,低于东海泥质区(1.166~3.361 $\text{mg}\cdot\text{cm}^{-2}\cdot\text{a}^{-1}$)^[36]、珠

江口(0.603~2.419 $\text{mg}\cdot\text{cm}^{-2}\cdot\text{a}^{-1}$)^[37]等污染相对严重的区域,比瑞典湖泊(0.005~0.040 $\text{mg}\cdot\text{cm}^{-2}\cdot\text{a}^{-1}$)^[38]、青藏高原(0.012~0.045 $\text{mg}\cdot\text{cm}^{-2}\cdot\text{a}^{-1}$)^[38]高出 10 倍左右。我国东部边缘海的黑碳通量明显高于西部地区,与我国东部中高度工业化地区的黑碳排放量相当。青藏高原黑碳较低可能与当地的人口数量少、人类活动较弱以及较好的地理环境等因素有关,大气远距离输送和当地的干湿沉降是黑碳输入的主要途径^[39]。Gao 等^[40]基于广义相加模型(GAM)研究发现三江平原人口数量和农田面积与黑碳沉积通量显著相关,人类活动是影响黑碳沉积的主要因素。海州湾沉积物中黑碳通量低可能与连云港市人均能源消费量有关,苏南的人均能源消费量远远高于苏北地区^[41]。其次,海州湾有临洪河、绣针河等河流汇入,外源泥沙输入量增加使得潮滩沉积速率变大^[42],对黑碳的沉积产生影响。总体来看,沉积物中黑碳沉积通量变化与当地社会经济发展密切相关。

从不同区域沉积物黑碳沉积通量变化分析发现(图 2),海州湾与南黄海的变化趋势一致,东海泥质区、青藏高原的黑碳沉积记录从底层向表层整体呈现为由低到高的变化趋势,珠江口和瑞典湖泊的变化趋势为先升高后降低的趋势,但黑碳峰值出现的时间呈现区域性差异。我国东部沿海地区黑碳峰值主要在 20 世纪 70 年代到 20 世纪 90 年之间,青藏高原偏远地区峰值出现较晚,主要在 21 世纪初期。发达国家瑞典湖泊中的黑碳沉积记录与我国的不同,从 19 世纪 60 年代开始,黑碳通量逐年增加,与工业革命的开始相一致,在 20 世纪 20 年代瑞典湖泊黑碳通量达到整个岩芯的峰值 0.039 $\text{mg}\cdot\text{cm}^{-2}\cdot\text{a}^{-1}$,随后呈下降趋势。我国沉积物黑碳的沉积记录在大多数情况下都观察到上升趋势,直到沉积柱表层才有一定下降趋势,黑碳出现峰值的时间要明显晚于发达国家,我国在 1978 年之后才开始工业化和城镇化的快速发展。因此,我国与发达国家黑碳沉积记录的不同模式,与工业化和城镇化不同的发展历史相吻合。综上可知,不同区域黑碳峰值出现时间存在差异,反映了黑碳沉积与区域工业化水平和人类活动显著相关。

2.3 海州湾沉积物中黑碳的来源分析

为了进一步探讨海州湾近百年来沉积物黑碳在不同阶段的可能来源及人类活动的影响程度,利用相关性分析、主成分分析和黑碳特征比值法对各指

标进行分析。重金属 As 和江苏省总人口、石笋 $\delta^{18}\text{O}$ 和北半球温度距平、重金属 Cu 和 Zn、焦炭和耕地面积两两之间存在较强的相关性(图 3)。主成分分析提取了 6 个因子, 解释了总变量的 91.9%(表 1)。因子 1 主要解释了 As 和江苏省总人口, 解释度为 33.0%, As 是煤炭燃烧时产生的主要重金属^[43], 与人类活动息息相关, 表示人为燃煤源。因子 2 主要解释了石笋 $\delta^{18}\text{O}$ 和北半球温度距平, 贡献了总变量解释的 18.2%, 气候变化对野火产生广泛影响^[44-45], 因此代表气候因素。因子 3 解释了 Cu 和 Zn, 贡献了总变量解释的 13.3%, 代表的是工业源。因子 4 是焦炭和耕地面积, 贡献了总变量解释的 11.7%, 代表的是生物质燃烧。因子 5 是烟炱, 贡献了总变量解释的 10.5%, 黑碳主要来源是机动车尾气。因子 6 是 Pb, 贡献了总变量解释的 5.3%, 来源可能是船舶燃料燃烧。孟昆等^[46]研究发现, 海州湾北部表层沉积物中重金属 Pb 的空间分布与船舶集中区分布有关, 来源包括燃油废气和船舶表层防污漆。

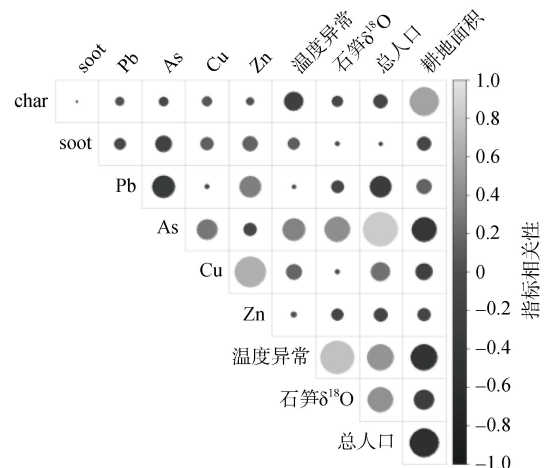


图 3 沉积物中焦炭(char)、烟炱(soot)、重金属与江苏省经济社会发展指标和气候指标的相关性分析

Fig. 3 Char, soot, and heavy metals in sediment were analyzed for their relationships to climatic, economic, and social development factors in Jiangsu Province

注: 数据来源, 重金属来自文献[29], 温度异常来自文献[47], 石笋 $\delta^{18}\text{O}$ (Stalagmite $\delta^{18}\text{O}$) 来自文献[48], 总人口和耕地面积数据来自文献[49]

表 1 沉积物中焦炭、烟炱、重金属与江苏省经济社会发展指标和气候指标的主成分分析显示黑碳来源的变化

Tab. 1 Char, soot, heavy metals in sediment, economic and social development indicators, and climatic indicators from Jiangsu Province's main component analysis revealed the change sources of black carbon

	成分					
	PC1	PC2	PC3	PC4	PC5	PC6
焦炭	0.035	-0.073	0.067	0.951	0.056	0.048
烟炱	-0.079	0.046	0.096	-0.024	0.979	-0.068
Pb	-0.221	0.006	0.123	0.046	-0.075	0.956
As	0.879	0.222	0.075	-0.029	-0.190	-0.209
Cu	0.258	0.030	0.903	0.040	0.041	-0.066
Zn	-0.152	-0.021	0.898	-0.050	0.080	0.222
北半球温度距平	0.235	0.877	0.080	-0.236	0.090	0.087
石笋 $\delta^{18}\text{O}$	0.217	0.931	-0.061	-0.002	-0.021	-0.076
总人口	0.908	0.262	0.015	-0.139	0.042	-0.111
耕地面积	-0.486	-0.200	-0.145	0.732	-0.177	-0.004
贡献率/%	33.011	18.183	13.272	11.707	10.507	5.261
累积贡献率/%	33.011	51.194	64.466	76.174	86.680	91.941
初始特征值	3.301	1.818	1.327	1.171	1.051	0.526
来源	燃煤源	气候	工业源	生物质燃烧	机动车尾气	船舶燃料燃烧

注: 提取方法: 主成分分析法; 旋转方法: 最大方差法; 数值加黑表示成分载荷>0.6

由于焦炭和烟炱的生成温度不同, 因此不同燃料在不同燃烧温度下的 char/soot 比值存在较大差异。按照 char/soot 比值从高到低, 黑碳来源依次为生物质燃烧、煤炭燃烧和机动车尾气排放^[50], 通过 char/soot 可以大致确定黑碳的来源, 因此, 海州湾潮滩沉积物中

黑碳的历史变化可以很好地记录和反映区域能源结构变化。本研究参考 Han 等^[51]对西安市道路中黑碳的研究结果, char/soot 大于 2.60, 主要来源是秸秆燃烧和居民薪柴燃烧, 在 1.66~2.60 之间是煤炭燃烧, 小于 1.66 认为是机动车排放。海州湾近百年沉积物 char/soot 比

值是 1.27~6.34, 整体分布在 1.27~2.77。在不同历史时期, 岩芯沉积物中 char/soot 均值有所差异: 1900 年以前、1900—1950 年、1950—1990 年和 1990—2014 年分别是 3.03、2.32、2.59、2.32, 黑碳可能来源是煤炭燃烧和生物质燃烧。最近一次研究发现^[52], 南黄海表层沉积物中黑碳主要来源为化石燃料燃烧, 占住宅和工业源黑碳总排放量的 66%~80%。

2.4 沉积物中黑碳通量变化可以指示海州湾能源结构转变

从 1850 年到 1900 年, 黑碳通量为 0.845~1.555 $\text{mg}\cdot\text{cm}^{-2}\cdot\text{a}^{-1}$, char/soot 比值 1.27~5.48(平均值 3.03)。在渤海柱样黑碳含量的研究中有相同的变化规律^[53]。1835 年左右江苏省苏北地区出现重干旱^[54], 大概率发生火灾事件。研究人员发现, 沉积物中的黑碳是野火历史记录的主要信息来源^[55]。此阶段石笋 $\delta^{18}\text{O}$ 偏负(图 4), 表明气候湿润, 降水量增加^[56], 植被丰富, 同时, 温度距平也有明显波动, 可能由于气候因素导致生物质燃烧。从 1900 年到 1950 年 char/soot 比值为 1.45~3.38 (均值 2.32), 黑碳、焦炭通量整体呈下降趋势, 烟炱通量在 0.246~0.375 $\text{mg}\cdot\text{cm}^{-2}\cdot\text{a}^{-1}$ 之间变化, 因此, char/soot 比值相对于 1850 年到 1900 年呈现相对低值。研究区受经济发展水平的限制, 煤炭的开采量和消耗量相对较少, 黑碳的排放量不高。此时期石笋 $\delta^{18}\text{O}$ 先减小后增大, 温度出现异常, 表明气候干旱^[57], 易发生野火事

件。综上所述, 从 1850 年到 1950 年黑碳来源可能是生物质燃烧。

从 1950 年到 1990 年, 黑碳通量为 0.429~1.534 $\text{mg}\cdot\text{cm}^{-2}\cdot\text{a}^{-1}$, char/soot 比值在 1.46~6.34 之间变化(平均值 2.59), 黑碳和 As 含量都明显增加(图 4), 这与我国黑碳排放量相一致(图 5b)。As 是煤炭燃烧产生的主要重金属, 通过工农业和渔业污水排放到海州湾临洪河口近岸附近并逐年富集^[58]。1953 年我国优先发展高能耗、高污染的重工业, As、Pb 等重金属的排放量增加, 同时砍伐了大面积森林, 生物质燃烧产生的黑碳增加, 在 1960 年左右 char/soot 出现峰值 (2.82)可能与此有关(图 4)。在 1978 年以后, 江苏省快速进入了工业化和城镇化时期, 能源消费和经济发展使得海州湾黑碳累积。1978 年连云港市工业总产值占比 33%, 我国黑碳年排放总量在 1978 年末达到 1 496 Gg(图 5b)。在 1980 年左右, 石笋 $\delta^{18}\text{O}$ 明显增大(偏正), 温度距平变小, 表明此时期气候干旱, 同时整个岩芯 char/soot 比值达到最高值 6.34。值得注意的是, 在 1978 年江苏出现 100 年罕见的春、夏、秋连旱^[59], 在 1977 年和 1978 年出现高频次的火灾。与此同时, 烟炱和 As 含量也相应增加(图 4), 江苏省能源消费总量从 1980 年的 8 565.7 万吨增加到 1990 年的 17 075.9 万吨(图 5d)。因此, 1950 年到 1990 年黑碳来源可能是生物质燃烧和化石燃料燃烧。

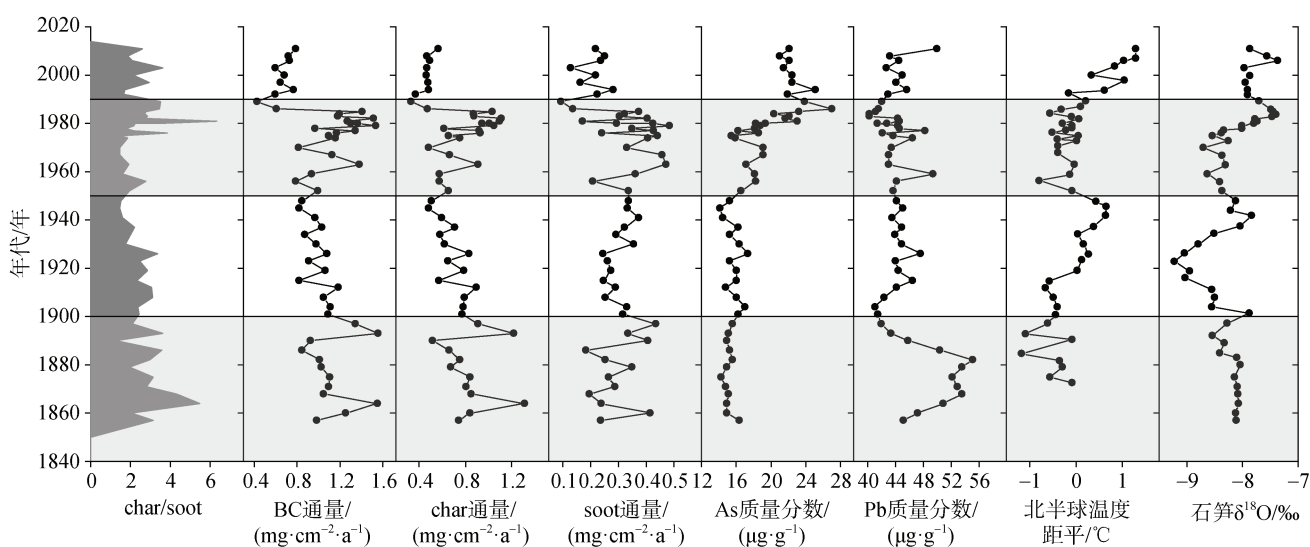


图 4 沉积物黑碳、焦炭、烟炱分布特征与重金属和气候的关系

Fig. 4 Relationship between the distinctive characteristics of black carbon, char, and soot in sediment with heavy metals and climate

注: 根据海州湾不同时期经济社会发展情况, 岩芯剖面垂向分为 4 个阶段(浅灰色背景: 1850—1950 年, 1950—1990 年; 白色背景: 1900—1950 年, 1990 年以来)

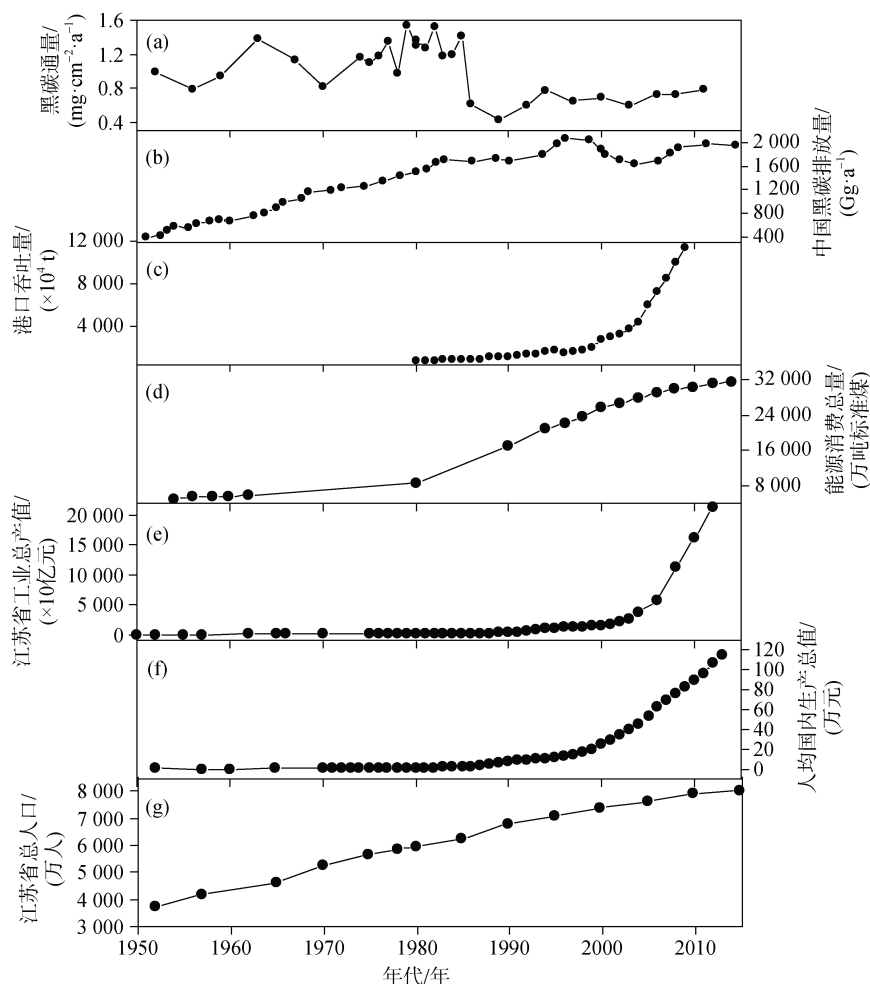


图 5 沉积物中黑碳通量、我国黑碳排放量与江苏省社会经济发展之间的关系

Fig. 5 Connection between China's black carbon emissions, Jiangsu Province's socioeconomic growth, and black carbon flux in sediment

注: 1950 年到 2014 年我国黑碳排放量数据来自文献[65], 港口吞吐量、能源消费总量、总人口、人均国内生产总值、工业生产总产值的相关数据来自文献[49]

1990 年以来, 黑碳通量为 $0.596\sim0.789\text{ mg}\cdot\text{cm}^{-2}\cdot\text{a}^{-1}$, char/soot 比值在 1.71~3.62 之间变化(平均值 2.32), 重金属 As 有所降低但整体处于高值, 重金属 Pb 升高(图 4)。自 2000 年我国禁止使用含铅汽油后, Pb 主要源自船舶燃料燃烧, 从图 5c 可以看出港口吞吐量在 2000 年之后快速增长。烟尘通量从 $0.596\text{ mg}\cdot\text{cm}^{-2}\cdot\text{a}^{-1}$ 增加到 $0.789\text{ mg}\cdot\text{cm}^{-2}\cdot\text{a}^{-1}$, 表 1 主成分分析结果显示烟尘贡献了总变量解释的 10.5%。烟尘是高温燃烧后含碳物质高度浓缩而成^[60], 多指示机动车排放。在大规模工业能耗方面, 煤炭仍是连云港的主要能源消耗, 燃煤锅炉使用的煤炭占 57%^[61]。这一阶段黑碳通量与 20 世纪 90 年代之前相比较呈现低水平, 和 2000 年以来港口吞吐量、能源消费总量、工业生产总产值、人均国内生产总值的变化趋势不一致(图 5c—f), 可能与 1996 年我国

颁布实施《煤炭法》^[62], 使用天然气炉取代高污染的民用煤炉有关, 工业和居民的黑碳排放量减少。资料显示(图 5b), 我国黑碳年排放量从 1996 年的 $2.068\times10^9\text{ kg}$ 下降到 2003 年的 $1.631\times10^9\text{ kg}$, 2007 年江苏风力发电量达到 $2.1\times10^8\text{ kW}\cdot\text{h}$ 。黑碳主要来源可能是煤炭燃烧和交通源。这一阶段研究结果与方引等^[63]对渤海泥质区黑碳沉积通量研究结果一致, 跟最近长三角地区黑碳年排放量的估算研究存在一定差异^[64]。

综上所述, 百年来海州湾沉积物中黑碳含量和沉积通量变化与区域人口、GDP、工业生产总产值、能源消费量等相关, 从岩芯底层到表层 char/soot 比值呈下降趋势, 进一步反映海州湾沉积物中黑碳来源从生物质燃烧向化石燃料燃烧的转变过程。此外, 人为因素超过了气候因素, 是影响海州湾沉积物黑碳累积的主要因素。

3 结论

(1)海州湾沉积物中黑碳的分布特征随时间变化存在显著差异。黑碳、焦炭含量整体呈下降趋势,烟炱含量增加,但近年来都处于较低水平。黑碳质量分数为 $0.507\sim 1.281\text{ mg}\cdot\text{g}^{-1}$, 高值出现在 20 世纪 80 年代中后期($0.873\sim 1.029\text{ mg}\cdot\text{g}^{-1}$), 低值出现在 20 世纪 20 年代到 20 世纪 50 年代期间($0.675\sim 0.751\text{ mg}\cdot\text{g}^{-1}$)。1900 年以前,黑碳、焦炭、烟炱含量波动幅度较大。1900 年到 1950 年,黑碳、焦炭含量整体降低,烟炱略有增加。1950 年到 1990 年,黑碳、焦炭、烟炱增加幅度明显,1990 年以来都处在低值。

(2)不同区域沉积物中黑碳的分布随时间变化存在显著差异,可能是由于不同测定方法规定的黑碳操作方式和处理温度有差异,但在不同测定方法中,烟炱的分布相似。海州湾沉积物黑碳与渤海泥质区、南黄海泥质区相当,低于珠江口、东海泥质区,比青藏高原和瑞典湖泊高出 10 倍,但瑞典湖泊黑碳通量峰值出现时间早,反映了黑碳沉积与当地工业化水平和人类活动密切相关。可见,沉积物中黑碳分布差异与当地黑碳排放强度及时空分布密切相关,人类活动是影响黑碳沉积的主要因素。

(3)基于相关性分析、主成分分析和黑碳特征比值法(char/soot)结果分析,在 1950 年以前黑碳主要来源于生物质燃烧,1950 年以来主要来源是煤炭燃烧、工业源和交通源。海州湾沉积物黑碳来源有化石燃料燃烧(48.8%)(燃煤源,机动车尾气,船舶燃料燃烧),工业源(13.3%),生物质燃烧(11.7%)。化石燃料燃烧是生物质燃烧的 4.2 倍,人为(煤炭燃烧,工业排放,交通运输)贡献率(62.1%)超过了气候因素(51.2%)。

(4)海州湾近百年来沉积物黑碳来源从生物质燃烧逐步向煤炭、石油燃烧转变,主要和区域人口、工业生产总产值、能源消费量等因素有关,区域人类活动强度导致黑碳沉积记录出现差异。今后应大力实施煤炭消费减量替代和散煤综合治理,推广清洁高效燃煤锅炉,推行天然气、电力和可再生能源等替代低效和高污染煤炭的使用。

参考文献:

[1] 马占云, 任佳雪, 陈海涛, 等. IPCC 第一工作组评估报告分析及建议[J]. 环境科学研究, 2022, 35(11): 2550-2558.
MA Zhanyun, REN Jiaxue, CHEN Haitao, et al. Analysis and recommendations of IPCC Working Group I assessment report[J]. Research of Environmental Sciences,

2022, 35(11): 2550-2558.
[2] LEWIS S L, MASLIN M A. Defining the anthropocene[J]. Nature, 2015, 519(7542): 171-180.
[3] CRUTZEN P J. Geology of mankind[J]. Nature, 2002, 415(6867): 23.
[4] JIANG H, HAN Y M, GUO M L, et al. Sedimentary records of human activities in China over the past two millennia and implications for the Anthropocene: A review[J]. Science of the Total Environment, 2022, 851(6): 158149.
[5] PINO-CORTES E, DIAZ-ROBLES L A, CUBILLOS F, et al. The black carbon dispersion in the Southern Hemisphere and its transport and fate to Antarctica, an Anthropocene evidence for climate change policies[J]. Science of the Total Environment, 2021, 778: 146242.
[6] SWINDLES G T, WATSON E, TURNER T E, et al. Spheroidal carbonaceous particles are a defining stratigraphic marker for the Anthropocene[J]. Scientific Reports, 2015, 5(1): 10264.
[7] STEFFEN W, GRINEVALD J, CRUTZEN P, et al. The Anthropocene: conceptual and historical perspectives[J]. Philosophical Transactions of the Royal Society a-Mathematical Physical and Engineering Sciences, 2011, 369(1938): 842-867.
[8] WATERS C N, ZALASIEWICZ J, SUMMERHAYES C, et al. The anthropocene is functionally and stratigraphically distinct from the Holocene[J]. Science, 2016, 351(6269): 137-147.
[9] CHOW J C, WATSON J G, CHEN L W A, et al. Equivalence of elemental carbon by thermal/optical reflectance and transmittance with different temperature protocols[J]. Environmental Science & Technology, 2004, 38(16): 4414-4422.
[10] LIANG B Q, LEHMANN J, SOLOMON D, et al. Stability of biomass-derived black carbon in soils[J]. Geochimica et Cosmochimica Acta, 2008, 72(24): 6069-6078.
[11] KUHNBUSCH T A J. Black carbon and the carbon cycle[J]. Science, 1998, 280(5371): 1903-1904.
[12] SILLMANN J, STJERN C W, MYHRE G, et al. Extreme wet and dry conditions affected differently by greenhouse gases and aerosols[J]. NPJ Climate and Atmospheric Science, 2019, 2(1): 24.
[13] TIMONEN H, KARJALAINEN P, AALTO P, et al. Adaptation of black carbon footprint concept would accelerate mitigation of global warming[J]. Environmental Science & Technology, 2019, 53(21): 12153-12155.
[14] XU H R, REN Y A, ZHANG W X, et al. Updated global black carbon emissions from 1960 to 2017: Improvements, trends, and drivers[J]. Environmental Science & Technology, 2021, 55(12): 7869-7879.
[15] KANG S C, ZHANG Y L, QIAN Y, et al. A review of

- black carbon in snow and ice and its impact on the cryosphere[J]. *Earth-Science Reviews*, 2020, 210(11): 103346.
- [16] DAI M H, SU J Z, ZHAO Y Y, et al. Carbon fluxes in the coastal ocean: Synthesis, boundary processes, and future trends[J]. *Annual Review of Earth and Planetary Sciences*, 2022, 50: 593-626.
- [17] 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.
- [18] 黄亮, 张国森. 长江流域沉积物中黑碳分布及其与多环芳烃的相关性研究[J]. *地球与环境*, 2015, 43(2): 159-166. HUANG Liang, ZHANG Guosen. Distribution of black carbon in the sediments from the Yangtze River and their correlation with polycyclic aromatic hydrocarbons[J]. *Earth and Environment*, 2015, 43(2): 159-166.
- [19] 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.
- [20] CORNELISSEN G, GUSTAFSSON O, BUCHELI T D, et al. Extensive sorption of organic compounds to black carbon, coal, and kerogen in sediments and soils: mechanisms and consequences for distribution, bioaccumulation, and biodegradation[J]. *Environmental science & technology*, 2005, 39(18): 6881-6895.
- [21] WANG Y P, LI T G, ZHANG R, et al. Fingerprinting characterization of sedimentary PAHs and black carbon in the East China Sea using carbon and hydrogen isotopes[J]. *Environmental Pollution*, 2020, 267(16): 115415.
- [22] MORI Y, NISHIOKA J, FUJIO S, et al. Transport of dissolved black carbon from marginal sea sediments to the western North Pacific[J]. *Progress in Oceanography*, 2021, 193(23): 102552.
- [23] FENG N, YANG W F, ZHAO X F, et al. Semi-enclosed bays serve as hotspots for black carbon burial: A case study in Jiaozhou Bay, western Yellow Sea[J]. *Science of the Total Environment*, 2021, 797(5): 149100.
- [24] LI Y, LI H G, LI F C. Pollution in the urban soils of Lianyungang, China, evaluated using a pollution index, mobility of heavy metals, and enzymatic activities[J]. *Environmental Monitoring and Assessment*, 2017, 189(1): 1-13.
- [25] 陈斌林, 郭亚伟, 贺心然, 等. 连云港近岸海域环境演变与生态修复对策研究[J]. *海洋科学*, 2009, 33(6): 18-24. CHEN Binlin, GUO Yawei, HE Xinran, et al. Environment evolution and ecological remediation countermeasure research of Lianyungang coastal area[J]. *Marine Sciences*, 2009, 33(6): 18-24.
- [26] WANG X, LIU B L, ZHANG W S. Distribution and risk analysis of heavy metals in sediments from the Yangtze River Estuary, China[J]. *Environmental Science and Pollution Research International*, 2020, 27(10): 10802-10810.
- [27] KANG Y J, WANG X C, DAI M H, 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.
- [28] 杜吉净, 毛龙江, 谭志海, 等. 海州湾岩芯沉积物重金属污染评价和来源分析[J]. *海洋环境科学*, 2016, 35(6): 814-821. DU Jijing, MAO Longjiang, TAN Zhihai, et al. Pollution evaluation and source identification of heavy metals in sediments from core in Haizhou bay[J]. *Marine Environmental Science*, 2016, 35(6): 814-821.
- [29] HAN Y M, CAO J J, CHOW J C, et al. Evaluation of the thermal/optical reflectance method for discrimination between char-EC and soot-EC[J]. *Chemosphere*, 2007, 69(4): 569-574.
- [30] CAO J J, LEE S C, HO K F. Characteristics of carbonaceous aerosol in Pearl River Delta Region, China during 2001 winter period[J]. *Atmospheric Environment*, 2003, 37(11): 1451-1460.
- [31] HAN Y M, CAO J J, AN Z S, et al. Evaluation of the thermal/optical reflectance method for quantification of elemental carbon in sediments[J]. *Chemosphere*, 2007, 69(4): 526-533.
- [32] 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): 550-558. HAN Yongming, CAO Junji, JIN Zhangdong, et al. Comparison of char and soot variations in sediments from lakes Daihai and Taihu[J]. *Quaternary Sciences*, 2010, 30(3): 550-558.
- [33] DENG X Q, MAO L J, WU Y L, et al. Distribution and source of black carbon in coastal river sediments around Haizhou Bay, Eastern China: Implications for anthropogenic inputs[J]. *Environmental Science and Pollution Research*, 2023, 30(8): 21092-21103.
- [34] 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. JIANG Xiaohua, CHEN Yingjun, TANG Jianhui, et al. The distribution of black carbon in the surface sediments of coastal zone, Bohai Bay[J]. *Ecology and Environmental Sciences*, 2010, 19(7): 1617-1621.
- [35] XU W X, WANG F, LI J W, et al. Historical variation in black carbon deposition and sources to Northern China sediments[J]. *Chemosphere*, 2017, 172: 242-248.
- [36] FANG Y, CHEN Y J, LIN T, et al. Spatiotemporal trends of elemental carbon and char/soot ratios in five

- sediment cores from eastern China marginal seas: Indicators of anthropogenic activities and transport patterns[J]. *Environmental Science & Technology*, 2018, 52(17): 9704-9712.
- [37] 康延菊. 中国近海沉积物中黑碳与多环芳烃的研究[D]. 青岛: 中国科学院研究生院(中国科学院海洋研究所), 2008.
KANG Yanju. Study of black carbon and polycyclic aromatic hydrocarbons in sediments of the China's marginal seas[D]. Qingdao: Institute of Oceanology, Chinese Academy of Sciences, 2008.
- [38] SÁNCHEZ-GARCÍA L, CATO I, GUSTAFSSON O. The sequestration sink of soot black carbon in the Northern European Shelf sediments[J]. *Global Biogeochemical Cycles*, 2012, 26(1): 9913.
- [39] CONG Z, KANG S, GAO S, et al. Historical trends of atmospheric black carbon on Tibetan Plateau as reconstructed from a 150-Year lake sediment record[J]. *Environmental Science & Technology*, 2013, 47(6): 2579-2586.
- [40] GAO C Y, LIN Q X, ZHANG S Q, et al. Historical trends of atmospheric black carbon on Sanjiang Plain as reconstructed from a 150-year peat record[J]. *Scientific Reports*, 2014, 4(1): 5723.
- [41] 黄佳雯, 李姚蕊, 李静, 等. 2000—2013 年江苏省能源消费足迹计算与分析[J]. *安徽农业科学*, 2017, 45(26): 74-78.
HUANG Jiawen, LI Yaorui, LI Jing, et al. Calculation and analysis of the energy consumption footprint of Jiangsu Province during 2000-2013[J]. *Journal of Anhui Agricultural Sciences*, 2017, 45(26): 74-78.
- [42] 王文昊, 高抒, 徐杨佩云, 等. 江苏中部海岸潮滩沉积速率特征值的数值实验分析[J]. *南京大学学报(自然科学)*, 2014, 50(5): 656-665.
WANG Wenhao, GAO Shu, XU Yangpeiyun, et al. Numerical experiments for the characteristic deposition rates over the tidal flat, central Jiangsu coast[J]. *Journal of Nanjing University (Natural Sciences)*, 2014, 50(5): 656-665.
- [43] KEEGAN T J, FARAGO M E, THORNTON I, et al. Dispersion of As and selected heavy metals around a coal-burning power station in central Slovakia[J]. *Science of the Total Environment*, 2006, 358(1/3): 61-71.
- [44] BEDIA J, HERRERA S, GUTIERREZ J M, et al. Global patterns in the sensitivity of burned area to fire-weather: Implications for climate change[J]. *Agricultural and Forest Meteorology*, 2015, 214/215: 369-379.
- [45] KRAWCHUK M A, MORITZ M A, PARISIEN M-A, et al. Global pyrogeography: the current and future distribution of wildfire[J]. *PloS One*, 2009, 4(4): e5102.
- [46] 孟昆, 徐敏, 徐文健, 等. 海州湾北部沉积物重金属来源解析及污染评价[J]. *南京师大学报(自然科学版)*, 2018, 41(2): 99-106.
MENG Kun, XU Min, XU Wenjian, et al. Sources apportionment and pollution assessment of heavy metals in the sediments of the Northern Haizhou Bay in China[J]. *Journal of Nanjing Normal University (Natural Science Edition)*, 2018, 41(2): 99-106.
- [47] 唐国利, 丁一汇, 王绍武, 等. 中国近百年温度曲线的对比分析[J]. *气候变化研究进展*, 2009, 5(2): 71-78.
TANG Guoli, DING Yihui, WANG Shaowu, et al. Comparative analysis of the time series of surface air temperature over China for the Last 100 Years[J]. *Advances in Climate Change Research*, 2009, 5(2): 71-78.
- [48] HU C Y, HENDERSON G M, HUANG J H, et al. Quantification of holocene asian monsoon rainfall from spatially separated cave records[J]. *Earth and Planetary Science Letters*, 2008, 266(3/4): 221-232.
- [49] 江苏省统计局. 江苏省统计年鉴[M]. 北京: 中国统计出版社, 1950-2015.
Jiangsu Provincial Bureau of Statistics. Statistical Yearbook of Jiangsu Province[M]. Beijing: China Statistics Press, 1950-2015.
- [50] 占长林, 万的军, 张家泉, 等. 环境中黑碳来源解析方法研究进展[J]. *生态环境学报*, 2016, 25(9): 1575-1583.
ZHAN Changlin, WAN Dejun, ZHANG Jiaquan, et al. Source apportionment of black carbon in the environment: A review of methods[J]. *Ecology and Environmental Sciences*, 2016, 25(9): 1575-1583.
- [51] HAN Y M, CAO J J, CHOW J C, et al. Elemental carbon in urban soils and road dusts in Xi'an, China and its implication for air pollution[J]. *Atmospheric Environment*, 2009, 43(15): 2464-2470.
- [52] TIWARI S, LIU K, CHEN B. Spatial variability of sedimentary carbon in South Yellow Sea, China: impact of anthropogenic emission and long-range transportation[J]. *Environmental Science and Pollution Research International*, 2020, 27(19): 23812-23823.
- [53] 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.
- [54] 柳又春, 史慧敏. 江苏省近二百年干旱的基本特征[J]. *南京气象学院学报*, 1983(1): 83-94.
LIU Youchun, SHI Huimin. Basic features of droughts in Jiangsu Province during the past 200 years[J]. *Journal of Nanjing Institute of Meteorology*, 1983(1): 83-94.
- [55] DANIAU A L, HARRISON S P, BARTLEIN P J. Fire regimes during the Last Glacial[J]. *Quaternary Science*

- Reviews, 2009, 29(21/22): 2918-2930.
- [56] POLYAK V J, ASMEROM Y. Late holocene climate and cultural changes in the Southwestern United States[J]. Science, 2001, 294(5540): 148-151.
- [57] SCROXTON N, WALCZAK M, MARKOWSKA M, et al. Historical droughts in Southeast Australia recorded in a New South Wales stalagmite[J]. The Holocene, 2021, 31(4): 607-617.
- [58] 李玉, 管明雷, 俞阳, 等. Hg、As 在海州湾不同功能区沉积物中的污染特征及污染历史演变评估[J]. 海洋湖沼通报, 2017(3): 15-22.
- LI Yu, GUAN Minglei, YU Yang, et al. Pollution characteristics and assessment on the pollution historical evolution of Hg, As in sediments of functional zones in coastal Waters of Northern, Jiangsu[J]. Transactions of Oceanology and Limnology, 2017(3): 15-22.
- [59] 孙燕, 张秀丽, 韩桂荣, 等. 江苏南京极端天气事件及其与区域气候变暖的关系研究[J]. 安徽农业科学, 2009, 37(1): 279-282.
- SUN Yan, ZHANG Xiuli, HAN Guirong, et al. Extreme weather events of Nanjing in Jiangsu and its relationship with regional climate warming[J]. Journal of Anhui Agricultural Sciences, 2009, 37(1): 279-282.
- [60] HAN Y M, LEE S C, CAO J J, et al. Spatial distribution and seasonal variation of char-EC and soot-EC in the atmosphere over China[J]. Atmospheric Environment, 2009, 43(38): 6066-6073.
- [61] 凌盼盼, 王安东. 连云港市区燃煤情况调查研究[J]. 资源节约与环保, 2019(9): 139.
- LING Panpan, WANG Andong. Investigation and study of coal burning in Lianyungang urban area[J]. Resources Economization and Environmental Protection, 2019(9): 139.
- [62] 罗丽, 代海军. 我国《煤炭法》修改研究[J]. 清华法学, 2017, 11(3): 79-92.
- LUO Li, DAI Haijun. Study on the revision of China's "Coal Law"[J]. Tsinghua University Law Journal, 2017, 11(3): 79-92.
- [63] 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.
- FANG Yin, CHEN Yingjun, LIN Tian, et al. One hundred year sedimentary record of black carbon from mud area in BohaiSea, China[J]. Acta Oceanologica Sinica, 2014, 36(5): 98-106.
- [64] 李舒惠, 曹闪闪, 杨依, 等. 长三角地区 2000-2019 年黑碳排放核算及其不确定性[J]. 地球环境学报, 2023, 14(1): 86-97, 109.
- LI Shuhui, CAO Shanshan, YANG Yi, et al. Accounting and uncertainty analysis of black carbon emissions in the Yangtze River Delta from 2000 to 2019[J]. Journal of Earth Environment, 2023, 14(1): 86-97, 109.
- [65] WANG R, TAO S, WENTAO W T, et al. Black carbon emissions in China from 1949 to 2050[J]. Environmental Science & Technology, 2012, 46(14): 7595-7603.

Distribution characteristics and environmental significance of black carbon in sediments of Haizhou Bay over 100 years

MIAO Jihong¹, TAN Zhihai^{1, 2}, Mao Longjiang³, LEI Qiuqing¹, WANG Xuemei¹, YUAN Yubo¹, GAO Bo¹

(1. School of Environmental and Chemical Engineering, Xi'an Polytechnic University, Xian 710048, China; 2. State Key Laboratory of Loess and Quaternary Geology, Institute of Earth Environment, Chinese Academy of Sciences, Xi'an 710061, China; 3. School of Marine Science, Nanjing University of Information Science & Technology, Nanjing 210044, China)

Received: Jul. 5, 2023

Key words: black carbon; distribution characteristics; source resolution; human activities; energy structure; Haizhou Bay

Abstract: Black carbon in sediments has reflected changes in local biomass-burning characteristics for over a century. In this work, the progress of biomass burning in Haizhou Bay during the past 100 years was analyzed via independent measurement of sediment black carbon, char, and soot in sediment core samples using the thermal-optical reflectance (TOR) method. Furthermore, correlation analysis, principal component analysis, and the characteristic ratio approach were employed to discover the transformation of the region's energy structure over the past century and examine historical variations and potential sources of black carbon contents. The data demonstrated a remarkable vertical change in the mass fraction of sediment black carbon, char, and soot over the past 100 years, revealing range variations of 0.507–1.281, 0.395–1.080, and 0.112–0.389 mg·g⁻¹, respectively. The highest concentrations of black carbon (0.873–1.029 mg·g⁻¹) were recorded in the mid-late 1980s, whereas the lowest mass fraction (0.675–0.751 mg·g⁻¹) were reported in the 1920s and the middle of the 20th century. The peak black carbon flux in developed areas emerged earlier, reflecting the significant correlation between black carbon deposition, regional industrialization level, and human activities; for instance, the contents in China's eastern marginal sea area are 10 times higher than those in the Qinghai-Xizang Plateau and Swedish lakes. The results of the source analysis using the char/soot characteristic ratio method revealed that black carbon sources from fossil fuel combustion represented 48.8% of the total, which was 4.2 times more than sources from biomass burning. Moreover, the results of the correlation analysis, principal component analysis, and char/soot ratio indicated the following. The main source of black carbon was biomass combustion before 1950, and the percentages of coal combustion, industrial sources, and transportation sources increased after 1950. The population of the region and the value of its gross industrial output, energy consumption, and other factors influenced these findings, and human activities predominated. The findings of this study serve as a guide for effective comprehension of the local black carbon pollution issues and the development of imminent ecological and environmental management strategies in the Haizhou Bay region.

(本文编辑: 赵卫红)