

野火排放生成大气二次有机颗粒物研究领域获进展

作者：writer 来源：科学网

本文原地址：<https://www.iikx.com/news/progress/25684.html>

本文仅供学习交流之用，版权归原作者所有，请勿用于商业用途！

野火排放生成大气二次有机颗粒物研究领域获进展。清华大学环境学院大气污染与气候团队，联合中国科学院大气物理研究所，法国大气系统研究校际实验室，美国科罗拉多州立大学，西北太平洋国家实验室，加州大学戴维斯分校，加州大学伯克利分校，加州理工学院，以及卡内基梅隆大学的相关学者，在野火排放生成大气二次有机颗粒物研究领域取得进展。

研究成果以Formation of secondary organic aerosol from wildfire emissions enhanced by long-time ageing为题，于北京时间2024年1月9日18时在线发表于Nature Geoscience。

清华大学环境学院博士后何逸聪为论文第一作者，赵斌助理教授为论文通讯作者。

野火燃烧是地球环境与气候系统的一个重要组成部分，随着全球气温上升，其发生频次可能不断升高。除释放温室气体、加速气候变化外，燃烧排放烟气所含颗粒物也具有重要而复杂的气候与环境效应。一方面颗粒物能恶化空气质量，危害人体呼吸、血液循环系统，造成人群中过早死亡率升高；另一方面，颗粒物能通过直接反射、吸收太阳光，或者通过参与云形成过程改变云的光学性质，造成地球辐射热量收支的改变，从而影响气候变化趋势。有机气溶胶是野火颗粒物的主要成分，主导了其大气浓度和物理、化学性质；由于大气光化学作用，排放的大量有机气体亦可生成二次有机气溶胶（SOA），使有机气溶胶的浓度、性质在其数周的大气停留周期中不断发生变化。因此，阐明长时间氧化过程如何影响野火有机气溶胶的浓度、性质是量化其环境与气候影响的关键。本研究构建了基于野火排放详细气态前体物组分的长时间氧化模型，综合实验室及外场观测数据验证其对野火二次有机气溶胶的模拟能力，并预测在长时间氧化过程中野火二次有机气溶胶有极大的生成潜势，据此估测全球野火二次有机气溶胶生成量高于之前预期，表明野火的环境与气候影响可能超出目前认识程度。

野火排放SOA前体物组分复杂，通常包含数百上千种有机物，本研究首先针对前体物复杂组分，构建了分前体物物种的多级氧化模型（Precursor-Resolved 2D-VBS-MOSAIC），其主要特征为基于已知化学原理，具体考虑每一个前体物的第一级氧化过程，并将所有一级氧化产物按其前体物化学类别分类，通过分化学类别的2D-VBS（Two-Dimensional Volatility Basis Set）参数化方案考虑多级氧化过程，每个化学类别的最优化2D-VBS参数通过拟合各类别代表性前体物氧化实验结果得到。通过模拟野火排放的长时间氧化实验（图1），发现模型能够较好地复现出实验中总的SOA生成量与氧碳比随氧化时间的变化趋势，同时能较好地预测各个实验中最终的SOA生成量与氧碳比，表明模型能较好地模拟实验中的SOA生成过程。

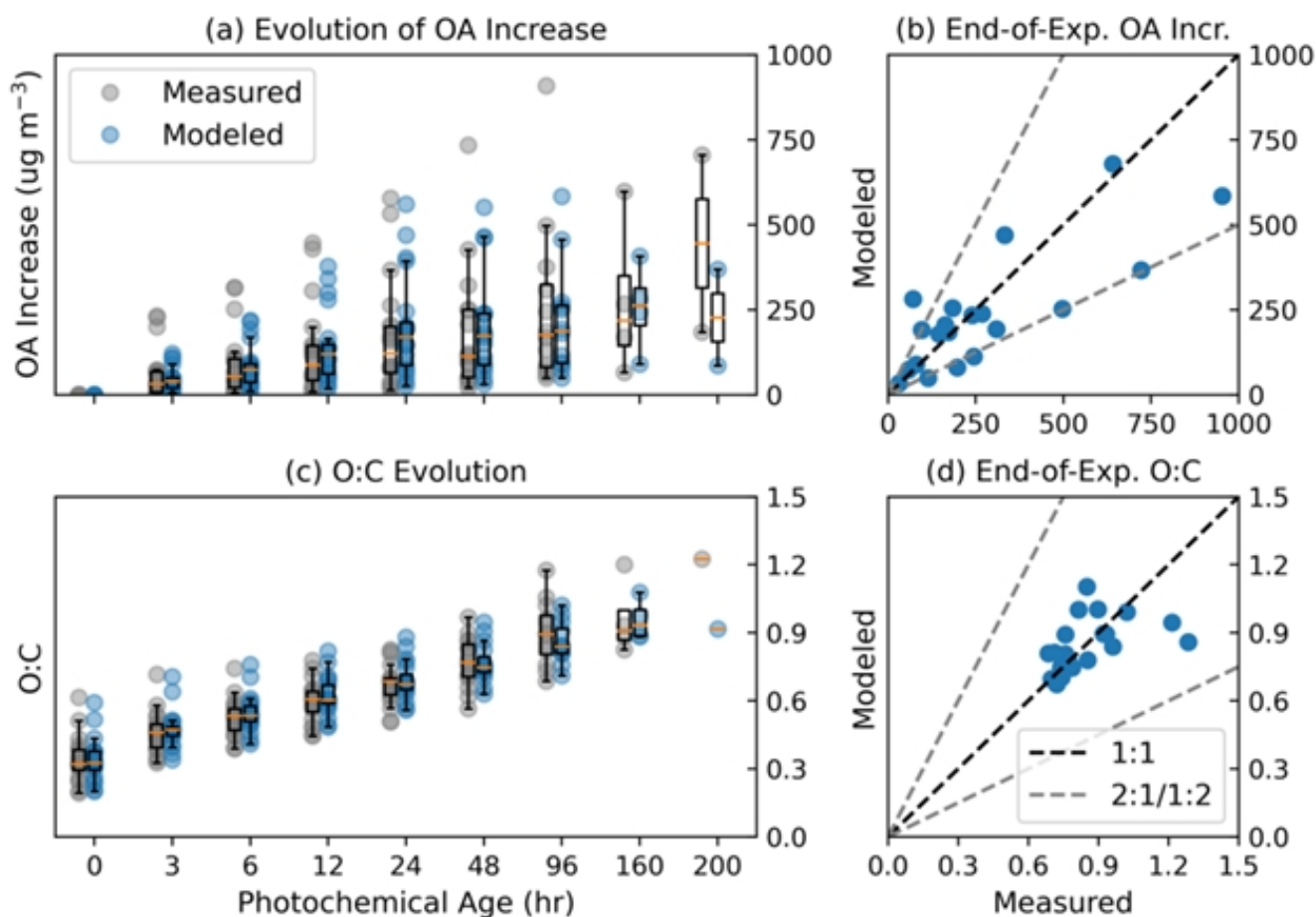


图1：模型预测与实验观测对比；（a）实验中OA质量浓度增长随氧化时间变化；（b）实验最终OA质量浓度增长；（c）实验中O:C随氧化时间变化；（d）实验最终O:C。

模型显示（图2），在不同的排放组分、氧化时间下，不同类别前体物对野火SOA的贡献也会有较大差异，表明对野火前体物采取分物种的模拟对于准确预测野火SOA的生成、性质与来源是必要的。同时，发现普遍情况下，杂环类、含氧芳香族类前体物对SOA的贡献最大；另外由一次有机气溶胶（POA）挥发出的其他中、低挥发性有机物对SOA也有较大的贡献，表明除气态前体物以外，POA的氧化转化也是SOA的重要来源之一，因此阐明SOA的生成需要考虑全挥发性范围的前体物。

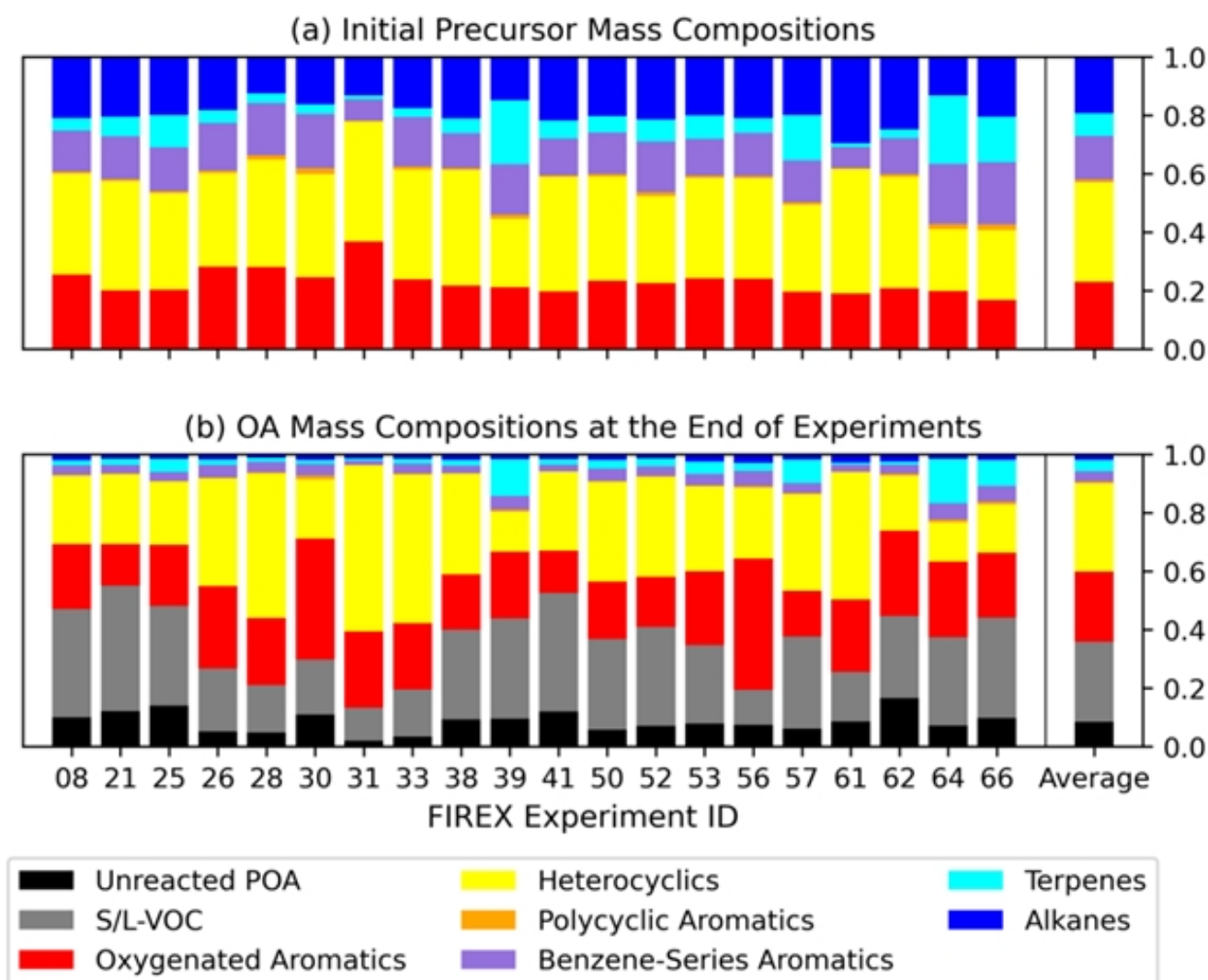


图2：实验初始前体物组分与模型预测最终对OA的贡献；（a）前体物组分；（b）各前体物类别对OA的贡献。

本研究进一步将模型预测野火SOA生成结果与外场航测数据对比，说明模型预测的有效性。在此之前，外场与实验室观测SOA生成一直存在系统性的差异，导致对野火SOA生成能力理解的不确定性。具体来说，实验室中通常观测到大量野火SOA生成，而外场观测表明野火SOA生成能力有限。通过在模型中考虑外场烟羽稀释、排放组分差异、航测距排放原点距离限制等因素，本研究表明实验室与外场的野火观测数据可以由一致的模型氧化机制解释（图3），表明实验室与外场的野火SOA生成过程并无根本差异，从而基于实验室的氧化模型可以应用于大气野火SOA生成预测。

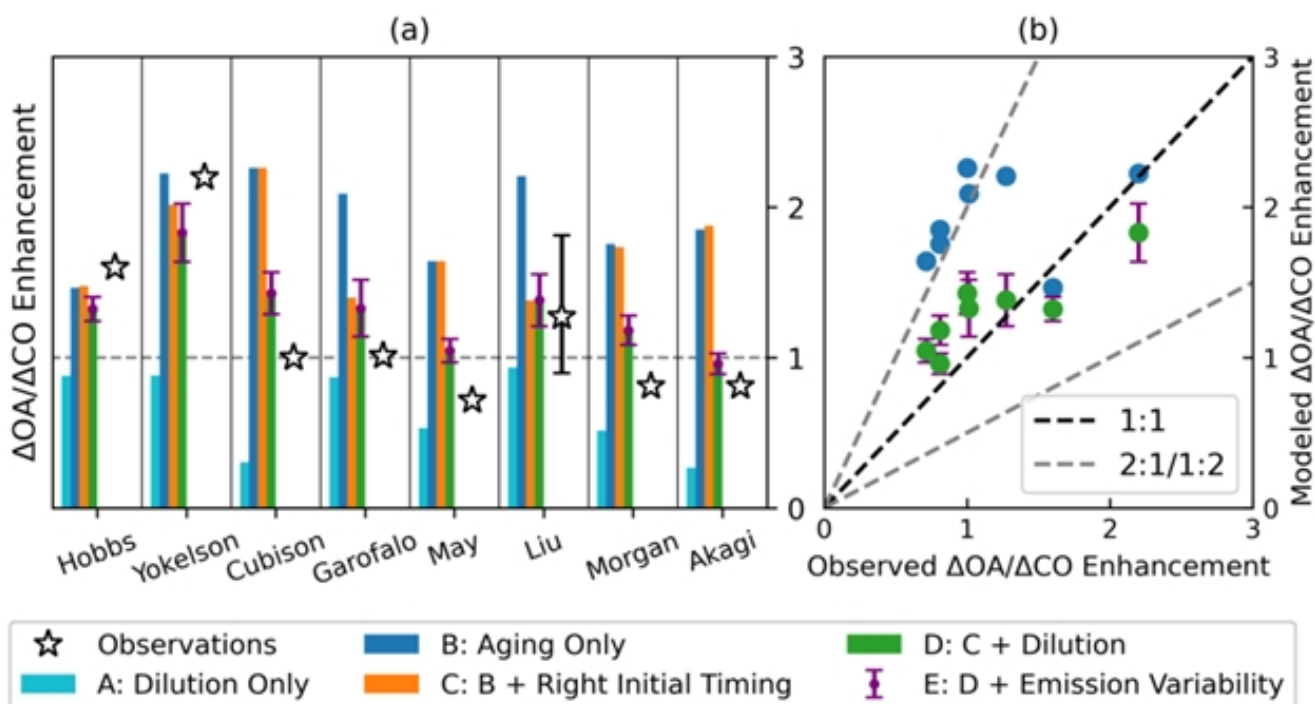


图3：模拟外场航测野火SOA生成；（a）不同控制条件假设下模型预测野火SOA生成与观测对比；（b）只考虑氧化和真实条件假设下模型与观测的对比。

最后，本研究基于建立的氧化模型预测了在长时间演化下大气野火SOA的生成趋势变化。为了更好地代表真实大气条件，模型考虑了野火排放源谱、烟羽稀释速率、大气氧化剂浓度等因素的可能变化范围，并采用蒙特卡洛方式进行随机采样，进行大量随机条件下的模拟并根据平均结果得出模型预测结果和不确定性范围。模型结果显示（图4），在200小时的大气等效氧化时间下，原始排放的野火OA大气存量可以由于SOA生成增大3倍左右，同时达到极高的氧化程度（氧碳比为1左右），其中杂环类、含氧芳香族类、中低挥发性有机物对SOA的贡献最大，且在不同的氧化时间下前体物类别的贡献比例有较大差别。基于模型预测，本研究估算全球野火SOA生成速率为139 Tg 每年左右，高于以往研究的估计。以往的研究或是未考虑野火SOA的长时间氧化生成过程，或是对其长时间氧化过程采取简化而缺乏约束的模拟方法。本研究结果表明，野火SOA的环境与气候影响可能明显超出以往研究的估计。

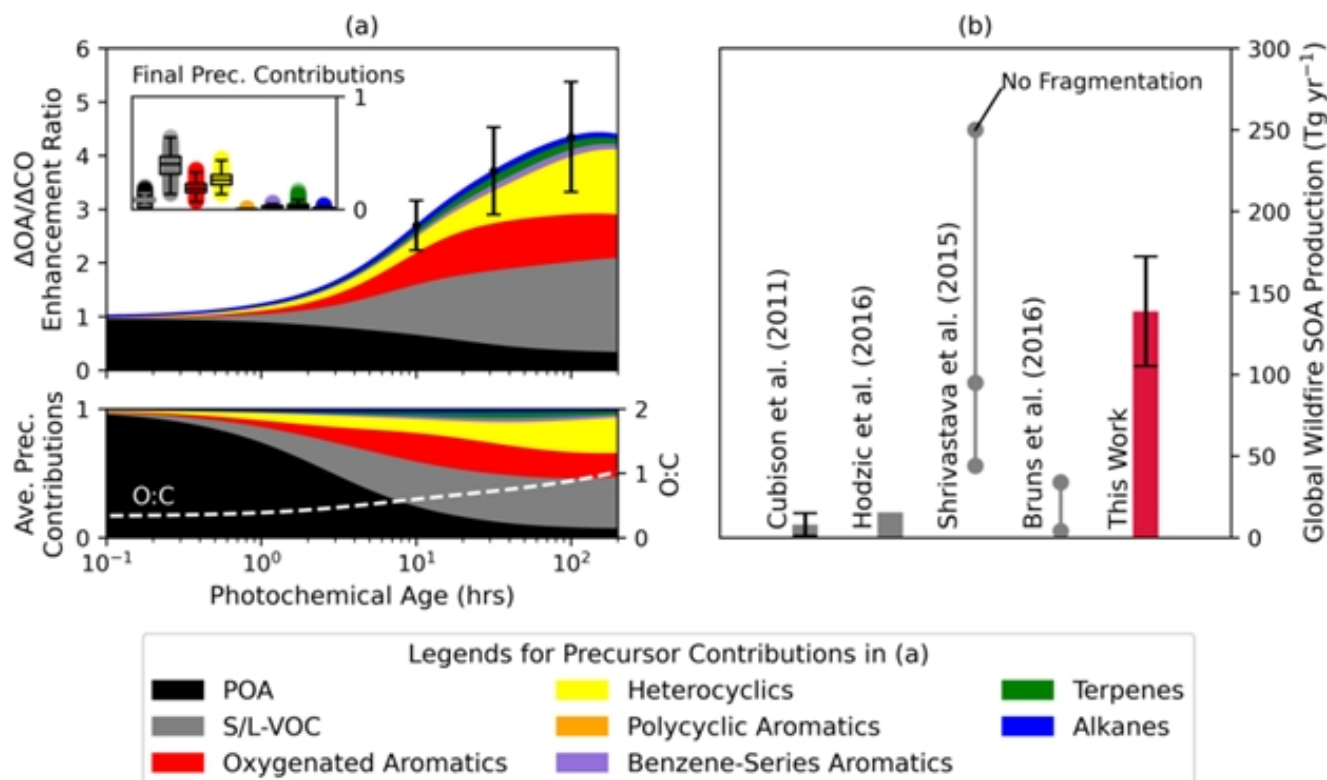


图4：预测全球野火SOA生成；（a）蒙特卡洛模拟结果，包括SOA生成与氧碳比变化趋势与各类前体物贡献；（b）估算全球野火SOA生成结果与之前研究的对比。

野火的长时间氧化SOA生成是其环境与气候影响预测中重要的不确定性环节，本研究表明了野火SOA在长时间氧化下有较大生成潜势，占全球SOA生成比重的至少30%，与来自于人为排放源的SOA有相当的重要性。同时，野火SOA在长时间尺度下的生成有助于其向更大范围扩散，从而影响更大范围内的空气质量与人体健康。长时间氧化下野火SOA极高的氧化程度表明，其作为云凝结核的能力可能显著增强，进而影响云的辐射效应。未来的研究将需要在三维空气质量、气候模型中考虑野火SOA的长时间氧化过程，并更准确地评估其对不同国家地区、在不同野火排放趋势下的影响。

清华大学王书肖教授提供了关键性指导。共同作者包括清华大学郝吉明院士，清华大学尹德嘉，交通运输部规划院常兴，中国石化工程建设公司冯伯阳，法国大气系统研究校际实验室（Laboratoire Interuniversitaire des Systèmes Atmosphériques）Bernard Aumont，Richard Valorso，Marie Camredon，中国科学院大气物理研究所蒋哲，美国科罗拉多州立大学Abraham Dearden，Shantanu Jathar，西北太平洋国家实验室Manish Shrivastava，加州大学戴维斯分校Christopher Cappa，加州大学伯克利分校Lindsay Yee，加州理工学院John Seinfeld，以及卡内基梅隆大学Neil Donahue。

本研究得到了国家自然科学基金委大气霾化学基础科学中心项目（22188102）和三星先进技术研究院的支持。（来源：科学网）

相关论文信息：<https://doi.org/10.1038/s41561-023-01355-4>

作者：赵斌等 来源：《自然—地球科学》

更多 科学进展 请访问 <https://www.iikx.com/news/progress/>

本文版权归原作者所有，请勿用于商业用途，[爱科学iikx.com](https://www.iikx.com)转发