

北京清洁区大气颗粒物污染特征及长期变化趋势

李令军¹, 王英^{2*}, 李金香¹

(1. 北京市环境保护监测中心, 北京 100048; 2. 中央民族大学生命与环境科学学院, 北京 100081)

摘要:清洁对照区表征了区域环境的影响, 是全面评价城市大气环境质量变化的基础. 本研究分析了北京清洁区定陵不同粒径颗粒物质量的历史监测数据, 包括 1980~2009 年大气降尘、1991~2009 年总悬浮颗粒物(TSP)、2000~2009 年可吸入颗粒物(PM₁₀). 结果表明, 北京清洁区大气颗粒物总体呈下降趋势, 年际短期变化受沙尘天气影响较大. 30 年来降尘量明显下降, 主要缘于北京及周边环境保护治理和生态环境的改善; 叠加沙尘天气的影响降尘量呈现 5~6 a 的波动周期. TSP 和 PM₁₀ 浓度起伏较大, 但整体呈下降趋势. TSP 浓度 1990 年代中后期较稳定, 而 2000 年以来受沙尘影响有较大起伏. TSP 中 Pb 和苯并(a)芘比例近 20 年来总体呈上升趋势. 说明定陵大气颗粒物受自然源影响逐渐减弱, 而受区域城市人为源影响有所增加. 分析发现颗粒物粒径越大, 季节变化越显著, 局地特征越明显; 反之, 区域特征显著.

关键词:北京; 降尘; 总悬浮颗粒物; PM₁₀; 污染

中图分类号: X513 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2011)02-0319-05

Study on Atmospheric Particles and Their Long-term Trend in Beijing Cleaning Area

LI Ling-jun¹, WANG Ying², LI Jin-xiang¹

(1. Beijing Municipal Environmental Monitoring Center, Beijing 100048, China; 2. College of Life and Environmental Sciences, Central University for Nationalities, Beijing 100081, China)

Abstract: Observational data in clean area provides important references for evaluating environmental impact both from natural and anthropogenic sources. Atmospheric particulate matter of different size were closely examined using dustfall data during 1980-2009, TSP data during 1991-2009 and PM₁₀ data since 2000 at Dingling station (DL), which was located in the clean area of Beijing. It was shown that dustfall amount at DL was on decrease in the last 30 years, by reasons of anthropogenic emission control and ecological environment improvement; meanwhile there was a 5-6 years' cycle of variation in yearly dustfall amount partly caused by dust storms. Similarly TSP and PM₁₀ concentrations changed greatly but had a decreasing trend since 2000. Furthermore, the ratios of Pb and BaP in TSP at DL, namely Pb/TSP and BaP/TSP, were analyzed for anthropogenic influence. It was proved that the ratios were increasing and there was stronger influence of regional pollutant transport from urban areas. Lastly, it was also found that the coarser atmospheric particles were, the stronger their seasonal fluctuations in mass were, which were mainly affected by local sources rather than regional, and vice versa.

Key words: Beijing; dustfall; TSP; PM₁₀; pollution

城市区域大气污染以本地排放为主, 更多地反映了局地特征; 而城市周边的清洁区乃至人迹罕至的边远地区则主要受区域大气污染扩散和外来输送影响, 其空气质量反映了区域乃至更大范围的大气污染整体特征^[1-3]. 清洁区大气污染表征了区域环境的影响, 是全面评价城市大气环境质量变化的基础. 目前大气污染研究多集中在人类活动频繁的城市区域, 而对城市周边清洁区的大气污染变化规律分析相对较少. 统计数据显示北京主要大气污染物为颗粒物 (<http://www.bjepb.gov.cn/air2008>). 有关北京大气颗粒物污染研究较多^[4-7], 但时间序列有限, 缺乏对其长期变化趋势了解.

本研究将分析北京大气环境背景点定陵站 1980~2009 年大气降尘, 1991~2009 年 TSP 与所含

Pb、BaP, 以及 2000 年以来 PM₁₀ 和 2009 年 PM_{2.5} 等颗粒物污染的时间序列, 探讨不同粒径大气颗粒物的污染特征及变化趋势. 此外, 通过对比分析定陵与密云水库等不同区域大气颗粒物污染特征的异同, 研究北京清洁区大气颗粒物污染分布、变化特征及其污染来源, 特别是城市污染排放对周边区域大气环境的影响等.

1 监测站点及检测项目

定陵站(DL)是北京大气环境背景监测点, 在市

收稿日期: 2010-03-08; 修订日期: 2010-06-03

基金项目: 国家“985 工程”项目(CUN985-3-3); 高等学校学科创新引智计划项目(B08044)

作者简介: 李令军(1976~), 男, 硕士, 高级工程师, 主要研究方向为大气环境监测, E-mail: lilj2000@126.com

* 通讯联系人, E-mail: wy1972@126.com

区以北 50 km, 周边无显著人为大气污染源. 密云水库站 (MR) 位于市区东北 90 km, 周边基本为水域所包围, 由于深处库区, 局地污染源可完全忽略, 大气污染来自周边影响和区域输送. 市区大气颗粒物浓度取北京城八区监测站点相应监测数据并以其算术平均作为市区大气颗粒物浓度水平.

监测项目包括降尘、TSP、PM₁₀ 和 PM_{2.5}, 以及 TSP 中 Pb 和 BaP. 数据来自北京市环境保护监测中心, 全部按照相关技术规范进行监测. 具体检测方法如下: 降尘检测^[8]与 TSP 检测^[9]都采用重量法; PM₁₀ 和 PM_{2.5} 检测采用 TEOM 微振荡天平法, 可获取实时在线数据^[10]; 分别采用火焰原子吸收光度法和高效液相色谱法测定 TSP 中 Pb^[11] 和 BaP^[12].

2 结果与分析

2.1 定陵降尘量年际变化

大气降尘是指自然降落到地面的大气颗粒物, 主要靠风力搬运, 以地壳源为主. 粗颗粒是其主要组成部分, 正常情况下北京降尘粒径 20 μm 处有一众数^[13], 沙尘季节大气颗粒物粒径更粗.

图 1 显示 1980 ~ 2009 年期间定陵降尘量呈下降趋势, 期间多有起伏. 80 年代定陵降尘量变化较大: 前半期以下降为主, 后半期又明显上升, 至 1987 年达历史记录最高值 154 t·km⁻². 1987 年以来定陵降尘量基本呈下降趋势, 但 90 年代中后期下降趋势已不显著, 并维持在较低水平. 2000 年以后定陵降尘量年际变化又较频繁, 初期显著升高, 2001 ~ 2002 年形成明显峰值, 2003 年则降至历史纪录最低值, 其后个别年份 (2006 年降尘量为 1991 年以来最大值) 除外基本维持历史纪录最低时段, 但略呈升高趋势. 定陵降尘量 5 a 滑动均值 80 年代末至 90 年

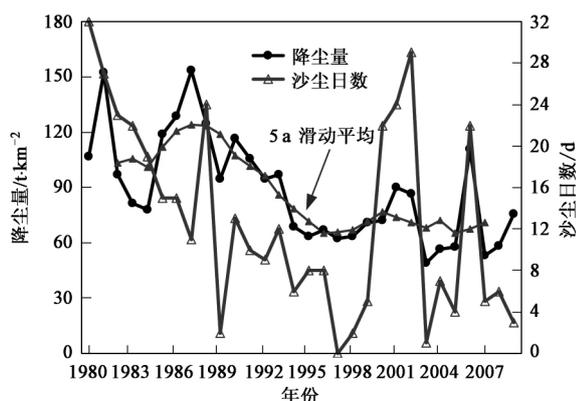


图 1 1980 ~ 2009 年定陵降尘及北京沙尘日数年际变化

Fig. 1 Dust fall amount and sand-dusts number, 1980 to 2009

代中期呈下降趋势, 90 年代中期以来变化较为平缓 (见图 1).

近 30 年来, 在总体下降趋势下, 定陵降尘量还存在 5 ~ 6 a 的变化周期, 降尘量高峰年有 1981、1987、1993、2001 ~ 2002 和 2006 年等; 低谷年有 1984、1989、1995 ~ 1997、2003 ~ 2005 和 2007 ~ 2008 年. 从定陵降尘量的高峰、低谷年的分布看, 与沙尘天气变化规律较为一致^[14], 沙尘天气频发年份有 1980 ~ 1981、1988、2000 ~ 2002 和 2006 年, 弱少年份有 1989、1997、2003 ~ 2005 以及 2007 年等. 降尘量高峰年对应于北京沙尘天气频繁期, 低谷年对应于北京沙尘弱少期. 但不同类型沙尘天气对降尘的影响有所差异. 统计 1980 ~ 2009 年定陵降尘量与北京沙尘暴、扬沙、浮尘的相关关系发现: 定陵降尘量与扬沙的相关关系最好 (与三者的相关系数分别为: 0.17、0.55 和 0.25). 局地扬沙跟周边地表覆盖状况关系密切, 较好的植被覆盖有利于局地扬沙的减弱, 降尘量的降低.

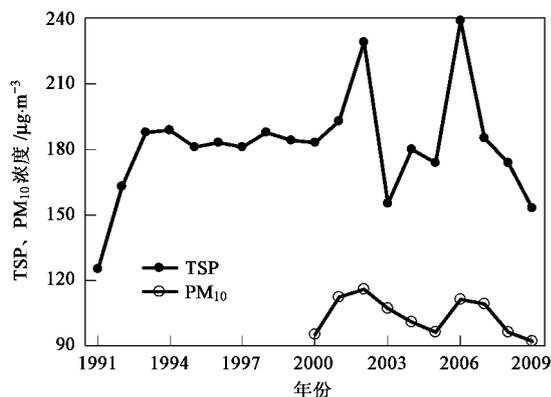
研究发现: 中国森林面积 1980 ~ 2000 年增长了 22.6%^[15], 京津冀地区林地面积也显著增加^[16]. 定陵降尘量总体下降趋势与周边生态环境逐步改善的趋势相吻合. 近 30 年来北京清洁区降尘量下降应主要得益于北京及周边生态环境的改善; 期间叠加沙尘天气影响, 形成大约 5 ~ 6 a 的变化周期.

2.2 定陵 TSP 和 PM₁₀ 年际变化

图 2 为定陵 1991 ~ 2009 年 TSP, 以及 2000 年以来 PM₁₀ 浓度年际变化. 从图 2 中可看出 90 年代初期定陵 TSP 浓度迅速升高; 1993 ~ 2000 年定陵 TSP 浓度变化较为平缓, 稳定在 181 ~ 189 μg·m⁻³ 之间. 2000 年以来 TSP 和 PM₁₀ 浓度起伏较大, 但整体呈下降趋势. 受沙尘天气增多影响, 2000 ~ 2002 年 TSP 和 PM₁₀ 浓度都有所升高; 随沙尘天气的减弱 2003 ~ 2005 年 TSP 和 PM₁₀ 浓度明显回落, 沙尘频繁的 2006 年 TSP 和 PM₁₀ 浓度再度升高. 2006 年以来 TSP 和 PM₁₀ 浓度逐渐下降.

粗颗粒受沙尘影响更明显, PM₁₀ 与 TSP 相比质量浓度无论升高还是下降都相对平缓, 两者质量浓度比值 (PM₁₀/TSP) 随沙尘的增多而降低, 随沙尘的减少而升高. 沙尘天气频繁的 2002 年与 2006 年 PM₁₀/TSP 处于谷值, 而沙尘天气影响最弱的 2003 年 PM₁₀/TSP 为有数据记录以来的最大值. 2000 ~ 2009 年定陵 PM₁₀/TSP 介于 46% ~ 69% 之间, 平均为 56%, 因时间较短, 看不出明显的变化趋势.

2000 ~ 2009 年定陵 PM₁₀ 质量浓度平均为 104

图2 定陵 TSP 与 PM₁₀ 浓度年际变化Fig. 2 Yealy change of TSP and PM₁₀ concentration at DL

$\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, 超过国家二级标准^[17], 2009 年北京空气质量为历史最好年份, 定陵 PM₁₀ 质量浓度也仅低于国家二级标准 $8\ \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, 北京大气污染治理工作任重道远。

不同污染物及其组分来源差异较大, 依据颗粒物中各组分的差异可判定污染来源^[18-20]. 大气颗粒物中 Pb 主要来源于煤炭和含 Pb 汽油的使用以及有色冶炼、涂装等行业排放^[21], BaP 则主要来自化石燃料等的不完全燃烧^[22], 两者都以城市人为源贡献为主. 因此可以通过大气颗粒物中 Pb、BaP 的浓度变化反映城市人为源排放的影响。

图 3 为 1991 ~ 2009 年定陵 TSP 中 Pb 和 BaP 比例的年际变化. 从图 3 可看出, 1991 ~ 2009 年, 定陵 TSP 中 Pb、BaP 比例变化规律较为一致, 整体呈上升趋势, 期间多有变化. 90 年代初期 Pb 和 BaP 比例以下降为主, 1995 年 Pb 比例降至有记录来的最低值, BaP 比例也降至极低水平; Pb 和 BaP 比例 90 年代中期至 21 世纪初明显上升, 2004 ~ 2009 年起伏较大, 但仍以上升为主。

20 世纪末至 21 世纪初我国产业结构发生了显著变化. 1980 年代中期至 1990 年代初期北京乃至全国第三产业比例迅速上升, 第二产业比例则变化不大, 为解决工业比例失调问题, 重工业的发展受到明显抑制, 期间定陵 TSP 浓度虽在升高, 但 Pb 和 BaP 比例以下降为主. 1990 年代中期至 2000 年代中期是我国重化工业主导阶段^[23], 京津冀地区作为我国重要经济区, 也经历了大致的产业发展过程, 河北已成为我国重要的重化工基地, 能源消费量居全国第二位^[24]. 此外, 北京城市建设规模越来越大, 污染排放逐年增加. 与此相对应, 1995 ~

2004 年定陵 TSP 中 Pb 和 BaP 比例出现了明显的升高过程, 仅在沙尘活跃的 2000 年代初期 Pb 和 BaP 比例略有回落, 之后升高, 2003 年达到较高水平. 2006 年沙尘天气的再次活跃使 Pb 和 BaP 比例降至较低水平, 而 2007 年又明显升高. 2008 年全球性的经济危机以及奥运大气污染控制措施极大降低了北京及周边人为污染源的贡献, Pb 和 BaP 比例再次回落. 之后随着经济的逐步复苏, 2009 年 Pb 和 BaP 比例再度升高。

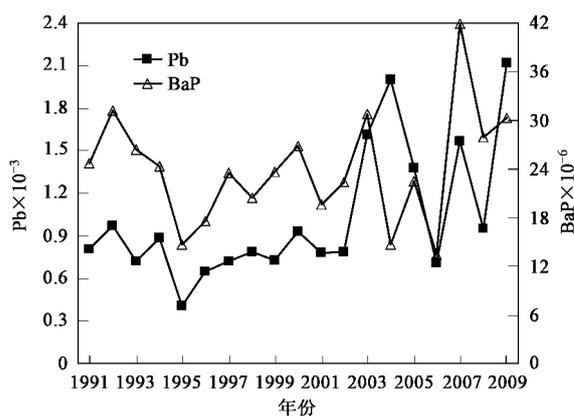


图3 1991 ~ 2009 年定陵 TSP 中 Pb 与 BaP 所占比例

Fig. 3 Ratios of Pb and BaP in TSP at DL, 1991 to 2009

综上所述, 随着北京城市规模日益扩大, 周边大气污染排放的逐渐增加, 定陵 TSP 中 Pb、BaP 比例呈增加趋势. 此外 Pb、BaP 比例的短期变化受沙尘天气年际变化影响明显, Pb、BaP 比例在沙尘活跃期降低, 沙尘弱少期又有所增加。

2.3 定陵大气颗粒季节变化

图 4 为北京定陵 TSP 和 PM₁₀ 浓度以及降尘量月变化, 为消除年际变化影响, 取 2006 ~ 2009 年均值. 从图 4 可看出, TSP、PM₁₀ 浓度以及降尘量季节变化较为一致, 都是春季最高, 冬季次高, 夏末秋初最低. 春季北京沙尘天气频繁, 地表扬尘贡献较大, 大气颗粒物污染最严重; 冬季为北京采暖季节, 燃煤量大幅度增加, 颗粒物排放显著, 大气颗粒物污染次之; 夏末秋初北京地表覆盖最好, 降水集中, 大气颗粒物污染最轻. TSP、PM₁₀ 和降尘三者中, PM₁₀ 浓度季节变化相对平缓, 而降尘量季节变化幅度较大. TSP、PM₁₀ 浓度以及降尘量最大月份与最小月份比值分别为 2.4、1.9 和 7.3. 颗粒物粒径越大季节变化越显著。

2.4 清洁区大气颗粒物空间特征探讨

不同区域大气颗粒物相关性的强弱可以反映其

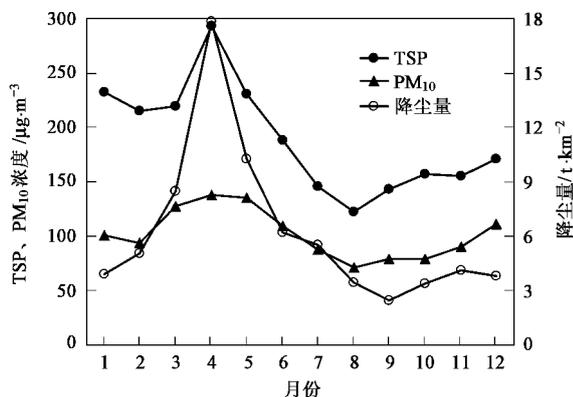


图4 定陵 PM₁₀ 浓度与降尘量月际变化 (2006 ~ 2009 平均)

Fig. 4 Monthly change of PM₁₀ concentration and dust fall amount at DL

空间分布特征,并能够反映污染来源的异同.为此统计了定陵与密云水库 2001 ~ 2009 年逐月降尘量相关关系以及 2009 年逐日 PM₁₀ 浓度相关关系和 PM_{2.5} 浓度相关关系,两站降尘量、PM₁₀ 浓度以及 PM_{2.5} 浓度散点图具体见图 5. 统计结果显示:两站降尘量相关系数为 0.51 ($p < 0.01$), PM₁₀ 浓度相关系数为 0.80 ($p < 0.01$), 而 PM_{2.5} 浓度相关系数高达 0.91. 此外 2009 年逐日 PM₁₀ 浓度定陵、密云水库与市区相关系数达 0.86 和 0.77 ($p < 0.01$). 这说明定陵与密云水库乃至北京全市域 PM₁₀ 来源较为一致,而降尘来源差异相对较大.

一般说来,颗粒物在大气中的传输距离和停留时间悬殊较大,粗颗粒很快降落,传输距离有限,其浓度主要反映了局地排放特征;细颗粒漂浮时间较长,甚至可以在全球范围内传输^[25],区域特征明显.颗粒粒径越小,区域特征也越显著.降尘主要来源于地壳源贡献,地壳源的粗颗粒传输距离有限,局地污染特征明显,区域差异较大. PM₁₀ 传输距离较远,在大气中混合较均匀,区域特征显著.不同粒径颗粒物来源虽没有严格界限,但各污染源排放都有相对集中的粒径分布范围:地壳源颗粒物粒径较粗,而城市源粒径较细特别是城市源二次颗粒物以细粒子为主.因此,随着粒径的减小,颗粒物中城市源贡献比例明显升高,而地壳源比例则相对降低.城市源的细颗粒扩散范围较大,可以推断:随着粒径的减小,区域污染特征也将越显著.

3 结论

(1) 1980 年以来定陵降尘量以下降为主,主要得益于北京及周边生态环境的改善;期间叠加沙尘

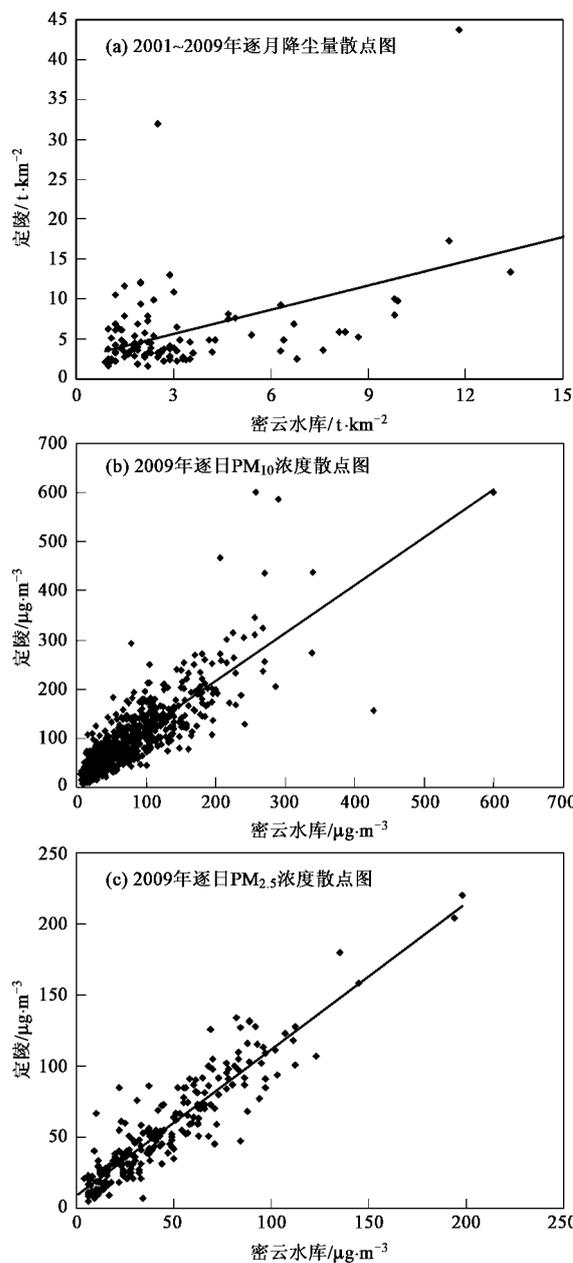


图5 北京定陵与密云水库降尘量及 PM₁₀、PM_{2.5} 散点图

Fig. 5 Scatter plots of dust fall amount, PM₁₀ and PM_{2.5} concentration between DL and MY

天气影响,形成大约 5 ~ 6 a 的变化周期.

(2) 定陵 TSP 浓度 90 年代初期迅速升高,中后期稳定在 181 ~ 189 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 之间;2000 年以来受沙尘影响,TSP 和 PM₁₀ 浓度起伏较大,但整体呈下降趋势.受工业结构调整影响,90 年代初期定陵 TSP 中 Pb、BaP 比例有所下降,中后期又明显升高;2000 年以来 Pb、BaP 比例继续升高,但沙尘天气的显著变化造成 2000 ~ 2007 年较大起伏;2008 年全球性的经济危机和奥运环境保障措施的実施降低了人为

源的贡献,TSP 中 Pb、BaP 比例明显下降,2009 年又有所反弹。

(3)近年来定陵大气颗粒物污染的好转和 TSP 中 Pb、BaP 比例上升趋势,说明定陵大气颗粒物受自然源影响在减弱,而受城市人为源影响逐渐加强。

(4)大气颗粒物粒径越大,季节变化越显著,局地特征越明显;反之,区域性特征显著。北京清洁区降尘以局地源贡献为主,PM₁₀区域性特征较为明显。

致谢:时少英高级工程师帮助获取了近年沙尘天气统计数据,在此表示感谢。

参考文献:

- [1] 董金泉,杨绍晋. 华北清洁地区气溶胶特征及其来源研究 [J]. 环境化学,1998,17 (1):38-44.
- [2] 李令军. 基于 MOPITT 数据的北京奥运前后 CO 监测分析 [J]. 大气与环境光学学报, 2009,4(4): 274-282.
- [3] Liu L, Zhou L, Zhang X, *et al.* The characteristics of atmospheric CO₂ concentration variation of four national background stations in China [J]. Science in China Series D-Earth Sciences, 2009, 52(11):1857-1863.
- [4] Zhang W J, Sun Y L, Zhuang G S, *et al.* Characteristics and seasonal variations of PM_{2.5}, PM₁₀, and TSP aerosol in Beijing [J]. Biomedical and Environmental Sciences, 2006, 19: 461-468.
- [5] Gros V, Sciare J, Yu T. Air-quality measurements in megacities: Focus on gaseous organic and particulate pollutants and comparison between two contrasted cities, Paris and Beijing [J]. Comptes Rendus Geosciences, 2007, 339(11-12): 764-774.
- [6] Zhang R J, Ho K F, Cao J J, *et al.* Organic carbon and elemental carbon associated with PM₁₀ in Beijing during spring time [J]. Journal of Hazardous Materials, 2009, 172:970-977.
- [7] Takegawa N, Miyakawa T, Kuwata M, *et al.* Variability of submicron aerosol observed at a rural site in Beijing in the summer of 2006 [J]. Journal of Geophysical Research, 2009, 114:1029-1049
- [8] GB/T 15265-1994,环境空气降尘的测定[S].
- [9] GB/T 15432-1995,环境空气总悬浮颗粒物的测定[S].
- [10] 国家环境保护总局. 空气和废气监测分析方法[M]. (第四版). 北京: 中国环境科学出版社,2003. 201.
- [11] GB/T15264-1994,火焰原子吸收分光光度法[S].
- [12] GB/T 15439-1995,环境空气苯并[a]芘的测定高效液相色谱法[S].
- [13] 王赞红、夏正楷. 北京 2002 年 3 月 20-21 日沙尘天气过程的降尘量与降尘粒度特征 [J]. 第四纪研究,2004, 24(1):95-99.
- [14] 尹晓惠,时少英,张明英,等. 北京沙尘天气的变化特征及其沙尘源地分析[J]. 高原气象, 2007,26(5): 1039-1044.
- [15] 方精云,郭兆迪,朴世龙,等. 1981~2000 年中国陆地植被碳汇的估算[J]. 中国科学 D 辑:地球科学,2007, 37(6): 804-812.
- [16] 葛全胜,戴君虎,何凡能,等. 过去 300 年中国土地利用、土地覆被变化与碳循环研究[J]. 中国科学 D 辑:地球科学,2008, 38(2):197-210.
- [17] GB 3095-1996,环境空气质量标准[S].
- [18] 王英,金军,李令军,等. 北京市基于 PM₁₀/CO 关系的可吸入颗粒物自然源解析[J]. 环境科学学报, 2006, 26(7): 1203-1208.
- [19] Li L, Wang Y, Zhang Q, *et al.* Wheat straw burning and its associated impacts on Beijing air quality [J]. Science in China Series D-Earth Sciences, 2008, 51(3): 403-414.
- [20] 贺克斌,贾英韬,马永亮,等. 北京大气颗粒物污染的区域性本质[J]. 环境科学学报, 2009, 29(3):482-487.
- [21] 李玉武,刘咸德,李冰,等. 绝对主因子分析法解析北京大气颗粒物中铅来源[J]. 环境科学,2008, 29(12):3310-3319.
- [22] 段凤魁,贺克斌,马永亮. 北京 PM_{2.5} 中多环芳烃的污染特征及来源研究[J]. 环境科学学报, 2009, 29(7):1363-1371.
- [23] 邓伟根. 20 世纪的中国产业转型:经验与理论思考[J]. 学术研究, 2006, 8:17-24.
- [24] 张晓平. 中国能源消费强度的区域差异及影响因素分析[J]. 资源科学,2008, 30(6):883-889.
- [25] Prospero J M, Olmez I, Ames M. Al and Fe in PM_{2.5} and PM₁₀ suspended particles in south-central Florida: the impact of the long range transport of African mineral dust [J]. Water, Air, and Soil Pollution, 2001, 125:291-317.