

DOI:10.7524/j.issn.0254-6108.2020121702

谢文晶, 徐文帅, 冼爱丹. 烟花爆竹燃放对三亚市空气质量的影响分析[J]. 环境化学, 2021, 40(11): 3491-3500.

XIE Wenjing, XU Wenshuai, XIAN Aidan. Influence of burning fireworks on air quality in Sanya City[J]. Environmental Chemistry, 2021, 40(11): 3491-3500.

烟花爆竹燃放对三亚市空气质量的影响分析^{*}

谢文晶 徐文帅^{**} 冼爱丹

(海南省环境科学研究院, 海口, 571126)

摘 要 基于常规污染物浓度、气象观测资料、PM_{2.5} 中水溶性离子和 OC/EC 的化学组分数据, 分析了 2018 年和 2019 年除夕至初一烟花爆竹燃放对热带城市三亚空气质量的影响, 并测算了烟花爆竹燃放对 PM_{2.5} 浓度和排放量的贡献. 结果表明, 除夕至初一烟花爆竹燃放会造成 PM₁₀、PM_{2.5}、SO₂ 浓度和 PM_{2.5} 中水溶性离子 K⁺、Cl⁻、Mg²⁺ 和 SO₄²⁻ 浓度快速上升. 与 2018 年相比, 2019 年三亚市实施了烟花爆竹燃放严格管控后空气质量明显改善, PM₁₀、PM_{2.5}、SO₂ 小时质量浓度峰值分别下降 46.19%、52.50% 和 84.52%, 烟花爆竹燃放对 PM_{2.5} 小时质量浓度峰值贡献量下降 50.77%, 除夕至初一 24 小时平均时段 PM_{2.5} 排放量由 2.21×10³ kg 降低为 1.45×10³ kg.

关键词 三亚, 烟花爆竹, 空气质量, PM_{2.5}, 化学组分.

Influence of burning fireworks on air quality in Sanya City

XIE Wenjing XU Wenshuai^{**} XIAN Aidan

(Hainan Research Academy of Environmental Sciences, Haikou, 571126, China)

Abstract Based on concentrations of air pollutants, meteorological data, the chemical compositions data of water soluble ions and OC/EC in PM_{2.5} in the tropical city of Sanya, the impact of fireworks on the air quality from New Year's Eve to Lunar New Year's Day in 2018 and 2019 was analyzed. Moreover, concentrations and emissions increase of PM_{2.5} due to the fireworks was evaluated. The results indicated that the fireworks caused the rapid rise of PM₁₀, PM_{2.5}, SO₂ and K⁺, Cl⁻, Mg²⁺, SO₄²⁻ in PM_{2.5}. Fireworks prohibition in 2019 noticeably improved air quality in Sanya in 2019 compared with 2018. The highest 1-hour average mass concentrations of PM₁₀, PM_{2.5} and SO₂ decreased by 46.19%, 52.50% and 84.52% in 2019, respectively. In addition, the contribution of 1-hour average fireworks-related PM_{2.5} mass concentration decreased by 50.55%, and the 24-hour average fireworks-related PM_{2.5} emissions from New Year's Eve to Lunar New Year's Day decreased from 2.21×10³ kg in 2018 to 1.45×10³ kg in 2019.

Keywords Sanya, fireworks, air quality, PM_{2.5}, chemical compositions.

春节是我国传统节日, 在除夕夜间到初一凌晨人们往往会集中燃放大量烟花, 造成短时间内排放大量污染物, 空气质量迅速恶化, 对人体健康产生危害^[1]. 我国重点城市针对烟花爆竹燃放影响空气质

2020 年 12 月 17 日收稿(Received: December 17, 2020).

^{*} 海南省重大科技计划项目(ZDKJ2020007)和海南省财政专项“海南省大气复合污染综合来源解析项目”(ZC2018-196)资助.

Supported by the Major Science and Technology Plan Project of Hainan Province (ZDKJ2020007) and Hainan Provincial Finance Special Project of “Comprehensive Source Analysis of Air Compound Pollution in Hainan Province” (ZC2018-196).

^{**} 通讯联系人 **Corresponding author**, E-mail: xuwendshuai@hotmail.com

量的问题开展了广泛研究,2015 年除夕北京市区烟花爆竹排放 $\text{PM}_{2.5}$ 总量约为 $2.13 \times 10^5 \text{ kg}$,可以在短时间内对北京市造成严重的大气污染,烟花爆竹的燃放对北京市 $\text{PM}_{2.5}$ 化学组分中的 K^+ 、 SO_4^{2-} 、 Cl^- 、 Mg^{2+} 和 Na^+ 等影响最大^[2-4];天津市春节烟花爆竹集中燃放期间 $\text{PM}_{2.5}$ 主要化学组分为 K^+ 、 SO_4^{2-} 和 Cl^- ,同时 SO_2 和 CO 质量浓度显著升高,但 EC 和 OC 质量浓度并未明显增加^[5];西安市春节烟花爆竹燃放最丰富的离子是 K^+ ,在 $\text{PM}_{2.5}$ 中占比达到 28%,其次是 SO_4^{2-} 和 Cl^- ,占比分别为 25% 和 18%^[6];烟花爆竹燃放会造成南京市除夕 0:00—2:00 污染物浓度急剧增加并累积^[7];在珠三角地区,烟花燃放对 SO_2 、 PM_{10} 和 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度的短期影响极大,对 CO 、 O_3 和 NO_2 没有明显的影响^[8],对 $\text{PM}_{2.5}$ 水溶性离子中的 K^+ 、 Cl^- 和 SO_4^{2-} 的影响最大, NO_3^- 、 NH_4^+ 也存在一定程度的影响^[9]. 其它部分重点城市^[10-16] 也相继开展了燃放烟花爆竹对环境空气质量影响的研究.

为有效控制春节期间烟花爆竹对空气质量造成的影响,部分重点城市开始实施春节期间烟花爆竹禁燃政策,已有研究表明烟花爆竹禁燃可以取得较好的效果. 有学者对 2018 年京津冀及周边地区 2+26 个城市的烟花禁放效果进行了评估,表明烟花禁限放措施起到了显著的污染削峰,其中淄博市、济南市、北京市降幅最大,分别下降了 85.2%、74.6% 和 65.2%^[17];2015 年南京市春节禁燃后, $\text{PM}_{2.5}$ 平均质量浓度同比改善了 56%^[18];郴州市实施禁燃措施后, $\text{PM}_{2.5}$ 浓度均值同比减少 27.6%^[19].

尽管国内对于春节烟花爆竹影响进行了大量研究,但是对于热带城市烟花爆竹影响的研究极少. 三亚作为典型的热带城市,日照时数多,热量丰富,气温年较差小,年平均气温高. 三亚冬季无需燃煤供暖,工业排放较少,污染物浓度水平较低,且春节期间工业生产、建筑施工等活动水平也大幅降低,本地污染源排放量大幅下降,因此开展烟花爆竹燃放对热带城市三亚空气质量的影响研究可以有助于深入了解烟花爆竹燃放的贡献. 对于春节期间由于烟花爆竹燃放造成的空气质量下降问题,海南省人民政府办公厅要求 2019 年春节期间在三亚市城区禁止燃放烟花爆竹^[20].

本文通过对热带城市三亚 2018 年和 2019 年春节期间(禁燃措施实施前后)各项常规污染物浓度、气象条件、 $\text{PM}_{2.5}$ 水溶性离子和 OC/EC 组分浓度进行分析,研究烟花爆竹集中燃放对三亚市空气质量的影响,并测算了烟花爆竹燃放对 $\text{PM}_{2.5}$ 的贡献量,以期在城市烟花爆竹管控研究提供帮助,为热带城市或空气质量处于较好水平的城市进一步改善空气质量提供参考.

1 材料与方法(Materials and methods)

1.1 常规污染物浓度监测数据

三亚市共有河东子站和河西子站 2 个国控城市环境空气质量监测点位(图 1),分别开展 SO_2 、 NO_2 、 O_3 、 CO 、 PM_{10} 、 $\text{PM}_{2.5}$ 等 6 项常规污染物自动监测,2 个国控站点污染物平均浓度代表三亚市污染物浓度. SO_2 、 NO_2 、 O_3 、 CO 、 PM_{10} 和 $\text{PM}_{2.5}$ 监测仪器采用 43i、42i、49i、48i、5014i 和 5030i 型设备(美国 Thermo), PM_{10} 和 $\text{PM}_{2.5}$ 分析方法均为 β 射线法. 各污染物浓度数据均为标准状态下(0 °C, 标准大气压)的监测结果. O_3 评价指标为日最大 8 h 滑动平均浓度,各污染物监测数据统计有效性及评价按照《环境空气质量标准》(GB3095—2012)和《环境空气质量评价技术规范(试行)》(HJ663—2013)执行.

1.2 $\text{PM}_{2.5}$ 水溶性离子、 OC/EC 组分数据

$\text{PM}_{2.5}$ 的水溶性离子和 OC/EC 组分数据分别采用 WAGA-100 型号和 OCEC-100 型号设备进行监测,仪器布设在三亚市河东国控站点. WAGA-100 是一台半连续测量气体和气溶胶中可溶离子成分的在线分析器,因三亚市 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度整体较低,因此可溶性离子(Cl^- 、 NO_3^- 、 NO_2^- 、 F^- 、 SO_4^{2-} 、 NH_4^+ 、 K^+ 、 Na^+ 、 Mg^{2+} 、 Ca^{2+})浓度为每 3 h 分析 1 次. OCEC-100 是一款基于热光法的大气有机碳(OC)和元素碳(EC)在线分析仪,具有热光透射法(TOT)和热光反射法(TOR)双光学矫正系统.

1.3 气象资料

气象资料为气象业务系统 MICAPS 中三亚市观象台观测结果数据,含站点每小时的主要地面风向、风速、温度、湿度数据,用于分析气象要素与污染物浓度之间的关系. 采用韩国气象台网站上的地面天气实况分析图(<http://www.kma.go.kr/eng/index.jsp>)分析三亚的天气形势,该天气图覆盖东亚地区的气压场和降水等观测结果.

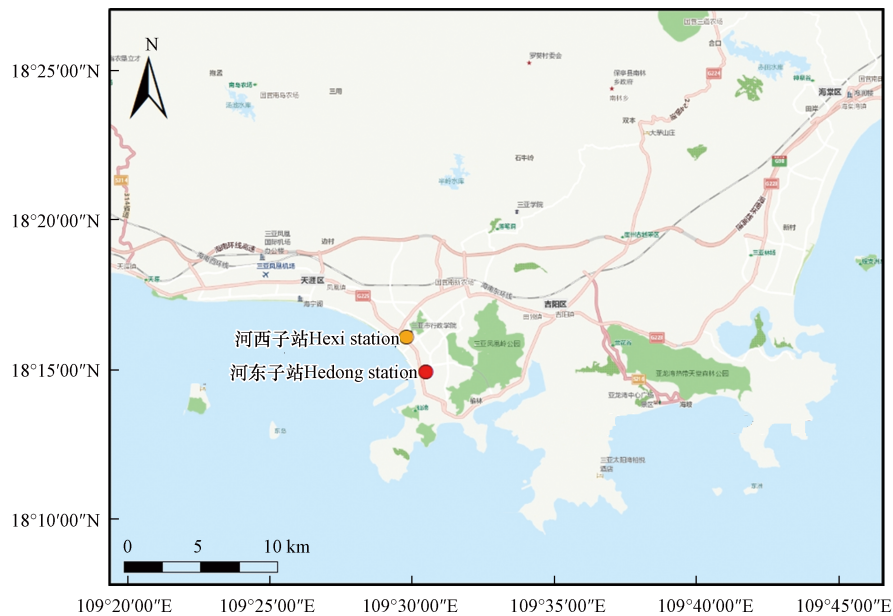


图 1 三亚市环境空气质量监测点位和 PM_{2.5} 组分站点空间示意图

Fig.1 Spatial diagram of the ambient air quality monitoring stations and PM_{2.5} component station in Sanya City

2 结果与讨论 (Results and discussion)

2.1 春节期间空气质量基本特征

三亚市 2018 年春节期间(除夕至初六)初一 AQI 指数最高, 达到 62, 首要污染物为 PM_{2.5}, PM_{2.5} 日均值达到 44 μg·m⁻³, 2018 年初一 01 时 PM_{2.5} 的小时浓度峰值达到 160 μg·m⁻³, 为 2018 年全年最高值. PM₁₀ 日均值同样为春节期间最高, 达到 66 μg·m⁻³. 除了除夕和初一, 2018 年春节期间其余 5 d 的 PM_{2.5} 日均值均低于 30 μg·m⁻³, PM₁₀ 日均值显著低于 50 μg·m⁻³, PM_{2.5} 和 PM₁₀ 浓度均低于环境空气质量日均值一级标准限值(图 2).

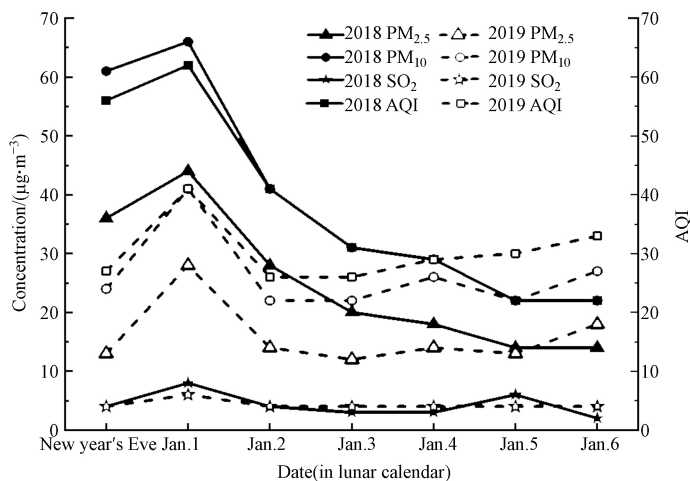


图 2 春节期间 AQI 指数、PM_{2.5}、PM₁₀ 和 SO₂ 浓度变化图

Fig.2 Diurnal variation of AQI index, PM_{2.5}, PM₁₀ and SO₂ concentration during Spring Festival

与 2018 年相比, 2019 年春节期间空气质量变化趋势基本一致, 但是空气质量明显改善. AQI 指数峰值同样出现在初一, 达到 41, 初一 PM_{2.5} 和 PM₁₀ 浓度最高, 分别为 28 μg·m⁻³ 和 41 μg·m⁻³, 其余 6 d 浓度相对较低. 2018 年和 2019 年春节期间 SO₂ 日均值在极低浓度水平波动, 均在初一出现最高值, 分别为 8 μg·m⁻³ 和 6 μg·m⁻³. 2019 年春节 7 d 假期 PM_{2.5} 日均浓度总和及 PM₁₀ 日均浓度总和与 2018 年春节假期相比分别下降了 62 μg·m⁻³ 和 88 μg·m⁻³, 按照全年 365 d 平均计算, 2019 年春节假期可以为三亚市 PM_{2.5} 和 PM₁₀ 年均浓度下降分别贡献 0.17 μg·m⁻³ 和 0.24 μg·m⁻³. 三亚市春节期间除夕至初一烟花

爆竹燃放对空气质量影响显著,因此,下面将围绕除夕与初一的气象条件、各项污染物浓度、PM_{2.5}的化学组分和烟花爆竹燃放对 PM_{2.5} 浓度和排放量的贡献进行分析.

2.2 气象条件分析

2.2.1 天气形势分析

2018 年和 2019 年除夕 20 时天气形势总体相似,在海南岛西北方向广西西部存在一弱低压系统,三亚市在这低压系统外围,处于均压场中(天气形势图略). 两年的初一 08 时,低压系统主体均出现减弱消亡,2018 年初一 08 时海南岛北部有 1016 hPa 等压线,对海南岛南部影响较小,2019 年初一 08 时,1016 hPa 等压线出现在海南岛西南部,对三亚市略有扰动. 即近 2 年的除夕夜 20 时至初一 08 时三亚市天气形势相对静稳,以局地弱风场为主,2019 年三亚市风场略微有利.

2.2.2 气象要素分析

2018 年和 2019 年除夕至初一主导风向相似,集中在东南风-东北风之间,无降水. 2018 年和 2019 年除夕至初一相对湿度均比较高(图 3a),两年除夕夜间至初一凌晨(集中燃放时段)的相对湿度甚至达到 95% 以上,均非常有利于颗粒物吸湿增长. 2018 年和 2019 年地面气温整体相对比较平稳,2018 年在 17 °C 左右小幅波动,2019 年在 20 °C 左右小幅波动,两年的除夕午后和初一午后温度均有小幅上升,其余时间段的温度变化较小(图 3b). 两年除夕夜间至初一凌晨风速总体都超过 3 m·s⁻¹(图 3d),有利于污染物在水平方向扩散,2019 年风速在 4 m·s⁻¹ 左右波动,除夕 21 时至初一 04 时,风速≥ 3 m·s⁻¹;2018 年风速波动较大,除夕 21 时至初一 04 时时段,风速同样≥3 m·s⁻¹. 由以上气象要素分析得出,2018 年和 2019 年除夕夜间至初一凌晨气象条件比较接近,主要表现为风向同源、风速较大、湿度较高、温度变化幅度小. 气象条件对比分析表明,2019 年除夕夜间至初一凌晨空气质量较 2018 年明显改善,主要是由于实行烟花爆竹严格管控.

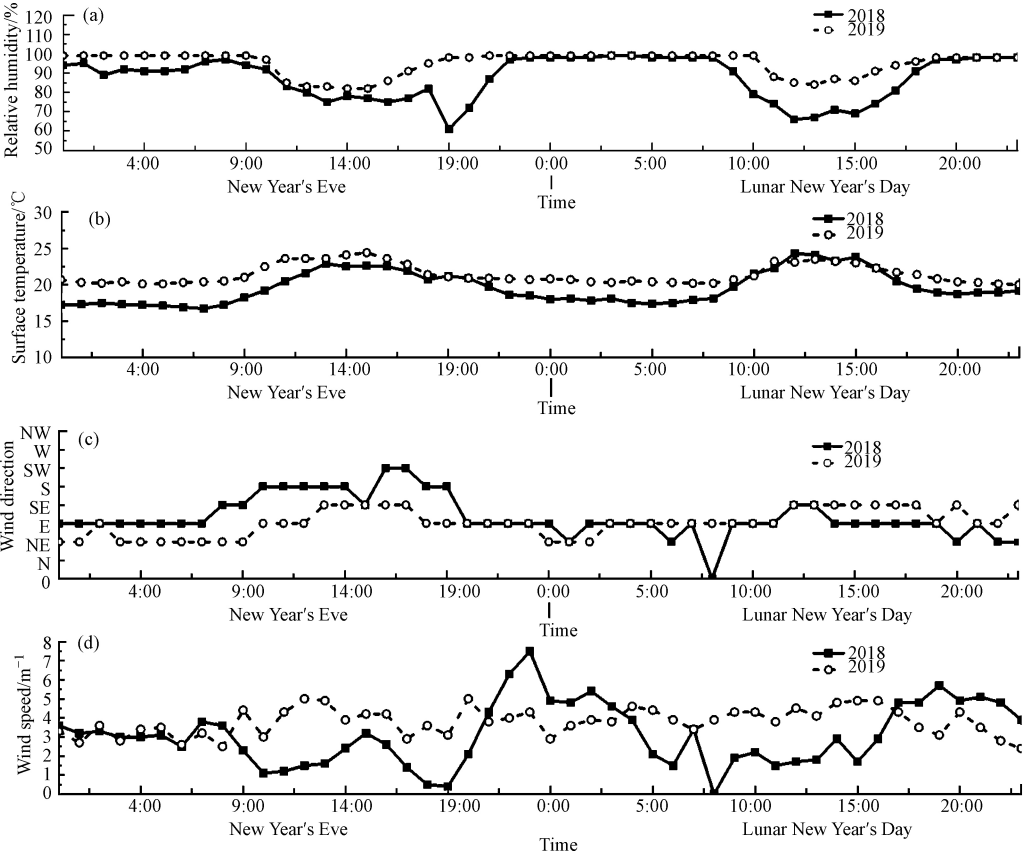


图 3 2018 年和 2019 年除夕至初一气象要素对比图

(图 3(c) 中,0 表示静风,N、NE、E、SE、S、SW、W 和 NW 分别表示北风、东北风、东风、东南风、南风、西南风、西风和西北风)
Fig.3 Comparison of meteorological elements from New Year's Eve to Lunar New Year's Day in 2018 and 2019
(In Fig.3(c), 0 represents clam wind; N, NE, E, SE, S, SW, W 和 NW represent north wind, northeast wind, east wind, southeast wind, south wind, southwest wind, west wind and northwest wind respectively)

2.3 除夕至初一污染物浓度分析

2018 年与 2019 年除夕至初一, PM_{10} 、 $\text{PM}_{2.5}$ 和 SO_2 3 项污染物小时浓度变化趋势基本一致(图 4a—c). 除夕 00 时—傍晚 18 时, 三亚市各项常规污染物浓度较低. 除夕 19 时—23 时, 烟花爆竹逐渐开始燃放, $\text{PM}_{2.5}$ 和 PM_{10} 浓度逐渐升高, SO_2 仍维持在较低浓度水平. 从初一 00 时起, PM_{10} 、 $\text{PM}_{2.5}$ 和 SO_2 浓度开始快速上升. 2018 年 PM_{10} 、 $\text{PM}_{2.5}$ 和 SO_2 浓度在初一 01 时达峰, 峰值浓度分别 236、160 和 $84\text{ }\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, 较 2018 年除夕 18 时分别上升了 4.36 倍、7.42 倍和 20.00 倍. 2019 年 SO_2 浓度在初一 01 时达到峰值, 浓度为 $13\text{ }\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, 峰值浓度一直持续到初一 02 时; $\text{PM}_{2.5}$ 在初一 02 时达到峰值, 浓度为 $76\text{ }\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$; PM_{10} 在初一 02 时达到 $122\text{ }\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, 在初一 03 时达到峰值, 浓度为 $127\text{ }\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$; 2019 年 PM_{10} 、 $\text{PM}_{2.5}$ 和 SO_2 小时浓度峰值较除夕 18 时分别上升了 4.77 倍、7.44 倍和 2.25 倍. PM_{10} 、 $\text{PM}_{2.5}$ 和 SO_2 小时浓度达峰后开始快速下降, 初一 12 时之后恢复到烟花燃放前浓度水平. 2019 年初一凌晨 PM_{10} 、 $\text{PM}_{2.5}$ 和 SO_2 小时浓度峰值与 2018 年相比显著下降, SO_2 下降比例最为明显, 下降幅度达到 84.52%, $\text{PM}_{2.5}$ 和 PM_{10} 分别下降 52.50% 和 46.19%. 另一方面, 2019 年 3 项污染物浓度峰值与 2018 年相比延后 1 到 2 h, 说明除了三亚市城区存在少量烟花爆竹燃放, 部分郊区烟花爆竹燃放产生的污染物扩散至城区, 导致峰值出现延迟. 尽管三亚市 2019 年初一凌晨 PM_{10} 、 $\text{PM}_{2.5}$ 和 SO_2 3 项污染物仍出现短时跃升现象, 但是由于城区实施了较为严格的烟花爆竹管控措施, 主要污染物影响程度较往年明显减弱, 2019 年初一 $\text{PM}_{2.5}$ 、 PM_{10} 和 SO_2 日均值浓度分别为 28、41 和 $6\text{ }\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, 均低于环境空气质量日均值一级标准限值.

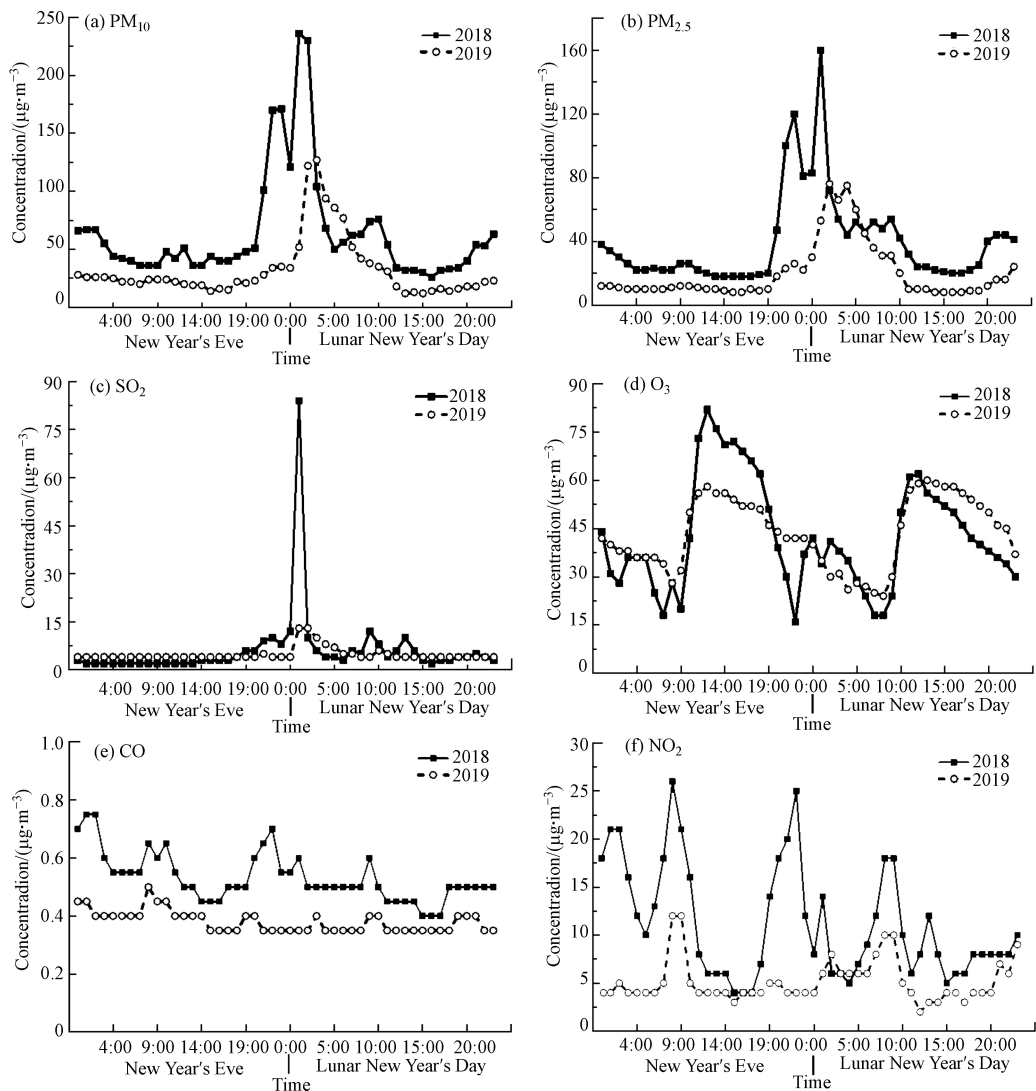


图 4 2018 年和 2019 年除夕至初一常规六项污染物对比图

Fig.4 Comparison of six conventional pollutants from New Year's Eve to Lunar New Year's Day in 2018 and 2019

2018 年与 2019 年除夕至初一, O_3 、 CO 和 NO_2 3 项污染物并未在烟花爆竹集中燃放时段出现明显峰值, 总体处于较低浓度水平(图 4d—f). 2018 年 CO 在 $0.5 \text{ mg}\cdot\text{m}^{-3}$ 左右小幅变化; 2019 年在 $0.4 \text{ mg}\cdot\text{m}^{-3}$ 左右小幅变化. O_3 呈现午后上升、夜间下降的变化特征, 2018 年浓度区间为 $16\text{--}82 \text{ }\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, 2019 年浓度区间为 $24\text{--}60 \text{ }\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, O_3 浓度日变化特征主要与其前体物在太阳辐射影响下发生光化学反应造成. 2018 年 NO_2 的峰值出现在除夕上午 08 时和除夕 22 时, 在 $4\text{--}26 \text{ }\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 之间波动. 2019 年 NO_2 的峰值出现在除夕上午 08—09 时和初一上午 08—09 时, 其余时段在 $5 \text{ }\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 左右小幅变化. 除夕至初一 NO_2 、 CO 、 O_3 在 2018 年和 2019 年均处于低浓度水平波动, 且除夕夜间至初一凌晨未出现明显峰值, 表明 NO_2 、 CO 和 O_3 受烟花爆竹燃放影响较小.

2.4 $\text{PM}_{2.5}$ 中水溶性离子的影响情况

2019 年 $\text{PM}_{2.5}$ 中水溶性离子选取 Cl^- 、 K^+ 、 SO_4^{2-} 、 Mg^{2+} 、 NO_2^- 、 Na^+ 、 F^- 、 NO_3^- 、 Ca^{2+} 、 NH_4^+ 等 10 种离子进行分析(图 5). K^+ 、 Cl^- 、 Mg^{2+} 、 SO_4^{2-} 在初一凌晨烟花爆竹集中燃放时段均出现显著上升. 其中, Mg^{2+} 、 Cl^- 浓度上升最为显著, 分别由除夕 18 时的 $0.07 \text{ }\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 和 $0.49 \text{ }\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 上升至初一 03 时的 $1.31 \text{ }\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 和 $6.40 \text{ }\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, 分别上升了 17.71 倍和 12.06 倍; K^+ 上升幅度也达 4.67 倍, 由 $2.78 \text{ }\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 上升至 $15.76 \text{ }\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$; SO_4^{2-} 由 $2.22 \text{ }\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 上升至 $8.75 \text{ }\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, 上升 2.94 倍.

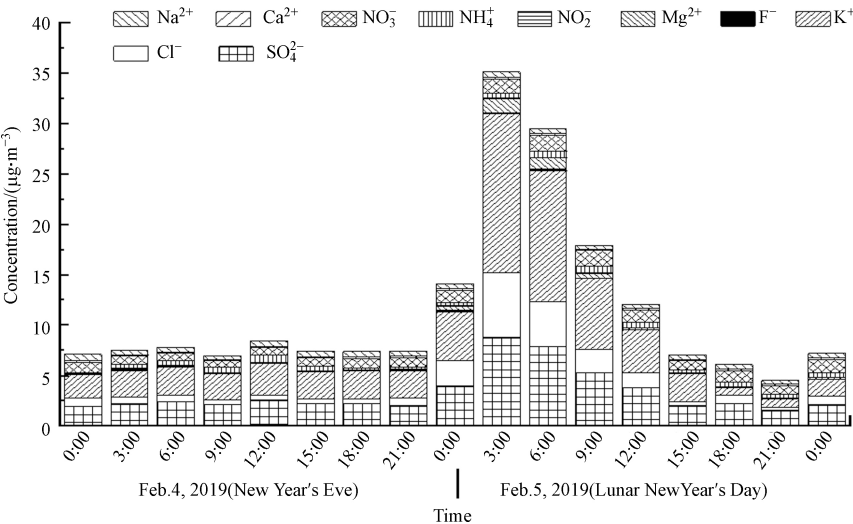


图 5 2019 年除夕至初一期间水溶性离子小时变化图

Fig.5 Hourly variation of water-soluble ions from New Year's Eve to Lunar New Year's Day in 2019

NO_2^- 、 Na^+ 、 F^- 、 NO_3^- 、 Ca^{2+} 、 NH_4^+ 等 6 种离子浓度在烟花爆竹集中燃放阶段未出现明显峰值, 主要表现为小幅波动特征. 其中 NO_2^- 在 $0.10 \text{ }\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 以内波动; Na^+ 稳定在 $0.50 \text{ }\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 左右, 无明显峰值; NO_3^- 在 $0.60\text{--}1.60 \text{ }\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 之间波动, 初一 06 时达到峰值; F^- 在 $0.20 \text{ }\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 以内波动, 峰值时段出现在除夕凌晨和初一凌晨; Ca^{2+} 浓度在 $0.15 \text{ }\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 左右波动; NH_4^+ 在 $0.70 \text{ }\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 以内波动, 在除夕中午 12 时和初一上午 09 时出现峰值. NO_2^- 、 Na^+ 、 F^- 、 NO_3^- 、 Ca^{2+} 、 NH_4^+ 的浓度水平和变化特征表明除夕至初一烟花爆竹燃放对这 6 种离子影响较小.

为进一步了解烟花爆竹集中燃放对各水溶性离子组分的影响, 本文对非集中燃放时段、集中燃放时段和弱燃放时段 $\text{PM}_{2.5}$ 中水溶性离子占比变化进行比对分析(图 6). 选取 1 月 1 日 0:00—1 月 31 日 21:00 为非燃放期, 2 月 4 日 21:00—2 月 5 日 12:00 为集中燃放时段, 初二至初六(2 月 6 日 0:00—2 月 10 日 21:00)为弱燃放期. 非燃放期(1 月 1 日—1 月 31 日), SO_4^{2-} 占比最高, 为 28.83%, 其次为 NO_3^- 、 K^+ , 占比分别为 25.69% 和 14.62%; Na^+ 、 Cl^- 和 Ca^{2+} 占比分别为 10.08%、7.67% 和 7.04%. 烟花爆竹集中燃放时段, $\text{PM}_{2.5}$ 中各水溶性离子组分占比发生显著改变, 其中 K^+ 占比上升了 26.41%, 成为占比最高的水溶性离子, 占比达到 41.03%; Cl^- 占比从非燃放时段的 7.67% 上升至 15.40%; Mg^{2+} 较非燃放时段小幅上升 2.03%. 其他 7 种离子 NO_3^- 、 Na^+ 、 Ca^{2+} 、 SO_4^{2-} 、 NH_4^+ 、 F^- 和 NO_2^- 占比下降, 分别下降了 18.85%、7.79%、6.19%、1.52%、1.30%、0.39% 和 0.13%. 集中燃放时段 Mg^{2+} 占比上升是由于烟花爆竹中将镁粉作为发

光剂, 其中 Mg 的含量较高, 另外大气中 Mg 的其他来源较少, 因此 Mg 是表征烟花排放的标志物. K^+ 、 Cl^- 占比的升高说明烟花爆竹中使用的氧化剂可能主要为高氯酸钾或氯酸钾^[21]. K^+ 、 Cl^- 和 Mg^{2+} 3 种特征因子的变化情况说明除夕至初一 $PM_{2.5}$ 浓度上升主要源于烟花爆竹燃放.

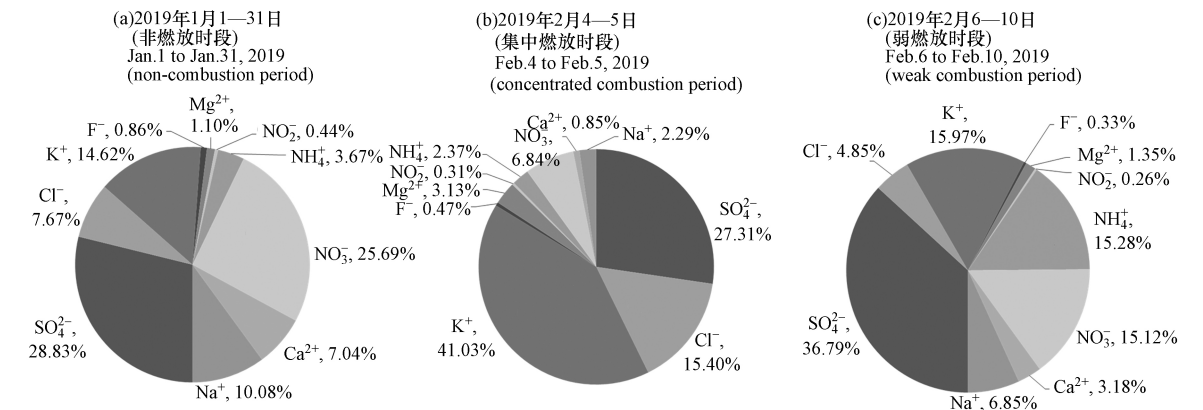


图 6 非燃放时段、弱燃放时段和集中燃放时段水溶性离子占比图

Fig.6 Proportion of water-soluble ions during non-combustion period, weak combustion period and concentrated combustion period

初二至初六(2月6日—2月10日)仍处于春节假期, 会产生少部分烟花爆竹燃放, 定为弱燃放期, 弱燃放期的 K^+ 、 Cl^- 和 Mg^{2+} 相对于集中燃放时段, 占比分别下降了 25.06%、10.55% 和 1.78%, F^- 和 NO_2^- 略微下降, 分别减少了 0.14% 和 0.05%; NH_4^+ 、 SO_4^{2-} 、 NO_3^- 、 Na^+ 和 Ca^{2+} 占比上升, 分别上升了 12.91%、9.48%、8.28%、4.56% 和 2.33%; 弱燃放期与非燃放期的特征因子 K^+ 、 Cl^- 和 Mg^{2+} 占比基本相当, K^+ 和 Cl^- 在 15.00% 和 5.00% 左右, Mg^{2+} 离子均略高于 1.00%, 说明初二至初六三亚市烟花爆竹影响较小.

进一步研究分析集中燃放时段 $PM_{2.5}$ 与其水溶性离子的 Spearman 相关性. 表 1 为集中燃放时段 $PM_{2.5}$ 与其水溶性离子的相关系数. $PM_{2.5}$ 和 K^+ 、 Mg^{2+} 、 SO_4^{2-} 和 Cl^- 表现出较高的相关性, 相关系数均在 0.90 左右. K^+ 、 Mg^{2+} 、 Cl^- 和 SO_4^{2-} 4 种离子间的相关性达到 0.90 以上, 表明这 4 种离子的来源一致, 如前文所述, Mg 是表征烟花排放的标志物, Mg^{2+} 主要来源于烟花爆竹的燃放, 因此得出 K^+ 、 Cl^- 、 SO_4^{2-} 也来自于烟花爆竹的燃放, 这与刘慧萍^[4]、操晚等^[5]、马莹等^[9] 的研究结果一致. 这是由于烟花爆竹主要成分含有氯酸钾及高氯酸钾(氧化剂)、硫磺(可燃物)、金属镁(发光剂)等, 烟花爆竹燃放产生大量含 K^+ 、 Mg^{2+} 、 Cl^- 、 SO_4^{2-} 的物质进入空气, 导致这 4 种离子浓度显著升高.

表 1 集中燃放时段 $PM_{2.5}$ 与其水溶性离子的相关系数

Table 1 Correlation coefficients between $PM_{2.5}$ and its water-soluble ions during concentrated combustion period											
	$PM_{2.5}$	SO_4^{2-}	Cl^-	K^+	F^-	Mg^{2+}	NO_2^-	NH_4^+	NO_3^-	Ca^{2+}	Na^+
$PM_{2.5}$	1.00										
SO_4^{2-}	0.94**	1.00									
Cl^-	0.89*	0.94**	1.00								
K^+	0.94**	1.00**	0.94**	1.00							
F^-	0.58	0.58	0.76	0.58	1.00						
Mg^{2+}	0.94**	1.00**	0.94**	1.00**	0.58	1.00					
NO_2^-	0.14	0.26	0.09	0.26	-0.52	0.26	1.00				
NH_4^+	0.60	0.71	0.49	0.71	0.15	0.71	0.43	1.00			
NO_3^-	0.66	0.77	0.60	0.77	0.40	0.77	0.14	0.94**	1.00		
Ca^{2+}	0.83*	0.71	0.83*	0.71	0.76	0.71	-0.26	0.09	0.26	1.00	
Na^+	0.09	-0.14	0.03	-0.14	0.15	-0.14	-0.43	-0.71	-0.60	0.54	1.00

在 0.01 级别(双尾), 相关性显著 (Correlation is significant at the 0.01 level (2-tailed). *在 0.05 级别(双尾), 相关性显著 (* Correlation is significant at the 0.05 level (2-tailed).

2.5 $\text{PM}_{2.5}$ 中 OC/EC 的影响情况分析

三亚市 2019 年除夕至初一 OC/EC 浓度整体较低, OC 小时浓度在 $1\text{--}3\ \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, 除夕 18 时至初一 03 时 OC 出现小幅上升, 由除夕 18 时 $1.15\ \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 上升至初一 03 时的 $2.86\ \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, 上升了 1.49 倍, 此后浓度快速下降(图 7), 表明烟花爆竹燃放对三亚市 OC 存在影响, 这主要是由于厂家在爆竹中添加蔗糖等物质用以增加响度, 燃放后产生 OC, 使其浓度升高^[22]. EC 小时浓度稳定在 $0.50\ \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 左右, 在初一 03 时未与水溶性离子和 OC 同步出现峰值, 说明烟花爆竹燃放对 EC 影响极小.

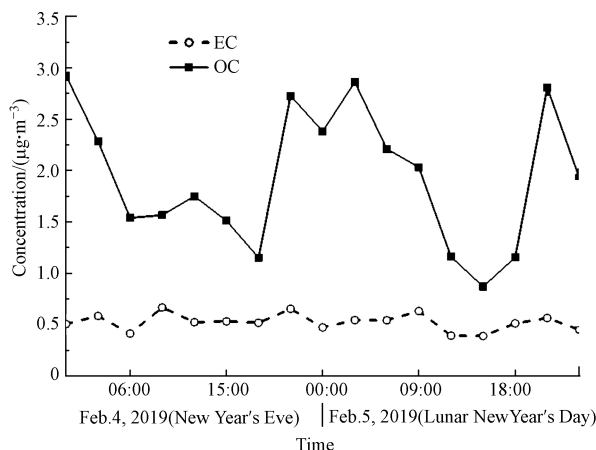


图 7 2019 年除夕至初一期间 OC/EC 小时变化图

Fig.7 Hourly variation of OC/EC from New Year's Eve to Lunar New Year's Day in 2019

2.6 烟花爆竹燃放对 $\text{PM}_{2.5}$ 的贡献量

采用相对比值法研究 $\text{PM}_{2.5}$ 来源, 若污染物浓度和参考标准污染物的浓度比值稳定, 说明污染源比较稳定; 若比值发生了较大改变, 则说明污染源构成发生了变化. 参照王哲等^[23] 研究, 将受烟花爆竹燃放影响小的 CO 浓度作为参考标准物浓度, 利用 $\text{PM}_{2.5}/\text{CO}$ 比值法估算除夕至初三三亚市烟花爆竹燃放对 $\text{PM}_{2.5}$ 的贡献量 $\text{PM}_{2.5}^f$, 公式如(1)和(2).

$$\text{PM}_{2.5}^f = \text{CO} \times (\overline{\text{PM}_{2.5}/\text{CO}})_{\text{Pnf}} \quad (1)$$

$$\text{PM}_{2.5}^f = \text{PM}_{2.5} - \text{CO} \times (\overline{\text{PM}_{2.5}/\text{CO}})_{\text{Pnf}} \quad (2)$$

式中, $(\overline{\text{PM}_{2.5}/\text{CO}})_{\text{Pnf}}$ 为非燃放时段平均 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度与平均 CO 浓度的比值, CO 为逐时 CO 浓度, $\text{PM}_{2.5}^f$ 为回归得到逐时 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度.

由图 8 中可看出, 2018 年和 2019 年除夕至初一烟花爆竹燃放使三亚市 $\text{PM}_{2.5}$ 小时浓度最大值分别增加了 $130\ \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 和 $64\ \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, 最大值增加时刻分别出现在 2018 年初一 01:00 和 2019 年初一 02:00, 2019 年峰值增加量较 2018 年下降 50.77%. 由于颗粒物空气质量指数是以 24 h 平均值计算, 因此选取包含完整燃放过程的时段进行分析, 即除夕至初一 24 h 平均时段分别为 2018 年 2 月 15 日 12:00—2 月 16 日 12:00 和 2019 年 2 月 4 日 12:00—2 月 5 日 12:00. 烟花爆竹燃放使 2018 年 24 小时平均 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度由 $26\ \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 增加到 $52\ \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, 增加量为 $26\ \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$; 2019 年 24 h 平均 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度由 $12\ \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 增加到 $29\ \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, 增加量为 $17\ \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, 2019 年贡献量较 2018 年下降 34.62%.

王哲等^[23] 根据 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度估算 2013 年北京燃放烟花爆竹排放的 $\text{PM}_{2.5}$ 总量. 假定鞭炮对 $\text{PM}_{2.5}$ 贡献量随高度按负指数规律递减, 计算公式如下:

$$C_z = C_0 \times e^{(-n \times z)} \quad (3)$$

式中, Z 为高度, m; C_z 为高度 Z 处 $\text{PM}_{2.5}^f$ 浓度, $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$; C_0 为地面 $\text{PM}_{2.5}^f$ 浓度, $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$; n 为常数, m^{-1} . 本文采用金军等^[24] 研究结果, 取 $n=0.015$.

按最大口径礼花发射高度 310 m 计, $C_{310\text{m}}/C_0 < 1/100$, 由于到达此高度的鞭炮数量极为有限, 基本符合实际情况. 假设 $\text{PM}_{2.5}^f$ 在水平方向混合均匀, 烟花爆竹排放的 $\text{PM}_{2.5}^f$ 总量 M 为

$$M = \int_{t_1}^{t_2} \int_0^z S \times C_z \text{d}Z \text{d}t \quad (4)$$

式中, S 为面积, m^2 ; t_1 、 t_2 分别为烟花爆竹燃放的开始和结束时间. 由于城区 $\text{PM}_{2.5}^{\text{f}}$ 远大于郊区, 因此 S 仅按三亚市建成区面积 53.67 km^2 统计, 则 2018 年和 2019 年除夕至初一 24 h 平均时段烟花爆竹排放 $\text{PM}_{2.5}$ 总量分别为 $2.21 \times 10^3 \text{ kg}$ 和 $1.45 \times 10^3 \text{ kg}$. 2018 年和 2019 年除夕至初一烟花爆竹最大小时 $\text{PM}_{2.5}$ 排放量分别 $4.61 \times 10^2 \text{ kg}$ 和 $2.27 \times 10^2 \text{ kg}$. 2019 年由于烟花爆竹管控, 除夕至初一 $\text{PM}_{2.5}$ 排放量较 2018 年有明显减少.

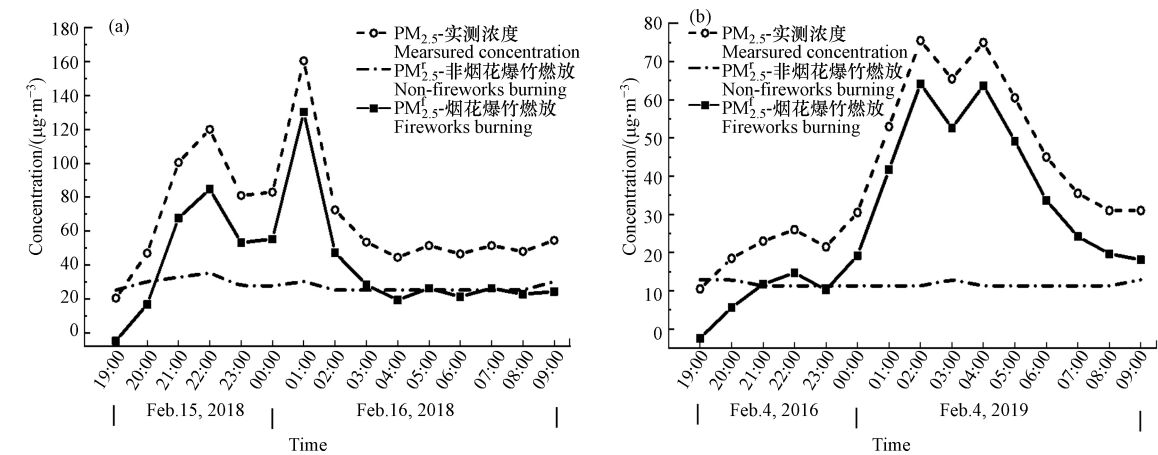


图 8 2018 年(a)和 2019 年(b)除夕至初一烟花爆竹燃放对 $\text{PM}_{2.5}$ 贡献量对比图
Fig.8 Comparison of the contribution of fireworks to $\text{PM}_{2.5}$ from New Year's Eve to Lunar New Year's Day in 2018(a) and 2019(b)

3 结论(Conclusion)

- (1)烟花爆竹燃放对三亚市除夕夜间至初一凌晨空气质量影响显著,造成 PM_{10} 、 $\text{PM}_{2.5}$ 和 SO_2 浓度的显著上升. 2019 年实施烟花爆竹严格管控后,初一凌晨 PM_{10} 、 $\text{PM}_{2.5}$ 、 SO_2 3 项污染物小时浓度峰值显著下降,下降比例分别达 46.19%、52.50% 和 84.52%,空气质量显著改善;峰值出现时刻延后 1—2 h,可能由郊区未实施严格管控,燃放后传输至城区所致.
- (2)除夕至初一烟花爆竹燃放造成三亚市 $\text{PM}_{2.5}$ 中水溶性离子 K^+ 、 SO_4^{2-} 、 Cl^- 和 Mg^{2+} 浓度显著上升,其中 K^+ 浓度上升超过 $10 \text{ }\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$,跃升为占比最高的污染因子, SO_4^{2-} 、 Cl^- 和 Mg^{2+} 浓度分别上升 2.94 倍、12.06 倍和 17.71 倍;初一凌晨 OC 也出现小幅上升现象;相对而言,烟花爆竹燃放对 NO_2^- 、 Na^+ 、 F^- 、 NO_3^- 、 Ca^{2+} 、 NH_4^+ 6 种离子和 EC 影响较小.
- (3)比值法估算得出 2018 年和 2019 年除夕到初一烟花爆竹燃放对三亚市 $\text{PM}_{2.5}$ 小时浓度峰值的贡献量分别为 $130 \text{ }\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 和 $64 \text{ }\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$,对 24 h 平均 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度贡献量分别为 $26 \text{ }\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 和 $17 \text{ }\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$;最大小时 $\text{PM}_{2.5}$ 排放量分别为 $4.61 \times 10^2 \text{ kg}$ 和 $2.27 \times 10^2 \text{ kg}$,24 小时平均时段烟花爆竹排放 $\text{PM}_{2.5}$ 总量分别为 $2.21 \times 10^3 \text{ kg}$ 和 $1.45 \times 10^3 \text{ kg}$. 由于烟花爆竹管控,2019 年烟花爆竹燃放对 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度和排放量的贡献较 2018 年显著下降.

参考文献 (References)

[1] KONG S F, LI L, LI X X, et al. The impacts of fireworks burning at Chinese Spring Festival on air quality and human health: insights of tracers source evolution and aging processes [J]. Atmospheric Chemistry and Physics Discussions, 2015, 14(21): 2167-2184.

[2] 程念亮, 陈添, 张大伟, 等. 2015 年春节北京市空气质量分析 [J]. 环境科学, 2015, 36(9): 3150-3158.

CHENG N L, CHEN T, ZHANG D W, et al. Air quality characteristics in Beijing during Spring Festival in 2015 [J]. Environmental Science, 2015, 36(9): 3150-3158(in Chinese).

[3] 王占山, 张大伟, 李云婷, 等. 2014 年春节期间北京市空气质量分析 [J]. 环境科学学报, 2015, 35(2): 371-378.

WANG Z S, ZHANG D W, LI Y T, et al. Analysis of air quality in Beijing City during Spring Festival period of 2014 [J]. Acta Scientiae Circumstantiae, 2015, 35(2): 371-378(in Chinese).

[4] 刘慧萍, 张凯, 柴发合, 等. 烟花爆竹燃放对北京大气污染物和水溶性无机离子的影响 [J]. 环境科学研究, 2017, 30(6): 844-853.

LIU H P, ZHANG K, CHAI F H, et al. Effects of fireworks on gaseous pollutants and water-soluble inorganic ions in the atmosphere [J]. Research of Environmental Sciences, 2017, 30(6): 844-853(in Chinese).

[5] 操晚, 唐逸, 薛鹏, 等. 烟花爆竹燃放对天津市空气质量的影响研究 [J]. 气候与环境研究, 2018, 23 (2): 210-220.

- CAO W, TANG M, XUE P, et al. Analysis on the characteristics and formation mechanisms of air pollution episodes in Tianjin during spring festival of 2015[J]. Climatic and Environmental Research, 2018, 23 (2): 210-220 (in Chinese).
- [6] WU C, WANG G H, WANG J Y, et al. Chemical characteristics of haze particles in Xi'an during Chinese Spring Festival: Impact of fireworks burning [J]. Journal of Environmental Sciences, 2018, 71(4): 179-187.
- [7] 王磊, 刘端阳, 孙燕, 等. 春节期间燃放烟花爆竹对南京市环境空气的影响[J]. 能源环境保护, 2018, 32(1): 59-64.
WANG L, LIU D Y, SUN Y, et al. The effect of setting off fireworks at Spring Festival on air environment in Nanjing [J]. Energy Environmental Protection, 2018, 32(1): 59-64(in Chinese).
- [8] 赵伟, 范绍佳, 谢文彰, 等. 烟花燃放对珠三角地区春节期间空气质量的影响[J]. 环境科学, 2015, 36(12): 4358-4365.
ZHAO W, FAN S J, XIE W Z, et al. Influence of burning fireworks on air quality during the Spring Festival in the Pearl River Delta[J]. Environmental Science, 2015, 36(12): 4358-4365(in Chinese).
- [9] 马莹, 吴兑, 刘建. 珠三角春节期间PM_{2.5}及水溶性离子成分的变化——以2012年为例 [J]. 中国环境科学, 2016, 36(10): 2890-2895.
MA Y, WU D, LIU J. The characteristics of PM_{2.5} and its water soluble ions during Spring Festival in PRD in 2012 [J]. China Environmental Science, 2016, 36(10): 2890-2895(in Chinese).
- [10] 付翔, 龚志军, 孙艳, 等. 2014—2017年除夕期间燃放烟花对南昌市空气PM_{2.5}的影响[J]. 合肥工业大学学报(自然科学版), 2019, 42(5): 683-686.
FU X, GONG Z J, SUN Y, et al. Impacts of fireworks on PM_{2.5} in Nanchang City during New Year's Eve from 2014-2017[J]. Journal of Hefei University of Technology (Natural Science), 2019, 42(5): 683-686(in Chinese).
- [11] 沈利娟, 李莉, 吕升, 等. 嘉兴市春节期间烟花爆竹燃放对大气污染物分布特征的影响[J]. 环境科学学报, 2016, 36(5): 1548-1557.
SHEN L J, LI L, LV S, et al. Impacts of fireworks on the atmospheric pollution distributions during Spring Festival in Jiaxing[J]. Acta Scientiae Circumstantiae, 2016, 36(5): 1548-1557(in Chinese).
- [12] 耿红, 宣莹莹, 蔡夏, 等. 太原市2014年春节期间常规大气污染物浓度变化及聚类分析[J]. 环境科学学报, 2015, 35(4): 965-974.
GENG H, XUAN Y Y, CAI X, et al. Mass concentration variation and cluster analysis of urban air pollutants in Taiyuan, Shanxi Province during Chinese New Year of 2014[J]. Acta Scientiae Circumstantiae, 2015, 35(4): 965-974(in Chinese).
- [13] 赵金平, 徐亚, 张福旺, 等. 泉州郊区春节燃放烟花时段大气污染特征[J]. 环境科学, 2011, 32(5): 1224-1230.
ZHAO J P, XU Y, ZHANG F W, et al. Atmospheric pollution characteristic during fireworks burning time in Spring Festival in Quanzhou Suburb[J]. Environmental Science, 2011, 32(5): 1224-1230(in Chinese).
- [14] 王伟, 尹建康, 张欣荣, 等. 2018年春节期间烟花爆竹燃放对银川市空气质量的影响 [J]. 环境化学, 2019, 38(9): 2018-2026.
WANG W, YIN J K, ZHANG X R, et al. Influence of burning fireworks on air quality during Spring Festival of 2018 in Yinchuan [J]. Environmental Chemistry, 2019, 38(9): 2018-2026(in Chinese).
- [15] 周变红, 王格慧, 张承中, 等. 春节期间西安市南郊细颗粒物中水溶性离子的污染特征 [J]. 环境化学, 2013, 32(3): 498-504.
ZHOU B H, WANG G H, ZHANG C Z, et al. Pollutions characteristics of water-soluble ions of fine particle during spring festival over Xi'an southern [J]. Environmental Chemistry, 2013, 32(3): 498-504(in Chinese).
- [16] 林瑜, 叶芝祥, 杨怀金, 等. 2015年春节成都市郊大气PM₁污染特征分析 [J]. 环境化学, 2019, 38(4): 721-728.
LIN Y, YE Z X, YANG H J, et al. Pollution characteristics of atmospheric PM₁ in suburban Chengdu City during the 2015 Spring Festival [J]. Environmental Chemistry, 2019, 38(4): 721-728(in Chinese).
- [17] 胡丙鑫, 段青春, 刘世杰, 等. 2018年春节期间京津冀及周边地区烟花禁放效果评估[J]. 环境科学研究, 2019, 32(2): 203-211.
HU B X, DUAN J C, LIU S J, et al. Evaluation of the effect of fireworks prohibition in the Beijing-Tianjin-Hebei and surrounding areas during the Spring Festival of 2018[J]. Research of Environmental Sciences, 2019, 32(2): 203-211(in Chinese).
- [18] 杨雪, 张祥志, 汤莉莉, 等. 烟花禁燃对南京市春节期间PM_{2.5}及其组分的影响研究[J]. 环境科学与管理, 2017, 42(11): 131-134.
YANG X, ZHANG X Z, TANG L L, et al. Effects of fireworks banning on PM_{2.5} and its components during Spring Festival in Nanjing City[J]. Environmental Science and Management, 2017, 42(11): 131-134(in Chinese).
- [19] 黎常成. 禁止燃放烟花爆竹对城市环境空气质量的影响[J]. 广东化工, 2018, 45(17): 203-206.
LI C C. The Effect of the prohibition of fireworks and firecrackers on the air quality of the urban environment[J]. Guangdong Chemical Industry, 2018, 45(17): 203-206(in Chinese).
- [20] 海南省人民政府办公厅. 关于加强大气污染防治“六个严禁两个推进”工作的通知[EB/OL]. [2020-12-3]. <http://www.hainan.gov.cn/hainan/szfbgtwj/201901/01ed496e512849a6a0f801ce9a0e3e00.shtml>.
General Office of Hainan Provincial People's Government. Notice on strengthening the air pollution prevention and control work of "six prohibitions and two promotions"[EB/OL]. [2020-12-3]. <http://www.hainan.gov.cn/hainan/szfbgtwj/201901/01ed496e512849a6a0f801ce9a0e3e00.shtml>.
- [21] 陈威, 邢延峰, 孟庆庆, 等. 春节期间烟花爆竹燃放对哈尔滨市市区空气质量的影响[J]. 中国环境监测, 2018, 34(5): 54-60.
CHEN W, XING Y F, MENG Q Q, et al. Influence of burning fireworks on air quality during the Spring Festival in Harbin City[J]. Environmental Monitoring in China, 2018, 34(5): 54-60(in Chinese).
- [22] 邹强, 姚玉刚. 春节烟花爆竹燃放期间苏州市区PM_{2.5}组分特征分析[J]. 中国环境监测, 2014, 30(4): 100-106.
ZOU Q, YAO Y G. The analysis of characteristics of PM_{2.5} components during set-off fireworks period of Spring Festival in Suzhou City[J]. Environmental Monitoring in China, 2014, 30(4): 100-106(in Chinese).
- [23] 王哲, 王自发, 郑海涛. 一种评估烟花爆竹燃放对大气PM_{2.5}影响的新方法[J]. 中国环境监测, 2014, 30(3): 31-36.
WANG Z, WANG Z F, ZHENG H T. A new method to estimate the impacts of fireworks on airborne PM_{2.5}[J]. Environmental Monitoring in China, 2014, 30(3): 32-36(in Chinese).
- [24] 金军, 王英, 李令军, 等. 北京春节期间大气颗粒物污染及影响[J]. 环境污染与防治, 2007, 29(3): 229-232.
JIN J, WANG Y, LI L J, et al. Particles pollution and impact caused by fireworks in Beijing during Spring Festival[J]. Environmental Pollution & Control, 2007, 29(3): 229-232(in Chinese).