# 27 2013—2020年北京市城区PM2.5及其化学组分正增长机制研究

28

江 琪<sup>1,2</sup> 张碧辉<sup>1\*</sup> 赵有龙<sup>3</sup> 王飞<sup>4</sup> 孙业乐<sup>5</sup>

- 29 1. 国家气象中心,北京,100081
- 30 2. 中国气象局交通气象重点实验室, 江苏南京, 210008
- 31 3. 河北省邯郸市气象局,河北 邯郸 056001
- 32 4. 中国气象科学研究院,北京,100081
- 33 5. 中国科学院大气物理研究所,大气边界层物理和大气化学国家重点实验室,北京 100029

34 摘要

2013年以来,北京市城区PM25质量浓度年均值呈逐年降低趋势,但PM25重污染 35 事件仍旧频发,污染出现快速甚至爆发增长的成因和理化机制仍存在诸多不确定 36 性。基于北京市城区2013—2020年常规气象要素、PM25及其化学组分观测资料, 37 分析了PM25在缓慢、快速和爆发三种增长机制下的颗粒物浓度和组分的阈值及 38 其与气象条件的相关关系。结果表明,2013—2020年,北京市城区PM25在增长 39 时段(1-24h间隔)中平均累积速率呈逐年放缓的趋势,大气污染累积阶段中缓 40 慢增长的比重逐年升高。在判别标准逐渐严苛的前提下,爆发增长的比重逐年变 41 化不大(4%—7%)。2013—2016年爆发增长的PM25浓度阈值为62 µg m-3, 2017 42 年后,该阈值严苛至45 µg m<sup>-3</sup>。82 µg m<sup>-3</sup>为2018年以来极易出现PM<sub>25</sub>爆发增长的 43 界限值,高于此值后爆发增长的概率将大幅提升。有机物(Org)在爆发增长中 44 起到了至关重要的作用。同一时间间隔Org在亚微米气溶胶(PM<sub>1</sub>)增长浓度中 45 的贡献缓慢增长<快速增长<爆发增长,其中一次有机气溶胶(POA)在快速和 46 爆发增长中对Org增长浓度的贡献平均超过50%,高于研究时段40%的平均占比。 47 无机组分中, SO4<sup>2-</sup>在PM1增长浓度中的贡献爆发增长(13%)>快速增长(11.8%)> 48 缓慢增长(11.1%),NO3<sup>-</sup>的贡献相反。二次气溶胶(SPM)在累积阶段的贡献 49 高于一次气溶胶(PPM),但爆发增长中,PPM在污染增长中贡献(最高达45%) 50

#### 收稿日期 2021-12-21; 网络预出版日期

作者简介 江琪,女,1989年出生,主要从事大气环境预报和气溶胶相关研究工作。E-mail:Jiangqi89@163.com 通讯作者 张碧辉, E-mail: bihui\_zhang@qq.com

- **资助项目**国家重点研发计划项目(2019YFC0214602)、国家自然基金(41875181)、中国气象局气象预报业 务关键技术发展专项(YBGJXM(2019)02-02)、国家气象中心预报员专项(CMAYBY2021-092)以及南京气 象科技创新研究院北极阁基金(BJG202106)
- Funded by National Key Research and Development Program (2019YFC0214602), National Natural Science Foundation of China (41875181), China Meteorological Administration's special project for the development of key technologies for meteorological forecasting (YBGJXM(2019)02-02), National Meteorological Center Forecaster Special (CMAYBY2018-092) and Arctic Pavilion Fund of Nanjing Institute of Meteorological Science and Technology Innovation (BJG202106)



51	明	显高于平均时段的33%,PPM在爆发增长中的贡献不可小觑。秋冬季的爆发增
52	ĸ	开始后,温度有所降低(0.2—1.2℃),而湿度和气压明显升高。北京城区爆发
53	增	长中主要的气团来向为偏南向(三个高度占比分布为69%—82%),其次为偏
54	东	方向(12%—20%)。
55	关	键词 爆发增长 化学组分 阈值 气象要素 PM <sub>2.5</sub> 污染累积
56	文	章编号 2021142C 中图分类号 文献识别码
57	doi	:10.3878/j.issn.1006-9895.2110.21142
58		MA REX
59		Research on the growth mechanism of $PM_{2.5}$ and its chemical
60		components in Beijing urban area from 2013 to 2020
61	JIA	NG Qi <sup>1,2</sup> ZHANG Bihui <sup>1</sup> ZHAO Youlong <sup>3</sup> WANG fei <sup>4</sup> SUN Yele <sup>5</sup>
62	1.	National Meteorological Centre, Beijing 100081,China
63	2.	Key Laboratory of Transportation Meteorology, CMA, Nanjing 210008, China
64	3.	Handan Meteorological Bureau of Hebei Province, Handan 056001, Hebei, China
65	4.	Chinese Academy of Meteorological Sciences, Beijing 100081
66	5.	State Key Laboratory of Atmospheric Boundary Layer Physics and Atmospheric Chemistry, Institute
67		of Atmospheric Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100029, China

## 68 Abstract

69 Since 2013, the annual average mass concentration of PM<sub>2.5</sub> in Beijing's urban area has been decreasing year by year, but heavy PM2.5 pollution incidents have 70 continued to occur frequently, and there are still many uncertainties in the causes and 71 physical and chemical mechanisms of the rapid or even explosive growth of pollution. 72 73 This study analyzes the thresholds of conventional meteorological elements, PM<sub>2.5</sub> and its chemical components under three growth mechanisms of slow, rapid and 74 explosive growth, as well as the correlation between the changes in meteorological 75 76 elements and the increase in pollutant concentration from 2013 to 2020 in Beijing 77 urban area. The results showed that from 2013 to 2020, the average accumulation rate of PM<sub>2.5</sub> showed a trend of slowing down, and the proportion of slow growth in the 78

accumulation phase of PM<sub>2.5</sub> increased year by year in Beijing. Under the premise that 79 the criterion is gradually strict, the proportion of explosive growth has not changed 80 much year by year (4% - 7%). The PM<sub>2.5</sub> concentration threshold for an explosive 81 increase from 2013 to 2016 was 62 µg m<sup>-3</sup>, and after 2017, the threshold was strict to 82 45  $\mu$ g m<sup>-3</sup>. 82  $\mu$ g m<sup>-3</sup> is the threshold value that is extremely prone to explosive 83 growth of PM<sub>2.5</sub> since 2018. After this value, the probability of explosive growth will 84 increase significantly. Organic aerosol (Org) played a vital role in the explosive 85 86 growth. In the same time interval, the contribution of Org to the growth concentration of submicron aerosol species  $(PM_1)$  is slow growth < fast growth < explosive growth, 87 and the contribution of primary OA (POA) in rapid and burst growth to Org growth 88 concentration on average exceeds 50%, which is higher than the average proportion of 89 40% during the study period. Among the inorganic components, the contribution of 90  $SO_4^{2-}$  in increasing concentration of PM<sub>1</sub> shows explosive growth (13%) > fast 91 growth (11.8%) > slow growth (11.1%), while the contribution of  $NO_3^-$  is opposite. 92 The contribution of secondary particulate matters (SPM) in the cumulative phase is 93 94 higher than that of primary particulate matters (PPM), but in the explosive growth, the contribution of PPM to the pollution increase (up to 45%) is significantly higher than 95 33% in the average period, indicating that the contribution of PPM to the explosive 96 growth cannot be underestimated. After the explosive growth began, the temperature 97 decreased (0.2-1.2  $^{\circ}$ ), while the humidity and pressure increased significantly in 98 autumn and winter. The main air mass in the explosive growth is southward (the three 99 heights account for 69%-82%), followed by the eastward direction (12%-20%) in 100 Beijing urban area. 101

Keywords: Explosive growth; Chemical composition; Threshold; Meteorological
element; PM<sub>2.5</sub>; Pollution accumulation.

- 104
- 105 引言

13

106 华北平原是中国地区大气污染最严重的地区之一(Cai et al., 2017; Zhang et al., 2012),其
 107 大气污染处于煤烟-汽车尾气复合型作用的阶段。多种污染物中,高浓度的细粒子(PM<sub>2.5</sub>)

108 是最为主要的气溶胶污染物(Zhang et al., 2008), 也是诱发霾天气的主要成因(Zhang et al., 2010)。影响PM25生消的主要成因包括气象因素、化学反应过程以及排放源(Liu et al., 2020; 109 Wang et al., 2017; Xu et al., 2021)。在排放稳定的一段时间内,不利气象条件是持续性重污染 110 形成、累积的必要外部条件(张小曳等, 2020)。其中大尺度天气系统所带来的动力和热力效 111 应是重污染事件周期性形成的关键性因素,而边界层内多种气象因子的变化直接影响本地污 112 染物的形成、累积以及外来污染传输的贡献。张小曳等人(2020)的研究表明,京津冀冬季不 113 利的气象要素可导致PM25浓度较其他季节上升约40%~100%。京津冀地区重污染的形成主要 114 115 发生在平直西风带和高压脊两种高空环流中,并伴随西南和东南向两个污染物的主要传输通 道(Wu et al., 2017)。此外,二次转化反应也是霾天气发生发展的重要因子之一(Lei et al., 116 2020)。通过液相和非均相反应生成的二次颗粒物,如硫酸盐、硝酸盐等在污染发生时的贡 117 118 献显著增加(江琪等, 2013),也在一定条件下促使了有机气溶胶的生成,而强烈光化学反应 下二次有机气溶胶的快速形成可导致更严重的大气污染(Wang et al., 2016)。 119

研究表明(Zhang et al., 2015; Zhong et al., 2017), 当PM2, 浓度增长到一定程度后其浓度的 120 增大会进一步导致边界层气象条件的进一步转差,不利的大气扩散条件进一步促使污染物的 121 累积,两者间形成显著的"双向反馈"和"恶性循环"效应(Liu et al., 2019)。污染物在累积的各 122 123 个阶段表现出不同的增长速率,不同气象条件下可能表现为缓慢增长、快速增长,以及污染 后期可能出现的一小时或几小时内增长几十甚至上百微克每立方米的"爆发性增长"现象。有 124 关污染物快速乃至爆发性增长的成因没有定性的结论, Wang等人(2014)通过模拟研究认为气 125 溶胶的二次转化和成核效应导致了污染的快速增长,Zheng等人(2015)则认为污染物的跨区 126 域输送起到了更主要的作用,Zhong等人(2017)的研究将污染的快速增长更多的归因为气象 127 因素的作用,其研究认为70%以上的PM2.5增幅可归因为边界层气象条件显著转差后的反馈 128 作用。 129

2013年,《大气污染防治行动计划》的推动实施后,京津冀地区的重霾污染天数持续减 130 131 少,PM25年均值逐年降低,但不利气象条件的出现仍会导致持续性重污染的出现,如2020 年新冠疫情导致大幅度减排的前提下,1月25—28日、2月8—14日北京仍出现两次持续性重 132 污染事件。污染过程中,污染物的累积速率与污染物浓度密切相关, Zhong等人(2019)对北 133 京2013—2017年12次重污染事件的研究结果认为爆发性增长机制触发时PM25浓度阈值约为 134 100μg m<sup>-3</sup> (严格为71 μg m<sup>-3</sup>)。面对逐年降低的PM<sub>2.5</sub>浓度,这一阈值是否发生变化? 污染物 135 增长速率,特别是爆发性增长次数是否也逐年降低?不同增长速率时PM,5化学组分的贡献 136 如何? PM25的累积速率与气象因子的变化是否有显著的相关性? 基于上述问题,本研究利 137

138 用北京市城区2013—2020年PM<sub>2.5</sub>质量浓度、多种气象要素以及化学组分资料,分析气象要
139 素、PM<sub>2.5</sub>及其化学组分在缓慢、快速和爆发性三种增长机制下的阈值和逐年变化情况,并
140 探究气象要素的变化量与污染物浓度增长的相关关系,以期为污染过程中PM<sub>2.5</sub>预报准确率

141 的提高提供数据支撑。

### 142 1. 数据

本研究使用的2013—2020年的PM25逐小时资料来自中国环境监测总站网站 143 (http://www.cnemc.cn [2021-03-01]) 提供的北京8个城区国控站(天坛、万寿西宫、农展馆、 144 奥体中心、东四、古城、官园 、万柳)均值。气象要素(包括温度、湿度、风速、风向、 145 气压等)来自6个中国气象局北京市城区国家站的平均值,时间分辨率为1h。混合层高度的 146 计算采用罗氏法,该方法为通过地面气象要素实现对混合层高度的估算。考虑到大气混合层 147 148 是热力和动力湍流共同作用的结果,且由于地面气象要素与边界层上部大气运动间存在着紧 密的关联,因而可利用地面气象参数估算混合层高度,详见吕梦瑶等人(2019)的文章。使用 149 美国国家环境预报中心(NCEP) 的全球再分析资料( 气象场分辨率为191 km × 191 km) 对 150 每日后向运行的72 h 空气轨迹进行计算,起始高度选取为100m、300m和500m,时间分辨 151 152 率为1h(后向轨迹模式采用HYSPLIT4.9版本)。参与统计的数据均对有效降水时段进行了 153 剔除(小时降水量大于0.3 mm)。

颗粒物化学组分数据采样自中国科学院大气物理研究所铁塔分部(3958'28'N, 154 116°22'16'E)的二层楼楼顶,测量时间段为2012年7月至2013年5月。采样仪器为颗粒物化学 155 156 组分在线监测仪(Aerosol Chemical Speciation Monitor, ACSM),时间分辨率~15min, ACSM 157 主要检测范围为1µm以下的粒子(PM1),可以实现对有机物(Org)、硫酸盐(SO42-)、硝酸 盐( $NO_3^-$ )、铵盐( $NH_4^+$ )和氯化物(Chl)的实时在线测定,相关仪器原理和参数详见Sun 158 等人(2012)和Ng等人(2011)的参考文献。观测期间同时采用双波段黑碳仪 (Model AE22, 159 Magee Scientific Corporation) 和TEOM(1400a, Thermo Scientific)对黑碳(BC)和PM2.5的质量 160 161 浓度进行实时测定。此外,ACSM中有机组分的质谱谱图源解析采用正交矩阵因子分解法 (PMF),该方法相关原理和步骤详见Ulbrich(2009)等人的文献。 162

163 2. 结果分析

#### 164 2.1 2013年以来北京市城区PM2.5增长时段分类和逐年演变

165 为了探究北京市城区PM<sub>2.5</sub>在1h—1d内不同间隔时段中的增长规律,将2013—2020年所有
 166 PM<sub>2.5</sub>增长时段(增长率>0)的数据进行逐年筛选,参与统计的增长时段按照1—24小时间隔

(选取的数据满足1h间隔PM,,浓度增长率大于0、2h间隔PM,,浓度增长率大于0...24h间隔 167 PM25浓度增长增长率大于0)分别进行统计,统计结果见图1。PM25在该时间间隔(1-24 168 小时)内增长的浓度以+ΔPM25表示。定义增长时段中PM25的平均累积速率为该时间间隔的 169 +ΔPM25与间隔时效的比值。相同年份的横向比较中,随着间隔时效的增长,+ΔPM25显著升 170 高,但PM25的平均累积速率逐步降低,以2013年为例,12小时间隔时,+ΔPM25=54.6 μg m-3 171 (PM<sub>2.5</sub>的平均累积速率为4.6 μg m<sup>-3</sup>/h), 而达到24h间隔时, +ΔPM<sub>2.5</sub>可达70.3 μg m<sup>-3</sup> (PM<sub>2.5</sub> 172 的平均累积速率为3.0 µg m<sup>-3</sup>/h)。对2013—2020年进行纵向比较,同一时间间隔内,2013— 173 2020年逐年+ΔPM25均值表现为逐步降低的趋势: 1h间隔时, 2013年+ΔPM25=19.2 μg m<sup>-3</sup>, 174 2017年为14.6 μg m<sup>-3</sup>, 2020年降低至12.2 μg m<sup>-3</sup>, +ΔPM<sub>2.5</sub>的下降率~1.0±0.6 μg m<sup>-3</sup>/年。同时, 175 相同时间间隔时,PM25的平均累积速率也呈逐年放缓的趋势,如到2019年,+ΔPM25在12h 176 间隔时为28.0 μg m<sup>-3</sup> (PM<sub>2</sub>5的平均累积速率为2.3 μg m<sup>-3</sup>/h), 24h间隔+ΔPM<sub>2</sub>5=31.4 μg m<sup>-3</sup> 177  $(PM_{2.5}$ 的平均累积速率为1.3  $\mu g m^{-3}/h$ ),  $PM_{2.5}$ 在相同时间间隔的平均累积速率显著低于 178 2013年。综合来看,2013年以来,除了PM25质量浓度年均值逐年降低外,+ΔPM25的年均值 179 以及增长时段中PM25的平均累积速率也呈逐年放缓的趋势。 180

181 将2013—2020年相同间隔的+ΔPM<sub>2.5</sub>进行平均(图1,彩色圆点,+ΔPM<sub>2.5</sub>-8Y),+ΔPM<sub>2.5</sub>-8Y
182 可认为是+ΔPM<sub>2.5</sub>在近8年的平均水平。2017年是一个分水岭,2017年以前(同一时间间隔),
183 年均+ΔPM<sub>2.5</sub>高于近8年的平均水平,2017年起,年均+ΔPM<sub>2.5</sub>降低至平均水平以下。如1h间
184 隔中,+ΔPM<sub>2.5</sub>-8Y=15.9µg m<sup>-3</sup>,2013年年均+ΔPM<sub>2.5</sub>高于这一均值25%,而2020年年均+ΔPM<sub>2.5</sub>
185 则低于8年平均水平的21%。



187 图 1 2013-2020 年(纵坐标左轴)中 1-24 小时间隔内(横坐标别分为间隔 lh、2h...24h)+ΔPM<sub>2.5</sub>
 188 年均值(图中刷色表)以及该间隔+ΔPM<sub>2.5</sub> 的 8 年均值(图中圆点,数值对应右轴和颜色标
 189 尺)

186



of+ APM<sub>2.5</sub> (dots in the figure, value corresponds to the right axis and the colorbar) from
 2013-2020 (the left axis of the ordinate) within the 1-24 hour interval (the abscissa is divided
 into intervals of 1h, 2h...24h)

194

195 污染物在累积过程中呈现出不同的增长速率,可能表现为逐步的缓慢积累,或是快速的 积累,甚至表现出浓度剧烈升高的现象。根据PM25的累积浓度值,本研究将污染的累积阶 196 段定义为缓慢(HM)增长、快速(KS)增长和爆发(BF)增长三个阶段。对于三种增长 197 198 方式的确定,共考虑两种方案,方案1为同一时间间隔给出某一确定的阈值,如2013—2020 199 年该时间间隔(k=1,2,...24)8年内的增长均值(Ak)(图1圆点),缓慢增长(HMk)定义为 该间隔内增长浓度小于A<sub>k</sub>,即HM<sub>k</sub><A<sub>k</sub>;快速增长(KS<sub>k</sub>)的区间为该间隔的1到2倍之间, 200 即 $A_k \leq KS_k \leq 2^*A_k$ ;爆发增长(BF<sub>k</sub>)的区间为该间隔阈值2倍以上,即BF<sub>k</sub>>2\*A<sub>k</sub>。图2a-c为 201 采用方案1给出的逐年缓慢增长(图2a)、快速增长(图2b)以及爆发增长(图2c)在不同间 202 隔时间中所占的比重(统计数据均满足该间隔增长率>0)。由图可见,2013-2020年,缓慢 203 增长的比重逐步升高,到2020年,各时间间隔中缓慢增长的比重均达到85%以上,而快速增 204 长和爆发增长的比重均低于5%。间隔1h时,2013年爆发增长在所有增长时段中所占的比重 205 可达8.9%,但这一比重自2018年起降低至4%以下。造成这一现象主要原因为2013年以来北 206 207 京市城区中PM25年均值和+ΔPM25均呈逐步降低的趋势,大气背景浓度也随之发生改变,采 用相同临界值的条件下,在污染较重、背景浓度较高的年份可能在一定程度上高估了其中爆 208 发或是快速增长的比重,而对于近几年PM2.5浓度相对较低的年份,缓慢增长的贡献可能存 209 在一定的高估。 210

为了解决逐年大气背景浓度差异带来的影响,方案2采用2013-2020年逐年增长均值作 211 为该年该时间间隔的阈值Akvear(图1中刷色表),判断方法同方案1,缓慢增长(HMkvear)满 212 足HM<sub>k,vear</sub> <A<sub>k,vear</sub>,快速增长(KS<sub>k,vear</sub>)满足A<sub>k,vear</sub> << KS<sub>k,vear</sub> << 2\*A<sub>k,vear</sub>;爆发增长(BF<sub>k,vear</sub>) 213 为BF<sub>k,vear</sub>>2\*A<sub>k,vear</sub>。采用方案2对逐年不同时间间隔中三种增长方式所占的比重进行统计(图 214 2d-f)。由图可见,各时间间隔各年份中,缓慢增长的比重基本维持在70-85%,与方案1相 215 近,同一年份中随间隔时间增长,缓慢增长的比例呈下降趋势,lh间隔在各间隔的统计中缓 216 慢增长的比例最高,各年份均在78%以上。除2018年外,2013—2016年相同时间间隔时缓慢 217 增长的比重整体高于2017—2020年。与缓慢增长近乎相反,2013—2020年同一时间间隔中(除 218 2018年),快速增长的比重呈逐年下降趋势。其中2013-2015年中,时间间隔超过14h后,快 219 速增长所占比重高于20%,最高可达25%,而2020年各时间间隔中快速增长的比重最高为 220 19%。对于爆发增长,各年份的比重分布较为集中,基本维持在4%-7%之间。综上,采用 221

方案2后,三种增长方式的定义根据逐年大气背景条件进行了相应的调整,除2018年外,2013 222 以来缓慢增长在增长时段中所在的比重呈升高趋势,快速增长的比重有所降低,而爆发性增 223 长的比重变化不大(4%-7%)。因而,无论采用方案1或是方案2,2013年以来,大气污染 224 累积阶段中缓慢增长的比重均有所升高,大气污染的治理成效不光体现在PM2.5浓度均值的 225 降低,也体现在污染累积阶段污染物累积速率的放缓。如采用方案1,爆发增长的比重逐年 226 降低显著,但采用方案2后(根据当年PM2.5的增长情况确定的阈值条件下),爆发增长的比 227 重逐年差异较小,没有出现方案1下逐年降低的变化趋势。因而在逐年PM25浓度降低的情况 228 下,爆发增长判别标准逐渐严苛,减少爆发性增长对污染的恶化作用仍是一项重要的课题。 229





230 231

232

233



快速(KS)和爆发(BF)增长在总增长次数中所占比重的刷色图 Fig. 2 The proportion of slow (HM), rapid (KS) and explosive (BF) growth in the total number of growths under the two discrimination conditions of Plan 1 (ac) and Plan 2 (df) in the 1--24h interval from 2013 to 2020.

237 考虑到爆发增长对于污染累积阶段的重大影响作用,需量化爆发增长被触发时的相关阈
值。研究表明,PM<sub>2.5</sub>在爆发增长累积阶段起始时刻的浓度可在一定程度上代表其爆发增长
239 的浓度阈值(Zhang et al., 2018)。图 3 为采用方案 2 (逐年均值作为判别条件)和方案 1 (采
240 用 8 年均值作为判别条件)得到的爆发增长前 PM<sub>2.5</sub>质量浓度(下文简称爆发增长阈值)的
241 下四分位(25P)上四分位(75P)统计值。其中,下四分位的统计值可作为发生爆发增长
242 的参考阈值,而上四分位值表征超过这一临界值将极易发生爆发增长(Zhong et al., 2018; J
243 Zhong et al., 2019)。

244 考虑到 PM<sub>2.5</sub>浓度值基数的逐年降低,采用方案 2 更为合理,但由于判断条件中爆发增
245 长的判别标准不同,无法进行逐年比较,因而采用标准统一条件下的方案 1 进行对比验证。

方案 2 中 1h 间隔时爆发增长阈值统计值分布范围较广,但整体呈逐年下降趋势,2013 年最 246 高可达 134 µg m<sup>-3</sup>, 2020 年降低至 64 µg m<sup>-3</sup>。时间间隔超过 1h 后,爆发增长阈值逐年降低 247 趋势虽不明显,但以 2017 年为界,前期的阈值明显高于后期。2013-2016 年各间隔中爆发 248 增长阈值最低为 62 µg m<sup>-3</sup>, 略低于 Zhong 等人(2019)提出的北京 PM25 爆发增长的严格阈值 249 (71µg m<sup>-3</sup>),一方面, Zhong 等人的研究时段为污染较重的冬季(2013-2017年),与此同 250 时 62 µg m<sup>-3</sup> 也为本研究中阈值的最低浓度。2017 年起,各时效间隔 PM<sub>2.5</sub> 浓度阈值明显降 251 低,主要分布在 45—75 µg m<sup>-3</sup>之间。如果采用方案 1 (图 3), 2013—2017 年爆发增长的阈 252 值仍明显高于 2018—2020 年。因而, 2017 年后, 随着空气质量的逐年改善, 更为严格的阈 253 值将提出,如能将污染物浓度控制在 45 µg m<sup>-3</sup> 以内,可明显降低爆发性增长发生的概率, 254 减少污染过程,特别是重污染过程的发生次数。

方案 2 中上四分位统计值的分布区间为 82-242 µg m<sup>-3</sup>, 2013-2017 年极易发生爆发增 256 长的 PM<sub>2.5</sub> 浓度值基数较高, 5h 间隔内的统计值均高于 150 μg m<sup>-3</sup>, 而 2018 年起, 这一基 257 数值明显降低,特别是超过 5h 间隔后这一基数值降低至 100 µg m<sup>-3</sup> 以内。82 µg m<sup>-3</sup>为 2018 258 年以来 24h 内极易出现 PM25 爆发增长的最低统计值,一旦高于此值,出现爆发增长的概率 259 将大大提升。采用方案1时极易发生爆发增长的PM25浓度值与方案2的分布区间差异不大, 260 261 浓度变化界限也同样为 2018 年,2018—2020 年极易发生爆发增长的 PM,5 浓度值较 2018 年以前明显降低。 262



263

255

264

2013-2020 年 1-24h 间隔中采用方案 1(下)和方案 2(上)两种判别条件下 图 3 爆发增长发生前 PM25 浓度值的下四分位(25P)和上四分位数(75P)刷色图 265 266 Fig. 3 The lower quartile (25P) and upper quartile (75P) of the PM<sub>2.5</sub> concentration before the explosive growth occurs under the scheme 1 (bottom) and scheme 2 (top) in the 1--24h 267 268 interval from 2013 to 2020.

269

#### 270 2.2 化学组分

图4为2012年7月至2013年5月期间1—24h间隔内满足PM2.5缓慢(HM)、快速(KS)和爆 271 发(BF) 增长中PM<sub>1</sub>(PM<sub>1</sub> = Org + SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> + NO<sub>3</sub><sup>-</sup> + NH<sub>4</sub><sup>+</sup> + Chl + BC)各组分增长值在PM<sub>1</sub>总 272 增长值中所占的比重(图4),图中紫色圆点分别表示三种增长方式在全部增长时段中所占 273 的比重。该时间段使用的PM2.5数据为与仪器ACSM同一地点同步观测的TEOM PM2.5资料。 274 三种增长方案的界限值Akvear采用方案2(统计时间段为2012年7月—2013年5月)得到。PM1 275 和PM2.5有较好的相关性(Jiang et al., 2015; Sun et al., 2016),统计时间段中各季节中PM1在 276 PM25中比重在0.72-0.83之间(平均0.75)。通过源解析受体模型(PMF)将观测期间的Org 277 解析为一次有机气溶胶(HOA)和二次有机气溶胶(OOA),Org=HOA+OOA。由图4可见, 278 随着时间间隔的加大,三种增长方式中的Org,特别是其中HOA的增长浓度在PM,总增长浓 279 度中所占的比重有所降低,缓慢增长中,1h间隔的HOA增长值占比为0.27,而24h间隔时HOA 280 增长值占比降低至0.15,与之相反,无机盐( $SO_4^{2-} + NO_3^{-} + NH_4^{+} + Chl$ )增长值的贡献随着 281 间隔的增大有所加大,而黑炭增长值的比重变化不大。同一时间间隔中,Org增长值的贡献 282 缓慢增长<快速增长<爆发增长,其贡献在不同间隔中的分布区间分别为0.39—0.51(均值 283 284 0.43)、0.43-0.53(均值0.47)和0.46-0.57(均值0.49)。

285 快速和爆发增长中,一次有机组分(POA,本研究中=HOA)对Org增长浓度的贡献平均
286 超过50%(图5),高于研究时段中POA平均占比(~40%),而HOA主要来自交通源,体现
287 出快速和爆发增长中交通源对污染物累积的重要贡献。但对于缓慢增长,随间隔时效增大,
288 二次有机气溶胶(SOA,本研究中=OOA)对增长浓度的贡献逐步增大,5h间隔起,SOA的
289 贡献开始高于POA,至24h时效时,SOA占比可达61%,与研究时段中SOA平均占比相当。

290 对于无机盐组分,爆发增长各时间间隔中SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>增长值在总增长浓度中的贡献平均为
291 13%,高于缓慢(11.1%)和快速增长(11.8%)。NO<sub>3</sub><sup>-</sup>的贡献则相反,各时间间隔均表现
292 为爆发<快速<缓慢增长。其中,缓慢和快速增长中,NO<sub>3</sub><sup>-</sup>的增长浓度均为无机盐增长值中
293 占比最高的组分,特别是在缓慢增长中,NO<sub>3</sub><sup>-</sup>在无机组分增长浓度中的贡献可达42%—46%。
294 在爆发增长中,三种主要的无机组分(NO<sub>3</sub><sup>-</sup>+SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>+NH<sub>4</sub><sup>+</sup>)增长值的贡献差异不大(均约分
295 布在30%—35%)。

296 研究时段中,二次气溶胶(SPM=SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>+NO<sub>3</sub><sup>-</sup>+NH<sub>4</sub><sup>+</sup>+OOA)是PM<sub>1</sub>中最重要的组成成
 297 分,均约占PM<sub>1</sub>的67%,其对大气消光影响显著(江琪等,2013)。增长时段中,SPM在累积污
 298 染物中的贡献仍明显高于一次气溶胶(PPM=Chl + BC+HOA),且随着间隔时效的增长,

299 SPM的贡献呈逐步增大的趋势(图6)。虽然三种增长阶段中SPM的贡献均高于50%,但时
300 间间隔低于15h的快速增长,以及全部间隔的爆发增长中,SPM在污染物增长中贡献均低于
301 平均时段的67%,特别是爆发增长中,PPM的最高贡献最高可达45%。而PPM主要来自本地
302 生物质燃烧、交通和餐饮排放,因而,污染物快速增长,特别是爆发增长中一次气溶胶对污
303 染累积的贡献不可小觑。



304

305 图 4 2012 年 7 月—2013 年 5 月 1—24h 间隔内缓慢(HM)、快速(KS)和爆发(BF)增长
 306 中 PM<sub>1</sub>各组分增长值在 PM<sub>1</sub>总增长值中所占比重以及三种增长方式次数在所有增长时段中
 307 所占的比重(紫色圆圈)

308	Fig.4 The growth rate of each component of $PM_1$ in slow (HM), rapid (KS) and explosive (BF)
309	growth and the proportion of the three growth methods in all growth periods (purple circle) in the
310	1-24h interval from July 2012 to May 2013.











中的平均贡献77%进行推算,研究时段中PM25爆发性阈值为127.9 µg m<sup>-3</sup>,略低于2013年 323 135 µg m<sup>-3</sup>的阈值(上文得到)。图8给出了1h间隔时PM<sub>1</sub>各组分在全部增长阶段(GP)、缓 324 慢、快速和爆发增长中质量浓度的增加值。爆发增长中,Org的平均增长浓度可达33 µg m<sup>-3</sup>, 325 为GP中平均增长浓度的4.2倍。研究时段中Org平均贡献PM1的~42%,而爆发增长累积的污 326 染物中Org的平均贡献可达57%。尽管二次无机组分在雾霾期间的贡献量大为增加,三种主 327 要的无机组分SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>和NH<sub>4</sub><sup>+</sup>在爆发增长中平均增长浓度值分别为快速增长和缓慢增长 328 的2一3倍和4一6倍,其二次转化生成反应是霾形成的一个重要因素(Guo et al., 2010; Huang et 329 al., 2012), 但有机气溶胶在霾发展演化,特别是爆发性增长累积过程中起到了至关重要的作 330

331 用。

332

340



333 图 7 1h 间隔时 PM<sub>1</sub> 各组分在爆发增长发生前的质量浓度统计图,圆点为平均值,竖线分别
 334 为第 10 百分位(下)和第 90 百分位数(上),横线自上而下分别为第 25、50 和 75 百分位
 335 数(下图同)。

Fig.7 Statistical graph of the mass concentration of each component of PM1 before the explosive growth occurred in 1h interval. The dot is the average, the vertical line is the 10th percentile (bottom) and the 90th percentile (top), and the horizontal line is the 25th, 50th, and 75th percentile from top to bottom (the picture below is the same).

Increase Conc. / µg/m GP НМ 8 4 رف 0 SO<sup>2</sup> 2 NH₄<sup>†</sup> BC NO<sub>3</sub> Chl NO<sub>3</sub> вс Org Org SO₄ NH4 Chl ' µg/m 50 -BF 40 Conc. / 30 20 Increase 10 0 SO42 SO₄<sup>2-</sup> вс NO<sub>3</sub> NO<sub>3</sub> вс Org NH, Chl Org NH₄ Chl

341

342 图 8 1h 间隔时 PM<sub>1</sub>各组分在全部增长阶段(GP)、缓慢(HM)、快速(KS)和爆发增
 343 长(BF)中的增长浓度统计值。

344 345 Fig.8 The statistical values of the growth concentration of each component of PM<sub>1</sub> in all growth stages (GP), slow (HM), fast (KS) and explosive growth (BF) at 1h interval.

346

347 2.3 增长过程与气象因子的关联性研究

在排放源稳定时,大气污染的时空变化特征主要取决于气象因素。研究表明,影响大气 348 污染物生消、扩散、气粒转化和二次生成的气象因素主要包括湿度、温度、气压、混合层高 349 度、风以及降水等(Liu et al., 2020; Zhu et al., 2018)。2013—2020年中,缓慢、快速和爆发三 350 种增长阶段分别有~60%、~67%和~82%(1-24h平均)出现在秋冬季(9月一次年3月)。 351 为了避免季节因素对气象要素统计值的影响,本节仅对秋冬季(9月一次年3月)的增长过 352 程与气象因子关联性进行分析。图9和表1分别给出了秋冬季三种增长方式发生前气压、风 353 速、温度、湿度和混合层高度的统计值以及三种增长方式发生前后各气象要素的变化值(1 354 -24h间隔)。 355

同一间隔中(研究时段为秋冬季,下同),爆发增长前的气压值<快速增长<缓慢增长(图 356 9),以1h为例,爆发增长发生前的气压均值(1024.5hpa)明显低于快速(1025.0 hpa)和缓 357 慢增长(1025.4 hpa)。表1显示,爆发性增长开始后,气压值降低,且伴随间隔时效加长, 358 气压降低值逐步增大。缓慢和快速增长前后虽同样对应气压的降低,但降低幅度缓慢增长< 359 360 快速增长<爆发增长。风速方面,三种增长方式均发生于大气静稳形势下的静小风(<1.5m/s) 中,且在增长开始后大气水平扩散能力继续降低(风速的降低)。三种增长方式开始前的相 361 对湿度均值爆发增长>快速增长>缓慢增长。增长开始后,相对湿度虽均有一定增加,但以 362 爆发增长中相对湿度的增长最为显著,且随间隔时效增长,湿度增加值升高显著(lh间隔中 363 湿度的增长均值为3.5%, 24h间隔中湿度增长的均值可达16.6%)。由图8知,缓慢、快速和 364 爆发三种增长方式中, $NO_3$ 与 $SO_4$ <sup>2-</sup>增长浓度的比值分别为1.74、1.55和1.12。累积的污染物 365 中,爆发增长中SO42-所占的比重显著高于快速和缓慢增长。Sun等人的(2016)研究结果认为 366 秋冬季中随相对湿度升高,SO42-通过液相化学反应迅速升高,而NO3主要以颗粒物形式存 367 在, 气粒转化作用受到抑制, 白天的光化学反应成为NO3的主要生成机制。爆发增长发生时 368 的高湿环境以及持续增大的相对湿度的使得SO4<sup>2-</sup>的增长速率加快,累积的污染物中SO4<sup>2-</sup>所 369 占比重明显升高。与湿度相反,爆发增长前的温度均值为三种增长方式中最低,且随着爆发 370 增长的开始,温度进一步降低(0.2—1.2℃),其降低幅度明显高于其它两种增长方式。研究 371 表明,随温度降低POA的浓度将明显升高(Sun et al., 2014),也在一定程度上解释了爆发增长 372 中累积的Org中POA的较高占比。三种增长方式中混合层高度分布区间差异不大(平均值600 373 374 -800m).

375 综上,在污染物增长阶段开始前,高湿、静小风和低温为PM<sub>2.5</sub>快速乃至爆发增长提供了
376 有利的大气静稳环境,而增长开始后,进一步升高的湿度、降低的温度以及辐合的气流(气
377 压降低)为污染累积速率的提升提供了更加有利的气象条件。北京的重污染过程主要发生在
378 秋冬季,一方面采暖和交通排放量的增加加剧了颗粒物的排放,同时,高湿的大气环境也加
379 大了颗粒物的二次转化作用,增多的气溶胶粒子经过水汽的放大作用增强了地面的冷却效
380 应,有利于地面温度的进一步降低,增大了辐射逆温的概率。而辐射逆温概率的加大也促使
381 大气扩散能力的进一步降低,与污染物浓度的增长形成了"双向反馈机制"。



间	RH				Тетр			MLB			WS			Pres		
隔	HM	KS	BF	HM	KS	BF	HM	KS	BF	HM	KS	BF	HM	KS	BF	
1h	0.2	0.7	3.5	0.1	0.0	-0.2	-2.0	-1.8	0.1	0.0	0.0	-0.1	-0.1	-0.1	-0.1	
2 h	1.6	1.9	5.0	-0.1	0.0	-0.4	-0.5	-1.5	-4.0	0.0	0.0	-0.1	0.0	-0.1	-0.1	
3 h	2.4	3.1	6.2	-0.3	-0.1	-0.6	4.7	0.9	-5.7	-0.1	0.0	-0.1	0.0	-0.1	-0.1	
4 h	3.4	4.2	7.4	-0.4	-0.2	-0.7	12.3	5.1	12.2	-0.1	-0.1	-0.1	-0.1	-0.1	-0.2	
5 h	4.3	5.0	9.1	-0.5	-0.2	-1.0	20.3	10.8	18.4	-0.1	-0.1	-0.1	-0.1	-0.3	-0.2	
6 h	5.1	6.2	9.8	-0.6	-0.4	-1.1	27.7	20.3	32.4	-0.2	-0.1	-0.2	-0.2	-0.3	-0.3	
7 h	5.9	7.1	10.2	-0.7	-0.4	-1.1	41.3	17.5	43.6	-0.2	-0.1	-0.2	-0.3	-0.5	-0.4	
8 h	6.6	7.8	11.3	-0.7	-0.4	-1.2	53.6	21.5	48.3	-0.2	-0.2	-0.2	-0.4	-0.6	-0.6	
9 h	7.0	8.1	11.4	-0.8	-0.3	-1.1	59.6	16.4	33.1	-0.2	-0.2	-0.2	-0.5	-0.8	-0.8	
10 h	7.5	8.7	11.8	-0.8	-0.4	-1.1	59.0	20.5	16.6	-0.2	-0.2	-0.2	-0.6	-0.9	-1.0	
11 h	7.9	9.1	11.8	-0.8	-0.3	-0.9	57.7	15.8	-15.8	-0.2	-0.2	-0.3	-0.6	-1.0	-1.2	
12 h	8.2	9.2	12.1	-0.7	-0.2	-0.8	52.1	-2.0	-19.0	-0.3	-0.2	-0.3	-0.7	-1.2	-1.4	
13 h	8.3	9.4	11.7	-0.6	-0.2	-0.6	38.8	-5.1	-40.6	-0.3	-0.2	-0.3	-0.8	-1.3	-1.5	
14 h	8.3	9.8	11.4	-0.6	-0.1	-0.4	27.6	-15.9	-39.1	-0.2	-0.2	-0.3	-0.8	-1.4	-1.6	
15 h	8.2	9.8	11.9	-0.6	-0.1	-0.4	10.6	-14.8	-40.2	-0.2	-0.2	-0.2	-0.9	-1.5	-1.7	
16 h	8.1	10.1	11.7	-0.5	0.0	-0.2	-5.3	-13.5	-42.8	-0.2	-0.2	-0.2	-0.9	-1.6	-1.9	
17 h	7.8	10.4	12.2	-0.4	0.0	-0.2	-19.5	-13.3	-40.0	-0.2	-0.2	-0.2	-1.0	-1.7	-2.0	
18 h	7.6	10.5	12.3	-0.3	0.1	-0.2	-34.2	-6.8	-38.0	-0.2	-0.2	-0.2	-1.1	-1.9	-2.1	
19 h	7.5	10.6	12.7	-0.2	0.2	-0.2	-45.0	-13.2	-27.9	-0.2	-0.2	-0.2	-1.1	-2.0	-2.3	
20 h	7.3	10.8	13.1	-0.1	0.2	-0.3	-51.8	-4.1	-26.5	-0.2	-0.2	-0.2	-1.2	-2.2	-2.4	
21 h	7.2	11.0	13.9	0.1	0.3	-0.2	-56.1	-8.9	-10.4	-0.2	-0.2	-0.1	-1.3	-2.3	-2.6	
22 h	7.1	11.3	14.4	0.1	0.3	-0.2	-60.0	-9.5	-8.3	-0.2	-0.2	-0.1	-1.3	-2.4	-2.9	
23 h	7.1	11.5	15.6	0.2	0.3	-0.2	-60.2	-19.6	2.4	-0.2	-0.2	-0.2	-1.4	-2.6	-3.0	
24 h	7.1	11.7	16.6	0.2	0.4	-0.3	-63.4	-28.7	23.0	-0.2	-0.2	-0.2	-1.4	-2.7	-3.1	

392

对 2013—2020 年所有爆发增长阶段(1h间隔,污染物浓度升高后)的气团来向(72h) 393 394 进行后向轨迹分析,所选高度分别为100m、300m和500m,如图10,其中颜色为相对湿度。 进行统计的爆发增长阶段需满足增长后污染物浓度超过150µgm<sup>-3</sup>,满足条件的样本数为351 395 个。由图可见,爆发增长中气团在100m、300m和500m的高度中均主要来自偏南方向的河 396 北中南部以及河南中北部一带,其中,100m高度中偏南方向的气团来向达82%,其次为300m 397 高度,贡献 72%。100m 和 300m 高度中偏南方向的气团来向对应的相对湿度均较高,主要 398 分布区间分别为 55%—90%以及 45%—85%。除去偏南方向外,来自偏东方向气团在爆发增 399 长中也贡献一定的比例,其中 300m 高度中,偏东方向气团占总气团来向的 20%,由于偏东 400 方向的气团主要来自海上,携带的水汽含量较高,100m高度中偏东方向气团的相对湿度基 401 本高于 70%, 300m 和 500m 高度中气团相对湿度值虽有所降低, 但也普遍高于 60%。此外, 402 403 还有少部分的气团来自西北方向,100m、300m 和 500m 高度中分别贡献 6%、8%和 12%。

404 其中,57%的时段中,PM<sub>2.5</sub> 在 PM<sub>10</sub>中的比例较低,普遍低于 50%,同时 PM<sub>10</sub>浓度较高,
基本达到了 500μg m<sup>-3</sup>,且主要分布在 3—5 月,推测这一部分 PM<sub>2.5</sub>爆发增长的主要原因是
206 沙尘粒子中携带的细粒子导致。考虑到污染物的爆发增长可能主要由于风向辐合作用下污染
207 物的堆积产生,冷空气的作用下北京北部已经转为偏北风,而南部仍为偏南风向,此时污染
208 物在风向的辐合作用下容易产生污染物的迅速累积,剩余 43%西北来向的气团可能在风向
209 辐合的作用下发生污染物的爆发增长。



图 10 爆发增长中 100m、300m 和 500m 高度中 72h 污染物后向轨迹叠加图
Fig 10. Overlay of backward trajectories of pollutants at heights of 100m, 300m, and 500m during
the explosive growth

414 3. 结论

410

415 (1)2013—2020年,除PM<sub>2.5</sub>质量浓度年均值逐年降低外,北京城区PM<sub>2.5</sub>的平均累积速率
416 也呈逐年放缓的趋势。大气污染累积阶段中缓慢增长的比重逐年升高。在判别标准逐渐严苛
417 的前提下,爆发增长的比重逐年变化不大(4%—7%),减少爆发增长对污染的恶化作用仍
418 十分重要。

(2) 2013—2016年北京城区爆发增长的PM<sub>2.5</sub>浓度阈值为62µg m<sup>-3</sup>(各间隔中最低值),2017
年后,该阈值严苛至45µg m<sup>-3</sup>。82µg m<sup>-3</sup>为2018年以来极易出现PM<sub>2.5</sub>爆发增长的界限值(各
间隔中最低值),一旦高于此值,出现爆发增长的概率将大大提升。

422 (3) Org在爆发性增长中起到了至关重要的作用。同一时间间隔中,Org在PM<sub>1</sub>增长浓度中
423 的贡献缓慢增长<快速增长<爆发增长,其中快速和爆发增长中,POA对Org增长浓度的贡献</li>
424 平均超过50%,高于研究时段40%的平均占比,体现出交通源对污染物快速累积的重要贡献。
425 无机组分中,SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>在PM<sub>1</sub>增长浓度中贡献爆发增长(~13%)>快速增长(11.8%)>缓慢增
426 长(11.1%),NO<sub>3</sub><sup>-</sup>的贡献相反。SPM在累积污染物中的贡献明显高于PPM,但爆发增长中,
427 PPM在污染物增长中贡献(最高达45%)明显高于平均时段的33%,PPM在爆发增长中的贡
428 献不可小觑。

429 (4)对北京市城区而言,爆发增长开始后,温度有所降低(0.2—1.2℃),而湿度和气压明430 显升高。爆发增长中主要的气团来向为偏南向(三个高度占比分布为69%—82%),其次为

431 偏东方向(12%-20%)。

432

#### 433 参考文献





Cai S Y, Wang Y J, Zhao B, et al. 2017. The impact of the "Air Pollution Prevention and Control Action
Plan" on PM2.5 concentrations in Jing-Jin-Ji region during 2012–2020 [J], Science of the Total
Environment, 580(FEB.15): 197-209.

437 Guo S, Hu M, Wang Z B, et al. 2010. Size-resolved aerosol water-soluble ionic compositions in the 438 summer of Beijing: Implication of regional secondary formation [J], Atmospheric Chemistry and 439 Physics, 10: 947-959, https://doi.org/10.5194/acp-10-947-2010.

Huang K, Zhuang G, Lin Y, et al. 2012. Typical types and formation mechanisms of haze in an Eastern
Asia megacity, Shanghai [J], Atmospheric Chemistry and Physics, 12: 105-124,
doi:10.5194/acp-12-105-2012.

Jiang Q, Sun Y L, Wang Z F, et al. 2015. Aerosol composition and sources during the Chinese Spring
Festival: fireworks, secondary aerosol, and holiday effects [J], Atmos. Chem. Phys., 15: 6023-6034,
https://doi.org/10.5194/acp-15-6023-2015.

Lei L, Xie C H, Wang D W, et al. 2020, Fine particle characterization in a coastal city in China:
composition, sources, and impacts of industrial emissions [J], Atmospheric Chemistry and Physics, 20:
2877-2890. https://doi.org/10.5194/acp-20-2877-2020

Liu L K, Zhang X Y, Zhong J T, et al. 2019. The 'two-way feedback mechanism' between unfavorable
meteorological conditions and cumulative PM2.5 mass existing in polluted areas south of Beijing [J],
Atmospheric Environment, 208 (1): 1-9, doi:https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2019.02.050.

Liu X H, Zhu B, Kang H Q, et al. 2020. Stable and transport indices applied to winter air pollution over the Yangtze River Delta, China [J], Environmental Pollution, 272(1): 115954.

Ng N L, Herndon S C, Trimborn M R, et al. 2011, An Aerosol Chemical Speciation Monitor (ACSM) for
Routine Monitoring of the Composition and Mass Concentrations of Ambient Aerosol [J], Aerosol
Science and Technology, 45(7): 780-794, doi:10.1080/02786826.2011.560211.

Sun Y L, Jiang Q, Wang Z F, et al. 2014. Investigation of the sources and evolution processes of severe
haze pollution in Beijing in January 2013 [J], Journal of Geophysical Research: Atmospheres, 119:
4380-4398, doi:10.1002/2014JD021641.

Sun Y L, Wang Z F, Dong H B, et al. 2012. Characterization of summer organic and inorganic aerosols in
Beijing, China with an Aerosol Chemical Speciation Monitor [J], Atmospheric Environment, 51:
250-259, doi:10.1016/j.atmosenv.2012.01.013.

463 Sun Y L, Du W, Fu P Q, et al. 2016. Primary and secondary aerosols in Beijing in winter: Sources, 464 variations and processes [J], Atmospheric Chemistry & Physics, 16: 8309-8329, 465 https://doi.org/10.5194/acp-16-8309-2016.

Wang D F, Zhou B, Fu Q Y, et al. 2016. Intense secondary aerosol formation due to strong atmospheric
photochemical reactions in summer: observations at a rural site in eastern Yangtze River Delta of
China [J], Science of the Total Environment, 571(nov.15): 1454-1466.

469 Ulbrich I M, Canagaratna M R, Zhang Q, et al. 2009.Interpretation of organic components from

- 470 Positive Matrix Factorization of aerosol mass spectrometric data [J]. Atmospheric Chemistry & Physics,
  471 9: 2891–2918.
- Wang Y J, Bao S W, Wang S X, et al. 2017. Local and regional contributions to fine particulate matter in
  Beijing during heavy haze episodes [J], Science of The Total Environment, 580(FEB.15): 283-296.
- 474 Wang Z F, Li J, Wang Z, et al. 2014, Modeling study of regional severe hazes over mid-eastern China in
- January 2013 and its implications on pollution prevention and control [J], Science China Earth Sciences,
  57: 3-13, doi:10.1007/s11430-013-4793-0.
- Wu P, Ding Y H, and Liu Y J, 2017. Atmospheric Circulation and Dynamic Mechanism for Persistent Haze
  Events in the Beijing–Tianjin–Hebei Region [J], Advances in Atmospheric Sciences, 34(4): 429-440.
- 479 Xu W Q, Chen C, Qiu Y M, et al. 2021. Organic aerosol volatility and viscosity in the North China Plain:
- 480 contrast between summer and winter [J], Atmospheric Chemistry and Physics, 21: 5463-5476,
  481 https://doi.org/10.5194/acp-21-5463-2021.
- Zhang X Y, Zhong J T, Wang J Z, et al. 2018. The interdecadal worsening of weather conditions affecting
  aerosol pollution in the Beijing area in relation to climate warming, Atmospheric Chemistry and
  Physics [J], 18: 5991–5999, https://doi.org/10.5194/acp-18-5991-2018.
- 485 Zhang Q H, Zhang J P, and Xue H W. 2010. The challenge of improving visibility in Beijing [J],
- 486 Atmospheric Chemistry & Physics, 10: 7821–7827, https://doi.org/10.5194/ acp-10-7821-2010
- Zhang X Y, Wang J Z, Wang Y Q, et al. 2015. Changes in chemical components of aerosol particles in
  different haze regions in China from 2006 to 2013 and contribution of meteorological factors [J],
  Atmospheric Chemistry and Physics, 15: 12935-12952, https://doi.org/10.5194/acp-15-12935-2015.
- 490 Zhang X Y, Wang Y Q, Niu T, et al. 2012. Atmospheric aerosol compositions in China: 491 spatial/temporal variability, chemical signature, regional haze distribution and comparisons with 492 global aerosols [J], Atmospheric Chemistry and Physics. 12: 779-799. 493 https://doi.org/10.5194/acp-12-779-2012.
- Zhang Y H, Hu M, Zhong L J, et al. 2008. Regional Integrated Experiments on Air Quality over Pearl
  River Delta 2004 (PRIDE-PRD2004): Overview, Atmospheric Environment, 42, 6157-6173.
- Zheng G J, Duan F K, Su H, et al. 2015. Exploring the severe winter haze in Beijing: the impact of
  synoptic weather, regional transport and heterogeneous reactions [J], Atmospheric Chemistry and
  Physics, 15: 2969-2983, doi:10.5194/acp-15-2969-2015.
- Zhong J T, Zhang X Y, Dong Y S, et al. 2018. Feedback effects of boundary-layer meteorological
  factors on cumulative explosive growth of PM2.5 during winter heavy pollution episodes in
  Beijing from 2013 to 2016 [J], Atmospheric Chemistry and Physics, 18:
  247–258,https://doi.org/10.5194/acp-18-247-2018.
- Zhong J T, Zhang X Y, and Wang Y Q, 2019. Reflections on the threshold for PM2.5 explosive growth in
  the cumulative stage of winter heavy aerosol pollution episodes (HPEs) in Beijing [J], Tellus B: Chemical
  and Physical Meteorology, 71(1): 1528134, doi:10.1080/16000889.2018.1528134.
- Zhong J T, Zhang X Y, Wang Y Q, et al. 2017. Relative contributions of boundary-layer meteorological
  factors to the explosive growth of PM2.5 during the red-alert heavy pollution episodes in Beijing in
  December 2016, Journal of Meteorological Research. 31, 809–819.
- 509 Zhu X W, Tang G Q, Guo J P, et al. 2018. Mixing layer height on the North China Plain and 510 meteorological evidence of serious air pollution in southern Hebei [J], Atmospheric Chemistry and 511 Physics, 18, 4897-4910, https://doi.org/10.5194/acp-18-4897-2018.
- 512 江琪, 孙业乐, 王自发, 等. 应用颗粒物化学组分监测仪(ACSM)实时在线测定致霾细粒子无机和有机组分
- 513 [J]. 科学通报, 2013, 58: 3818 3828. Jiang Qi, Sun Yele, Wang Zifa, et al. 2013. Real-time online measurements

- of the inorganic and organic composition of haze fine particles with an Aerosol Chemical Speciation Monitor
  (ACSM) [J]. Chin Sci Bull (Chin Ver) (in Chinese), 58: 3818 3828, doi: 10.1360/972013-501.
- 516 吕梦瑶,张恒德,王继康,等,2019.2015 年冬季京津冀两次重污染天气过程气象成因 [J].中国环境科学,
- 517 39(7): 2748-2757. Lv Mengyao, Zhang Hengde, Wang Jikang, et al. 2019. Analysis of meteorological causes of
- 518 two heavily polluted weather processes in Beijing-Tianjin-Hebei Region in winter of 2015[J]. China Environl
- 519 Sci(in chinese), 39(7): 2748-2757.
- 520 马小会,廖晓农,唐宜西,等,2017.北京地区重空气污染天气分型及个例分析[J].气象与环境学报,33(5):
- 521 53-60. Ma Xiaohui, Liao Xiaonong, Tang Yixi, et al. 2017. Weather pattern and case analysis of air heavy pollution
- days in Beijing [J]. Journal of Meteorology and Environment(in Chinese), 33(5): 53-60.

- 523 张小曳,徐祥德,丁一汇,等,2020.2013~2017年气象条件变化对中国重点地区 PM2.5 质量浓度下降的影
- 524 响(J). 中国科学: 地球科学, 4: 483-500. Zhang Xiaoye, Xu Xiangde, Ding Yihui. et al. 2019. The impact of
- meteorological changes from 2013 to 2017 on PM2.5 mass reduction in key regions in China [J]. Science China
  Earth Sciences (in Chinese), 4: 483-500.