2015-2023 年我国不同区域 $PM_{2.5}$ 组分特征及变化趋势

梁建平[1]，徐洋[1]，张皓然[1]，李楠[1,*]

1.南京信息工程大学环境科学与工程学院， 南京 210044

摘 要 近年来我国 $PM_{2.5}$ 浓度明显降低，但不同的 $PM_{2.5}$ 组分变化存在显著的时间和区域差异。目前基于数值模式和在线观测的 $PM_{2.5}$ 组分变化研究多针对代表性站点和时段，缺乏对长时间多区域的 $PM_{2.5}$ 组分年际变化的研究。本研究基于自主研发的多元示踪模型（MTEA）结合空气质量监测网格数据，建立 2015-2023 年我国 367 个城市一次 $PM_{2.5}$（PPM）和二次 $PM_{2.5}$（SPM）浓度数据集，进一步分析不同区域 PPM、SPM 和二次颗粒物占比 SPM/$PM_{2.5}$（SPM%）的空间分布和年际变化特征。结果表明：2015-2023 年我国 PPM 浓度从 15.85 μg m^{-3} 下降至 10.28 μg m^{-3}，SPM 浓度从 25.86 μg m^{-3} 下降至 15.42 μg m^{-3}，9 年间分别下降了 35.02 %和 40.37 %。2015-2023 年 PPM 和 SPM 的年际变化趋势在 2021 年前后呈现出不同特征，2015-2021 年间均以较快速度下降（−0.91 μg m^{-3} yr^{-1} 和−1.70 μg m^{-3} yr^{-1}），而 2021 年后 PPM 下降速度变缓（−0.14 μg m^{-3} yr^{-1}），SPM 甚至出现轻微上升（+0.10 μg m^{-3} yr^{-1}）。SPM%整体变化情况与 SPM 相似，2021 年前以−0.38% yr^{-1} 速度下降，2021 年后以上升（+0.38% yr^{-1}）。就不同区域而言，我国华北和华中地区 PPM 和 SPM 浓度最高，对应更强的人为污染排放；但 SPM%则是华南和西南地区更高（66.67%~68.66%），这与南方更强的大气氧化能力有关。大多数地区 PPM 和 SPM 浓度变化趋势与全国整体趋势一致，除西南地区的在 2021 年后 SPM 和 SPM%仍保持显著的下降趋势。本研究提供的不同区域颗粒物组分趋势分析可为我国未来颗粒物污染管控提供科学依据和数据支撑。

关键词 空气污染；$PM_{2.5}$；气溶胶组分；变化趋势

收稿日期 2025-6-5；网络预出版日期

作者简介 梁建平，女，2000 年出生，南京信息工程大学硕士研究生，从事大气环境研究，E-mail: 3318632119@qq.com

通讯作者 李楠，南京信息工程大学副教授，硕士生导师，E-mail: linan@nuist.edu.cn

资助项目 国家重点基础研究发展计划 2022YFC3701005

Funded by National Program on Key Basic Research Project (2022YFC3701005)

文章编号：**2025039C** **doi:** 10.3878/j.issn.1006-9895.2505.25039

Component characteristics and variation trend of $PM_{2.5}$ in different regions of China during 2015-2023

LIANG Jianping[1]，XU Yang[1]，ZHANG Haoran[1]，LI Nan[1,*]

1. School of Environmental Science and Engineering, Nanjing University of Information Science & Technology, Jiangsu, Nanjing 210044

Abstract： In recent years, the concentration of $PM_{2.5}$ in China has significantly decreased, but there are notable temporal and regional differences in the changes of different $PM_{2.5}$ components. Current research on $PM_{2.5}$ component changes, based on numerical models and online observations, mostly focuses on single site and representative periods, lacking high spatiotemporal resolution studies on regional and interannual variations of $PM_{2.5}$ components. This study, based on a multivariate tracer model (MTEA) combined with grid data from air quality monitoring, establishes a dataset of primary $PM_{2.5}$ (PPM) and secondary $PM_{2.5}$ (SPM) concentrations for 367 cities in China from 2015 to 2023. The results show that from 2015 to 2023, the concentrations of PPM and SPM in China decreased from 15.85 μg m^{-3} and 25.86 μg m^{-3} to 10.28 μg m^{-3} and 15.42 μg m^{-3}, respectively, with a reduction of 35.02% and 40.37% over nine years. The interannual trends of PPM and SPM from 2015 to 2023 showed different characteristics before and after 2021, with a rapid decline from 2015 to 2021 (−0.91 μg m^{-3} yr^{-1} and −1.70 μg m^{-3} yr^{-1}), and a slowdown in the decline of PPM after 2021 (−0.14 μg m^{-3} yr^{-1}), while SPM even showed a slight increase (+0.10 μg m^{-3} yr^{-1}). The overall trend of SPM% was similar to that of SPM, decreasing at a rate of −0.38% yr^{-1} before 2021 and increasing at a rate of +0.38% yr^{-1} after 2021. In terms of different regions, the highest concentrations of PPM and SPM were found in North and Central China, corresponding to stronger anthropogenic emissions; however, the SPM% was higher in South and Southwest China (66.67%~68.66%), which is related to the stronger atmospheric oxidation capacity in the south. The trends of PPM and SPM concentrations in most regions were consistent with the national trend, except

for the Southwest region where SPM and SPM% continued to decline significantly after 2021. This study can offer scientific and data support for future particulate matter pollution control in China.

Keywords: Air pollution；$PM_{2.5}$；Aerosol composition；Variation trends

1 引言

细颗粒物（$PM_{2.5}$）是近年来我国大气污染防治的主要控制目标。$PM_{2.5}$ 包括直接排放的一次颗粒物（PPM）和经由气态污染物转化生成的二次颗粒物（SPM）。具体来说，PPM 的主要组分包括沙尘（Dust）、一次有机气溶胶（POA）和元素碳（EC）；SPM 则主要由二次无机气溶胶（SIA，硫酸盐+硝酸盐+铵盐）和二次有机气溶胶（SOA）组成（Niu *et al.*,2022；Zhang *et al.*,2015）。随着 2013 年《大气污染防治行动计划》和 2018 年《打赢蓝天保卫战三年行动计划》的颁布和实施，我国环境空气质量逐步提高，$PM_{2.5}$ 浓度明显降低（耿冠楠等,2020；王芃等,2022；Zhai *et al.*,2019），但不同的 $PM_{2.5}$ 组分变化存在显著的时间和区域差异。

Zheng 等人（2018）指出，我国 $PM_{2.5}$ 前体物 SO_2、NO_x、BC 和 OC 在 2013-2017 年期间分别减排 59%、21%、28%和 32%。基于不同前体物的减排，Cao 等人（2025）通过 CMAQ 模型模拟中国不同地区代表性二次无机气溶胶（SO_4^{2-}和 NO_3^-）浓度，结果表明，2013 年后汾渭平原和四川盆地 SO_4^{2-}显著下降，而 NO_3^-未呈现明显下降趋势。Geng 等人（2019）采用 CMAQ 模拟 2013-2017 年中国东部地区 $PM_{2.5}$ 化学成分的变化，结果表明，2013-2017 年中国东部地区不同颗粒物组分下降了 0.7~4.4 μg m^{-3}，代表性 PPM 和 SPM 分别下降了 16%和 20%。Zheng 等人（2023）使用 CMAQ/2D-VBS 模型，模拟 2005-2019 年的有机气溶胶浓度，结果表明，2005-2019 年，中国整体有机气溶胶浓度有所降低，但二次占比显著上升（47.08%升至 67.19%）。由于前体物排放估算和参数化方案的不确定性，现有数值模型的 $PM_{2.5}$ 组分变化研究存在较大的差异和局限性，例如在一些化学传输模型，如 CMAQ（Kim *et al.*,2006；Zheng *et al.*,2015）、CAMx（Fountoukis *et al.*,2011）和 GEOS - Chem（Wang *et al.*,2013），发现模式对 SPM 存在普遍的低估现象，这可能导致模型在捕捉不同地区 $PM_{2.5}$ 组分差异和时间变化上的误差（Lu *et al.*,2021; Lv *et al.*,2021;Li *et al.*,2023；Liu *et al.*,2022）。

基于观测手段的 $PM_{2.5}$ 组分研究也受到广泛关注（Lai *et al.*,2016；Wang *et al.*,2016；Liu *et al.*,2025；Yu *et al.*,2022）。Zhao 等人（2019）采样并分析河北邯郸 2013 和 2017 年 $PM_{2.5}$ 及其组分的浓度变化，结果表明，2017 年相较于 2013 年，邯郸 PPM 和 SPM 分别下降了 52.13%和 31.74%。Liu 等人（2018）通过对

中国 20 个城市站点和 12 个背景站点 2012-2013 年 $PM_{2.5}$ 及其组分的观测建立 CARE-China 网络，对不同站点各组分的变化和特征进行分析。目前，已有多项研究通过观测结合数值模拟建立 $PM_{2.5}$ 化学成分监测网络并对 $PM_{2.5}$ 不同组分进行时间和空间变化趋势研究（Zhang *et al.*,2012；Xin *et al.*,2015；Snider *et al.*,2016；Dao *et al.*,2019），但多聚焦于代表性站点或时段，已发布的针对长时间和不同区域的 $PM_{2.5}$ 组分变化的观测研究依旧不足。

本团队研发了基于观测数据的多元示踪模型（Multi-Tracer Estimation Algorithm，MTEA）（Zhang *et al.*,2022），与传统组分观测和数值模式研究相比，该方法无需依赖详细 $PM_{2.5}$ 组分观测和化学反应参数化方案，可以较低的经济和技术成本实现对观测 $PM_{2.5}$ 的一次组分和二次组分的快速识别和区分。同时 MTEA 模型可与常规 $PM_{2.5}$ 观测数据结合，进而获得站点级 $PM_{2.5}$ 一次组分和二次组分浓度数据。本研究利用 MTEA 模型，结合 2015-2023 年我国 367 个城市的近 2000 个环境空气质量监测站数据，获得我国高时空分辨率和高覆盖范围的 PPM 和 SPM 数据库，并基于此数据库分析 PPM、SPM 以及 SPM 在 $PM_{2.5}$ 中占比的空间分布特征和年际变化趋势。

2 数据与方法

2.1 多元示踪剂模型（MTEA）

为了有效区分 $PM_{2.5}$ 中的一次和二次组分，研究团队开发了多元示踪剂模型（Multi-Tracer Estimation Algorithm, MTEA）（Zhang *et al.*,2022），模型选用燃烧产物 CO 和粗模态颗粒物 PMC（$PMC=PM_{10}-PM_{2.5}$），通过排放数据量化两者对 PPM 相对贡献，组合建立示踪剂 X，如公式（2-1）所示

$$X = a * CO + b * PMC \tag{2-1}$$

其中，a 和 b 分别表示 CO 和 PMC 对 PPM 的相对贡献，a 和 b 的值由方程（2-2）计算。

$$\frac{a}{b} = \frac{E_{OA}+E_{EC}}{E_{Dust}} = \frac{1.2*E_{OC}+E_{EC}}{E_{PM_{2.5}}-(1.2*E_{OC}+E_{EC}+E_{SO_4^{2-}}+E_{NO_3^-})} \tag{2-2}$$

其中，E_{OA}、E_{EC}、E_{Dust}、E_{OC}、$E_{PM_{2.5}}$、$E_{SO_4^{2-}}$和$E_{NO_3^-}$表示 OA、EC、沙尘、OC、$PM_{2.5}$、SO_4^{2-}和 NO_3^-的排放值。研究表明，铵盐主要来自二次生成，一次排放的铵盐含量较低，因此本研究选择忽略不计（Pan et al.,2014）。根据文献建议，我们通过将 POA 排放量乘以 1.2 的经验系数来进一步估算 POA 排放量（Seinfeld and Pandis, 2006）。

通过不同时间和不同地区 POA、EC 和 Dust 排放的比值获取对应的 a 和 b，进一步结合 CO 和 PMC 计算出示踪剂 X。进一步通过方程（2-3）计算 PPM 和 SPM，其中 $PM_{2.5}$ 为观测浓度，X 由上述公式计算获取，SPM 的计算则只需确定 PPM/X 的目标比率。PPM/X 的值通过在 0-400 范围内以 1（或者更小）的步长进行扫描，分别计算每个 PPM/X 值对应的 SPM 浓度，并以此获取 PPM 和 SPM 浓度之间的拟合系数（R^2），取其相关性不显著情况下对应 SPM 浓度区间，求均值作为最终 SPM 浓度。

$$SPM = PM_{2.5} - PPM = PM_{2.5} - \frac{PPM}{X} \times X \quad (2\text{-}3)$$

2.2 空气质量观测数据

本研究采用中国生态环境部建立的国家环境空气质量监测网（国控站）（https://air.cnemc.cn:18007/ [2024-09-14]）数据。该网络包含近 2000 个站点，可以获取小时 $PM_{2.5}$、PM_{10}、SO_2、NO_2、O_3 和 CO 浓度。本研究选取了 2015-2023 年间中国 32 个省级行政区共 367 个城市的 $PM_{2.5}$、PM_{10} 和 CO 浓度数据输入 MTEA 模型以获取 PPM 和 SPM 数据集，并利用 O_3 观测数据辅助解释 PPM 和 SPM 质量浓度年际变化特征。研究选取的中国 367 个城市中心地理位置见图 1。

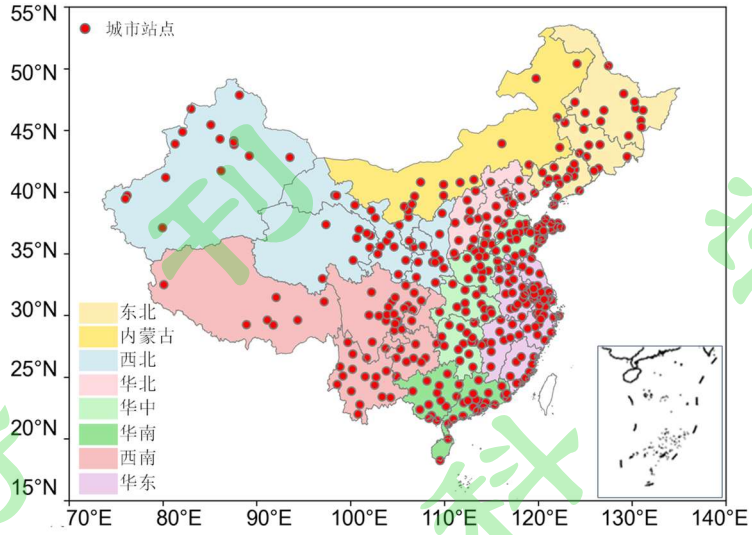

图 1 中国 367 城市中心及 8 个不同区域的地理位置

Fig.1 Geographical location of 367 urban centers and 8 different regions in China

2.3 排放清单数据

本研究采用清华大学开发的中国多尺度排放清单（Multi-resolution Emission Inventory model for China，MEIC：http://www.meicmodel.org [2024-09-18]），该清单分辨率为 0.25°×0.25°，其中包含温室气体和我国 10 种主要大气污染物（SO_2、NO_x、CO、NMVOC、NH_3、CO_2、$PM_{2.5}$、PM_{10}、BC 和 OC）的网格化数据，并划分了工业、居民、交通、 农业、电力五部门（Li *et al.*,2017a；2017b；Zheng *et al.*,2018）。本文采用 2015-2023 年 MEIC 1.4 清单的全部门逐月 OC、EC 和 $PM_{2.5}$ 的排放数据。其中，2015-2020 年的数据通过 MEIC 网站公开获取，2021-2023 年的排放数据结合观测数据进行外推获取。目前自下而上的排放清单通常具有 1-2 年的时间滞后性，为了评估整体排放清单的不确定性对 MTEA 模型的影响，研究团队通过在±10%的范围内改变系数 a 和 b 进行比较试验。结果表明 2016 年我国主要的城市地区，$PM_{2.5}$ 二次比例变化受排放系数变化的幅度小于±3%。表明排放清单对 MTEA 模型的结果有一定的影响，但对最终结果的改变幅度不大。

3 结果与讨论

3.1 PPM 和 SPM 区域分布特征

通过 MTEA 模型得到的中国 367 个城市 2015 年、2023 年和 2015-2023 年平均 PPM 和 SPM 浓度如图 2 所示。2015 年全国 367 城市平均 PPM 和 SPM 浓度分别为 15.85 μg m^{-3} 和 25.86 μg m^{-3}；2023 年分别为 10.28 μg m^{-3} 和 15.42 μg m^{-3}，较 2015 年分别下降了 35.02%和 40.37%。从空间变化看，我国 PPM 和 SPM 空间分布特征类似，整体均呈现东高西低，由高值中心向南北方向递减的分布情况，高值主要集中分布于我国华北、华中地区以及位于华东地区北部的山东省、安徽省和江苏省，这些地区对应较高的能耗需求和污染物排放特征；东北地区和长江以南地区均呈现较低的浓度水平。

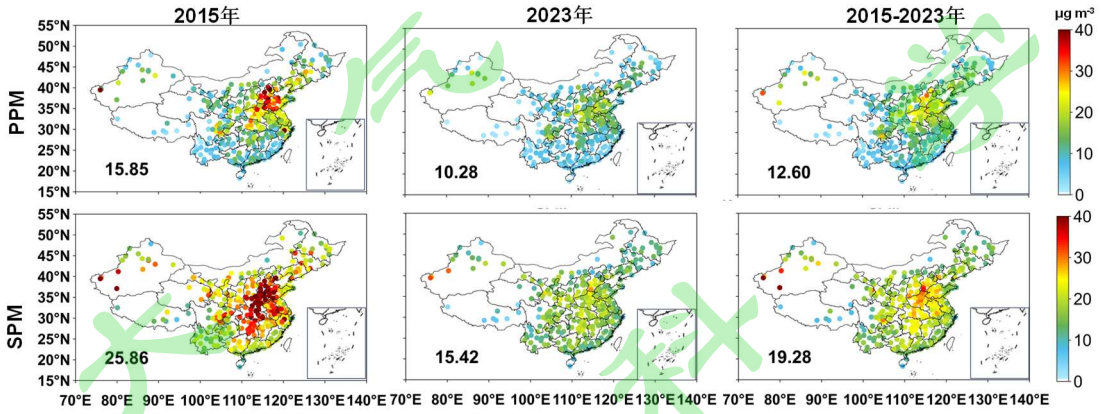

图 2 中国 2015 年、2023 年和 2015-2023 年平均 PPM 和 SPM 的空间分布

Fig.2 Spatial distribution of PPM and SPM in China in 2015, 2023 and average from 2015 to 2023

图 3 进一步比较了不同年份 PPM 和 SPM 在 $PM_{2.5}$ 中占比的空间特征。PPM 占比（PPM%）和 SPM 占比（SPM%）在 2015 年至 2023 年间基本持平，其中 PPM%为 38.6%，SPM%为 61.4%。从空间分布上看，SPM%整体呈现南高北低的分布特征，主要原因是相较于北方地区，南方的大气氧化条件更有利于气态污染物的二次转化（Lu *et al.*,2019b；Sun *et al.*,2014）。

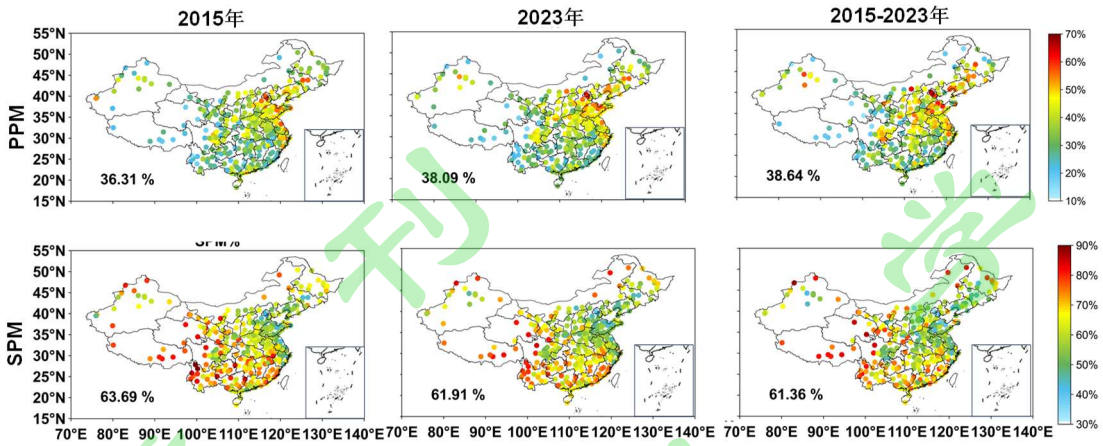

图 3 中国 2015 年、2023 年和 2015-2023 年平均 PPM%和 SPM%空间分布

Fig.3 Spatial distribution of PPM% and SPM% in China in 2015, 2023 and average from 2015 to 2023

总体而言，我国 SPM 和 PPM 浓度及其在 $PM_{2.5}$ 中的占比表现出明显的空间异质性。SPM 和 PPM 浓度在华北、华中和华东北部地区显著高于其他地区，而 SPM 占比（SPM%）在南方地区较高，主要与南方较强的光化学氧化条件有关。这种空间分布特征反映了不同区域污染来源和形成机制的差异（Chen *et al.*,2022；Hao *et al.*,2020；Sun *et al.*,2016；Wang *et al.*,2020）。

PPM 和 SPM 的浓度均存在显著的季节差异，其中夏季 PPM 和 SPM 的均值分别为 8.63 和 13.2 μg m^{-3}，显著低于其在冬季的均值（PPM:16.3 μg m^{-3},SPM:26.7 μg m^{-3}）。图 4 为 PPM 和 SPM 在不同季节的年际变化，整体而言，不同季节 PPM 和 SPM 的年际变化趋势相似，具体表现为在 2015-2021 年呈下降趋势，2021 年后下降趋势减缓，其中春季和秋季 2021-2023 年呈上升趋势。

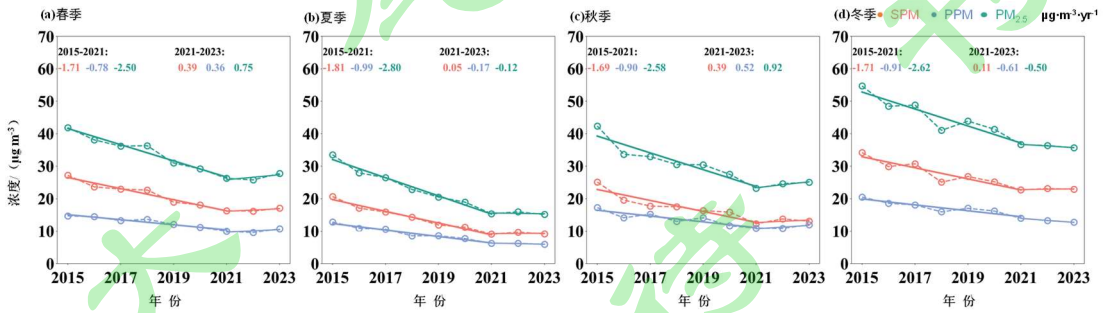

图 4 全国 2015 年至 2023 年 SPM、PPM 和 $PM_{2.5}$ 不同季节的年际变化

Fig.4 Interannual changes of SPM、PPM and $PM_{2.5}$ of different seasons in China from 2015 to 2023

3.2 不同区域 PPM 和 SPM 年际变化趋势

根据 3.1 节空间分布特征的研究，将我国 367 个城市划分为以下 8 个区域：东北、华北、西北、内蒙古、华东、华南、西南和华中，具体城市分布情况见图 1。

图 5 全国不同区域 2015 年至 2023 年 SPM、PPM 和 $PM_{2.5}$ 年际变化

Fig.5 Interannual changes of SPM、PPM and $PM_{2.5}$ in different regions of China from 2015 to 2023

图 5 为基于中国不同区域的 2015-2023 年 SPM、PPM 和 $PM_{2.5}$ 年际变化。总体而言，8 个区域 PPM、SPM 和 $PM_{2.5}$ 在 2015-2023 年都呈现下降趋势。但是，年际变化趋势在 2021 年前后呈现显著差异，2015-2021 年各地区 PPM 和 SPM 浓度均快速下降，2021-2023 年各地区下降趋势显著变缓，西北和华东地区甚至呈现上升趋势。在 PPM 和 SPM 的共同作用下，$PM_{2.5}$ 在 2021 年前后也呈现不同的变化趋势，根据 PPM、SPM 和 $PM_{2.5}$ 在 2015-2021 年和 2021-2023 年两个时段年际变化趋势的差异进一步将 8 个区域的年际变化情况划分成以下四种情形。

西北和华东地区 PPM、SPM 和 $PM_{2.5}$ 均从 2015-2021 年的下降趋势转变为 2021-2023 年的上升趋势，其 $PM_{2.5}$ 浓度分别从 2015 年的 38.01 μg m^{-3} 和 42.63 μg m^{-3} 下降至 2021 年的 25.45 μg m^{-3} 和 25.48 μg m^{-3}。2021-2023 年以+0.89 μg m^{-3} yr^{-1} 和+0.25 μg m^{-3} yr^{-1} 的速度上升至 27.24 μg m^{-3} 和 25.99 μg m^{-3}，PPM 和 SPM 变

化趋势与 $PM_{2.5}$ 一致，其中 PPM 分别从以−0.56 μg m^{-3} yr^{-1} 和−1.14 μg m^{-3} yr^{-1} 的下降速度转变为以+0.11 μg m^{-3} yr^{-1} 和+0.07 μg m^{-3} yr^{-1} 的速度上升，SPM 则从−1.66 μg m^{-3} yr^{-1} 和−1.74 μg m^{-3} yr^{-1} 的下降变为+0.78 μg m^{-3} yr^{-1} 和+0.18 μg m^{-3} yr^{-1} 的上升。在 $PM_{2.5}$ 由浓度下降阶段向浓度上升阶段的转化中，两个区域 SPM 变化的贡献（分别是 78.5%和 61.5%）均高于 PPM。

东北和华南地区的 PPM、SPM 和 $PM_{2.5}$ 浓度，与 2015-2021 年相比，在 2021 年后的下降速率明显放缓。$PM_{2.5}$ 浓度由以−2.34 μg m^{-3} yr^{-1} 和−1.79 μg m^{-3} yr^{-1} 速度下降转变为以−0.37 μg m^{-3} yr^{-1} 和−0.38 μg m^{-3} yr^{-1} 缓慢下降。华南地区的 SPM 浓度在 2021-2023 年呈现先降后升的趋势，变化情况趋于稳定（速度为−0.02 μg m^{-3} yr^{-1}）；PPM 浓度则从下降逐步转为缓慢下降。东北地区也显示出相似的变化，SPM 浓度在第二阶段呈缓慢下降趋势（速度为−0.33 μg m^{-3} yr^{-1}），而 PPM 浓度先降后略有回升，2021-2023 年整体变化速度为−0.04 μg m^{-3} yr^{-1}。

华北、华中和内蒙古地区 PPM 和 $PM_{2.5}$ 变化趋势一致：由下降变为以更缓慢速度下降，而 SPM 则由下降转变为上升趋势。华北地区和华中地区 $PM_{2.5}$、SPM 和 PPM 浓度在八个区域中均处于较高的水平，2015-2021 年 $PM_{2.5}$ 分别以−3.97 μg m^{-3} yr^{-1} 和−3.83 μg m^{-3} yr^{-1} 的速度大幅下降，其中 SPM 下降速度分别为−2.23 μg m^{-3} yr^{-1} 和−2.46 μg m^{-3} yr^{-1}，是 PPM 下降速度的 1.28 和 1.80 倍，即这两个地区 SPM 的下降对 $PM_{2.5}$ 下降做出了较大的贡献。内蒙古地区整体变化趋势与华北和华中地区一致，其 $PM_{2.5}$、SPM 和 PPM 浓度显著低于这两个地区。

西南地区 SPM 和 PPM 整体变化幅度较小，2021 年后 SPM 浓度的缓慢下降（−0.6 μg m^{-3} yr^{-1}）和 PPM 的上升（+0.23 μg m^{-3} yr^{-1}）共同导致了 $PM_{2.5}$ 的平稳趋势（−0.01 μg m^{-3} yr^{-1}）。

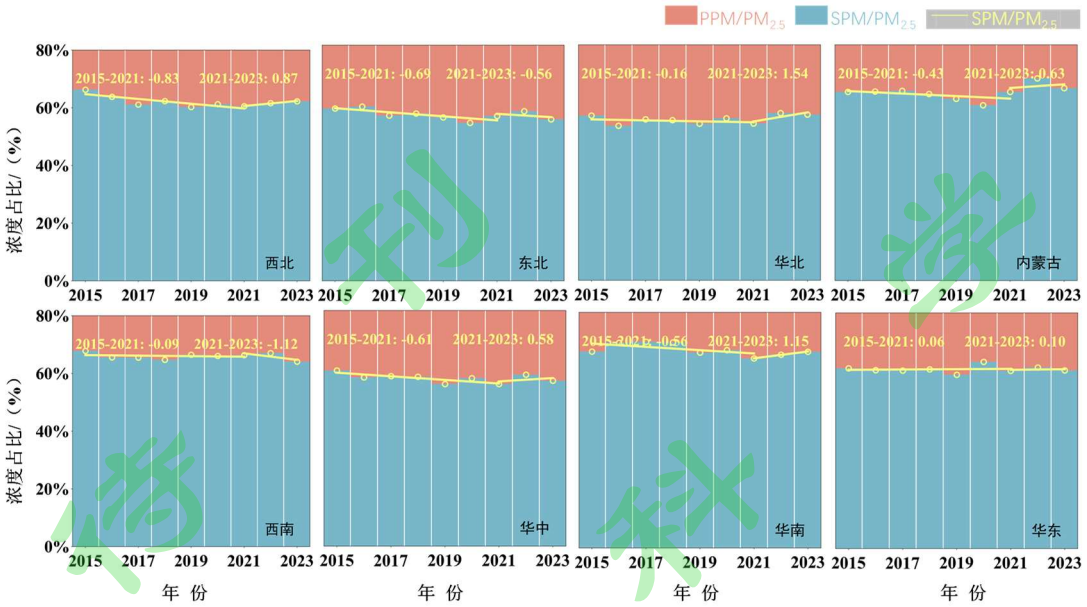

图 6 全国不同区域 2015 年-2023 年 SPM%和 PPM%年际变化

Fig.6 Interannual changes of SPM% and PPM% in different regions of China from 2015 to 2023

图 6 为 2015-2023 年我国 8 个区域 SPM 和 PPM 占 $PM_{2.5}$ 比值的年际变化。SPM%年际变化在不同区域间存在显著差异，同时 2021 年 SPM 占比变化趋势前后也有明显差异。其中西北、华中、华南和内蒙古地区的 SPM%虽然水平差异较大，但 9 年变化趋势较为一致，即 2021 年前以较快速率下降，随后又以较快速率上升。西北地区 SPM%从 2015 年的 67.75%下降至 2021 年的 63.57%，随后又以较快速率上升至 2023 年的 64.89%。内蒙古地区的 SPM%在 2015-2021 年以 −0.43% yr^{-1} 速率下降，2020 年达到最低（为 62.79%），随后上升至 2022 年以 68.31%的占比达到 9 年峰值。华南地区的 SPM%处较高水平（66.67%），年际变化以 2021 年为节点先降后升。华中地区 9 年 SPM%均小于 60%，2021 年前以 0.61% yr^{-1} 的速率下降，随后以 0.58% • yr^{-1} 的较快速率上升。东北地区 SPM%相较其他区域处较低水平，9 年平均占比约为 57.77%，但其仍从 2015 年的 60.07 % 下降至 2021 年的 57.48%，随后以较快速率下降。

华北地区的 9 年平均 SPM%为 8 个区域最低（55.11%），总体趋势轻微上升，2015-2021 年占比缓慢下降（速率约为-0.16% yr^{-1}），但 2021-2023 年快速上升。西南地区的 SPM%水平整体轻微下降，且处于全国最高水平，9 年平均占比约为 68.66%，2015-2021 年 SPM 占比几乎不变（速率约为-0.09% • yr^{-1}），2021-2023

年则以 1.12% yr^{-1} 的速率急促下降。华东地区 SPM%水平在 2015-2023 年整体保持平稳，2021 年前变化速率约为 0.06% yr^{-1}，2021 年后变化速率约为 0.10% yr^{-1}，说明该地区的 SPM%水平 9 年间几乎不变。

2015-2023 年全国 SPM 浓度为 18.55 μg m^{-3}，PPM 为 12.17 μg m^{-3}，SPM%约为 62%，2015-2021 年整体均呈现下降趋势，且下降趋势在 2021 年后均出现明显转折。具体而言，2021 年后 SPM 以+0.10 μg m^{-3} yr^{-1} 左右的速度缓慢上升、PPM 以−0.14 μg m^{-3} yr^{-1} 的速度缓慢下降，与之对应的是 SPM%以+0.49% yr^{-1} 的速度迅速上升。这一变化表明，$PM_{2.5}$ 中二次组分的污染贡献正在逐步增加，而一次颗粒物的治理效果相对显著（徐洋等,2024；Jing *et al.*,2020）。为了分析 SPM%变化的原因，图 7 分别展示了 SO_2、NO_2 和 O_3 在 2015-2023 年的年际变化情况。其中，SO_2 整体呈下降趋势，2018 年后下降趋势逐渐放缓，SO_2作为硫酸盐（SO_4^{2-}）的重要前体物，其下降趋势减缓可能导致硫酸盐浓度的下降速度同步减缓（Chen *et al.*,2019；Chu *et al.*,2020；Yang *et al.*,2015）。特别是在 SO_2排放量较高的地区，硫酸盐浓度可能趋于稳定甚至出现小幅回升。NO_2 整体呈现波动下降趋势，2022 年浓度降至 9 年内最低（21.39 μg • m^{-3}），O_3 则保持持续上升趋势，导致大气氧化能力增强，促进 SO_2 和 NO_x 的气相氧化反应和颗粒物表面的非均相化学反应过程，进一步促进 SO_4^{2-}和 NO_3^-生成，这可以解释 SPM 浓度的上升及其在 $PM_{2.5}$ 中占比的上升（Cheng *et al.*,2016；Lu *et al.*,2019a；Sun *et al.*,2022）。

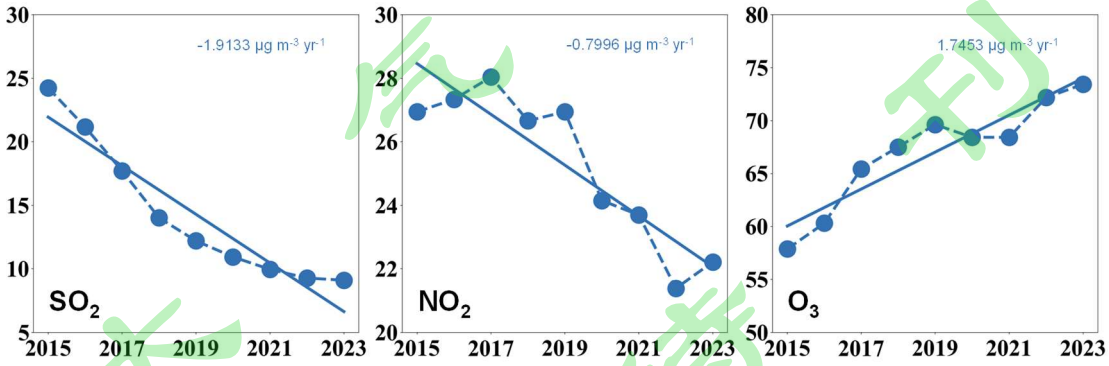

图 7 2015 年至 2023 年中国平均 SO_2、NO_2 和 O_3 年际变化

Fig.7 Interannual changes of SO_2、NO_2 and O_3 in China from 2015 to 2023

4 结论（Conclusions）

本研究基于多元示踪剂模型（MTEA）实现对我国 2015-2023 年 367 个城市一次和二次颗粒物的识别和区分，依据其空间分布情况划分 8 个区域，对这 8 个区域的 SPM、PPM 以及 SPM%的年际变化进行分析。结果表明：

（1）2015-2023 年我国 PPM 和 SPM 浓度分别从 15.85 μg m^{-3} 和 25.86 μg m^{-3} 下降至 10.28 μg m^{-3} 和 15.42 μg m^{-3}，9 年分别下降了 35.02%和 40.37%。但 2021 年前后趋势有显著变化，具体而言，2015-2021 年 PPM 和 SPM 均持续下降（速度分别为−0.91 μg m^{-3} yr^{-1} 和−1.70 μg m^{-3} yr^{-1}），但 2021 年后 PPM 下降趋势放缓（−0.14 μg m^{-3} yr^{-1}），而 SPM 甚至上升（+0.10 μg m^{-3} yr^{-1}）、与之对应 SPM%也以+0.49 % yr^{-1} 的速度迅速上升。

（2）空间上，不同区域 PPM、SPM 和 SPM%年际变化也存在显著差异。具体而言，华北、华中和内蒙古地区 PPM 和 SPM 在 2015-2021 年间显著下降，但 2021 年后 PPM 下降变缓，且 SPM 微弱上升，与全国整体趋势一致。与之不同，东北和华南地区 2021 年后 PPM 和 SPM 均持续下降，西北和华东地区 2021 年后 PPM 和 SPM 均呈上升趋势，而西南地区 2021 年后 SPM 下降变缓，PPM 持续上升。

（3）二次占比分析表明，我国华南和西南地区 SPM%更高，可达 66.67%~68.66%。各区域 SPM%的年际变化类似，2015-2021 年间 SPM%波动下降，由 61.74%下降至 59.25%，2021 年后由于二次颗粒物前体物减排速度放缓和 O_3 持续恶化导致的大气氧化能力增强，SPM%转为上升，速率可达 0.58%~1.54% yr^{-1}。西南地区与绝大部分地区不同，其 SPM%在 2021 年后仍持续下降。

参考文献

Cao J Y, Zheng B Y, Chen J X, et al. 2025. Assessment of sulfate and nitrate variations in China during 19902020: insights into source contributions and formation pathways[J]. Journal of Hazardous Materials, 489:137600.

Chen T Z, Chu B W, Ge Y L, et al. 2019. Enhancement of aqueous sulfate formation by the coexistence of NO_2/NH_3 under high ionic strengths in aerosol water[J]. Environmental Pollution, 252:236-244.

Chen Y, Hong Z Y, Chen J S, et al. 2022. Characteristics of secondary organic aerosols tracers in $PM_{2.5}$ in three central cities of the Yangtze river delta, China[J]. Chemosphere, 293:133637.

Cheng Y, Zheng G, Wei C, et al. 2016. Reactive nitrogen chemistry in aerosol water as a source of sulfate during haze events in China[J]. Science Advances, 2(12): e1601530.

Chu B, Ma Q, Liu J, et al. 2020. Air pollutant correlations in China: secondary air pollutant responses to NO_x, and SO_2 control[J]. Environmental Science & Technology Letters, 7(10): 695-700.

Dao X, Lin Y C, Cao F, et al. 2019. Introduction to the national aerosol chemical composition monitoring network of china objectives, current status, and outlook[J]. Bulletin of the American Meteorological Society, 100(12): ES337-ES351.

Fountoukis C, Racherla P N, Denier van der Gon H A C, et al. 2011. Evaluation of a three-dimensional chemical transport model (PMCAMx) in the European domain during the EUCAARI May 2008 campaign[J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 11(20):10331-10347.

Geng G N, Xiao Q Y, Zheng Y X, et al. 2019. Impact of China's air pollution prevention and control action plan on $pm_{2.5}$ chemical composition over eastern china[J]. Science China Earth Sciences, 62(12):1872-1884.

耿冠楠, 肖清扬, 郑逸璇, 等. 2020. 实施《大气污染防治行动计划》对中国东部地区 $PM_{2.5}$ 化学成分的影响[J].中国科学:地球科学, 50(4):469-482.

Hao Y F, Meng X P, Yu X P, et al. 2020. Quantification of primary and secondary sources to $PM_{2.5}$ using an improved source regional apportionment method in an industrial city, China[J]. Science of the Total Environment, 706:135715.

Jing Z Y, Liu P F, Wang T H, et al. 2020. Effects of meteorological factors and anthropogenic precursors on $PM_{2.5}$ concentrations in cities in China[J]. Sustainability, 12(9):3550.

Kim J Y, Song C H, Ghim Y S, et al. 2006. An investigation on NH_3 emissions and particulate NH_4^+-NO_3^- formation in East Asia[J]. Atmospheric Environment, 40(12):2139-2150.

Lai S, Zhao Y, Ding A, et al. 2016. Characterization of $PM_{2.5}$ and the major chemical components during a 1-year campaign in rural Guangzhou, Southern China[J]. Atmospheric Research, 167: 208-215.

Li M, Liu H, Geng G N, et al. 2017a. Anthropogenic emission inventories in China: A review[J]. National Science Review, 4(6):834-866.

Li M, Zhang Q, Kurokawa J, et al. 2017b. MIX: a mosaic Asian anthropogenic emission inventory under the international collaboration framework of the MICS-Asia and HTAP[J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 17(2):935-963.

Li N, Zhang H R, Zhu S H, et al. 2023. Secondary $PM_{2.5}$ dominates aerosol pollution in the Yangtze River Delta region: Environmental and health effects of the Clean air Plan[J]. Environment International, 171:107725.

Liu Z, Gao W, Yu Y, et al. 2018. Characteristics of $PM_{2.5}$ mass concentrations and chemical species in urban and background areas of China: emerging results from the CARE-China network [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 18(12): 8849-

71.
Lu K, Fuchs H, Hofzumahaus A, et al. 2019a. Fast photochemistry in wintertime haze: consequences for pollution mitigation strategies[J]. Environmental Science & Technology, 53:10676-10684.
Lu K, Guo S, Tan Z, et al. 2019b. Exploring atmospheric free-radical chemistry in China: the self-cleansing capacity and the formation of secondary air pollution[J]. National Science Review, 6:579-594.
Lu M M, Tang X, Feng Y C, et al. 2021. Nonlinear response of SIA to emission changes and chemical processes over eastern and central China during a heavy haze month[J]. Science of the Total Environment, 788:147747.
Lv L L, Wei P, Li J, et al. 2021. Application of machine learning algorithms to improve numerical simulation prediction of $PM_{2.5}$ and chemical components[J]. Atmospheric Pollution Research, 12(11):101211.
Niu Y W, Li X L, Qi B, et al. 2022. Variation in the concentrations of atmospheric $PM_{2.5}$ and its main chemical components in an eastern China city (Hangzhou) since the release of the Air Pollution Prevention and Control Action Plan in 2013[J]. Air Quality, Atmosphere & Health, 15(2):321-337.
Pan Y, Tian S, Liu D, et al. 2018. Source apportionment of aerosol ammonium in an ammonia-rich atmosphere: An isotopic study of summer clean and hazy days in urban Beijing. Journal of Geophysical Research: Atmospheres, 123, 5681–5689.
Seinfeld J H, pandis S N. 2006. Atmospheric chemistry and physics: from air pollution to climate change, Third edition [M]. New York: John Wiley.
Snider G, Weagle C L, Murdymootoo K K, et al. 2021. Variation in global chemical composition of $PM_{2.5}$: emerging results from SPARTAN[J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 16:9629−9653.
Sun C, Zhao N, Zhuang Z, et al. 2014. Mechanisms and reaction pathways for simultaneous oxidation of NO_x and SO_2 by ozone determined by in situ IR measurements[J]. The Journal of Hazardous Materials, 274:376-383.
Sun J J, Xie X D, Qin M M, et al. 2022. Analysis of coordinated relationship between $PM_{2.5}$ and ozone and its affecting factors on different timescales (in Chinese) [J]. Chinese Science Bulletin, 67:2018-2028.
Sun Y L, Du W, Wang Q Q, et al. 2016. Primary and secondary aerosols in Beijing in winter: sources, variations and processes[J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 255:8309-8329.
Wang G Q, Wang M Y, Sun L T, et al. 2023. Differences in the chemical compositions and formation mechanisms of $PM_{2.5}$ between urban and rural areas in Xinxiang, Central China around the Beijing Winter Olympics[J]. Atmospheric Environment, 312:119999
王芃, 朱盛强, 张梦媛, 等. 2022. 大气氧化性及其对二次污染物形成的贡献[J]. 科学通报, 67(18):2069-2078.
Wang Q X, Zeng Q L, Tao J H, et al. 2019. Estimating $PM_{2.5}$ concentrations based on MODIS AOD and NAQPMS data over Beijing-Tianjin-Hebei[J]. Sensors, 19(5):1207.
Wang T Y, Huang X, Wang Z L, et al. 2020. Secondary aerosol formation and its

linkage with synoptic conditions during winter haze pollution over eastern China[J]. Science of the Total Environment, 730:138888.
Wang Y, Zhang Q Q, He K, et al. 2013. Sulfate-nitrate-ammonium aerosols over China: response to 2000-2015 emission changes of sulfur dioxide, nitrogen oxides, and ammonia[J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 5: 2635-2652.
Xin J Y, Wang Y S, Pan Y P, et al. 2015. The campaign on atmospheric aerosol research network of China: CARE-China[J]. Bulletin of the American Meteorological Society, 96(7):1137-1155.
徐洋, 汤克勤, 魏崇, 等. 2024. 2015-2020 年我国 $PM_{2.5}$ 改善与气态前体物减排响应分析[J]. 环境科学学报, 44(06): 217-225.
Yang Y, Liu X, Qu Y, et al. 2015. Characteristics and formation mechanism of continuous hazes in China: a case study during the autumn of 2014 in the North China Plain[J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 15:8165-8178.
Yu Y H, Cheng P, Li Y J, et al. 2022. The association of chemical composition particularly the heavy metals with the oxidative potential of ambient $PM_{2.5}$ in a megacity (Guangzhou) of southern China[J]. Environmental Research, 213:113489.
Zhai S, Jacob D J, Wang X, et al. 2019. Fine particulate matter ($PM_{2.5}$) trends in China, 2013–2018: Separating contributions from anthropogenic emissions and meteorology[J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 19(16):11031-11041.
Zhang H R, Li N, Tang K Q, et al. 2022. Estimation of secondary $PM_{2.5}$ in China and the United States using a multi-tracer approach[J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 22:5495-5514.
Zhang R, Wang G, Guo S, et al. 2015. Formation of urban fine particulate matter[J]. Chemical Reviews, 115(10):3803-3855.
Zhang X Y, Wang Y Q, Niu T, et al. 2012. Atmospheric aerosol compositions in China: spatial/temporal variability, chemical signature, regional haze distribution and comparisons with global aerosols[J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 12:779-799.
Zhao L, Wang L T, Tan J H, et al. 2019. Changes of chemical composition and source apportionment of $PM_{2.5}$ during 2013-2017 in urban Handan, China[J]. Atmospheric Environment, 206:119-131.
Zheng B, Zhang Q, Zhang Y, et al. 2015. Heterogeneous chemistry: a mechanism missing in current models to explain secondary inorganic aerosol formation during the January 2013 haze episode in North China[J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 15(4):2031-2049.
Zheng B, Tong D, Li M, et al. 2018. Trends in China's anthropogenic emissions since 2010 as the consequence of clean air actions[J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 18(19):14095-14111.
Zheng H T, Chang X, Wang S X, et al. 2023. Sources of organic aerosol in China from 2005 to 2019: a modeling analysis[J]. Environmental Science & Technology, 57 (14):5957-5966.