环境科学

ENVIRONMENTAL SCIENCE

ISSN 0250-3301 CODEN HCKHDV
HUANJING KEXUE

北京冬季奥运会历史同期大气$PM_{2.5}$污染特征分析

刘玥晨，满睿琪，裘彦挺，杨佳炜，王均睿，谭瑞，汤丽姿，俞颖，宋锴，郭松，陈仕意，曾立民，吴志军，胡敏

■ 主办 中国科学院生态环境研究中心
■ 出版 科学出版社

2022年8月
第43卷 第8期
Vol.43 No.8

环境科学
(HUANJING KEXUE)
ENVIRONMENTAL SCIENCE
第43卷 第8期
2022年8月15日

目 次

Eco-Environmental Knowledge Web

环 境 科 学
Environmental Science

第43卷第8期 2022年8月
Vol.43,No.8 Aug.,2022

北京冬季奥运会历史同期大气 $PM_{2.5}$ 污染特征分析

刘玥晨，满睿琪，裘彦挺，杨佳炜，王均睿，谭瑞，汤丽姿，俞颖，宋锴，郭松，陈仕意，曾立民，吴志军*，胡敏
（北京大学环境科学与工程学院，环境模拟与污染控制国家重点联合实验室，北京 100871）

摘要：基于 2015 ~2021 年的 1 ~3 月北京市大气 $PM_{2.5}$浓度与化学组成长期观测数据，分析了 2022 年北京冬季奥林匹克运动会（冬奥会）和北京冬季残疾人奥林匹克运动会（冬季残奥会）历史同期的 $PM_{2.5}$污染态势、化学组成特征以及潜在源区. 2015 ~2018 年的 1 ~3 月重污染［日均 $\rho(PM_{2.5}) > 75\ \mu g\cdot m^{-3}$］天数以及重污染期间 $PM_{2.5}$平均值下降十分显著，之后这两者未发生明显改变. 2018 ~2021 年的 1 ~3 月每年平均发生重污染 23 d，重污染天 $\rho(PM_{2.5})$ 平均值约为 120.0 $\mu g\cdot m^{-3}$. 2015 ~2021 年的 1 ~3 月超长重污染过程（连续重污染超过 5 d）平均每年发生 2 ~3 次，其中 2021 年发生 3 次，且持续时间最长达到 8 d. 历年冬奥会历史同期发生重污染的天数为 2 ~9 d，春节期间烟花爆竹大量燃放可能是该时期重污染发生的重要原因之一；冬季残奥会历史同期重污染天数一般为 1 ~5 d，但 2021 年受频繁出现的静稳天气影响，重污染天数高达 9 d. 在同时段重污染期间，$PM_{2.5}$化学组成均以二次组分为主，例如在 $PM_{2.5}$可测组分中，2020 年 NO_3^- 质量分数高达 46%，较同年清洁天（11%）显著增加；SO_4^{2-} 质量分数为 12% ~19%，说明当前硫酸盐污染仍不容忽视. 北京市 1 ~3 月 $PM_{2.5}$ 主要贡献区域包括内蒙古自治区中西部、河北省、天津市、山西省、陕西省、山东省中西部和河南省北部. 研究结果将为北京市冬季空气质量持续改善以及 2022 年冬奥会与冬季残奥会期间北京市环境空气质量保障提供科学依据.

关键词：2022 年北京冬季奥林匹克运动会；$PM_{2.5}$；重污染；化学组成；潜在源区
中图分类号：X513 **文献标识码**：A **文章编号**：0250-3301(2022)08-3895-08 **DOI**：10.13227/j.hjkx.202112132

Characteristics of $PM_{2.5}$ Pollution in Beijing During the Historical Period of the 2022 Olympic Winter Games

LIU Yue-chen, MAN Rui-qi, QIU Yan-ting, YANG Jia-wei, WANG Jun-rui, TAN Rui, TANG Li-zi, YU Ying, SONG Kai, GUO Song, CHEN Shi-yi, ZENG Li-min, WU Zhi-jun*, HU Min
(State Key Joint Laboratory of Environmental Simulation and Pollution Control, College of Environmental Sciences and Engineering, Peking University, Beijing 100871, China)

Abstract: Based on the dataset derived from January to March between 2015 and 2021 in Beijing, the $PM_{2.5}$ pollution characteristics and its potential source regions during the historical period of the Beijing 2022 Olympic Winter Games and Paralympic Winter Games were investigated. From 2015 to 2018, both the number of severely polluted days (daily average $\rho(PM_{2.5}) > 75\ \mu g\cdot m^{-3}$) and the average $PM_{2.5}$ concentrations during severe pollution episodes decreased significantly in the period of January to March. While, neither variable has changed obviously since 2018. On average, severely polluted days occurred 23 times in each year between 2018 and 2021 during the period of January to March, and the average of $\rho(PM_{2.5})$ was approximately 120.0 $\mu g\cdot m^{-3}$ during such polluted days. From January to March in 2015-2021, the severely polluted event with more than 5 consecutive polluted days occurred 2-3 times in each year, and the severest one lasted 8 d. During the historical period of the Beijing 2022 Olympic Winter Games, severely polluted days took place 2-9 d every year. The large quantities of fireworks during the Spring Festival maybe one of important primary sources of the $PM_{2.5}$. The number of severely polluted days during the historical period of the Paralympic Winter Games ranged from 1 to 5 d, except for 2021 with 9 d owing to the frequent stagnant weather condition. The $PM_{2.5}$ chemical composition was dominated by secondary species on severely polluted days during the historical period of the Beijing 2022 Olympic Winter Games and Paralympic Winter Games. Nitrate accounted for 46% of the measurable chemical components of $PM_{2.5}$ during severe pollution events in 2020, which was remarkably higher than that during clean days in the same year (11%). The mass fraction of SO_4^{2-} ranged from 12% to 19% in 2018-2020, indicating that the contribution of sulfate was much less, but cannot be ignored. The main potential source regions of $PM_{2.5}$ in Beijing during the period concerned in this study were central and western Inner Mongolia, Hebei Province, Tianjin City, Shanxi Province, Shaanxi Province, central and western Shandong Province, and northern Henan Province.

Key words: Beijing 2022 Olympic Winter Games; $PM_{2.5}$; heavy pollution; chemical composition; potential source regions

2022 年北京冬季奥林匹克运动会（冬奥会）于 2022 年 2 月 4 ~20 日在北京市举办，随后 3 月 4 ~14 日举办 2022 年北京冬季残疾人奥林匹克运动会（冬季残奥会）. 良好的空气质量是冬奥会与冬季残奥会顺利举办的重要保障. 近年来，北京市环境空气质量明显改善，以 SO_2 和 $PM_{2.5}$为代表的污染物浓度持续降低[1~6]，NO_x（$NO_x = NO + NO_2$）和挥发性有机物的排放也得到有效控制[7]. 有研究表明，二次无机盐（$SO_4^{2-} + NO_3^- + NH_4^+$，SNA）在北京市 $PM_{2.5}$ 中的质量分数逐年增加[7~9]，且由于 SO_2 浓度降低，NO_3^- 已经取代 SO_4^{2-} 成为对 $PM_{2.5}$贡献最高的水溶

收稿日期：2021-12-13；**修订日期**：2022-01-08
基金项目：国家重点研发计划项目（2017YFC0213003）；国家自然科学基金重大研究计划项目（91844301）；国家自然科学基金项目（41875149）
作者简介：刘玥晨（1993 ~），女，博士，主要研究方向为 $PM_{2.5}$物理化学性质，E-mail：yclpku@163.com
* 通信作者，E-mail：zhijunwu@pku.edu.cn

性无机离子[10~20]. 此外,总有机物的浓度和质量分数呈降低趋势,但二次有机气溶胶在有机物中所占质量分数增加[7,21,22]. 另一方面,已有研究发现区域传输是北京市 $PM_{2.5}$污染的重要来源[23].

然而,目前的研究大多集中在对整个冬季 $PM_{2.5}$化学组成特征的分析[7,9,24],针对近年来,尤其是 2018 年以后两奥运赛事历史同期北京市 $PM_{2.5}$化学组成特征和污染态势等长期变化的详细分析仍然较少. 本研究基于 2015 ~2021 年北京市 $PM_{2.5}$物理化学性质的长期测量数据,综合分析了历年来冬奥会和冬季残奥会历史同期 $PM_{2.5}$的污染态势、化学组成特征和潜在源区等. 考虑到冬奥会和冬季残奥会运动员将提前入住奥运村,本研究选取 1 ~3 月作为分析时间段. 本研究的结果将有助于北京市冬季空气质量的持续改善,并为 2022 年冬奥会与冬季残奥会期间北京市环境空气质量保障提供科学依据.

1 材料与方法

1.1 样品采集与分析

观测时间为 2015 ~2021 年的 1 月 1 日 ~3 月 31 日,观测地点为北京大学理科教学楼楼顶. 采样口距地面高度约为 30 m,四周为教学楼,东侧约 200 m 为中关村北大街. 使用 Partisol-plus 2025i 连续采样器(美国 Thermo Fisher)进行 $PM_{2.5}$采样,流量为 16.7 L·min^{-1},滤膜分别为直径 47 mm 的 Teflon 膜与石英膜. 采样时长为 23 h 59 min(07:01 ~次日 07:00). 采样前后,Teflon 膜放置在超净室[(20 ±1)℃,(40 ±5)%]内平衡 24 h. 采样后的 Teflon 膜倒扣于 100 mL 洁净干燥的烧杯中,加入 20 mL 去离子水(Milli-Q Gradient 纯水机制备, 25℃, 18.2 MΩ·cm),超声提取 30 min. 采用离子色谱法(DIONEX ICS2000 / ICS2500)分析提取液中的水溶性无机离子(Na^+、NH_4^+、K^+、Mg^{2+}、Ca^{2+}、Cl^-、NO_3^- 和 SO_4^{2-})[25]. 基于热光反射法,使用元素碳/有机碳分析仪(美国 Sunset Lab.)分析石英膜样品中有机碳(organic carbon, OC)与元素碳(element carbon, EC)含量[26]. 给定有机物(Org)和 OC 之间换算系数为 1.6,据此算出 Org 的浓度. $PM_{2.5}$浓度由锥形元件振动微天平监测仪(TEOM,美国 Thermo-Fisher Inc.)测定. 环境相对湿度(RH)、温度(T)、风向和风速均通过自动气象站(Met one Instrument Inc.)测定.

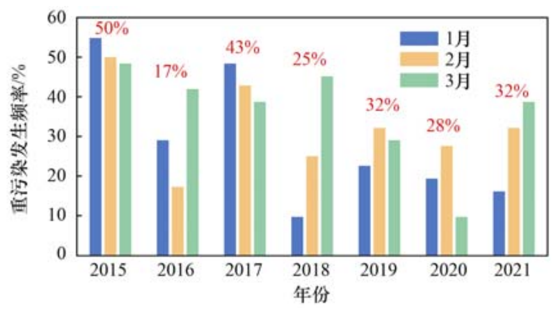
1.2 潜在源分析

为探究 2015 ~2021 年的 1 ~3 月北京市 $PM_{2.5}$的潜在源区和各源区对 $PM_{2.5}$浓度的贡献,利用 HYSPLIT-4[27]模式,采用总空间方差方法进行北京市潜在源贡献因子(PSCF)[28,29]和浓度权重轨迹(CWT)[30]分析. 模拟受点为北京大学(39°59′N, 116°18′E),轨迹计算起始高度为 500 m,到达受点的时长设置为 96 h,研究区域按 1°×1°划分网格. PSCF 分析法是一种基于气流轨迹分析来识别污染源区的方法,能够解析气流轨迹途经的区域对受点地区污染的贡献,反映某区域污染轨迹所占比例,但它无法区分相同 PSCF 值的区域对受点 $PM_{2.5}$浓度贡献的大小. 因此,需进一步采用 CWT 分析法计算潜在源区气流轨迹浓度权重,分析不同潜在源区的污染程度. PSCF 与 CWT 分析方法详见文献[28 ~31].

2 结果与讨论

2.1 $PM_{2.5}$污染态势

根据《环境空气质量标准》(GB 3095-2012)对 $PM_{2.5}$污染等级进行了划分: 认定日均 $\rho(PM_{2.5}) \leq 35.0\ \mu g \cdot m^{-3}$ 时为清洁天, $35.0\ \mu g \cdot m^{-3} <$ 日均 $\rho(PM_{2.5}) \leq 75.0\ \mu g \cdot m^{-3}$ 时为污染天, 日均 $\rho(PM_{2.5}) > 75.0\ \mu g \cdot m^{-3}$时为重污染天. 基于所测 $PM_{2.5}$浓度,分别对 2015 ~2021 年的 1 ~3 月中各月份的重污染发生频率(当月重污染天数与当月总天数之比)进行统计,结果如图 1 所示. 2015 ~2018 年的 1 月重污染发生频率整体呈下降趋势,重污染天数由 17 d 降低至 3 d,发生频率由 55% 降低至 10%. 2018 年以后,重污染发生频率有所增加,其中 2021 年 1 月为 16%. 2 月重污染发生频率的变化趋势与 1 月相同. 历年冬奥会历史同期发生重污染的天数为 2 ~9 d. 2021 年 2 月 4 ~20 日(冬奥会历史同时段)的重污染天数为 5 d,发生频率为 29%. 2 月 12 ~14 日的重污染发生在春节(农历腊月三十至正月初六)期间(图 2),烟花爆竹大量燃放可能是该重污染过程发生的重要原因[32~34]. 根据图 2, 2016 年和 2019 年冬奥会历史

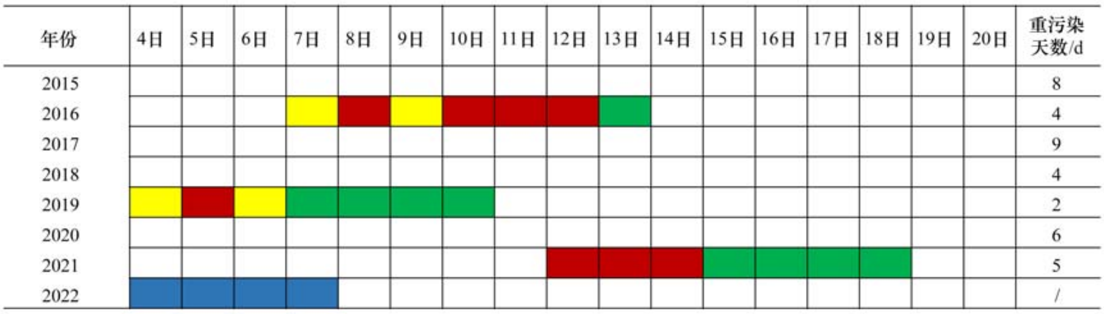


柱子上方标注数值表示 2 月重污染发生频率

图 1 2015 ~2021 年的 1 ~3 月各月份重污染发生频率

Fig. 1 Frequency of heavy pollution from January to March in 2015-2021

同期均与春节重叠,且均出现重污染过程. 而 2022 年春节与冬奥会也存在重叠日期(2 月 4 ~ 7 日), 应对该时段可能发生的重污染过程进行防范. 除 2021 年之外, 2015 ~ 2020 年的 3 月重污染频率整体呈降低趋势. 受新冠疫情等因素的影响[35 ~ 37], 2020 年 3 月重污染发生频率降低为 10%, 而 2021 年增高至 39%. 历年冬季残奥会历史同期重污染天数为 1 ~ 5 d. 但 2021 年 3 月 4 ~ 14 日(冬季残奥会历史同时段)的重污染天数高达 9 d, 占比为 82%. 该时间段内, NO 的平均浓度较高(14.1 μg·m^{-3}); 风向以南风为主, 平均风速约为 1.9 m·s^{-1}, 风速较小, 不利于污染物扩散. 高浓度气态前体物叠加静稳天气可能是 2021 年重污染过程频繁出现的重要原因[38,39]. 整体而言, 近年来北京市全年重污染天数逐年减少[40], 2015 ~ 2018 年的 1 ~ 3 月重污染发生频率降低, 但 2018 年以后未发生显著变化, 尤其是在冬奥会与冬季残奥会历史同时段, $PM_{2.5}$ 重污染频率仍然较高. Lei 等[7]的研究也指出, 2015 ~ 2020 年的 1 月和 2 月的重污染频率在统计上没有显著差异.



绿色表示清洁天, 黄色表示污染天, 红色表示重污染天, 蓝色表示 2022 年春节

图 2　2015 ~ 2021 年冬奥会历史同期(2 月 4 ~ 20 日)春节期间(农历腊月三十至正月初六)的污染情况和冬奥会历史同期的重污染天数

Fig. 2　Total number of severely polluted days and pollution degrees during the Spring Festival (from the 30th day of the 12th month to the 6th day of the 1st month of the following year in the lunar calendar) in the historical period of the 2022 Olympic Winter Games in 2015-2021

图 3 为 2015 ~ 2021 年的 1 ~ 3 月重污染天 $PM_{2.5}$ 浓度平均值和最大值的统计结果. 从中可知, 2016 ~ 2017 年的 1 ~ 3 月重污染天 $\rho(PM_{2.5})$ 平均值超过 140 μg·m^{-3}, 2018 年降低至 122.7 μg·m^{-3}, 此后基本保持稳定. 除 2017 年以外, 重污染天 $PM_{2.5}$ 最大值整体呈降低趋势. 2015 年重污染天 $\rho(PM_{2.5})$ 最大值为 318.8 μg·m^{-3}, 2021 年降低为 239.6 μg·m^{-3}, 降幅为 25%. Zheng 等[4]的研究发现, 2005 ~ 2017 年我国大气人为源污染物的排放量降低了 21% ~ 59%. 硫酸盐和有机物等化学组分的减少导致 $PM_{2.5}$ 浓度显著降低[46]. 据文献[41], 相比于 2018 年, 北京市 2020 年全年 $PM_{2.5}$ 滑动平均值同比下降约 12.0%, 这说明文献[42]的实施对我国环境空气质量的改善产生了积极作用[8,9,28].

为进一步分析 2015 ~ 2021 年的 1 ~ 3 月重污染持续时长[$\rho(PM_{2.5})$ 连续超过 75 μg·m^{-3} 的天数]的变化情况, 本研究对不同持续时长的重污染过程的发生频率以及历年持续时间最长的重污染过程的天数进行了统计. 根据图 4(a), 2015 年 1 ~ 3 月不同时长的重污染过程的发生频率较为相似. 2016 ~ 2017 年和 2019 ~ 2020 年的 1 ~ 3 月均以短时重污染(1 ~ 2 d)和超长重污染(≥ 5 d)过程为主(总发生频率 > 60%). 2018 年 1 ~ 3 月未发生超长重污染过程. 2021 年 1 ~ 3 月以超长重污染为主, 发生频率为 50%. 每年 1 ~ 3 月超长重污染过程平均发生 2 ~ 3 次. 除 2019 年以外, 每年冬奥会历史同期均发生了超长重污染过程. 另一方面, 如图 4(b)所示, 2015 ~ 2021 年的 1 ~ 3 月持续时间最长的重污染过程的天数未发生显著改变. 2018 年最长重污染过程持续时间最短(3 d), 2017 与 2021 年最长重污染过程持续时间最长(8 d). 在 2017 年和 2021 年持续时间最长的重污染过程中, 平均风速分别为 2.0 m·s^{-1} 和 1.7 m·s^{-1}, 风向均以西南为主, 环境 RH 较高, 平均 RH 分别为 50% 和 55%. 大气环境长期处于弱南风主导的状态, 导致了污染物的累积[23,25,26],

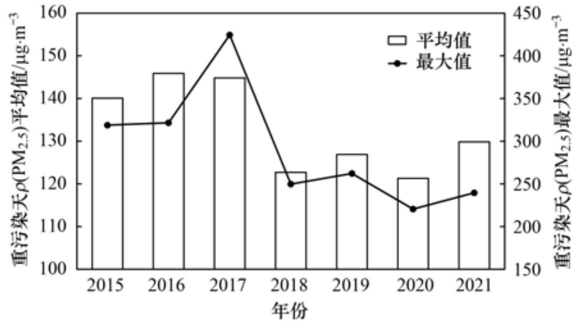


图 3　2015 ~ 2021 年的 1 ~ 3 月重污染天 $PM_{2.5}$ 平均值与最大值

Fig. 3　Average and maximum value of $PM_{2.5}$ during severe pollution from January to March in 2015-2021

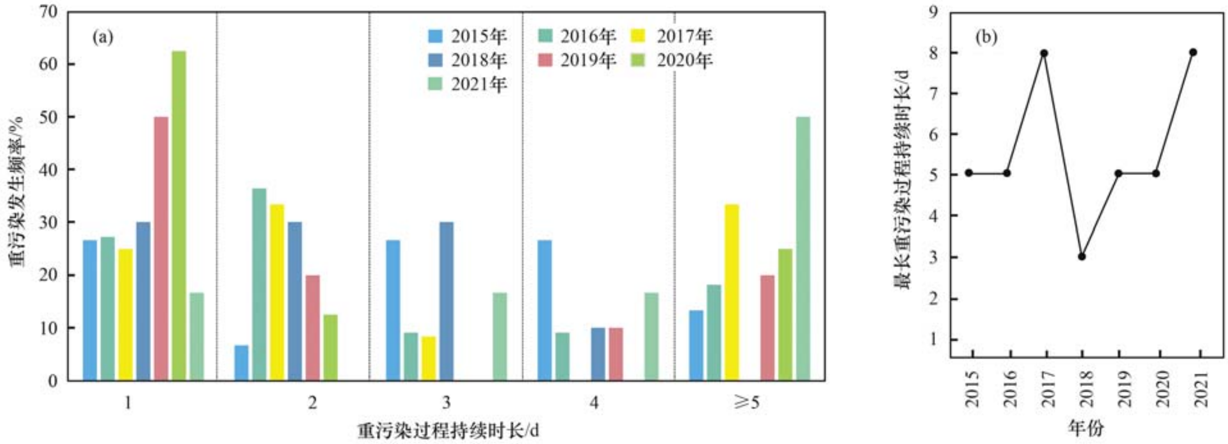


图 4 2015 ~ 2021 年的 1 ~ 3 月不同持续时长重污染过程的发生频率和历年最长重污染过程的持续时长

Fig. 4 Frequency of severe pollution episodes with different durations from January to March in 2015-2021 and the duration of the longest heavy pollution processes in each year

同时高湿条件下颗粒物液态水含量(aerosol liquid water content, ALWC)的增加可能进一步加重了污染程度. 因此,长时间高湿和静稳天气出现时应警惕超长重污染过程的发生.

2.2 $PM_{2.5}$化学组成特征

2018 年后, $PM_{2.5}$ 化学组成及其浓度相较于 2017 年及以前发生了显著改变[7],因此本研究针对 2018 ~ 2020 年冬奥会和冬季残奥会历史同期 $PM_{2.5}$ 化学组成的变化情况进行了分析. 图 5 分别为不同污染程度下的历年 2 月 4 ~ 20 日(冬奥)和 3 月 4 ~ 14 日(残奥) $PM_{2.5}$ 化学组成的浓度和质量分数.

结果表明,清洁天、污染天和重污染天 $PM_{2.5}$ 化学组成有明显差异. 根据图 5(a)和 5(b),清洁天 $PM_{2.5}$ 以有机物为主,且有机物浓度呈逐年增加趋势. 2018 年冬奥会历史同期,清洁天有机物在 $PM_{2.5}$ 可测化学组成中的质量分数为 33%, 2020 年增加至 52%; 2019 年冬季残奥会历史同期,清洁天有机物质量分数为 46%, 2020 年增加至 60%. 在污染期间[图 5(d)和 5(f)],有机物在 $PM_{2.5}$ 中的质量分数显著降低. 以 2020 年冬季残奥会历史同期为例,重污染时有机物质量分数为 15%,相比清洁天减少了 45%. 有研究也同样指出污染期间 $PM_{2.5}$ 中有机物质量分数降低[43~45].

重污染时, $PM_{2.5}$ 化学组成以二次无机盐为主. 由图 5(b)可知,清洁天时 SNA 在 $PM_{2.5}$ 可测组分中的质量分数最高值为 44%,且 SO_4^{2-} 与 NO_3^- 浓度相当,冬奥会与冬季残奥会历史同期 SO_4^{2-}/NO_3^- 分别为 1.2 和 1.1. 而在污染[图 5(d)]与重污染[图 5

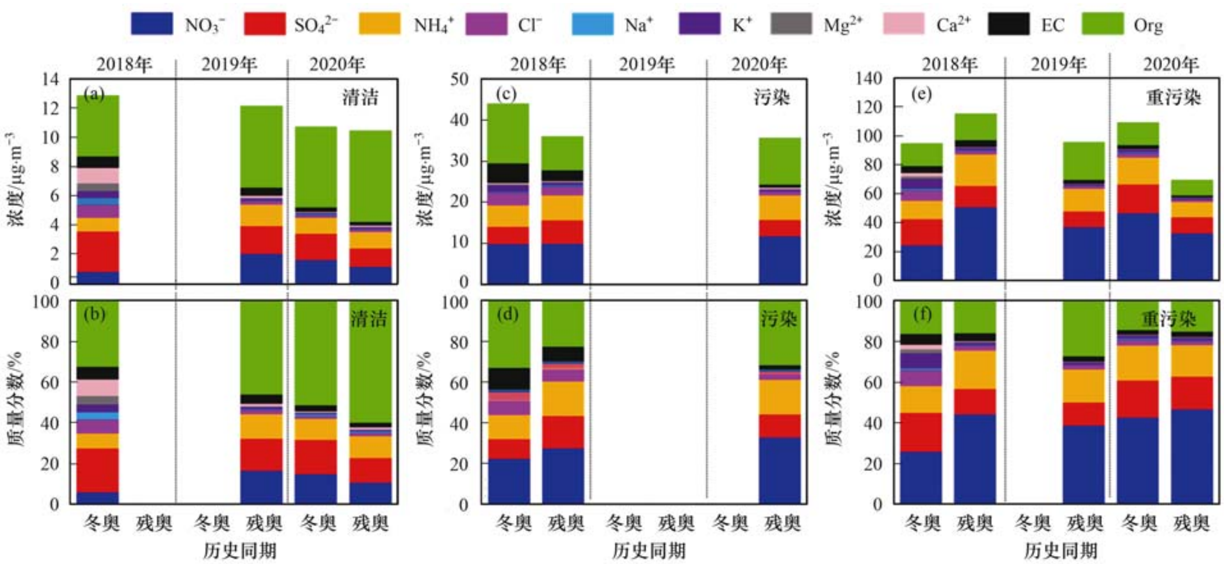


图 5 不同污染程度下 2018 ~ 2020 年的 2 月 4 ~ 20 日(冬奥会历史同期)和 3 月 4 ~ 14 日(冬残奥会历史同期)的 $PM_{2.5}$ 化学组成的浓度和质量分数

Fig. 5 Mass concentration and fraction of $PM_{2.5}$ chemical compositions in the historical period of the Beijing 2022 Olympic Winter Games and the Paralympic Winter Games in 2018-2020 (f)]时段，SNA 的质量分数最高分别可达 61% 与 78%. 此外，在空气质量大幅改善的前提下，SNA 在 $PM_{2.5}$ 中的质量分数呈逐年增加趋势. 造成该现象的原因可能是大气氧化性增强和频繁出现的静稳气象条件等[7]. 高浓度的 NO_3^- 是近年来 SNA 质量分数升高的主要原因. 2020 年的冬季残奥会同期，清洁天 NO_3^- 质量分数为 11%，污染时增加至 33%，重污染时则高达 46%. 同时，SO_4^{2-}/NO_3^- 由 1.1 降低至 0.4，NO_3^- 替代 SO_4^{2-} 成为对 $PM_{2.5}$ 贡献最高的水溶性无机离子. 由于机动车能够排放大量 NO_3^- 的气态前体物 NO_x，因此机动车排放可能仍然是北京市 $PM_{2.5}$ 的重要来源之一. 该结论与已有研究相同[11~14,16~18]. 尽管相较于 NO_3^-，SO_4^{2-} 并非主导 $PM_{2.5}$ 的浓度，且在重污染时段未显著增加，但 SO_4^{2-} 的质量分数始终大于 10%，因此当前硫酸盐污染仍不容忽视. 近年来，Cl^- 和 K^+ 在不同污染程度下均表现为明显地降低趋势(例如，2018 ~2020 年冬奥会历史同期清洁与重污染时段的质量分数降幅分别为 85% 与 63%)，表明生物质燃烧排放的 $PM_{2.5}$ 减少. Li 等[9] 的研究也发现，2012 ~2018 年生物质燃烧气溶胶在有机物中的质量分数降低了 67%.

为进一步探究以 NO_3^- 和 SO_4^{2-} 为主的二次污染物在重污染过程中的贡献，计算了 2015 年以来北京市 1 ~ 3 月的硫转化率(SOR)和氮转化率(NOR)，并分析了 SOR 和 NOR 随 $PM_{2.5}$ 浓度和 RH 的变化(图 6). SOR 与 NOR 的计算公式如下：

$$SOR = [SO_4^{2-}]/([SO_4^{2-}] + [SO_2]) \quad (1)$$

$$NOR = [NO_3^-]/([NO_3^-] + [NO_2]) \quad (2)$$

式中，$[M]$ 表示某物质的量浓度，单位为 $mol \cdot m^{-3}$. 有研究发现，随着污染程度的加剧，SOR 和 NOR 逐渐上升. 重污染过程中污染物二次转化率提高，表明二次转化是重污染形成的重要原因[46]. 另一方面，NOR 和 SOR 与 RH 的相关性较好($R > 0.5$)，原因可能为重污染时环境 RH 较高，颗粒物吸湿后 ALWC 增加[47]. 作为液相化学反应介质，ALWC 与二次无机盐存在正反馈作用[48,49]，能够促进 SNA 的生成[50,51].

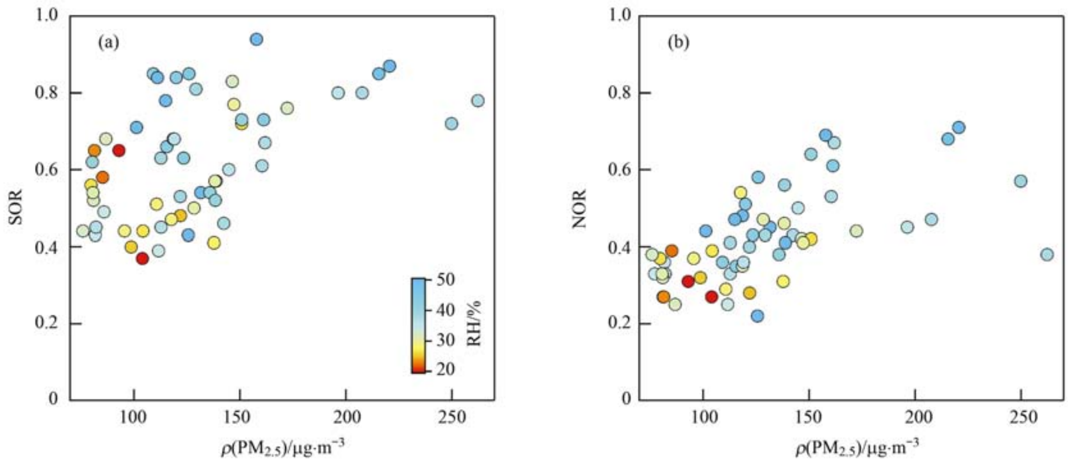


图 6　硫转化率(SOR)和氮转化率(NOR)随相对湿度(RH)和 $PM_{2.5}$ 浓度的变化情况

Fig. 6　Sulfur oxidation rate (SOR) and nitrogen oxidation rate (NOR) as a function of $PM_{2.5}$, influenced by the relative humidity (RH)

2.3　$PM_{2.5}$ 潜在源区分析

当前，区域传输是北京市 $PM_{2.5}$ 污染的重要来源[23,52~54]. 按照风向风速，将 2015 ~2021 年的 1 ~3 月重污染时段的天气类型分为静稳天(风速 ≤2 $m \cdot s^{-1}$)、南风主导天(风速 > 2 $m \cdot s^{-1}$，且风向为南)和北风主导天(风速 > 2 $m \cdot s^{-1}$，且风向为北). 图 7 为重污染期间 $PM_{2.5}$ 在不同天气类型下的 PSCF 与 CWT 结果.

静稳天[图 7(a)]PSCF 大于 0.9 的区域分布范围较广. 北京市 $PM_{2.5}$ 的主要潜在源区集中在河北省南部、天津市、山东省西部和河南省东北部地区，并向西北方向延伸至山西省北部、陕西省北部、内蒙古自治区中西部和蒙古国西南区域. 甘肃省和河南省等也有零星地区对北京 $PM_{2.5}$ 有明显影响. 根据清洁天 CWT[图 7(b)]，蒙古国西南区域、内蒙古自治区中西部、山西省、陕西省、河北省、天津市、河南省、山东省、安徽省北部和江苏省北部日均 $\rho(PM_{2.5})$ 贡献超过 100 $\mu g \cdot m^{-3}$.

在南风主导天[图 7(c)和 7(d)]，对北京市 $PM_{2.5}$ 有重要影响的区域明显向东南方向偏移，主要集中在内蒙古自治区中部、河北省、天津市、辽宁省西南部、山西省、陕西省北部、山东省中西部、河南省东北部、安徽省北部和江苏省西部，上述地区日均 $\rho(PM_{2.5})$ 贡献均超过 100 $\mu g \cdot m^{-3}$.

在北风主导天[图 7(e)]，北京市 $PM_{2.5}$ 主要潜在源区包括蒙古国中部、内蒙古自治区中西部、河

北省、陕西省和陕西省. 山东省西部、河南省东部、安徽省北部、江苏省北部和准噶尔盆地的零星地区也为重要潜在源区. 相比于静稳天和南风主导天，北风主导天时北京市 $PM_{2.5}$ 主要潜在源区在西北方向的范围扩大. 根据图 7(f)，准噶尔盆地、蒙古国中部、内蒙古自治区中西部、山西省、山西省、河北省、山东省西部、河南省东部和安徽省北部的 CWT 高于 100 $\mu g \cdot m^{-3}$.

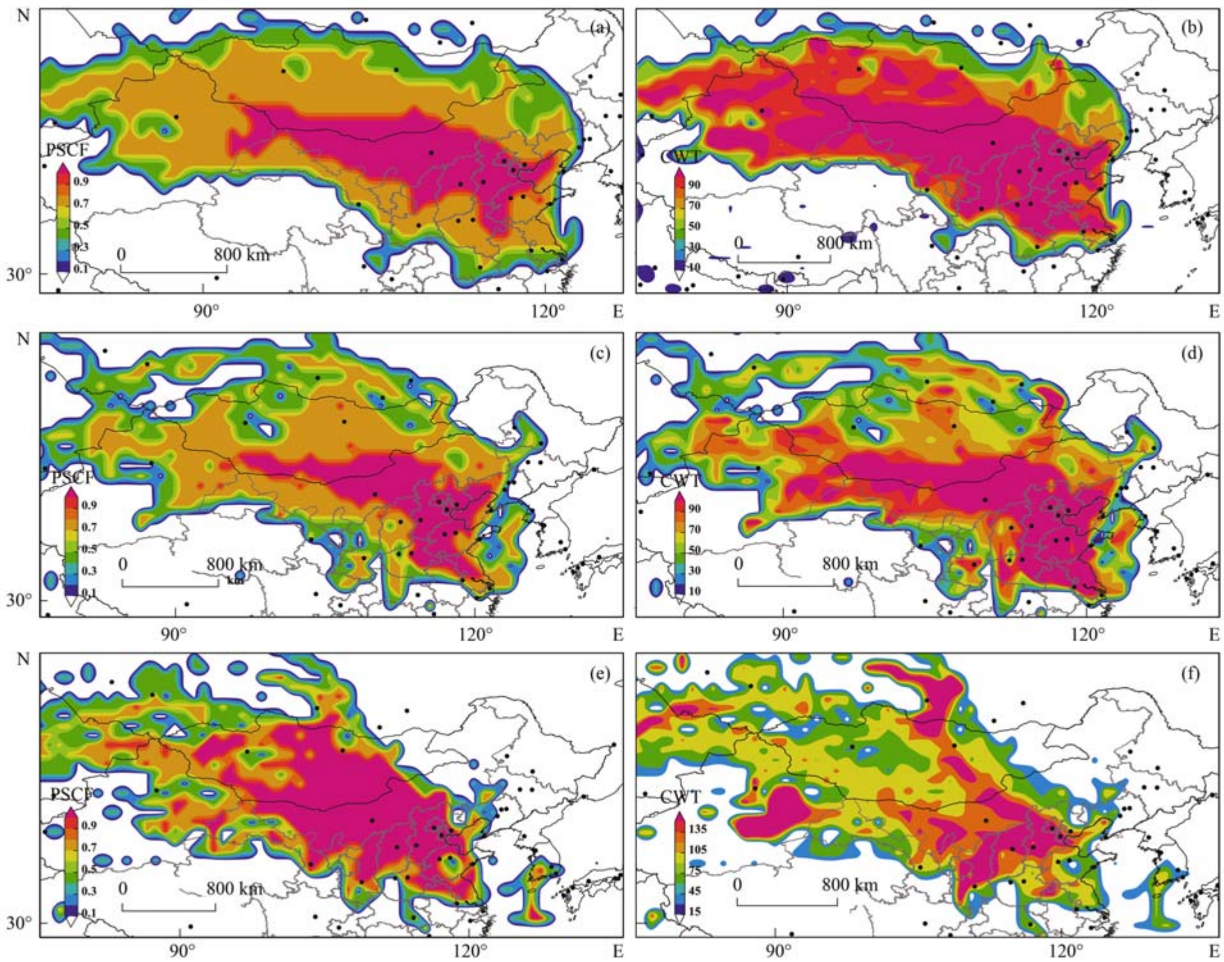


图 7 重污染期间 $PM_{2.5}$ 在不同天气类型下的潜在源贡献因子(PSCF)与浓度权重轨迹分布(CWT)

Fig. 7 Distribution of potential source contribution function (PSCF) and concentration weighted trajectory (CWT) of $PM_{2.5}$ in different weather types under severe pollution

综上所述，内蒙古自治区中西部、河北省、天津市、山西省、陕西省、山东省中西部和河南省北部等地为北京市 1 ~ 3 月重污染时的重要潜在源区，对 $PM_{2.5}$ 浓度贡献显著. 本文的结果与以往研究的结果基本一致[55 ~ 58]. 例如，李颜君等[58]研究了 2005 ~ 2016 年北京市冬季大气颗粒物潜在源区，发现内蒙古自治区中部、宁夏部分区域、陕西省西北部及东部、山西省北部、河南省北部、河北省南部、山东省西北部和辽宁省部分区域是主要潜在区域.

3 结论

(1) 北京冬奥会历史同期 $PM_{2.5}$ 重污染[日均 $\rho(PM_{2.5}) > 75\ \mu g \cdot m^{-3}$]发生频率仍然较高. 2018 年后，历年 1 ~ 3 月重污染平均发生 23 d，发生频率为 26%. 其中，历年来冬奥会历史同期重污染天数为 2 ~ 9 d，冬季残奥会历史同期重污染天数相对较少，为 1 ~ 5 d.

(2) 2015 后每年 1 ~ 3 月超长重污染过程(重污染连续时长超过 5 d)平均发生 2 ~ 3 次，且重污染时间最长可达到 8 d. 持续的高湿和静稳天气是超长重污染过程的共同气象特征.

(3) 在冬奥会与冬季残奥会历史同期的重污染时段，$PM_{2.5}$ 化学组成以二次组分为主. 相较于清洁天，重污染过程中 NO_3^- 在 $PM_{2.5}$ 可测组分中的质量分数明显增加，最高可达 46%，增幅为 340%；SO_4^{2-} 的质量分数为 12% ~ 19%，当前硫酸盐污染仍不容忽视.

(4) 2015 ~ 2021 年的 1 ~ 3 月北京市 $PM_{2.5}$ 的主要贡献区域包括内蒙古自治区中西部、河北省、天津市、山西省、陕西省、山东省中西部和河南省北部等.

参考文献：

[1] Liu F, Zhang Q, Van der A, *et al*. Recent reduction in NO_x

emissions over China: synthesis of satellite observations and emission inventories[J]. Environmental Research Letters, 2016, **11**(11), doi: 10.1088/1748-9326/11/11/114002.

[2] Zhao B, Jiang J H, Gu Y, *et al.* Decadal-scale trends in regional aerosol particle properties and their linkage to emission changes [J]. Environmental Research Letters, 2017, **12**(5), doi: 10.1088/1748-9326/aa6cb2.

[3] Zhang J L, Reid J S, Alfaro-Contreras R, *et al.* Has China been exporting less particulate air pollution over the past decade? [J]. Geophysical Research Letters, 2017, **44**(6): 2941-2948.

[4] Zheng B, Chevallier F, Ciais P, *et al.* Rapid decline in carbon monoxide emissions and export from east Asia between years 2005 and 2016[J]. Environmental Research Letters, 2018, **13**(4), doi: 10.1088/1748-9326/aab2b3.

[5] Wang L L, Xiong Q L, Wu G F, *et al.* Spatio-temporal variation characteristics of $PM_{2.5}$ in the Beijing-Tianjin-Hebei region, China, from 2013 to 2018 [J]. International Journal of Environmental Research and Public Health, 2019, **16**(21), doi: 10.3390/ijerph16214276.

[6] Wen Z, Wang C J, Li Q, *et al.* Winter air quality improvement in Beijing by clean air actions from 2014 to 2018 [J]. Atmospheric Research, 2021, **259**, doi: 10.1016/j.atmosres.2021.105674.

[7] Lei L, Zhou W, Chen C, *et al.* Long-term characterization of aerosol chemistry in cold season from 2013 to 2020 in Beijing, China[J]. Environmental Pollution, 2021, **268**, doi: 10.1016/j.envpol.2020.115952.

[8] Chen Z Y, Chen D L, Wen W, *et al.* Evaluating the "2 + 26" regional strategy for air quality improvement during two air pollution alerts in Beijing: Variations in $PM_{2.5}$ concentrations, source apportionment, and the relative contribution of local emission and regional transport[J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2019, **19**(10): 6879-6891.

[9] Li J Y, Gao W K, Cao L M, *et al.* Significant changes in autumn and winter aerosol composition and sources in Beijing from 2012 to 2018: effects of clean air actions [J]. Environmental Pollution, 2021, **268**, doi: 10.1016/j.envpol.2020.115855.

[10] Cai J, Wu C, Wang J D, *et al.* Influence of organic aerosol composition determined by offline FIGAERO-CIMS on particle absorptive properties in autumn Beijing [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2021, doi: 10.5194/acp-2021-528.

[11] Shao P Y, Tian H Z, Sun Y J, *et al.* Characterizing remarkable changes of severe haze events and chemical compositions in multi-size airborne particles (PM_1, $PM_{2.5}$ and PM_{10}) from January 2013 to 2016-2017 winter in Beijing, China[J]. Atmospheric Environment, 2018, **189**: 133-144.

[12] Zhao L, Wang L T, Tan J H, *et al.* Changes of chemical composition and source apportionment of $PM_{2.5}$ during 2013-2017 in urban Handan, China[J]. Atmospheric Environment, 2019, **206**: 119-131.

[13] Xu W Q, Sun Y L, Wang Q Q, *et al.* Changes in aerosol chemistry from 2014 to 2016 in winter in Beijing: insights from high-resolution aerosol mass spectrometry [J]. Journal of Geophysical Research: Atmospheres, 2019, **124**(2): 1132-1147.

[14] Zhai S X, Jacob D J, Wang X, *et al.* Control of particulate nitrate air pollution in China[J]. Nature Geoscience, 2021, **14**(6): 389-395.

[15] Song S J, Nenes A, Gao M, *et al.* Thermodynamic modeling suggests declines in water uptake and acidity of inorganic aerosols in Beijing winter haze events during 2014/2015-2018/2019[J]. Environmental Science & Technology Letters, 2019, **6**(12): 752-760.

[16] Li H Y, Cheng J, Zhang Q, *et al.* Rapid transition in winter aerosol composition in Beijing from 2014 to 2017: response to clean air actions[J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2019, **19**(17): 11485-11499.

[17] Lu K D, Fuchs H, Hofzumahaus A, *et al.* Fast photochemistry in wintertime haze: consequences for pollution mitigation strategies[J]. Environmental Science & Technology, 2019, **53**(18): 10676-10684.

[18] Xu Q C, Wang S X, Jiang J K, *et al.* Nitrate dominates the chemical composition of $PM_{2.5}$ during haze event in Beijing, China[J]. Science of the Total Environment, 2019, **689**: 1293-1303.

[19] Yang Y R, Liu X G, Qu Y, *et al.* 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, 2015, **15**(14): 8165-8178.

[20] Tan T Y, Hu M, Li M R, *et al.* New insight into $PM_{2.5}$ pollution patterns in Beijing based on one-year measurement of chemical compositions[J]. Science of the Total Environment, 2018, **621**: 734-743.

[21] Huang X, Ding A J, Gao J, *et al.* Enhanced secondary pollution offset reduction of primary emissions during COVID-19 lockdown in China[J]. National Science Review, 2020, **8**(2), doi: 10.1093/nsr/nwaa137.

[22] Xiao Y, Hu M, Zong T M, *et al.* Insights into aqueous-phase and photochemical formation of secondary organic aerosol in the winter of Beijing [J]. Atmospheric Environment, 2021, **259**, doi: 10.1016/j.atmosenv.2021.118535.

[23] Wang Y, Zhang X, Arimoto R, *et al.* The transport pathways and sources of PM_{10} pollution in Beijing during spring 2001, 2002 and 2003 [J]. Geophysical Research Letters, 2004, **31**(14), doi: 10.1029/2004GL019732.

[24] Zhou W, Gao M, He Y, *et al.* Response of aerosol chemistry to clean air action in Beijing, China: insights from two-year ACSM measurements and model simulations [J]. Environmental Pollution, 2019, **255**, doi: 10.1016/j.envpol.2019.113345.

[25] Guo S, Hu M, Wang Z B, *et al.* Size-resolved aerosol water-soluble ionic compositions in the summer of Beijing: implication of regional secondary formation[J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2010, **10**(3): 947-959.

[26] 胡敏，邓志强，王轶，等. 膜采样离线分析与在线测定大气细粒子中元素碳和有机碳的比较[J]. 环境科学，2008，**29**(12)：3297-3303.
Hu M, Deng Z Q, Wang Y, *et al.* Comparison of EC/OC in $PM_{2.5}$ between filter sampling off-line analysis and in situ on-line measurement[J]. Environmental Science, 2008, **29**(12): 3297-3303.

[27] Rolph G D, Ngan F, Draxler R R. Modeling the fallout from stabilized nuclear clouds using the hysplit atmospheric dispersion model[J]. Journal of Environmental Radioactivity, 2014, **136**: 41-55.

[28] Ashbaugh L L, Malm W C, Sadeh W Z. A residence time probability analysis of sulfur concentrations at grand canyon national park[J]. Atmospheric Environment (1967), 1985, **19**(8): 1263-1270.

[29] Zeng Y, Hopke P K. A study of the sources of acid precipitation in Ontario, Canada [J]. Atmospheric Environment (1967), 1989, **23**(7): 1499-1509.

[30] Hopke P K, Gao N, Cheng M D. Combining chemical and meteorological data to infer source areas of airborne pollutants [J]. Chemometrics and Intelligent Laboratory Systems, 1993, **19**(2): 187-199.

[31] Seibert P, Kromp-Kolb H, Baltensperger U, *et al.* Trajectory analysis of high-alpine air pollution data[A]. In: Gryning S E, Millán M M (Eds.). Air Pollution Modeling and its Application X[M]. Boston: Springer, 1994. 595-596.

[32] Wang Y, Zhuang G S, Xu C, *et al.* The air pollution caused by the burning of fireworks during the lantern festival in Beijing[J]. Atmospheric Environment, 2007, **41**(2): 417-431.

[33] Zhang Y Y, Wei J M, Tang A H, *et al.* Chemical characteristics of $PM_{2.5}$ during 2015 spring festival in Beijing, China [J]. Aerosol and Air Quality Research, 2017, **17**(5): 1169-1180.

[34] Tian Y Z, Wang J, Peng X, *et al.* Estimation of the direct and indirect impacts of fireworks on the physicochemical characteristics of atmospheric PM_{10} and $PM_{2.5}$ [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2014, **14**(18): 9469-9479.

[35] Fan C, Li Y, Guang J, *et al.* The impact of the control measures during the COVID-19 outbreak on air pollution in China [J]. Remote Sensing, 2020, **12**(10), doi: 10.3390/rs12101613.

[36] Zhang R X, Zhang Y Z, Lin H P, *et al.* NO_X emission reduction and recovery during COVID-19 in east China[J]. Atmosphere, 2020, **11**(4), doi: 10.3390/atmos11040433.

[37] Sun Y L, Lei L, Zhou W, *et al.* A chemical cocktail during the COVID-19 outbreak in Beijing, China: insights from six-year aerosol particle composition measurements during the Chinese new year holiday[J]. Science of the Total Environment, 2020, **742**, doi: 10.1016/j.scitotenv.2020.140739.

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

[39] Huang Y X, Guo B, Sun H X, *et al.* Relative importance of meteorological variables on air quality and role of boundary layer height[J]. Atmospheric Environment, 2021, **267**, doi: 10.1016/j.atmosenv.2021.118737.

[40] 党莹, 张小玲, 饶晓琴, 等. 北京与成都大气污染特征及空气质量改善效果评估[J]. 环境科学, 2021, **42**(8): 3622-3632.
Dang Y, Zhang X L, Rao X Q, *et al.* Evaluation of air pollution characteristics and air quality improvement effect in Beijing and Chengdu[J]. Environmental Science, 2021, **42**(8): 3622-3632.

[41] 北京市生态环境局. 2020 年北京市生态环境状况公报[EB/OL]. https://www.360kuai.com/pc/9d75fe0f76ac6d2fc?cota=3&kuai_so=1&tj_url=so_vip&sign=360_57c3bbd1&refer_scene=so_1, 2021-05-13.

[42] 国务院. 国务院关于印发大气污染防治行动计划的通知[EB/OL]. http://www.gov.cn/zwgk/2013-09/12/content_2486773.htm, 2013-09-12.

[43] Huang X J, Tang G Q, Zhang J K, *et al.* Characteristics of $PM_{2.5}$ pollution in Beijing after the improvement of air quality [J]. Journal of Environmental Sciences, 2021, **100**: 1-10.

[44] Sun Y L, Jiang Q, Wang Z F, *et al.* Investigation of the sources and evolution processes of severe haze pollution in Beijing in January 2013 [J]. Journal of Geophysical Research: Atmospheres, 2014, **119**(7): 4380-4398.

[45] Zhang Y, Huang W, Cai T Q, *et al.* Concentrations and chemical compositions of fine particles ($PM_{2.5}$) during haze and non-haze days in Beijing [J]. Atmospheric Research, 2016, **174-175**: 62-69.

[46] Zhang X, Zhang Z Z, Xiao Z S, *et al.* Heavy haze pollution during the COVID-19 lockdown in the Beijing-Tianjin-Hebei region, China[J]. Journal of Environmental Sciences, 2021, doi: 10.1016/j.jes.2021.08.030.

[47] Wu Z J, Chen J, Wang Y, *et al.* Interactions between water vapor and atmospheric aerosols have key roles in air quality and climate change[J]. National Science Review, 2018, **5**(4): 452-454.

[48] Wu Z J, Wang Y, Tan T Y, *et al.* Aerosol liquid water driven by anthropogenic inorganic salts: implying its key role in haze formation over the North China Plain[J]. Environmental Science & Technology Letters, 2018, **5**(3): 160-166.

[49] Liu Y C, Wu Z J, Wang Y, *et al.* Submicrometer particles are in the liquid state during heavy haze episodes in the urban atmosphere of Beijing, China [J]. Environmental Science & Technology Letters, 2017, **4**(10): 427-432.

[50] Cheng Y F, Zheng G J, Wei C, *et al.* Reactive nitrogen chemistry in aerosol water as a source of sulfate during haze events in China[J]. Science Advances, 2016, **2**(12), doi: 10.1126/sciadv.1601530.

[51] Wang Y, Chen Y, Wu Z J, *et al.* Mutual promotion between aerosol particle liquid water and particulate nitrate enhancement leads to severe nitrate-dominated particulate matter pollution and low visibility[J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2020, **20**(4): 2161-2175.

[52] Sun J J, Huang L, Liao H, *et al.* Impacts of regional transport on particulate matter pollution in China: A review of methods and results[J]. Current Pollution Reports, 2017, **3**(3): 182-191.

[53] 李璇, 聂滕, 齐珺, 等. 2013 年 1 月北京市 $PM_{2.5}$ 区域来源解析[J]. 环境科学, 2015, **36**(4): 1148-1153.
Li X, Nie T, Qi J, *et al.* Regional source apportionment of $PM_{2.5}$ in Beijing in January 2013[J]. Environmental Science, 2015, **36**(4): 1148-1153.

[54] Du H Y, Li J, Chen X S, *et al.* Modeling of aerosol property evolution during winter haze episodes over a megacity cluster in northern China: roles of regional transport and heterogeneous reactions of SO_2 [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2019, **19**(14): 9351-9370.

[55] Zhang R, Jing J, Tao J, *et al.* Chemical characterization and source apportionment of $PM_{2.5}$ in Beijing: Seasonal perspective [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2013, **13**(14): 7053-7074.

[56] 孔珊珊, 刘厚凤, 陈义珍. 基于后向轨迹模式的北京市 $PM_{2.5}$ 来源分布及传输特征探讨[J]. 中国环境管理, 2017, **9**(1): 86-90.
Kong S S, Liu H F, Chen Y Z. Discussion on the source distribution and transmission characteristics of $PM_{2.5}$ in Beijing based on backward trajectory model [J]. Chinese Journal of Environmental Management, 2017, **9**(1): 86-90.

[57] 王郭臣, 王东启, 陈振楼. 北京冬季严重污染过程的 $PM_{2.5}$ 污染特征和输送路径及潜在源区[J]. 中国环境科学, 2016, **36**(7): 1931-1937.
Wang G C, Wang D Q, Chen Z L. Characteristics and transportation pathways and potential sources of a severe $PM_{2.5}$ episodes during winter in Beijing [J]. China Environmental Science, 2016, **36**(7): 1931-1937.

[58] 李颜君, 安兴琴, 范广洲. 北京地区大气颗粒物输送路径及潜在源分析[J]. 中国环境科学, 2019, **39**(3): 915-927.
Li Y J, An X Q, Fan G Z. Transport pathway and potential source area of atmospheric particulates in Beijing [J]. China Environmental Science, 2019, **39**(3): 915-927.

HUANJING KEXUE

Environmental Science (monthly)

Vol. 43 No. 8

Aug. 15, 2022

CONTENTS