



中国超大城市空气污染和人体健康 (APHH-Beijing) 中英联合研究计划

最终报告



Medical
Research
Council



Natural
Environment
Research Council



Newton
Fund

中国超大城市空气污染和人体健康 (APHH-Beijing) 中英联合研究计划

最终报告

报告主编和研究计划总协调人: 时宗波 (英国伯明翰大学)

研究计划科研负责人 (按姓氏字母排序): James Allan (曼彻斯特大学), William Bloss (伯明翰大学), Benjamin Barret (国王大学学院, 现帝国理工大学), Hugh Coe (曼彻斯特大学), Ruth Doherty (爱丁堡大学), 傅平青 (中国科学院大气物理所, 现天津大学), Sue Grimmond (雷丁大学), 关大博 (东英吉利大学, 现清华大学), 郭新彪 (北京大学), Jacqui Hamilton (约克大学), Roy Harrison (伯明翰大学), 贺克斌 (清华大学), Dwayne Heard (利兹大学), C. Nicholas Hewitt (兰卡斯特大学), Rod Jones (剑桥大学), Markus Kalberer (剑桥大学, 现瑞士巴塞尔大学), Frank Kelly (国王大学学院, 现帝国理工大学), James Lee (约克大学), Ally Lewis (约克大学), 李杰 (中国科学院大气物理研究所), Miranda Loh (英国职业医学研究所), Mark Miller (爱丁堡大学), Paul Monks (兰卡斯特大学), Eiko Netmitz (英国生态和水文中心), Paul Palmer (爱丁堡大学), Claire Reeves (东英吉利大学), 邵龙义 (中国矿业大学-北京), 时宗波 (伯明翰大学), 孙志伟 (首都医科大学), 陶澍 (北京大学), 佟胜睿 (中国科学院化学研究所), Lisa Whalley (利兹大学), 王新明 (中国科学院广州地球化学研究所), 王学军 (北京大学), Oliver Wild (兰卡斯特大学), 吴志军 (北京大学), 谢品华 (中国科学院安徽光学精密机械研究所), 张强 (清华大学), 郑玫 (北京大学), 朱彤 (北京大学)

初稿撰写人: 徐婧莎, 时宗波, Roy Harrison, William Bloss

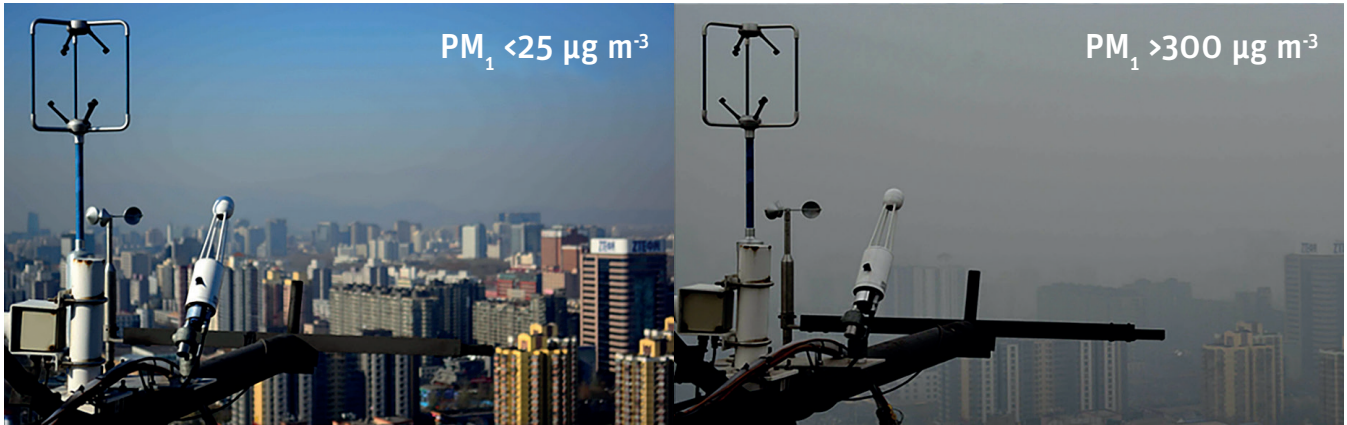
翻译: 徐婧莎, 时宗波

封面和版式设计: Chantal Jackson

如何引用: 时宗波, 徐婧莎, Roy Harrison, William Bloss, James Allan, Benjamin Barratt, Hugh Coe, Ruth Doherty, 傅平青, Sue Grimmond, 关大博, 郭新彪, Jacqui Hamilton, 贺克斌, Dwayne Heard, Nick Hewitt, Rod Jones, Markus Kalberer, Frank Kelly, James Lee, Ally Lewis, 李杰, Miranda Loh, Mark Miller, Paul Monks, Eiko Netmitz, Paul Palmer, Claire Reeves, 邵龙义, 孙志伟, 陶澍, 佟胜睿, Lisa Whalley, 王新明, 王学军, Oliver Wild, 吴志军, 谢品华, 张强, 郑玫, 朱彤, 2021. 中国超大城市空气污染和人体健康 (APHH-Beijing) 中英联合研究计划: 最终报告. Doi: 10.25500/epapers.bham.00003383.

版权所有 © 2021 作者. 共享许可-署名4.0国际 <https://creativecommons.org/licenses/by/4.0/deed.zh>

通讯作者: 时宗波 (z.shi@bham.ac.uk)



照片提供者 - 英国生态和水文研究所Ben Langford
首页照片提供者 - 英国生态和水文研究所Ben Langford

概要

自2016年以来，150多名中国和英国科学家在国家自然科学基金委、英国自然环境研究理事会、英国医学研究理事会和牛顿基金的资助下共同参与了“中国超大城市大气污染和人类健康中英联合研究计划 (APHH-Beijing)”。该计划的最终目的是为北京市空气污染防治提供科学支撑。APHH-Beijing通过多学科合作，成功地实现了该计划设定的技术目标。APHH-Beijing于2016年冬季和2017年夏季在北京开展了大规模的空气污染现场采样观测活动，并利用新的观测技术和模型对北京市空气污染的成因和健康影响进行了深入的研究。结合跨学科、不同机构和多个国家的学术优势，APHH-Beijing团队综合利用现场观测、实验室研究、机器学习和模型模拟等方法，取得了大量的科研成果，提高了我们对空气污染关键成因的认识，例如道路交通和长距离输送对北京市空气质量的影响等。到目前为止，APHH-Beijing团队发表了超过400篇经同行评议的学术论文，其中包括多篇发表在顶级多学科期刊上的论文以及47篇发表在APHH-Beijing特刊上的论文。本报告将列举部分重点研究成果及其潜在的政策意义：

1. 北京市中心主要大气污染物（挥发性有机物、氮氧化物和黑碳等）的实测排放通量远低于基于代用参数方法从“中国多尺度排放清单模型 (MEIC)”估算的降尺度排放量。在夏季，市中心区地表层甚至变成了一个亚微米颗粒物 (PM_{10}) 的汇，而不是源。但是，在APHH-Beijing观测期间，北京市大气污染物的浓度水平仍然相对很高，表明它们（除氮氧化物以外）主要来自非本地来源。
2. 观测和模型结果均表明了跨区域传输是北京大气 $PM_{2.5}$ 污染的主要来源。此外，人为和生物源排放的挥发性有机物也对北京地区二次颗粒物有重要贡献。减少长距离输送到北京的黑碳，有可能抑制气溶胶-气象反馈机制，并缩短霾的持续时间或降低霾的严重程度。

政策建议 1. 目前阶段北京市中心以外地区大气污染物（包括颗粒物，挥发性有机物和黑碳）的减排对北京市空气质量的改善最有效。

政策建议 2. 监测大气污染物的实际排放通量，以验证排放清单，从而支持污染防治政策的制定。

3. 多种方法一致表明，道路交通不是北京市一次颗粒物的主要来源，但它仍然是氮氧化物的重要来源。

政策建议 3. 继续控制道路交通氮氧化物排放以降低二氧化氮，但该措施对控制北京市一次 $PM_{2.5}$ 排放的效果有限。

4. 社会经济发展驱动下，中国农村生活能源的清洁化转型导致生活源排放及其对环境 $PM_{2.5}$ 浓度的贡献显著下降。尽管如此，2012年农村生活源固体燃料对大气 $PM_{2.5}$ 年均浓度的贡献仍高达20%左右。

5. 在2016年冬季，郊区/农村居民空气污染暴露水平明显高于北京市中心地区，这主要是由农村生活能源排放所导致的。该结果彰显不同能源结构所造成的城乡空气污染人群健康的不公平性。

政策建议 4. 进一步降低农村生活源固体燃料燃烧的排放，以减少空气污染和个人暴露和改进空气质量公平性。

6. 臭氧污染在夏季比较严重，而且污染水平在过去几年中没有明显改善的迹象。随着今后对氮氧化物和PM_{2.5}的进一步控制，如果不能加大对关键挥发性有机物物种排放的控制，臭氧污染有可能会进一步恶化。导致局地臭氧形成的主要挥发性有机物包括来自燃油蒸发排放的芳香族挥发性有机物和来自家用、工业溶剂使用排放的含氧挥发性有机物。

政策建议 5. 加快对周边地区挥发性有机物，特别是燃油蒸发排放的芳香族挥发性有机物和溶剂使用排放的含氧挥发性有机物的治理。

7. 利用机器学习和基于排放清单的传统化学传输模型方法均表明，北京市2013到2017年空气质量的大幅度改善主要归因于污染物减排，但是气象条件变化对年均空气质量有重要影响。应用机器学习方法还发现2020年新冠肺炎封城带来的空气质量提升效益比预期的要小。

政策建议 6. 建议推广机器学习方法作为评估清洁空气计划的有效性和空气质量管理的一种新工具。

8. 北京市中心夏季氨排放通量很高，但其主要来源似乎不是交通排放。减少氨排放有可能显著降低PM_{2.5}的质量浓度。

政策建议 7. 查清城市氨源及其排放，并制定措施以减少城区氨的排放。

9. 部分商业口罩可有效降低PM_{2.5}的个人暴露，但泄漏会降低口罩的有效性。空气净化器也可以有效降低室内PM_{2.5}水平，减少空气污染对健康的影响。

10. 空气污染对心理健康有显著影响。

政策建议 8. 帮助易感人群使用口罩和空气净化器等个人防护措施以降低空气污染对人群健康的影响。

综上所述，APHH-Beijing研究增加了我们对北京及周边地区空气污染排放、过程和健康效应的了解，为制定政策进一步控制大气污染提供了科学支持，并促进了对城市和乡村可持续发展的探讨。APHH-Beijing和利益相关者，包括生态环境部和北京市生态环境局举行了两次交流会，促进了研究成果向政策的转化。该研究计划还加强了中英科研合作，促进了对青年科学家的培训，并为未来在中国、英国和世界各地开展大气污染相关的国际科研合作提供了有益的经验教训。

APHH-Beijing技术报告

1. 背景与目标

APHH-Beijing是中国国家自然科学基金委员会、英国自然环境研究理事会、英国医学研究理事会和牛顿创新基金共同资助的第一个中英重大项目。APHH-Beijing包括五个子课题：

北京市空气污染物的来源和排放 (AIRPOLL) - 首席科学家：贺克斌院士， Roy Harrison 院士

北京地区空气污染过程的综合研究 (AIRPRO) - 首席科学家：傅平青教授， Ally Lewis教授

空气污染对北京城区及郊区居民心肺系统疾病的健康影响 (AIRLESS) - 首席科学家：朱彤教授， Frank Kelly教授

北京大气污染对心肺疾病影响的暴露科学、毒理基因组学和环境流行病学综合研究 (APIC-ESTEE) - 首席科学家：孙志伟教授， Miranda Loh博士

基于排放-健康-社会经济关系综合分析的北京地区大气污染治理方案研究 (INHANCE) - 首席科学家：陶澍院士， 关大博教授

APHH-Beijing研究计划总协调人：时宗波教授

AIRPOLL对北京空气污染物来源和排放进行了全面的调查。AIRPRO研究了北京低层大气层内控制气体和气溶胶污染的基本过程和气象动态及其相互影响。AIRLESS和APIC-ESTEE专注于大气污染对心血管和呼吸系统疾病的影响，并定量研究了北京空气污染物个人暴露、毒理学和急性心肺反应之间的关系。INHANCE整合了所有项目的研究成果，从而提供综合政策建议。APHH-Beijing的研究目标包括¹：

- 测定北京市主要大气污染物的排放通量，并确定不同来源、经济部门和区域交通对大气污染的贡献；
- 增进对大气污染物传输、化学反应和光解而转化或去除过程的了解，以及定量研究通过大气反应形成污染物的速率；
- 增进对可吸入颗粒物理化特征在大气中的演变过程的了解，并阐明颗粒物与城市和区域气象条件的相互反馈机制；
- 结合新的卫星观测和区域模型更好地解释现场观测结果；

- 测定北京城区和郊区居民大气污染物的个人暴露情况，并评估个人空气污染暴露与关键心肺功能指标之间的相关性；
- 定量研究特定活动、环境和污染源对北京市区和郊区/农村居民空气污染物个人暴露的贡献；
- 以北京市区和郊区为样本，进一步研究大气污染物对易感人群健康指标的影响；
- 评估空气污染对身体和精神健康的影响，并研究北京如何能更经济有效地改善空气质量。

在过去的4年里，APHH-Beijing成功地实现了研究计划的预定目标。此外，通过各个子项目的多学科合作，还产生了大量的交叉学科研究成果。到目前为止，受APHH-Beijing资助的学术论文数已经超过400篇，其中包括了多篇发表在顶级多学科期刊上的论文，以及47篇在APHH-Beijing特刊上发表的论文。此外，还有更多的论文有待发表。本报告旨在遴选部分研究成果，并总结本研究计划的经验和教训以及有待解决的科学问题，从而支持未来类似研究计划的科学设计。

2. 重点科学发现及其可能的政策意义

APHH-Beijing团队合作取得并发表了一系列新的科研成果。由于篇幅限制，在此我们仅报告了其中的部分成果，特别是那些可能对政策制定有益的成果。

2.1. 涡度相关法在中国大气污染物排放通量测量中的首次应用 (英国生态和水文中心、约克大学、兰卡斯特大学、曼彻斯特大学、中国科学院大气物理研究所、中国科学院广州地球化学研究所、清华大学)

APHH-Beijing首次采用涡度相关技术对北京多种大气污染物的排放通量进行了直接观测，包括NO_x、NH₃、CO、CO₂、O₃、挥发性有机化合物 (VOCs)、颗粒物 (PM) 及其化学成分 (黑碳、NH₄⁺、NO₃⁻、SO₄²⁻、Cl和有机物)。我们利用了位于北京中心的大气物理研究所 (IAP) 气象塔来进行通量测量。通量测量结果不但可以直接验证排放清单，也有助于阐明大气污染物的排放和转化过程。主要成果包括：

- 夏季和冬季NO_x排放通量相似 (3.55和4.41 mg m⁻² h⁻¹)，均在早晚高峰时段达到峰值，表明交通排放为NO_x的主要来源。但测量的通量远低于基于代用参数方法从“中国多尺度排放清单模型 (MEIC)”估算的降尺度排放量 (图1)²。

- 虽然北京市中心地区芳香族挥发性有机物（如甲苯和苯）浓度很高，但其排放通量却很低，这说明这些化合物主要来自北京市中心以外的地区。基于代用参数方法从MEIC估算的降尺度芳香族挥发性有机物排放量比北京市中心实测的通量要高一个数量级以上²。
- 在大气物理所铁塔分部，有机物在PM₁的各项化学物种（黑碳、NH₄⁺、NO₃⁻、SO₄²⁻、Cl和有机物）的通量中占主导地位；冬季PM₁中一次气溶胶组分的排放以烹饪源为主，其次为交通源和固体燃料燃烧³。
- 在北京市中心，基于代用参数方法从MEIC估算的降尺度黑碳排放量比实测通量在冬季和夏季分别高估了59和47倍；而北京市中心的黑碳排放主要来源于交通活动⁴。
- 在冬季雾霾期间黑碳的浓度相对较高，但是通量测量表明这些黑碳大部分来自北京市中心以外的地区⁴。
- 令人惊讶的是，在夏季，北京市中心地表层是PM₁的汇，而不是源。这可能是由于地表层的温度高于上层空气，导致(半)挥发性气溶胶成分，比如硝酸铵和有机物的挥发³。目前大多数大气化学和传输模型都没有考虑这一重要过程。

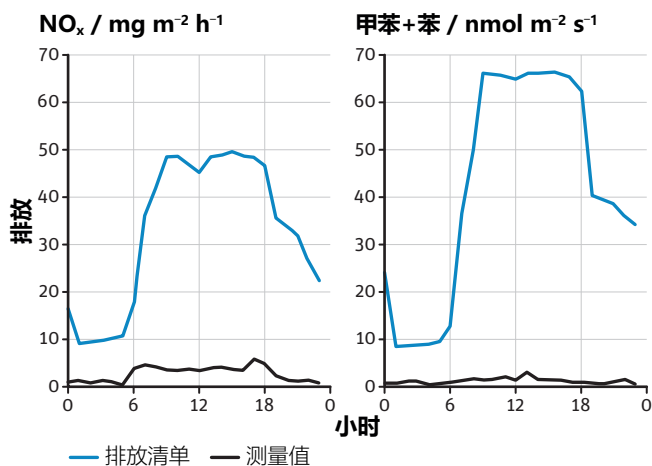


图 1. 在北京市中心夏季测量的NO_x和甲苯+苯排放通量与基于代用参数方法从MEIC估算的降尺度排放量的对比²。这里的MEIC降尺度排放量包括所有部门（交通、工业、生活和电力排放）。

可能的政策意义：

- 涡流相关法可以直接测量大气污染的排放通量；该方法可以应用于北京及其它地区，以验证当地排放清单，并为排放控制提供科学依据。

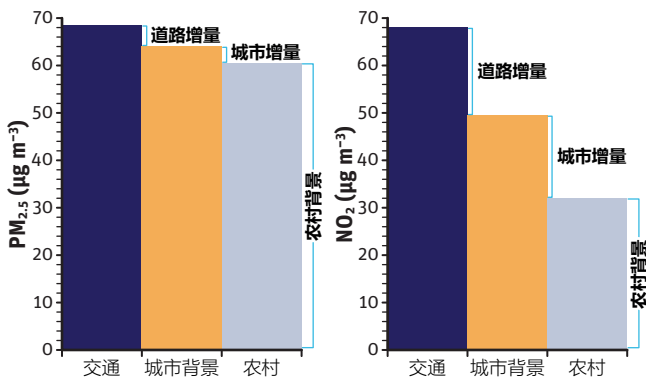
- 北京市中心区的大气污染物排放量比预想的要低很多。为进一步改善北京市的空气质量，需要进一步加大控制周边地区大气污染排放的力度。
- PM₁通量的来源解析表明，在大气物理所铁塔分部，烹饪（油）排放是最大的单一PM₁来源，这表明至少在部分城区可能需要更严格地控制该本地来源。

2.2. 北京市交通排放及其对空气污染的贡献（北京大学、伯明翰大学、爱丁堡大学、兰卡斯特大学、雷丁大学、中国科学院大气物理研究所、约克大学）

APHH-Beijing应用了多种方法来量化北京及周边地区的机动车排放对空气污染的贡献，包括：

- 高分辨率交通排放清单表明，京津冀地区道路交通一次PM_{2.5}排放以轻型乘用车和重型卡车为主，而重型卡车和客车共占道路交通NO_x排放的50%左右；轻型乘用车占道路交通碳氢化合物总排放量的56%。排放情景分析结果表明，淘汰旧车能有效减少排放，但单位减排成本从北京、天津到河北依次增加⁵。
- 道路PM_{2.5}增量（即路边与城市背景点PM_{2.5}浓度的差值）仅为城市平均水平的7.5%，表明道路交通一次排放对城市PM_{2.5}的贡献很小。但道路交通是NO₂的重要来源（图2）。城市PM_{2.5}的增量（城市背景和农村站点PM_{2.5}浓度的差值）也非常小，表明城区排放对北京PM_{2.5}浓度水平的贡献相对有限⁶。
- 使用新开发的街道峡谷高分辨率（5米）城市尺度交通污染扩散模型，我们发现，随着建筑物高度的增加，峡谷内行人高度空气污染加重，而峡谷外行人高度污染降低。此外，街道两侧建筑物高度相似或相差极大的峡谷内行人高度的空气污染浓度相对较低⁷。
- 受体模型的结果表明，在冬季和夏季，道路交通（汽油+柴油车）对北京细颗粒有机碳（OC）的贡献率较低，分别为12%和6%⁸。
- 基于通量观测结果，优化并建立了一整套北京市网格化高分辨率排放清单。利用ADMS模型和优化的清单，进一步证实了道路交通的一次排放对PM_{2.5}的贡献远小于其对NO₂的贡献（图2）⁹。

(1) 道路和城市背景



(2) 大气污染物的空间分布图

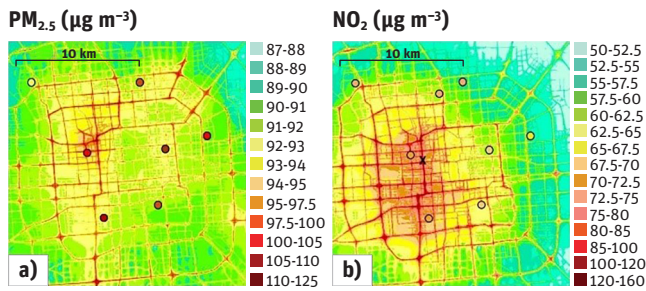


图 2. (1) 北京2016-2018年道路和城市背景站点PM_{2.5}和NO₂ (去除气候条件影响的数据) 的平均增量⁶; (2) 使用MEIC优化排放清单模拟的APHH-Beijing冬季观测期间 (2016年11月5日至12月10日) 的PM_{2.5} (a) 和NO₂ (b) 平均浓度的空间分布图。其中, 国控监测站 (包括NO₂和PM_{2.5}) 和大气物理所现场观测站点 (仅包括NO₂) 的平均测量浓度用彩色点表示⁹。

可能的政策意义:

- 北京、天津和河北应根据它们机动车排放贡献率的不同, 采取差异化的机动车污染治理政策。
- 向电动车过渡可进一步降低二氧化氮的浓度, 但这对减少一次细颗粒物浓度的影响有限。
- 高分辨率空气质量模型可以用来量化大气污染物的时空分布并评估排放清单的不确定性。
- 街道峡谷的几何形状对大城市居民大气污染物的个人暴露有重要影响。仔细规划街道布局和峡谷几何形状, 并考虑交通需求和当地天气模式, 可以显著减少城市居民的大气污染个人暴露。

2.3. 北京市臭氧污染和大气氧化性 (约克大学、利兹大学、兰卡斯特大学、北京大学、中国科学院大气物理研究所、伯明翰大学)

APHH-Beijing集合多种方法综合研究了北京地区的臭氧污染和大气氧化性。主要结果包括:

- 不同于其它国家的超大城市, 北京市中心的气相化学比较特殊。一方面, 氮氧化物的排放主要来自于现代化的低排放机动车; 另一方面, 高水平的工业活动和溶剂利用所排放的VOC排放水平非常高。这种非典型的城市化学组成有利于夏季光化学污染的形成。此外, 由于夏季城市中心的地表一氧化氮浓度较低, 无法通过化学反应去除臭氧, 从而导致城市地面臭氧浓度异常升高 (实测臭氧浓度可以高达150ppb)¹⁰。
- 北京VOC的成分显示溶剂使用是其重要来源。冬季测量结果表明, 小分子氧化挥发性有机物, 如甲醇、乙醛和丙酮, 是所测量的所有VOC中浓度最高的物种¹¹。
- 生物源VOC对光化学臭氧生成潜势、光化学过氧酰基硝酸盐生成潜势和OH反应潜势的通量有重要贡献, 但目前这仅占大气中总反应活性的一小部分¹¹。这是由于城市中心的VOC的排放量相对较小, 而市中心以外来源的VOC对市中心的总VOC浓度贡献较大。
- 北京夏季臭氧形成的平均条件如图3所示, 中间菱形代表APHH-Beijing夏季观测期间下午3点的平均条件。从等值线图上菱形的位置可以看出, 进一步减少一氧化氮的排放 (在x轴上向左移动) 会导致城市臭氧的进一步增加。在~70%的夏季条件下, 减少VOC的排放会降低臭氧浓度¹⁰。
- 改进后的随机森林算法显示, 由于2020年春季新冠肺炎疫情封城, 北京地区臭氧浓度增加了14.8(±5.3)%, 但本地气态总氧化物(O_x=NO₂+O₃)变化很小; 与氮氧化物相比, 如果挥发性有机物减少速度相对较慢, O₃污染可能会进一步增加¹²。
- 气溶胶对城市边界层的臭氧和羟基(OH)自由基有重要影响。雾霾的减少有可能通过增强光化学作用加剧臭氧污染¹³。
- OH自由基的主要来源是亚硝酸(HONO)。在冬季的HONO浓度可以高达11ppb (这比伦敦的一个数量级)¹⁴。
- 因为商业NO₂分析仪的检测结果包含HONO的影响, 所以在空气监测站测量的NO₂比真实浓度要高估10%左右 (虽然商业NO₂分析仪遵循已建立的国际通用方法)¹⁵。
- 在冬季的雾霾期间, 尽管光化通量显著减少, 但OH水平基本保持不变。这表明即使是在雾霾期间, 二次光化学污染物仍在持续生成, 这可能与前体物丰度有关¹⁴。

- 详细的模型分析表明，北京夏季大气中由高分子挥发性有机物的氧化产物产生的有机过氧自由基比之前估计的要多得多；这意味着在高浓度NO_x条件下，有更多的本地臭氧产生¹⁶。

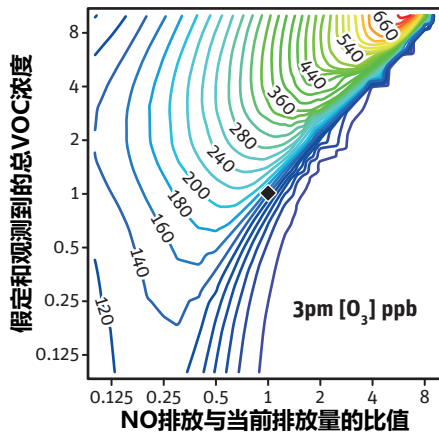


图 3. 以NO和VOCs为函数的臭氧等值线图（中心菱形表示北京在APHH-Beijing夏季观测期间下午3点的平均值）¹⁰。x和y轴的值代表了假定NO排放和当前（APHH-Beijing夏季观测期间）排放和假定VOC（包括所有观测到的VOC）浓度和当前浓度的比值（1代表当前条件，0.5代表降低50%）。

可能的政策意义：

- 北京臭氧控制需要考虑加快对周边地区VOC的控制，特别是燃料蒸发产生的芳香族VOC和来自溶剂使用过程中排放的VOC。
- 采取措施减少区域和城市溶剂使用可以降低VOC的浓度，但是降低道路运输的VOC排放对市中心总VOC浓度的影响不大。
- NO₂的真实浓度低于监测站测量值。在中国城市的大气NO₂监测结果显著高于实际结果。
- 北京的VOC排放清单还应该包括对生物源VOC排放的估计，因为它对大气化学的重要性可能会越来越大。在环境规划中应考虑禁止种植生物源VOC排放量大的树种。

2.4. 雾霾与气象的相互作用及其对预防雾霾事件的意义（曼彻斯特大学、雷丁大学）

APHH-Beijing团队开发了新的算法来反演大气混合层高度，并利用改进的大涡流模型模拟了湍流交换以及大气污染、辐射和动力学的相互影响。主要结果包括：

- 开发了一个新的算法基于激光雷达和云高仪数据来反演混合层高度¹⁷。

- 气溶胶粒子可以散射和吸收太阳辐射，造成地表温度降低和边界层上部温度升高。这会改变大气的热量分布并降低浮力湍流。湍流混合的减弱抑制了白天边界层的发展，减少了污染物的垂直混合，从而导致地表气溶胶浓度的增加。气溶胶、辐射和气象之间的这种正反馈循环可导致雾霾持续时间进一步延长，并可能会加剧污染事件（图4）¹⁸。
- 单纯的气溶胶-气象反馈不足以解释北京观测到的边界层高度的变化。大尺度天气导致的相关初始气象条件对北京雾霾事件的形成至关重要。在稳定的天气条件下，气溶胶-气象反馈会更强，因此气象稳定性和气溶胶浓度的增加之间存在一个正循环¹⁸。
- 进一步减少市区黑碳的浓度而不减少长距离输送到边界层上部的黑碳会导致地表温度的相对降低，从而进一步限制大气的混合和扩散¹⁹。
- 天气条件变化时，北京本地排放的黑碳可通过垂直混合到达上边界层。然后上层的黑碳将会抑制边界层的发展并进一步加剧霾的形成¹⁹。

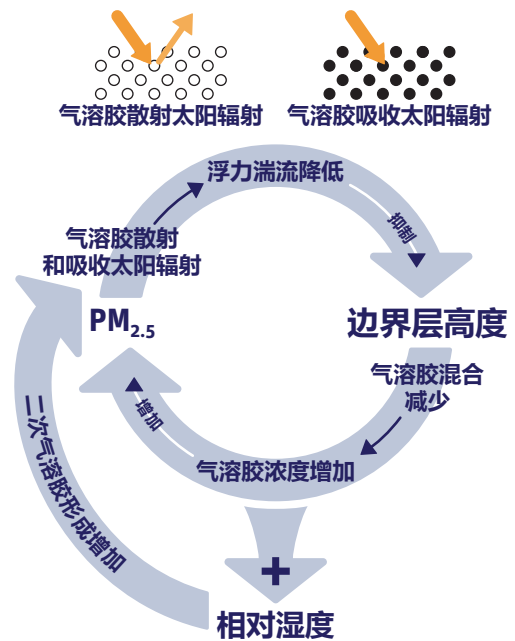


图 4. 气溶胶-辐射-气象反馈循环¹⁸。

可能的政策意义：

- 同时减少北京市及周边地区的黑碳排放可以减少黑碳对边界层的影响，并有可能减少气溶胶-气象对霾形成的反馈作用。
- 黑碳排放控制不应局限于北京本地，还需要特别关注来自市区以外的源。

- 如果预报会发生污染事件，提前采取减排措施可能会降低气溶胶冷却效应对混合层高度的影响，从而抑制重污染事件的发生或降低其严重程度。

2.5. 北京市氨的来源及可能的控制措施 (中国科学院大气物理研究所、英国生态和水文中心)

氨是PM_{2.5}形成的关键前体物之一，APHH-Beijing应用了多种方法解析氨的来源。主要结果包括：

- 高分辨率通量观测发现了显著的城区本地氨排放³，它的日变化周期与生物源和蒸发排放类似，但是和化石燃料标记物的日变化不同 (图5)¹¹。这表明，城区氨排放不大可能主要来自交通源 (这不同于MEIC排放清单的结果)，而是来自温度驱动的来源，如废水蒸发、城市化肥使用或沉降到地表的铵盐的蒸发³。

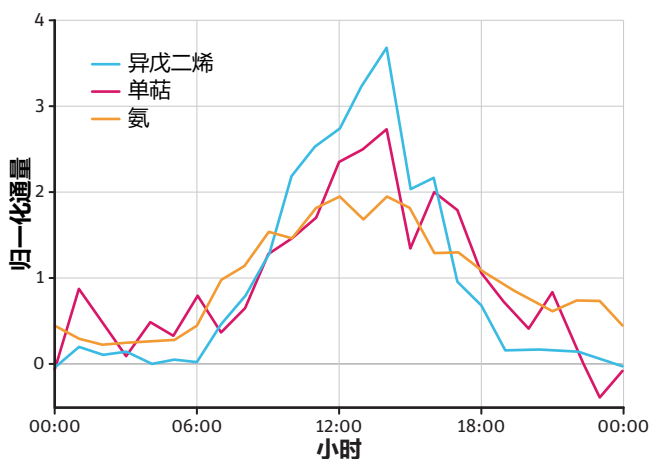


图 5. 氨、异戊二烯和单萜的归一化通量的日循环^{3,11}。

- 北京市区氨浓度很高²⁰；观测还显示夏季北京氨的通量很大，甚至与典型施氮肥农田年平均通量相似³。
- 氮同位素分析显示，冬季非农业排放占北京市地表PM_{2.5}中氨根离子的47%左右，在空中 (铁塔上) 的贡献也高达56%左右²¹。
- 硝酸铵是导致重污染形成过程中大气气溶胶含水量增加的最重要因素。其中硝酸盐控制了污染事件发生前气溶胶的含水量，而氨根离子控制了污染最严重时期气溶胶的含水量。相对湿度的增加促进了正反馈，其中“气溶胶水-非均相反应”反馈促进了严重霾事件的形成²²。
- NAQPMS模拟结果表明，在当前排放条件下，华北平原大气中氨排放减少20%可使PM_{2.5}浓度降低5~11%²²。

可能的政策意义：

- 控制氨排放是进一步改善北京空气质量的有效手段。
- 需要确定和减少城市氨排放源。

2.6. 评估北京及周边地区大气污染行动计划的成效 (伯明翰大学、清华大学、北京大学)

APHH-Beijing分别应用了机器学习方法 (随机森林算法) 和化学传输模型 (WRF-CMAQ) 来量化大气污染防治行动计划和气象变化对北京空气质量改善趋势的影响。主要结果包括：

- 随机森林模型比传统的统计和空气质量模型能更准确地剥离气象条件和源排放对空气质量的影响²³。
- 随机森林模型和WRF-CMAQ模型均表明，减排是北京2013到2017年空气质量改善的主要驱动力，但气象条件对环境空气质量的年变化也有重要影响^{23, 24}。
- 如果2017年的气象条件和过去三十年平均气象条件类似，那么北京市2017年年均PM_{2.5}质量浓度将超过60 μg m⁻³，未能达到设定的目标²³。
- 2013-2017年，PM_{2.5}、PM₁₀、NO₂、SO₂和CO浓度分别下降34%、24%、17%、68%和33%。但是臭氧污染无改善迹象 (图6)²³。
- 2013-2017年，PM_{2.5}和SO₂浓度的明显下降主要是燃煤排放减少所致²³。
- 北京PM_{2.5}浓度在2013-2017年间的快速降低主要归功于本地减排 (20.6 μg m⁻³, 65.4%)²⁴。
- 当前中国环境保护税收政策对于调节空气污染物排放的影响有限 (例如，河北省氮氧化物减排低于90Gg (4.7%)；北京或天津市减排不到10Gg)²⁵。
- 改进的随机森林算法显示，2020年春季由于新冠肺炎疫情封城导致的北京二氧化氮浓度的下降幅度 (18.5(±9.2)%) 小于预期。北京疫情封城后PM_{2.5}的增加更有可能是由二次气溶胶的形成和长距离输送导致的，而不是氧化能力的增加¹²。

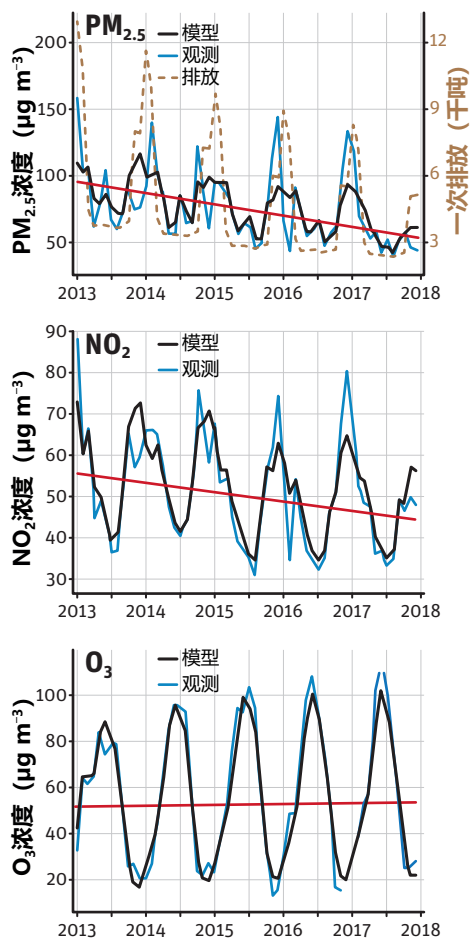


图 6. 2013到2017年北京市实测和模拟的PM_{2.5}、NO₂和O₃的月平均浓度²³。一次排放的估算来自MEIC的结果(见第二纵轴)。图中的“模型”代表的是基于机器学习方法得到的、在三十年平均气象条件下模拟的污染物浓度；红线为污染物模拟浓度的Theil-Sen趋势。黑色和蓝色线分别代表空气污染物的模拟浓度和环境(观测)浓度。灰红色虚线代表一次排放总量。

政策意义：

- 新的随机森林模型能够有效评估空气污染控制措施的效果，包括校正气象对空气质量的影响。
- 未来的空气质量目标可考虑增加“在平均气象条件下”一词，否则根据当时的气象条件，目标可能会较容易或较难实现。
- 北京及周边地区对燃煤和生物质燃烧的限制有效降低了PM_{2.5}污染。
- 在北京，即使实施与新冠肺炎疫情封城期间同样严格的经济和社会活动限制，也不太可能大幅减少所有关键空气污染物(O₃、NO₂和PM_{2.5})的浓度。比如，臭氧污染可能加重。

2.7. 北京市PM_{2.5}和一氧化碳的来源解析 (伯明翰大学、中国科学院大气物理研究所、约克大

学、曼彻斯特大学、英国生态和水文中心、北京大学、清华大学、莱斯特大学)

APHH-Beijing应用了多种方法解析了PM_{2.5}和一氧化碳的来源，并分析了源解析的不确定性。主要结果包括：

- 应用多个受体模型或受体/化学传输混合模型对北京PM_{2.5}来源进行了解析。结果显示，不同模型的结果对于某些来源相对一致，但烹饪和交通等几种来源对PM_{2.5}的贡献存在显著差异。因此，单一模型的结果不确定性可能较大^{8, 26-29}。
- 北京2016年冬季的城市和农村站点有机物对PM_{2.5}质量的贡献分别为58.9±9.7%和75.0±12.1%。化学质量平衡模型分析表明，生物质燃烧和煤燃烧仍然是主要的一次源^{8, 26}。
- 观测和模拟分布均显示，来自北京以外地区的长距离输送是北京空气污染的主要因素。但是，不同的方法得到的确切贡献还不一致，并且随季节变化^{27, 30, 31}。排放清单的不确定性，特别是对市区污染物排放的高估，可能会导致当前模型高估本地排放的影响。
- NAQPMS模拟显示，区域气团向北京的输送主要有3条路线(图7)：1) 西线：山西北部-石家庄-保定-北京；2) 中线：郑州-安阳-邯郸-邢台-石家庄-保定-北京等；3) 东线：菏泽-衡水-沧州-廊坊；此外，北京、天津、唐山等周边城市群存在相互影响³²。
- 模型模拟结果表明，河北是输往北京的黑碳(占55%)和一氧化碳(占39%)最重要的源区。从2013到2016年，北京一氧化碳污染总量的最大贡献者是交通运输、工业和生活能源消费，分别约占36%、33%和29%³⁰。
- 使用不同的模型模拟结果显示，自2013到2016年，北京市外来源对一氧化碳污染的贡献约为45%³³。
- 对PM_{2.5}组成、VOCs和PM_{2.5}中有机污染物的观测表明，在霾事件期间，通过形成有机硫化物，生物和人为排放VOC相互作用并影响大气成分³⁴。在一些夏季霾事件(PM_{2.5} > 75 µg m⁻³)期间，有三分之一的含硫气溶胶是有机硫化物³⁵。反应性芳香挥发性有机物是一种重要的二次有机气溶胶来源³⁶。
- 烷基苯、单萜和异戊二烯是北京地区高度氧化有机物的重要前体物；它们还会促进新粒子的形成³⁷。

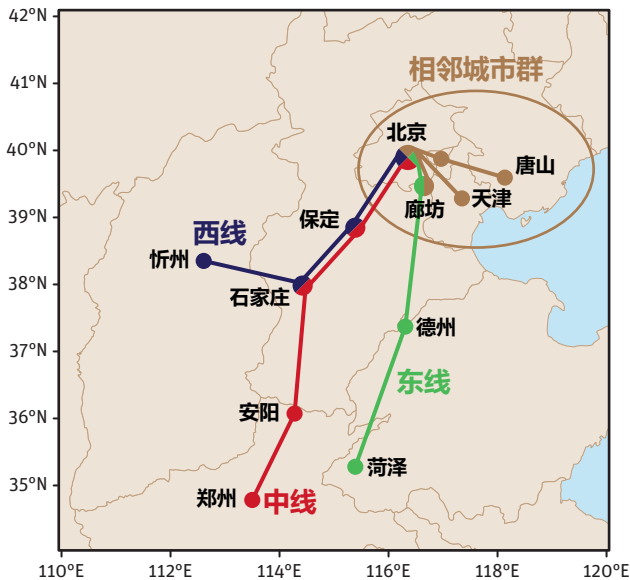


图 7. 冬季重污染期间区域输送路线示意图³²。

可能的政策意义:

- 控制非本地污染是进一步改善北京空气质量的关键。
- 空气质量预测模型在预测臭氧和PM_{2.5}时需要考虑生物源挥发性有机物的影响。
- 减少活性芳香族挥发性有机物的排放可降低PM_{2.5}的浓度。
- 与其它源解析方法相比，结合了有机和无机示踪物的化学质量平衡模型得到的结果最可靠。

2.8. 空气污染对人体健康的影响以及口罩和空气净化器的效果 (北京大学、英国职业医学研究所、国王大学学院)

APHH-Beijing通过定群研究和实验研究分析了个人干预在改善空气质量/个人暴露和健康方面的潜在效果。主要结果包括:

- 中国市面上出售的大多数口罩 (图8a) 能过滤掉90%以上的PM_{2.5}，但防护程度取决于口罩和脸部的吻合度；最低效的口罩平均能过滤掉30%的PM_{2.5}；较大幅度的活动有可能导致口罩和脸部的吻合度降低，从而影响防护效率³⁸。
- 通过实际观测发现，空气净化器可明显降低室内PM_{2.5}的浓度 (图8b) 和个人暴露³⁹。
- 实际监测表明，北京郊区/农村的个人空气污染物暴露水平远高于城区，这主要是燃煤和生物质燃烧排放所致⁴⁰。

- 弱势人群的健康，包括慢性阻塞性肺病患者和超重者更容易受到PM_{2.5}和黑碳污染的影响⁴¹。

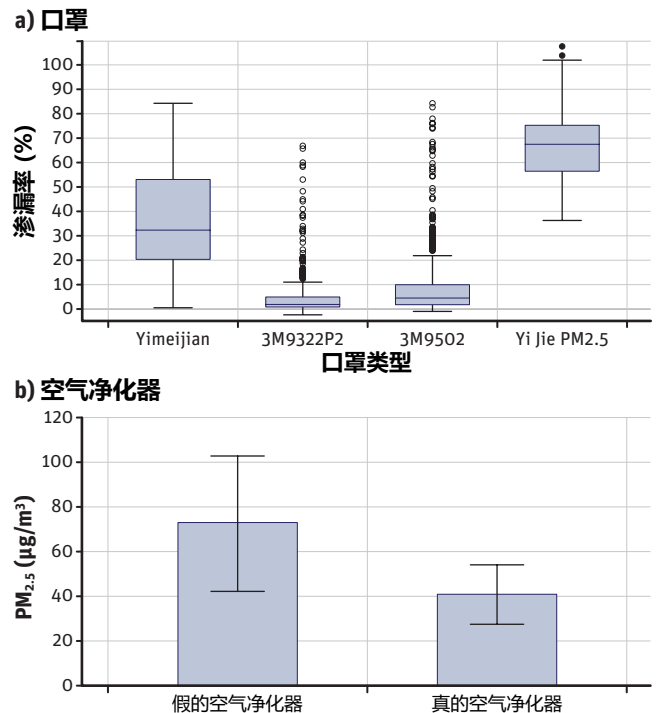


图 8. (a) 志愿者试验中测试的每个口罩总渗漏率的箱形图。方框表示第25 - 75个百分点，方框内的线条表示中位数³⁸。(b) 室内使用假的和真的空气净化器对空气质量的影响³⁹。

可能的政策意义:

- 使用商用口罩和空气净化器可以有效减少PM_{2.5}的个人暴露，特别是在污染事件期间。
- 帮助易感人群 (包括患慢性阻塞性肺疾病和心脏病的人群) 减少空气污染的个人暴露可以有效降低空气污染对人群健康的负面影响。
- 农村生活燃料的清洁化可大幅度改善室内和室外的空气质量，并减少农村人群 (特别是妇女和儿童) 的空气污染暴露。

2.9. 空气污染对心理健康的影响及防护措施 (北京大学、东英吉利大学)

APHH-Beijing研究了空气污染对心理健康的影响，为评估空气质量改善的潜在效益提供了新的理论支持。主要结果包括:

- 当基于PM_{2.5}的空气质量指数上升到150左右时，就会出现负面情绪⁴²。
- 随着空气污染的加剧，人们的主观幸福感迅速下降。当基于PM_{2.5}的空气质量指数超过150左右时，受试者的幸福感指数继续下降，但速度略

有放缓；当空气质量指数上升到第二个阈值184时，这时人们开始对污染变得麻木和不敏感⁴²。空气质量指数超过277即第三个阈值时，人们的污染意识又变得敏感了⁴²。

- 空气污染的增加和心理健康下降的可能性高度相关⁴³。

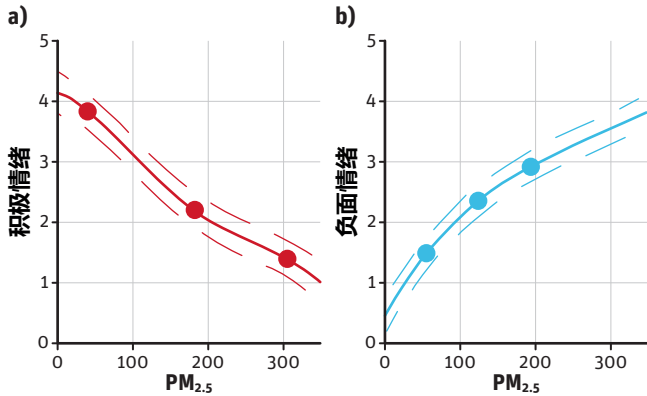


图 9. 空气污染指数与感性数据的拟合结果⁴²。这里选择 $PM_{2.5}$ 来代表空气污染程度的增加，包括 $PM_{2.5}$ 、 SO_2 、 NO_2 、 O_3 和 CO 。随着 $PM_{2.5}$ 的增加，其它污染物以固定比例增加。所有子图中的实线为统计拟合线，虚线为95%置信区间。(a) 积极情绪的变化 (见红线)；(b) 负面情绪随空气污染的变化 (见蓝线)。

可能的政策意义：

- 在制定标准时，可考虑使用和心理健康相关的空气质量指数阈值，比如空气质量指数为150、184和277，以保护心理健康。
- 提高空气质量除了可以改善身体健康、降低死亡率，还可能会改善人群心理健康。

2.10. 与固体燃料使用有关的健康影响以及禁煤政策的效益 (北京大学、东英吉利大学)

APHH-Beijing基于大量的实地调查和测量数据进行了一系列建模研究，重点分析了生活能源消费对人群暴露和健康的影响。主要研究结果如下：

- 包括北京和周边地区在内的农村生活能源结构经历了从固体燃料到清洁能源的快速转变。2014年之前这主要是受社会经济发展的推动。其它地区也发生了类似的转变⁴⁴。
- 尽管转型迅速，在中国农村地区煤炭和生物质仍被广泛用于烹饪和取暖，这增加了关键空气污染物的人为排放总量，造成了环境空气污染，特别是严重的室内空气污染⁴⁴。

- 2012年北京、天津和周边26个城市（“2+26”）用清洁燃料或电力做饭的百分比达到68%（图10），显著高于全国平均水平。这可能和该地区社会发展水平相对较高有关。另一方面，由于该地区的供暖周期更长、冬季更冷，用于供暖的固体燃料比例（89%）与全国平均水平（85%）大致相同。

- 1992年至2012年间的生活能源清洁化导致固体燃料燃烧对环境 $PM_{2.5}$ 的贡献显著减少，避免了与 $PM_{2.5}$ 暴露相关的13万人（区间为9至16万）过早死亡。尽管如此，2012年由于固体燃料使用导致人均加权 $PM_{2.5}$ 浓度增加了 $14 \pm 10 \mu g/m^3$ ，占人均加权 $PM_{2.5}$ 总浓度的 $21 \pm 4\%$ ⁴⁴。

- 农村生活能源消费导致的污染物排放对农村和城市的空气质量都有影响，但其影响随季节和地理位置的变化而变化^{31, 44}。

- 《北方地区冬季清洁取暖规划（2017-2021）》旨在通过在“2+26”城市用电量或天然气取代生活源固体燃料，以缓解华北地区严重的空气污染。通过对该规划的定量评价发现，如果到2021年，使用固体燃料的家庭中有60%转向清洁能源，一次 $PM_{2.5}$ 排放及其对环境 $PM_{2.5}$ 浓度的贡献将比在没有实施该规划的情景下（即少于20%的家庭转向清洁能源）分别低70%和59%；而冬季起居室的平均室内 $PM_{2.5}$ 浓度预计将从209（190至230） $\mu g/m^3$ 降至125（99至150） $\mu g/m^3$ ，使个人暴露大幅度减少⁴⁵。

- 生活能源的清洁化转型将更有利于妇女和儿童的健康，因为他们在室内的时间更多⁴⁵。

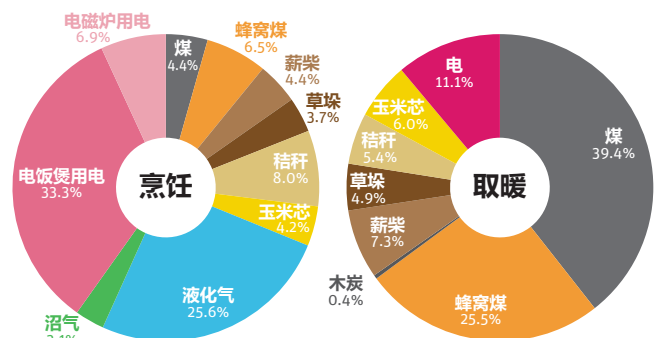


图 10. 2012年“2+26”城市用于烹饪和取暖的详细能源类型的比例⁴⁵。

可能的政策意义：

- 进一步控制生活源固体燃料（包括煤炭和生物质）排放的空气污染物，以减少环境空气污染和个人暴露。

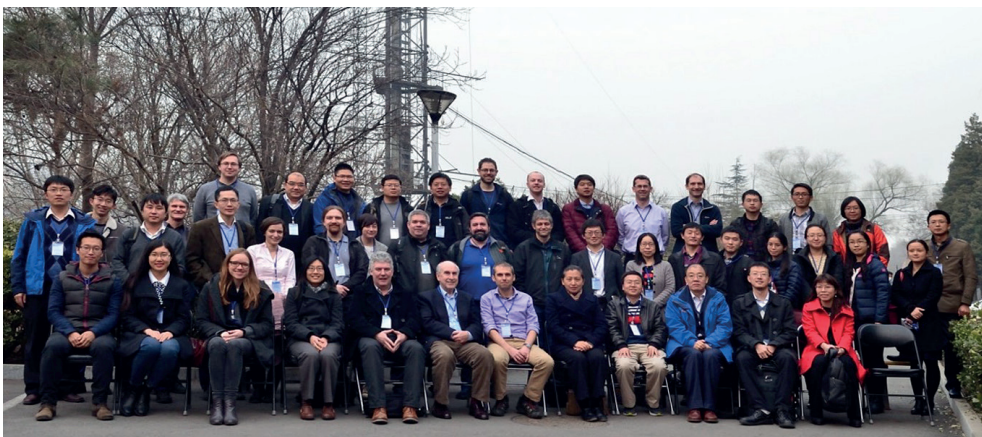
- 需要同时控制烹饪和取暖用固体燃料排放导致的空气污染。
- 因为生活能源消费导致的室内污染与环境空气污染同等重要、甚至更重要，所以应加大力度减轻室内空气污染，以降低其对人体健康的不利影响。

3. 大型国际合作计划实施的有益经验

APHH-Beijing为未来大规模国际跨学科研究计划提供了以下有益的经验。

- **中英两国研究人员的平等合作：**中英两国研究人员实现了真正的平等合作，并基于互补的技术、模型和数据分析能力，促进了学科之间的交流和新观点的碰撞，实现了互利共赢。这部分体现在大量的合作研究论文和与政策相关的重要结果里面。
- **团队之间的良好协作：**参与各研究团队通力合作。信任和互通性是实现大型研究计划的基础，并促进了多学科合作。
- **大型现场观测实验：**APHH-Beijing研究计划有效地整合了各子课题，通过两次大型综合现场观测实验，在城市和城市周边地区同时收集了一整套高时空分辨率的颗粒物和气体污染物成分、气象条件、健康效益、社会、经济和行为方式等信息。如此丰富的数据使本研究能够全面了解污染物的特征、形成过程和来源，并检验有关污染物暴露对健康的影响、生物机制和人口易感性等假说。
- **培养青年科学家：**博士研究生对研究项目做出了巨大贡献。他们发表了大量的高质量研究成果，其中有一部分体现在上面的重点研究成果中。APHH-Beijing还促进了青年科学家之间学术交流网络的建立，这将推动中英两国未来的科研合作。

- **研究计划年会：**年度会议有效地整合了不同子课题的研究并促进了不同研究组的新合作。
- **与政策制定者的研讨会：**在项目早期阶段邀请了利益相关者参加了研讨会。会上他们为研究计划提供了新的要求，促进了研究计划产出对政策更有益的成果，并加强了科学与决策过程的沟通。
- **项目协调：**研究计划总协调人在项目的整合和实施方面中发挥了关键性作用。
- **数据-模型的集成：**从事观测和模型模拟的科学家们密切合作，确保了数据-模型的紧密集成，并发表了多篇相关学术论文。
- **仪器比对：**APHH-Beijing提供了一个独特的机会来测试不同仪器对于检测大气中一些难以测量的化学物质（如HONO和OH）的性能，从而改进测量方法。
- **数据共享和存储：**英国环境数据中心为存储和共享数据提供了理想的平台。
- **针对同一科学问题的多种方法：**不同的研究组通过不同的方法和技术路线来解决同一个科学问题。这为更好地解决一些难以定量的问题（比如北京细颗粒物的源解析）并理解不同方法的不确定性提供了一个难得的机会。
- **组织和参与国际会议：**研究计划主要负责人组织并参与了国际会议或研讨会，特别是“法拉第论坛”，为扩大APHH-Beijing研究计划的影响力提供了理想的机会。
- **与资助方代表的紧密合作：**资助方代表和UKRI中国办公室一直跟踪研究计划的进展并提供了有益的建议，确保了APHH-Beijing的研究能实现研究计划设计的目标和最大限度地增加研究的学术和社会经济影响。



4. 对未来大型国际合作计划的建议

- 大型国际研究计划促进学科优势互补，实现互利共赢，值得推广。
- 在做出资助决定时，考虑以子课题对总研究计划战略目标的贡献为重要评估标准。考虑为研究计划的协调提供专门的资金，以促进不同子课题的整合。
- 在设计总体研究计划时，重点考虑利益相关者的需求和建议。
- 课题建议书应详细说明不同课题组研究人员的跨国和跨学科交流访问计划，以促进参与度。
- 研究计划可考虑设立跨课题工作组，促进不同课题之间对特定科学问题的学术交流。
- 研究计划需要预留足够的时间来准备大规模的人员和仪器流动。
- 作为获得资助的要求，所有受资助方都应建立出版物的开放获取政策。
- 应该鼓励愿意为研究计划做出贡献的非资助方参与合作研究，但他（她）们必须遵守数据协议。



大气物理所325米气象塔：照片提供人 – 英国生态和水文研究所
Neil Mullinger

5. 待解决的科学问题

APHH-Beijing研究显著增加了我们对北京空气污染排放、过程和健康效应的了解。但是，为了进一步改善北京市及其周边地区的空气质量，还需对以下科学问题进行深入研究：

- 在整个城市（而不是大气物理所铁塔附近的一小块区域）空气污染物的排放通量是多少？与长距离输送的大气污染物相比，城区排放的相对重要性是多少？
- 城区氨的来源是什么？如何控制它们？
- 北京市大气中的挥发性有机化合物的主要来源是什么？非本地源的贡献有多大？源地在哪里？控制这些污染物对臭氧和二次气溶胶的效果如何？
- 如何估算诸如异戊二烯等生物源挥发性有机化合物的排放并改善空气质量模型？在模型中如何模拟生物-人为空气污染的相互作用？
- HONO的来源是什么？降低HONO是否有助于减少SO₂和NO₂转化为气溶胶和减少O₃的形成？
- 如何量化生活源固体燃料燃烧的排放及其对室内空气质量的影响？
- 如何估算不同的前体物对二次有机气溶胶的贡献？
- 如何改进代用参数来估算城区的降尺度大气污染物排放量？
- 如何预测未来北京大气中臭氧及其前体物之间的定量关系？
- 空气污染物浓度的差异性降低（例如，SO₂浓度的降低速度比黑碳更快）对气溶胶-气象相互作用的影响是什么？
- 新粒子生成的机制是什么？中等挥发性和半挥发性有机化合物和生物源挥发性有机物在新粒子生成过程中的作用是什么？有没有方法抑制新粒子的生成和生长？
- 人为和自然源排放的挥发性有机物生成二次有机气溶胶（包括有机硫和有机氮化合物）的产率是多少？主要形成机制是什么？
- 如何在区域范围内根据室外到室内的渗透和大气污染物排放量来量化室内空气中PM_{2.5}的浓度？
- 如何在定点环境观测和空气质量建模的基础上改进个人暴露评估？

- 在不同暴露环境下的健康影响是什么，尤其是个人暴露水平对健康的影响是什么？
- 在中国，生活能源消费导致的大气污染物的排放对在室内时间最多的女性和儿童有什么影响？
- 综合考虑一次PM_{2.5}、二次PM_{2.5}前体物和黑碳的排放，生活能源消费对气候的影响是什么？生活能源清洁化对空气质量、气候和健康的共同效益是什么？
- 如何防控由于交通排放减少（例如转向电动汽车）而导致的臭氧污染的恶化？

致谢：我们感谢众多的APHH-Beijing研究计划组研究人员为项目的成功实施付出了巨大的努力以及英国自然环境理事会Caroline Culshaw博士对于APHH-Beijing的长期支持和指导。我们感谢英国自然环境研究理事会、英国医学研究理事会、牛顿基金和中国国家自然科学基金委的资助（NE/N007190/1； NE/S006699/1； NE/N007182/1； NE/N006887/1； NE/N007115/1； NE/N00695X/1； NE/N006895/1； NE/N00700X/1； NE/N006909/1； NE/N006941/1； NE/N007093/1； NE/N006925/1； NE/N007077/1； NE/S006680/1； NE/N007085/1； NE/N007018/1； NE/N007204/1； NE/S006729/2； NE/S006729/1； NE/N00714X/1； NE/S006648/1； NE/N006917/1； NE/N007158/1； NE/N006992/1； NE/N006992/2； NE/N006976/1； NE/N007123/1）。感谢Chantal Jackson和Mary Harding女士对报告格式的编辑以及伯明翰大学宋从波博士和伯明翰大学广州办公室郑晓晴女士对中文的校对。



加强观测用的集装箱；照片提供人 -英国生态和水文研究所Neil Mullinger

在大气物理所铁塔上安装观测仪器；照片提供人 -英国生态和水文研究所Neil Mullinger



相关论文

1. Shi, Z.; Vu, T.; Kotthaus, S.; Harrison, R. M.; Grimmond, S.; Yue, S.; Zhu, T.; Lee, J.; Han, Y.; Demuzere, M.; Dunmore, R. E.; Ren, L.; Liu, D.; Wang, Y.; Wild, O.; Allan, J.; Acton, W. J.; Barlow, J.; Barratt, B.; Beddows, D.; Bloss, W. J.; Calzolari, G.; Carruthers, D.; Carslaw, D. C.; Chan, Q.; Chatzidiakou, L.; Chen, Y.; Crilley, L.; Coe, H.; Dai, T.; Doherty, R.; Duan, F.; Fu, P.; Ge, B.; Ge, M.; Guan, D.; Hamilton, J. F.; He, K.; Heal, M.; Heard, D.; Hewitt, C. N.; Hollaway, M.; Hu, M.; Ji, D.; Jiang, X.; Jones, R.; Kalberer, M.; Kelly, F. J.; Kramer, L.; Langford, B.; Lin, C.; Lewis, A. C.; Li, J.; Li, W.; Liu, H.; Liu, J.; Loh, M.; Lu, K.; Lucarelli, F.; Mann, G.; McFiggans, G.; Miller, M. R.; Mills, G.; Monk, P.; Nemitz, E.; O'Connor, F.; Ouyang, B.; Palmer, P. I.; Percival, C.; Popoola, O.; Reeves, C.; Rickard, A. R.; Shao, L.; Shi, G.; Spracklen, D.; Stevenson, D.; Sun, Y.; Sun, Z.; Tao, S.; Tong, S.; Wang, Q.; Wang, W.; Wang, X.; Wang, X.; Wang, Z.; Wei, L.; Whalley, L.; Wu, X.; Wu, Z.; Xie, P.; Yang, F.; Zhang, Q.; Zhang, Y.; Zhang, Y.; Zheng, M., Introduction to the special issue "In-depth study of air pollution sources and processes within Beijing and its surrounding region (APHH-Beijing)". *Atmospheric Chemistry and Physics* **2019**, *19*, 7519-7546.
2. Squires, F. A.; Nemitz, E.; Langford, B.; Wild, O.; Drysdale, W. S.; Acton, W. J. F.; Fu, P.; Grimmond, C. S. B.; Hamilton, J. F.; Hewitt, C. N.; Hollaway, M.; Kotthaus, S.; Lee, J.; Metzger, S.; Pinguha-Durden, N.; Shaw, M.; Vaughan, A. R.; Wang, X.; Wu, R.; Zhang, Q.; Zhang, Y., Measurements of traffic-dominated pollutant emissions in a Chinese megacity. *Atmospheric Chemistry and Physics* **2020**, *20*, 8737-8761.
3. Nemitz, E. et al., Surface-atmosphere flux and sources of speciated PM₁ and ammonia in Beijing (unpublished results). **2021**.
4. Joshi, R.; Liu, D.; Nemitz, E.; Langford, B.; Mullinger, N.; Squires, F.; Lee, J.; Wu, Y.; Pan, X.; Fu, P.; Kotthaus, S.; Grimmond, S.; Zhang, Q.; Wu, R.; Wild, O.; Flynn, M.; Coe, H.; Allan, J., Direct measurements of black carbon fluxes in central Beijing using the eddy-covariance method. *Atmospheric Chemistry and Physics* **2020**, *20*, 1-27.
5. Yang, W.; Yu, C.; Yuan, W.; Wu, X.; Zhang, W.; Wang, X., High-resolution vehicle emission inventory and emission control policy scenario analysis, a case in the Beijing-Tianjin-Hebei (BTH) region, China. *Journal of Cleaner Production* **2018**, *203*, 530-539.
6. Harrison, R. M.; Vu, T. V.; Jafar, H.; Shi, Z., More Mileage in Reducing Urban Air Pollution from Road Traffic. *Environment International* **2021**, *149*, 106329.
7. Fu, X.; Liu, J.; Ban-Weiss, G. A.; Zhang, J.; Huang, X.; Ouyang, B.; Popoola, O.; Tao, S., Effects of canyon geometry on the distribution of traffic-related air pollution in a large urban area: Implications of a multi-canyon air pollution dispersion model. *Atmospheric Environment* **2017**, *165*, 111-121.
8. Xu, J.; Liu, D.; Wu, X.; Vu, T. V.; Zhang, Y.; Fu, P.; Sun, Y.; Xu, W.; Zheng, B.; Harrison, R. M.; Shi, Z., Source apportionment of fine aerosol at an urban site of Beijing using a chemical mass balance model. *Atmospheric Chemistry and Physics Discussions* **2020**, *20*, 1-28.
9. Biggart, M.; Stocker, J.; Doherty, R. M.; Wild, O.; Hollaway, M.; Carruthers, D.; Li, J.; Zhang, Q.; Wu, R.; Kotthaus, S.; Grimmond, S.; Squires, F. A.; Lee, J.; Shi, Z., Street-scale air quality modelling for Beijing during a winter 2016 measurement campaign. *Atmospheric Chemistry and Physics* **2020**, *20*, 2755-2780.
10. Lewis, A. et al., Sensitivity of Chinese ozone formation to relative reductions in NO_x and VOCs: Beijing as a case study (unpublished results). **2021**.
11. Acton, W. J. F.; Huang, Z.; Davison, B.; Drysdale, W. S.; Fu, P.; Hollaway, M.; Langford, B.; Lee, J.; Liu, Y.; Metzger, S.; Mullinger, N.; Nemitz, E.; Reeves, C. E.; Squires, F. A.; Vaughan, A. R.; Wang, X.; Wang, Z.; Wild, O.; Zhang, Q.; Zhang, Y.; Hewitt, C. N., Surface-atmosphere fluxes of volatile organic compounds in Beijing. *Atmospheric Chemistry and Physics* **2020**, *20*, 1-36.
12. Shi, Z.; Song, C.; Liu, B.; Lu, G.; Xu, J.; Vu, T. V.; Elliot, R. J. R.; Li, W.; Bloss, W. J.; Harrison, R. M., Abrupt but smaller than expected changes in surface air quality attributable to COVID-19 lockdowns. *Science Advances* **2020**, *7*, eabd6696.
13. Hollaway, M.; Wild, O.; Yang, T.; Sun, Y.; Xu, W.; Xie, C.; Whalley, L.; Slater, E.; Heard, D.; Liu, D., Photochemical impacts of haze pollution in an urban environment. *Atmospheric Chemistry and Physics* **2019**, *19*, 9699-9714.
14. Slater, E. J.; Whalley, L. K.; Woodward-Massey, R.; Ye, C.; Lee, J. D.; Squires, F.; Hopkins, J. R.; Dunmore, R. E.; Shaw, M.; Hamilton, J. F.; Lewis, A. C.; Crilley, L. R.; Kramer, L.; Bloss, W.; Vu, T.; Sun, Y.; Xu, W.; Yue, S.; Ren, L.; Acton, W. J. F.; Hewitt, C. N.; Wang, X.; Fu, P.; Heard, D. E., Elevated levels of OH observed in haze events during wintertime in central Beijing. *Atmospheric Chemistry and Physics* **2020**, *20*, 14847-14871.
15. Bloss, W. J. et al., Overestimation of ground-level nitrogen dioxide concentrations due to HONO in commercial NO₂ analysers (unpublished results). **2021**.
16. Whalley, L. K.; Slater, E. J.; Woodward-Massey, R.; Ye, C.; Lee, J. D.; Squires, F.; Hopkins, J. R.; Dunmore, R. E.; Shaw, M.; Hamilton, J. F.; Lewis, A. C.; Mehra, A.; Worrall, S. D.; Bacak, A.; Bannan, T. J.; Coe, H.; Ouyang, B.; Jones, R. L.; Crilley, L. R.; Kramer, L. J.; Bloss, W. J.; Vu, T.; Kotthaus, S.; Grimmond, S.; Sun, Y.; Xu, W.; Yue, S.; Ren, L.; Acton, W. J. F.; Hewitt, C. N.; Wang, X.; Fu, P.; Heard, D. E., Evaluating the sensitivity of radical chemistry and ozone formation to ambient VOCs and NO_x in Beijing. *Atmospheric Chemistry and Physics* **2021**, *21*, 2125-2147.
17. Kotthaus, S.; Grimmond, C.S.B., Atmospheric boundary layer characteristics from measurements. Part 1: A new method to track mixed layer height and classify clouds *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society* **2018**, *144*, 1525-1538
18. Slater, J.; Tonttila, J.; McFiggans, G.; Connolly, P.; Romakkaniemi, S.; Kühn, T.; Coe, H., Using a coupled LES-aerosol radiation model to investigate urban haze: Sensitivity to aerosol loading and meteorological conditions. *Atmospheric Chemistry and Physics* **2020**, *20*, 11893-11906.
19. Slater, J.; Tonttila, J.; McFiggans, G.; Coe, H.; Romakkaniemi, S.; Xu, W.; Wu, Z.; Sun, Y.; Fu, P., Using a coupled LES aerosol-radiation model to investigate the importance of aerosol-boundary layer feedback on a Beijing haze episode. *Faraday Discussions* **2020**, doi: 10.1039/D0FD00085J.
20. Wang, Q.; Zhang, Q.; Ma, Z.; Ge, B.; Xie, C.; Zhou, W.; Zhao, J.; Xu, W.; Du, W.; Fu, P.; Lee, J.; Nemitz, E.; Cowan, N.; Mullinger, N.; Cheng, X.; Zhou, L.; Yue, S.; Wang, Z.; Sun, Y., Temporal characteristics and vertical distribution of atmospheric ammonia and ammonium in winter in Beijing. *Science of the Total Environment* **2019**, *681*, 226-234.

21. Wu, L.; Ren, H.; Wang, P.; Chen, J.; Fang, Y.; Hu, W.; Ren, L.; Deng, J.; Song, Y.; Li, J.; Sun, Y.; Wang, Z.; Liu, C.-Q.; Ying, Q.; Fu, P., Aerosol ammonium in the urban boundary layer in Beijing: Insights from nitrogen isotope ratios and simulations in summer 2015. *Environmental Science & Technology Letters* **2019**, *6*, 389-395.
22. Ge, B.; Xu, X.; Ma, Z.; Pan, X.; Wang, Z.; Lin, W.; Ouyang, B.; Xu, D.; Lee, J.; Zheng, M.; Ji, D.; Sun, Y.; Dong, H.; Squires, F. A.; Fu, P.; Wang, Z., Role of ammonia on the feedback between AWC and inorganic aerosol formation during heavy pollution in the North China Plain. *Earth and Space Science* **2019**, *6*, 1675-1693.
23. Vu, T. V.; Shi, Z.; Cheng, J.; Zhang, Q.; He, K.; Wang, S.; Harrison, R. M., Assessing the impact of clean air action on air quality trends in Beijing using a machine learning technique. *Atmospheric Chemistry and Physics* **2019**, *19*, 11303-11314.
24. Cheng, J.; Su, J.; Cui, T.; Li, X.; Dong, X.; Sun, F.; Yang, Y.; Tong, D.; Zheng, Y.; Li, Y.; Li, J.; Zhang, Q.; He, K., Dominant role of emission reduction in PM_{2.5} air quality improvement in Beijing during 2013–2017: a model-based decomposition analysis. *Atmospheric Chemistry and Physics* **2019**, *19*, 6125-6146.
25. Hu, X.; Sun, Y.; Liu, J.; Meng, J.; Wang, X.; Yang, H.; Xu, J.; Yi, K.; Xiang, S.; Li, Y.; Yun, X.; Ma, J.; Tao, S., The impact of environmental protection tax on sectoral and spatial distribution of air pollution emissions in China. *Environmental Research Letters* **2019**, *14*, 054013.
26. Wu, X.; Chen, C.; Vu, T. V.; Liu, D.; Baldo, C.; Shen, X.; Zhang, Q.; Cen, K.; Zheng, M.; He, K.; Shi, Z.; Harrison, R. M., Source apportionment of fine organic carbon (OC) using receptor modelling at a rural site of Beijing: Insight into seasonal and diurnal variation of source contributions. *Environmental Pollution* **2020**, *266*, 115078.
27. Du, H.; Li, J.; Chen, X.; Wang, Z.; Sun, Y.; Fu, P.; Li, J.; Gao, J.; Wei, Y., Modeling of aerosol property evolution during winter haze episodes over a megacity cluster in northern China: roles of regional transport and heterogeneous reactions of SO₂. *Atmospheric Chemistry and Physics* **2019**, *19*, 9351-9370.
28. Wild, O. et al., Investigating the temporal, sectoral and regional contributions to air pollution in Beijing (unpublished results) **2021**.
29. Liu, Y.; Zheng, M.; Yu, M.; Cai, X.; Du, H.; Li, J.; Zhou, T.; Yan, C.; Wang, X.; Shi, Z.; Harrison, R. M.; Zhang, Q.; He, K., High-time-resolution source apportionment of PM_{2.5} in Beijing with multiple models. *Atmospheric Chemistry and Physics* **2019**, *19*, 6595-6609.
30. Liu, X.-Y.; He, K.-B.; Zhang, Q.; Lu, Z.-F.; Wang, S.-W.; Zhang, Y.-X.; Streets, D. G., Analysis of the origins of black carbon and carbon monoxide transported to Beijing, Tianjin, and Hebei in China. *Science of The Total Environment* **2019**, *653*, 1364-1376.
31. Chen, Y.; Shi, G.; Cai, J.; Shi, Z.; Wang, Z.; Yao, X.; Tian, M.; Peng, C.; Han, Y.; Zhu, T.; Liu, Y.; Yang, X.; Zheng, M.; Yang, F.; Zhang, Q.; He, K., Simultaneous measurements of urban and rural particles in Beijing – Part 2: Case studies of haze events and regional transport. *Atmospheric Chemistry and Physics* **2020**, *20*, 9249-9263.
32. Li, J. et al., Regional transport of air pollutants to Beijing (unpublished results). **2021**.
33. Panagi, M.; Fleming, Z. L.; Monks, P. S.; Ashfold, M. J.; Wild, O.; Holloway, M.; Zhang, Q.; Squires, F. A.; Vande Hey, J. D., Investigating the regional contributions to air pollution in Beijing: a dispersion modelling study using CO as a tracer. *Atmospheric Chemistry and Physics* **2020**, *20*, 2825-2838.
34. Bryant, D. J.; Dixon, W. J.; Hopkins, J. R.; Dunmore, R. E.; Pereira, K. L.; Shaw, M.; Squires, F. A.; Bannan, T. J.; Mehra, A.; Worrall, S. D.; Bacak, A.; Coe, H.; Percival, C. J.; Whalley, L. K.; Heard, D. E.; Slater, E. J.; Ouyang, B.; Cui, T.; Surratt, J. D.; Liu, D.; Shi, Z.; Harrison, R.; Sun, Y.; Xu, W.; Lewis, A. C.; Lee, J. D.; Rickard, A. R.; Hamilton, J. F., Strong anthropogenic control of secondary organic aerosol formation from isoprene in Beijing. *Atmospheric Chemistry and Physics* **2020**, *20*, 7531-7552.
35. Hamilton, J. et al., Organosulfate aerosol in Beijing (unpublished results). **2021**.
36. Mehra, A.; Bannan, T.; Allan, J.; Percival, C.; Coe, H., Using highly time-resolved online mass spectrometry to examine biogenic and anthropogenic contributions to organic aerosol in Beijing. *Faraday Discussions* **2020**, doi: 10.1039/d0fd00080a, in press.
37. Brean, J.; Harrison, R. M.; Shi, Z.; Beddows, D. C. S.; Acton, W. J. F.; Hewitt, C. N.; Squires, F. A.; Lee, J., Observations of highly oxidized molecules and particle nucleation in the atmosphere of Beijing. *Atmospheric Chemistry and Physics* **2019**, *19*, 14933-14947.
38. Cherrie, J. W.; Apsley, A.; Cowie, H.; Steinle, S.; Mueller, W.; Lin, C.; Horwell, C. J.; Sleenwenhoek, A.; Loh, M., Effectiveness of face masks used to protect Beijing residents against particulate air pollution. *Occupational and Environmental Medicine* **2018**, *75*, 446-452.
39. Dong, W.; Liu, S.; Chu, M.; Zhao, B.; Yang, D.; Chen, C.; Miller, M. R.; Loh, M.; Xu, J.; Chi, R.; Yang, X.; Guo, X.; Deng, F., Different cardiorespiratory effects of indoor air pollution intervention with ionization air purifier: Findings from a randomized, double-blind crossover study among school children in Beijing. *Environmental Pollution* **2019**, *254*, 113054.
40. Han, Y.; Chen, W.; Chatzidiakou, L.; Yan, L.; Zhang, H.; Chan, Q.; Barratt, B.; Jones, R.; Liu, J.; Wu, Y.; Zhao, M.; Zhang, J.; Kelly, F. J.; Zhu, T.; the AIRLESS team, Effects of AIR pollution on cardiopulmonary disEaSe in urban and peri-urban reSidents in Beijing: protocol for the AIRLESS study. *Atmospheric Chemistry and Physics* **2020**, 15775–15792.
41. Hu, D.; Jia, X.; Cui, L.; Liu, J.; Chen, J.; Wang, Y.; Niu, W.; Xu, J.; Miller, M.R.; Loh, M.; Deng, F.; Guo, X., Exposure to fine particulate matter promotes platelet activation and thrombosis via obesity-related inflammation. *Journal of Hazardous Materials* **2021**, *413*, 125341.
42. Li, Y.; Guan, D.; Yu, Y.; Westland, S.; Wang, D.; Meng, J.; Wang, X.; He, K.; Tao, S., A psychophysical measurement on subjective well-being and air pollution. *Nature Communications* **2019**, *10*, 5473.
43. Xue, T.; Zhu, T.; Zheng, Y.; Zhang, Q., Declines in mental health associated with air pollution and temperature variability in China. *Nature Communications* **2019**, *10*, 2165.
44. Shen, G.; Ru, M.; Du, W.; Zhu, X.; Zhong, Q.; Chen, Y.; Shen, H.; Yun, X.; Meng, W.; Liu, J.; Cheng, H.; Hu, J.; Guan, D.; Tao, S., Impacts of air pollutants from rural Chinese households under the rapid residential energy transition. *Nature Communications* **2019**, *10*, 3405.
45. Meng, W.; Zhong, Q.; Chen, Y.; Shen, H.; Yun, X.; Smith, K. R.; Li, B.; Liu, J.; Wang, X.; Ma, J.; Cheng, H.; Zeng, E. Y.; Guan, D.; Russell, A. G.; Tao, S., Energy and air pollution benefits of household fuel policies in northern China. *Proceedings of the National Academy of Sciences* **2019**, *116*, 16773-16780.