

鹤山大气超级站旱季单颗粒气溶胶化学特征研究

蒋斌^{1,2}, 陈多宏², 王伯光^{1*}, 张涛², 李梅¹, 甘婷¹, 周炎², 钟流举², 毕新慧³ (1.暨南大学大气环境安全与污染控制研究所, 广东 广州 510632; 2.广东省环境监测中心, 国家环境保护区域空气质量监测重点实验室, 广东 广州 510308; 3.中国科学院广州地球化学研究所, 广东 广州 510640)

摘要: 利用单颗粒气溶胶飞行时间质谱等仪器在鹤山大气超级站开展综合观测, 结合 ART-2a 自适应共振神经网络聚类算法, 将 2013 年 11 月 4 日~2013 年 12 月 30 日期间监测到的 1637330 个细颗粒分成 9 类: EC-Fresh 颗粒、EC-Nitrate/Sulfate 颗粒、K-EC 颗粒、Ca-EC 颗粒、ECOC 颗粒、OC-Levogluconan 颗粒、OC-Nitrate/Sulfate 颗粒、K-Nitrate/Sulfate 颗粒和 Metal-rich 颗粒。结果表明: 该大气超级站所在地区旱季霾日有利于与水溶性二次无机组分混合的 EC-Nitrate/Sulfate 颗粒、K-Nitrate/Sulfate 颗粒的累积; 晴朗天更有利于二次有机组分在气溶胶颗粒中生成, 雨天受当地排放源的影响显著, 含有较高 EC-Fresh 和 K-EC 颗粒。相关性的研究发现, EC-Nitrate/Sulfate 颗粒与能见度有良好的相关性, 它们对霾的形成有至关重要的作用。

关键词: 单颗粒气溶胶; 霾; 单颗粒气溶胶飞行时间质谱仪(SPAMS)

中图分类号: X513 文献标识码: A 文章编号: 1000-6923(2016)03-0670-09

Single-particle chemical characterization of aerosols at the Heshan atmospheric supersite during the dry season.

JIANG Bin^{1,2}, CHEN Duo-hong², WANG Bo-guang^{1*}, ZHANG Tao², LI Mei¹, GAN Ting¹, ZHOU Yan², ZHONG Liu-ju², BI Xin-hui³ (1.Institute of Technology on Atmospheric Environmental Safety and Pollution Control, Jinan University, Guangzhou 510632, China; 2.State Environmental Protection Key Laboratory of Regional Air Quality Monitoring, Guangdong Environmental Monitoring Center, Guangzhou 510308, China; 3.Guangzhou Institute of Geochemistry, Chinese Academy of Sciences, Guangzhou 510640, China). *China Environmental Science*, 2016,36(3): 670~678

Abstract: Single-particle chemical characteristics of atmospheric aerosols were studied by a single-particle aerosol mass spectrometry (SPAMS) at the Heshan atmospheric supersite of Guangdong in the dry season (November 4 to December 30) in 2013. Over 1.6×10^6 fine particles were characterized by the SPAMS with the ART-2a neural network algorithms. All the particles were classified into 9 main categories: elemental carbon (EC)-Fresh, EC-Nitrate/Sulfate, K-EC, Ca-EC, internally mixed elemental-organic carbon (ECOC), organic carbon (OC)-Levogluconan, OC-Nitrate/Sulfate, K-Nitrate/Sulfate and Metal-rich particles. Results showed that those particles rich in secondary water soluble ions, like EC-Nitrate/Sulfate, K-Nitrate/Sulfate particles, were enhanced in hazy days at Heshan supersite during the measurement campaign. Furthermore, secondary organic components more favored partitioning to particle phase in sunny days. In rainy days, however, there were more EC-fresh particles and K-EC particles which likely were influenced by local emissions. Finally, EC-Nitrate/Sulfate particles may have a vital role on the formation of haze as they had a good correlation with visibility.

Key words: single particle aerosols; haze; single particle aerosol mass spectrometry (SPAMS)

随着我国经济的持续快速增长, 气溶胶细颗粒(空气动力学粒径小于 $2.5 \mu\text{m}$ 的气溶胶颗粒)已成为大多数城市的首要污染物^[1], 其对可见光的散射和吸收尤其是散射作用是引起大气能见度降低, 并最终形成霾的重要原因^[2]。

珠江三角地区是我国颗粒物污染较为严重的地区之一, 颗粒物污染主要出现在旱季, 并呈

现复合污染的特征^[3-4], 严重危害人体健康。在国内, 针对霾日细颗粒的理化特征及光学性质等已有较多的研究^[5-7], 但多基于传统的整体分析方

收稿日期: 2015-08-30

基金项目: 科技部科技支撑项目(2014BAC21B03); 国家自然科学基金(41373116)

* 责任作者, 教授, tbongue@jnu.edu.cn

法,对研究细颗粒的混合状态及单颗粒特征的能力有限.近几年来,随着单颗粒气溶胶快速监测技术的发展,气溶胶飞行时间质谱仪在国际上逐渐发展成为一种被广泛采用的气溶胶研究手段,在国内,Yang 等^[8]使用单颗粒气溶胶质谱仪研究了上海霾日单颗粒特征.Wang 等^[9]对南京霾日气溶胶单颗粒特征及混合状态进行了研究.珠三角地区针对气溶胶单颗粒特征的研究也有相关报道,如,Bi 等^[10]对广州地区生物质燃烧颗粒的化学组成和混合状态进行了分析,zhang 等^[11]对广州市碳质组分的混合状态进行了研究,何俊杰等^[12]对鹤山雨季雾霾单颗粒的理化特征的初步研究发现,雾霾期间颗粒老化是 EC、ECOC、K-rich 三种类型颗粒粒径增长的主要原因等.

然而,目前对珠三角地区旱季不同天气下气溶胶单颗粒特征的研究鲜有报道.研究表明,受气象条件及污染源排放的季节、周期、日变化综合影响,气溶胶污染会呈现出鲜明的季节性特征^[13],如,北京夏季霾日 NO_3^- 的质量中值粒径呈双模态分布,冬季霾日则主要分布于细粒子中,表现出与夏季不同的形成机制^[14].珠三角地区地处亚热带,属亚热带典型的海洋季风气候,雨季和旱季季风交替是珠三角地区最显著的特征,受季风的影响,雨季偏南风,热带海洋气团向北扩张所形成高温、高湿、多雨的气候.旱季偏北风,极地大陆气团向南伸展而形成低温、干燥、少雨的气候^[15],且旱季霾日大气颗粒物的气团往往来源于珠三角经济较发达的地区,复合型污染严重,对人体健康影响极大^[16].因此本研究使用单颗粒气溶胶飞行时间质谱仪(SPAMS)等仪器,研究了广东省鹤山大气超级监测站旱季大气气溶胶在不同天气条件下单颗粒的成分变化,为了解珠三角地区霾日气溶胶单颗粒特征及其成因提供了重要科学依据.

1 实验和方法

1.1 采样地点和采样时间

采样点设置在广东省江门市鹤山桃源镇广东大气超级监测站(22.7°N, 112.9°E),详细描述见何俊杰等^[12]文章中的样品采集部分.该站属于我国首批建立的区域性大气超级站,能够作为珠三

角西翼空气质量的代表性监测点位.在 2013 年 11 月 4 日~2013 年 12 月 30 日期间,使用 SPAMS 共采集颗粒 17083305 个,其中同时含有粒径及正负离子信息的颗粒数为 1637330 个.采样期间还同时监测了 $\text{PM}_{2.5}$ 、能见度和气象参数等指标.

1.2 SPAMS 工作原理及数据分析

Li 等^[17]已对 SPAMS 的工作原理、基本性能、质量控制以及数据分析进行了详细的阐述,简而言之,该仪器采用空气动力学透镜聚焦进样,通过双激光测径系统以及双极飞行时间质量分析器对 0.2~2.0 μm 范围内的颗粒粒径及化学组分进行同时检测分析.SPAMS 采集的数据运行在 Matlab 平台上,结合单颗粒质谱数据软件包 YAADA (Version2.1 版本, <http://www.yaa-da.org>) 和自适应共振神经网络聚类法(ART-2a),并根据颗粒质谱中离子峰的种类及强度的相似性对颗粒物分类分析.本研究中 ART-2a 算法使用的参数如下:警戒因子为 0.70,学习率为 0.05,迭代次数为 20.

2 结果与讨论

2.1 天气过程的划分

参照中华人民共和国气象行业标准^[18],根据能见度和相对湿度实时数据信息,将采样期间划分为霾日和非霾日,为了更好的掌握旱季霾日的特征,从非霾日中挑选出雨天和晴朗天,时间划分如下:霾日 1 (11 月 6 日 12:00~9 日 12:00)、霾日 2 (12 月 07 日 12:00~11 日 12:00)、霾日 3(12 月 27 日 00:00~29 日 00:00)、雨天 1 (11 月 10 日 00:00~13 日 12:00)和雨天 2 (12 月 13 日 12:00~17 日 12:00)、晴朗天(11 月 28 日 18:00~2 日 12:00),其中,霾日 1、霾日 2、霾日 3、雨天 1 和雨天 2 均为采样期间霾日或雨天出现的次数,旨在探讨霾日等的共同特征.考虑到 11 月 20 日~21 日期间有少量降雨,可能会影响对霾日特征的诊断,故未划分为霾日.如图 1 所示:霾日的能见度均在 10km 以下,平均相对湿度小于 80%;晴朗天的平均能见度大于 19km,能见度良好;雨天相对湿度持续在 90%左右,细颗粒物浓度显著降低,具有良好的天气代表性.

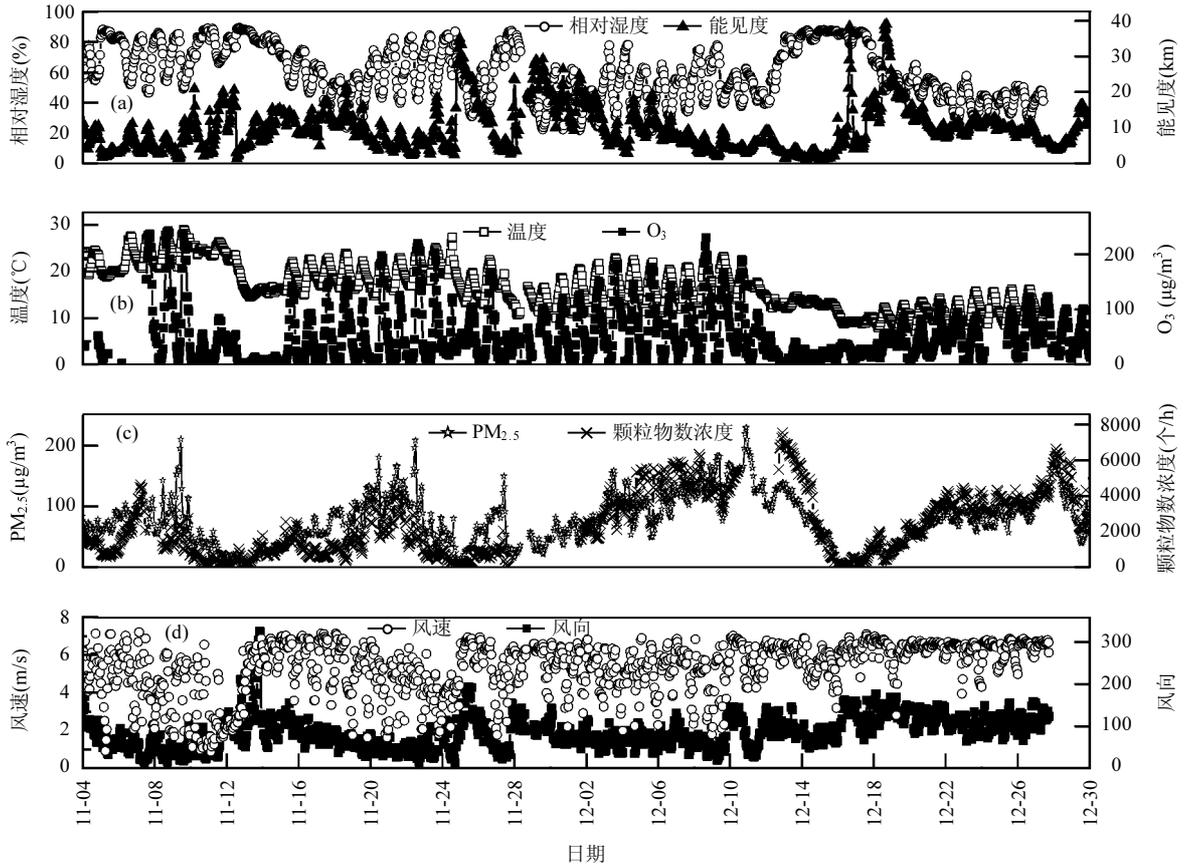


图1 气象参数及 SPAMS 采集颗粒的时间序列图

Fig.1 Time series of meteorological data and particles detected by SPAMS

2.2 细颗粒物数浓度分析

监测结果显示,PM_{2.5} 的质量浓度与 SPAMS 捕获的颗粒物数浓度之间有良好的相关性(r 为 0.79),说明 SPAMS 实时监测的颗粒物数浓度能够较好地反映环境中气溶胶颗粒的实时变化情况.由图 1c 可知,霾日条件下 PM_{2.5} 质量浓度和 SPAMS 捕获的细颗粒物数浓度显著上升,表明霾日有利于颗粒物的累积^[19].

2.3 各类细颗粒质谱特征简介

根据 ART-2a 的分类结果及各类颗粒的化学成分特征,将这些颗粒类型合并成 9 类: EC-Fresh 颗粒、EC-Nitrate/Sulfate 颗粒、K-EC 颗粒、Ca-EC 颗粒、ECOC 颗粒、OC-Levogluconan 颗粒、OC-Nitrate/Sulfate 颗粒、K-Nitrate/Sulfate 颗粒和 Metal-rich 颗粒,共占颗粒总数的 90%以上.各颗粒特征如图 2 所示:

EC-Fresh 颗粒尽管不是纯的元素碳颗粒,但其正负谱图主要由元素碳峰组成,并伴随相对微弱的 $^{23}\text{Na}^+$ 、 $^{39}\text{K}^+$ 及硝酸盐、硫酸盐离子信号峰(-46NO_2^- 、 -62NO_3^- 、 $-\text{HSO}_4^-$),有研究表明此类颗粒主要是由燃烧排放的较为新鲜的元素碳颗粒,如生物质燃烧和机动车尾气排放等^[11].

EC-Nitrate/Sulfate 颗粒与 EC-Fresh 颗粒不同之处在于正谱图元素碳峰中伴随较强的 NH_4^+ 离子信号峰,负谱图含有极强的硝酸盐、硫酸盐离子信号峰,表明,该类颗粒物可能在大气中经历了明显的老化^[12].

K-EC 颗粒的质谱特征为:正谱图有非常强的 $^{39}\text{K}^+$ 离子信号峰,并伴随元素碳和 $^{23}\text{Na}^+$ 信号峰,负谱图中含有一系列较强的碳簇离子信号峰,及较弱的硝酸盐、硫酸盐离子信号峰,这与

Taiwo 等^[20]的谱图特征相似,且已有的研究普遍认为颗粒可能同样来源于附近居民餐饮燃烧或其他认为钾可作为生物质燃烧的示踪^[21-22],推测,此类生物质燃烧源^[20]。

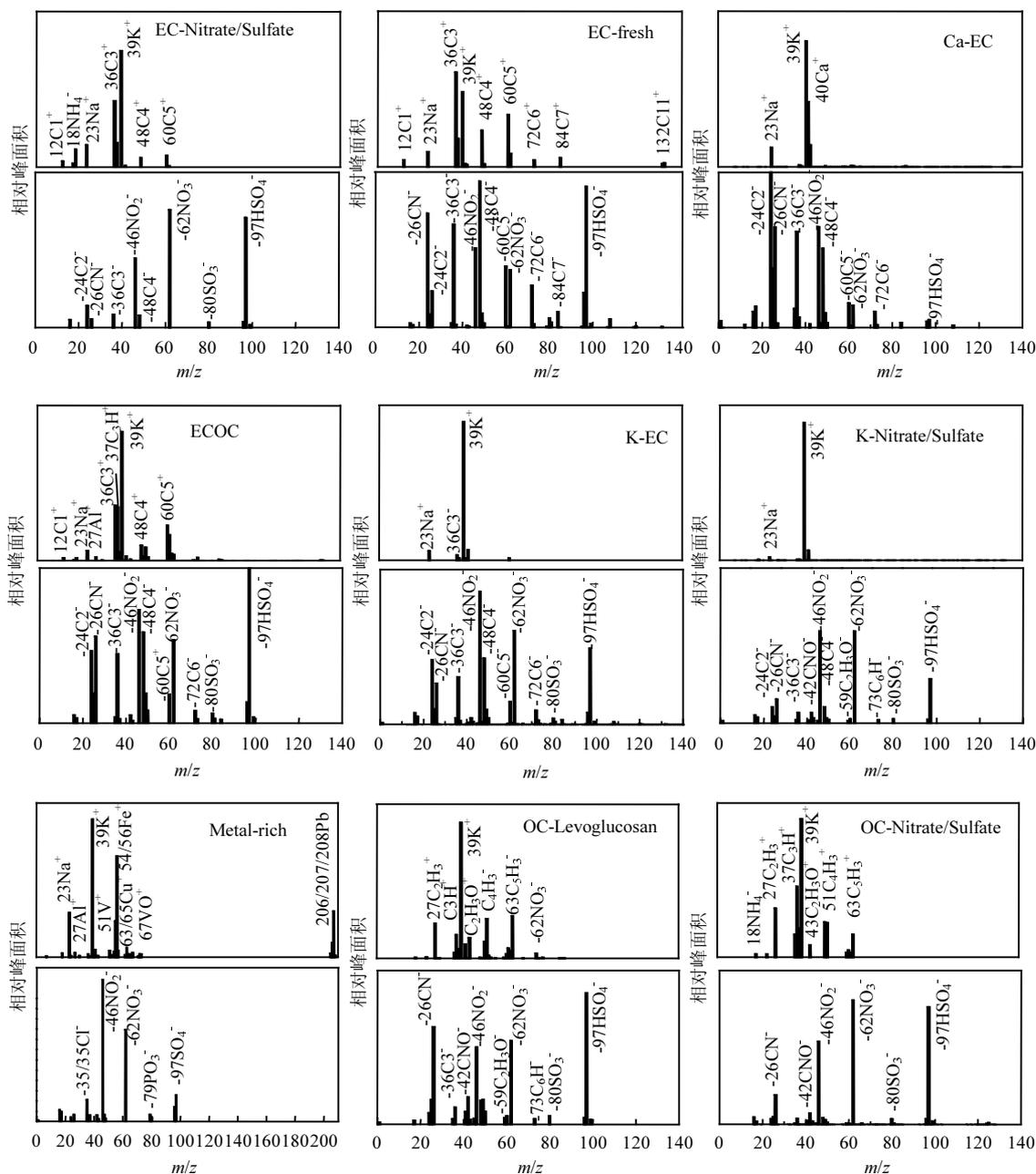


图2 采样期间 9 类细颗粒的平均质谱(K-EC, Ca-EC, EC-Nitrate/Sulfate, OC-Nitrate/Sulfate, EC-fresh, ECOC, K-Nitrate/Sulfate, OC-Levoglucosan and Metal-rich)

Fig.2 Averaged positive and negative mass spectra for the 9 single-particle classes (K-EC, Ca-EC, EC-Nitrate/Sulfate, OC-Nitrate/Sulfate, EC-fresh, ECOC, K-Nitrate/Sulfate, OC-Levoglucosan and Metal-rich) observed during the whole sampling period

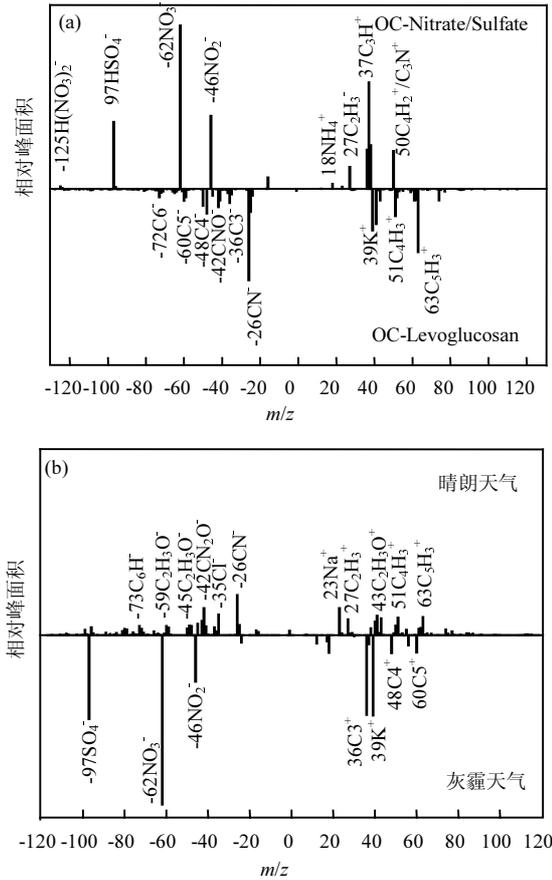


图3 OC-Nitrate/Sulfate 颗粒和 OC-Levoglucosan 颗粒质谱差分图(a);晴朗天和霾日细颗粒物质谱差分图(b)
Fig.3 Spectral differences with OC-Nitrate/Sulfate particles to OC-Levoglucosan particles (a); Spectral differences of fine particles with the sunny days to the hazy days (b)

K-Nitrate/Sulfate 颗粒的质谱特征为:正谱图中有非常强的 K^+ (m/z 39) 信号峰,除微弱的 $23Na^+$ 外几乎没有其他信号峰,负谱图中有极强硝酸盐、硫酸盐信号峰,Bi 等^[10]在生物质燃烧颗粒中检测到类似的颗粒,推测,此类颗粒可能来自生物质燃烧过程产生,并在环境中历经了老化过程。

Ca-EC 颗粒的质谱特征为:其整体特征与 K-EC 颗粒相似,不同的是正谱图中含有较丰富的 Ca^+ 信号峰,在环境颗粒物来源解析中也常常以含钙的 EC 颗粒作为柴油车尾气排放的标

志之一^[23]。

ECOC 颗粒的质谱特征为:有较强的碳簇离子峰,相对较弱的有机碳离子峰(如 $27C_2H_3^+$ 、 $29C_2H_5^+$ 、 $37C_3H^+$ 、 $43C_2H_3O^+/C_2H_5N^+$ 、 $51C_4H_3^+$ 、 $63C_5H_3^+$),并伴随硝酸盐、硫酸盐信号峰。ECOC 颗粒的来源较为复杂,既可以由 EC 颗粒在大气中老化形成,也可以由燃烧过程直接产生^[24]。

OC 颗粒在本研究中由两部分组成,分别为 OC-Levoglucosan 颗粒和 OC-Nitrate/Sulfate 颗粒,与 ECOC 颗粒不同,这两种颗粒的质谱特征都以有机碳峰为主,负谱图含有较强的硝酸盐、硫酸盐信号峰,由图 3(a)质谱差分图可看出两者的不同之处在于 OC-Levoglucosan 颗粒的正谱图中含有更高的 $51C_4H_3^+$ 和 $63C_5H_3^+$ 的信号峰,表明此类颗粒中可能存在芳香簇化合物^[25-26],负谱图含有更强的碳簇离子峰及左旋葡聚糖的碎片离子峰(如 $-45CHO_2^-$ 、 $-59C_2H_3O_2^-$ 、 $-71C_3H_3O_2^-$ 及 $-73C_3H_5O_2^-$ 等),在已有的研究中左旋葡聚糖的碎片离子峰被认为是较 K^+ 离子峰更特有的生物质燃烧颗粒示踪离子峰^[27-28],因而推测此类有机碳颗粒可能来自生物质燃烧源。而 OC-Nitrate/Sulfate 颗粒的正谱图含有更高的 NH_4^+ 离子峰,负谱图含更丰富的硝酸盐、硫酸盐离子峰,推测,OC-Nitrate/Sulfate 颗粒可能是由二次组分在 OC-Levoglucosan 颗粒表面上凝结形成^[29]。

Metal-rich 颗粒正谱图主要由一系列金属元素组成,如 $27Al^+$ 、 $51V^+$ 、 $54/56Fe^+$ 、 $63/65Cu^+$ 、 $206/207/208Pb^+$ 等,负谱图含较强的 $-46NO_2^-$ 、 $-62NO_3^-$ 及微弱的 $-97HSO_4^-$ 和 $-79PO_3^-$,此外还含有 Cl^- (m/z -35, -37),推测,此类颗粒可能主要来自工业源或燃煤等燃烧排放^[30]。

2.4 ECOC 颗粒来源简析

ECOC 颗粒的来源较为复杂,在不同的过程中可能存在不同的主要贡献源,而珠三角地区对 ECOC 颗粒潜在来源的研究就为罕见,本文通过分析 ECOC 颗粒与不同源贡献颗粒的相关性简析 ECOC 在不同过程中的主要贡献源。由表 1 可知,在霾日 2 和霾日 3 期间 ECOC 颗粒与 EC-Nitrate/Sulfate 颗粒数浓度相关性

系数(R^2)分别为 0.80 和 0.64,与 OC-Nitrate/Sulfate 颗粒相关性系数(R^2)分别为 0.60 和 0.61,表明此期间 ECOC 颗粒与 EC-Nitrate/Sulfate 颗粒等有相似的形成过程,即主要由 EC 颗粒老化形成;两次下雨天 ECOC 颗粒与 K-EC 颗粒数浓度相关性系数(R^2)分别为 0.58,0.94,和 EC-Fresh 颗粒有非常好的相关性(R^2 均大于 0.8),可能主要受生物质燃烧的影响,晴朗天则与 Ca-EC 颗粒有很好的相关性(R^2 等于 0.83),可能主要受机动车排放的影响.同时说明鹤山旱季 ECOC 颗粒在不同天气条件下有不同的贡献源,因而不能单一的将 ECOC 颗粒视为一次排放或二次形成.

表 1 不同天气下含碳颗粒与 ECOC 颗粒小时数浓度相关性系数

Table 1 Correlation analysis between main carbon containing particles and ECOC particles under different weather

天气	Ca-EC 颗粒	K-EC 颗粒	EC-Nitrate /Sulfate 颗粒	OC-Nitrate /Sulfate 颗粒	EC-Fresh 颗粒
霾日 1	0.60	0.82	0.19	0.45	0.73
雨天 1	0.35	0.58	-0.07	0.11	0.81
晴朗天	0.83	0.56	-0.003	0.67	0.49
霾日 2	0.52	0.30	0.80	0.60	0.44
雨天 2	0.73	0.94	0.44	0.49	0.97
霾日 3	0.10	0.56	0.64	0.61	0.33

2.5 不同天气细颗粒主要成分的变化

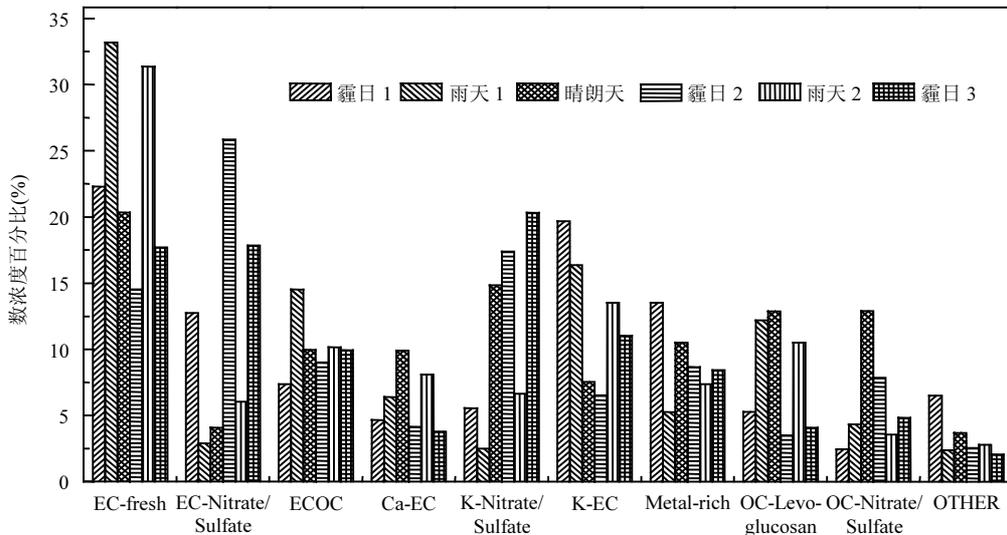


图 4 不同天气下细颗粒物主要化学成分变化特征

Fig.4 Main chemical compositions and characteristics of detected fine particles under different weather conditions

由图 4 可知,每种类型的颗粒在不同天气都存在,但各有不同的特征.

(1) 霾日细颗粒主要特征:

主要由燃烧直接排放的组分如 EC-fresh 颗粒等所占比例相对较低,而与水溶性二次无机组分混合的颗粒所占比例显著高于其他天气,如霾日 2 和霾日 3 过程中 EC-Nitrate/Sulfate 颗粒和 K-Nitrate/Sulfate 颗粒所占比例和分别为 43%和 38%,而两次霾日条件下 EC-fresh 颗粒均仅占 15%左右,说明霾日有利于与水溶性二次组分混

合的颗粒的累积.此外,由图 3(b)中的质谱差分图可知霾日与晴朗天相比含有更多的硫酸盐和硝酸盐等水溶性二次无机组分,进一步说明霾日更有利于水溶性二次无机组分在细颗粒中生成.

与后两次霾日相比霾日 1 有较大的差异,表现为具有相对较高比例的 EC-Fresh 颗粒(22%)和 K-EC 颗粒(18%),且在此天气下 EC-Fresh 颗粒、K-EC 颗粒及 OC-Levogluconan 颗粒数浓度都有急剧增长(图 5);同时,这 3 种颗粒所占的比例之和为 47%远高于富含水溶性二次无机组分

的颗粒(EC-Nitrate/Sulfate 颗粒和 K-Nitrate/Sulfate 颗粒)之和(18%).本次霾过程发生在十一月初,正值晚稻收割末期,因而推测,气象不利于扩散天气条件下(本次霾日期间的平均风速小于1m/s)水稻秸秆的集中焚烧是此次霾形成的主要原因.

(2) 雨天细颗粒特征:

两次下雨天气均表现出相似的特征,即为 EC-Fresh 颗粒占有较高的比例(33.2%和 31.4%),且明显高于其他天气所占的比例,同时,K-EC 颗粒和 OC-Levoglucosan 颗粒占有较高比例,两次下雨天气三类颗粒占比总和分别为 61.7%和 55.4%,而 EC-Nitrate/Sulfate 颗粒和 K-Nitrate/Sulfate 颗粒和分别为 5.4%和 12.7%,表明该地区下雨天主要受本地一次排放源影响.

(3) 晴朗天细颗粒特征:

具有相对较高比例的 OC-Nitrate/Sulfate 颗粒和 K-Nitrate/Sulfate 颗粒,尤其 OC-Nitrate/Sulfate 颗粒占比明显高于其他天气,由图 3(b)中的质谱差分图可知,晴朗天较霾日含有更多的有

机组分如 $C_2H_3^+$, $C_2H_3O^+$ 等,有研究显示 $C_2H_3O^+$ 是光化学反应生成的二次有机碳的特征峰之一^[31],表明晴朗天气更有利于二次有机组分在颗粒相中的生成.

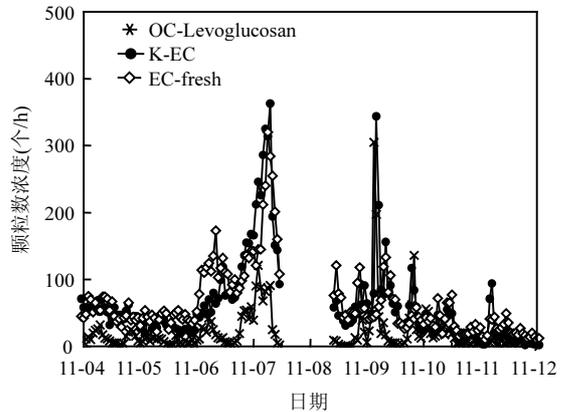
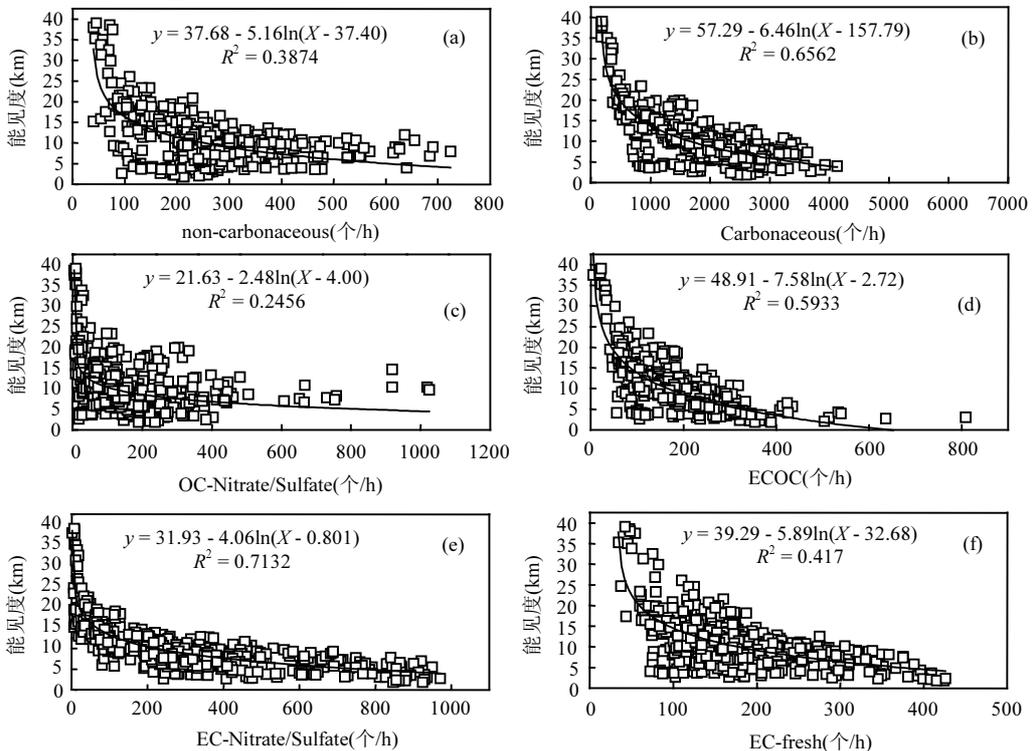


图 5 霾日 1 条件下 EC-Fresh 颗粒、K-EC 颗粒和 OC-Levoglucosan 颗粒的时间序列

Fig.5 Temporal profile of number concentration for OC-Levoglucosan, K-EC and EC-Fresh particles under the hazy day 1



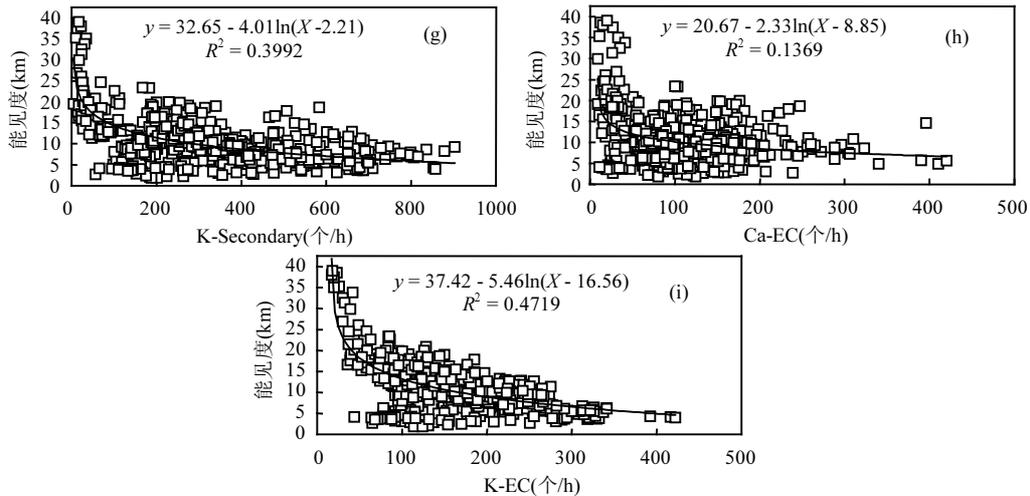


图 6 各类细颗粒数浓度与能见度的相关性

Fig.6 Correlations between particle number of each class and visibility with 1hour resolution

研究还发现,能见度的下降与气溶胶单颗粒的成分息息相关,如图 6a、6b 所示,碳质组分(EC-fresh, EC-Nitrate/Sulfate, OC, K-Nitrate/Sulfate 颗粒)和非碳质组分(Metal-rich, DUST 颗粒)与能见度呈对数关系,相关性系数(R^2)分别为 0.66, $P < 0.0001$ 和 0.39, $P < 0.0001$,表明碳质组分对能见度的下降具有更重要的贡献;碳质组分颗粒中 EC-Nitrate/Sulfate 颗粒与能见度的相关性系数(R^2)为 0.71, $P < 0.0001$ (图 6e),明显高于 EC-fresh 颗粒的 0.42, $P < 0.0001$ (图 6f),表明 EC-Nitrate/Sulfate 颗粒对能见度的下降扮演更为重要角色,推测,水溶性二次无机组分如硫酸盐、硝酸盐、铵盐等与 EC 颗粒的混合后可能会提升 EC 颗粒的光吸收能力^[32],同时霾期间 EC-fresh 颗粒占比降低而 EC-Nitrate/Sulfate 颗粒占比显著增加,表明 EC-Nitrate/Sulfate 颗粒对大气超级站地区旱季霾的形成起了至关重要的作用。

对比鹤山地区雨季气溶胶单颗粒特征发现,经光化学老化形成的气溶胶颗粒对旱季霾的形成具有重要的贡献,以霾日 2 为例,水溶性二次无机组分与 EC 颗粒混合的 EC-Nitrate/Sulfate 颗粒是此次霾的形成的最为主要的因素;与雨季晴朗天较霾日含有更多海盐成分不同,旱季晴朗天则含有更多的有机组分,这可能是受不同气团的影响,该地区雨季主要受来自海洋气团的影响而旱

季则主要受来自内陆地区气团的影响^[9];此外,旱季 ECOC 颗粒来源更为复杂,不同天气有不同的主要贡献源,因而不能简单认为是老化形成或一次排放.二次组分与颗粒物的混合状态及二次水溶性组分与颗粒物混合后的光学性质在日后的研究中进一步得到探索。

3 结论

3.1 广东省鹤山大气超级站地区不同天气下气溶胶单颗粒具有不同的特征,旱季霾日以 EC-Nitrate/Sulfate 颗粒和 K-Nitrate/Sulfate 颗粒为主,晴朗天含较高的 OC-Nitrate/Sulfate 颗粒,雨天则以 EC-fresh 颗粒和 K-EC 颗粒为主。

3.2 霾日细颗粒含有更多的水溶性二次无机组分,晴朗天细颗粒含有更多的有机组分表明,霾日更有利于水溶性二次无机组分在气溶胶颗粒中的形成,而晴朗天更有利于二次有机组分的形成。

3.3 不同天气气溶胶单颗粒特征及各类颗粒与能见度的相关性分析表明,与水溶性二次无机组分混合的 EC-Nitrate/Sulfate 颗粒对能见度的下降以及霾的形成有至关重要的作用。

参考文献:

- [1] 谢鸣捷,王格慧,胡淑圆,等.南京夏秋季大气颗粒物和 PAHs 组成的粒径分布特征 [J]. 中国环境科学, 2008,28(10):867-871.

- [2] Nel A. Air pollution-related illness: Effects of particles [J]. *Science*, 2005,308(57/23):804-806.
- [3] 吴 兑.近十年中国灰霾天气研究综述 [J]. *环境科学报*, 2012, 32(2):257-269.
- [4] 吴 蒙,范绍佳,吴 兑,等.广州地区灰霾与清洁天气变化特征及影响因素分析 [J]. *中国环境科学*, 2012,32(8):1409-1415.
- [5] 王 静,牛生杰,许 丹,等.南京一次典型雾霾天气气溶胶光学特性 [J]. *中国环境科学*, 2013,32(2):201-208.
- [6] 赵普生,徐晓峰,孟 伟,等.京津冀区域霾天气特征 [J]. *中国环境科学*, 2012,32(1):31-36.
- [7] 刘一鸣,洪莹莹,张舒婷,等.珠江三角洲秋季典型气溶胶污染的过程分析 [J]. *中国环境科学*, 2014,34(12):3017-3025.
- [8] Yang F, Chen H, Du J, et al. Evolution of the mixing state of fine aerosols during haze events in Shanghai [J]. *Atmospheric Research*, 2012,(104/105):193-201.
- [9] Wang H L, Zhu B, Zhang Z F, et al. Mixing state of individual carbonaceous particles during a severe haze episode in January 2013, Nanjing, China [J]. *Particuology*, 2015,20:16-23.
- [10] Bi X H, Zhang G H, Li L, et al. Mixing state of biomass burning particles by single particle aerosol mass spectrometer in the urban area of PRD, China [J]. *Atmospheric Environment*, 2011,45(20): 3447-3453.
- [11] Zhang G, Bi X, Li L, et al. Mixing state of individual submicron carbon-containing particles during spring and fall seasons in urban Guangzhou, China: A case study [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2013,13(9):4723-4735.
- [12] 何俊杰,张国华,王伯光,等.鹤山灰霾期间大气单颗粒气溶胶特征的初步研究 [J]. *环境科学学报*, 2013,33(8):2098-2104.
- [13] 宋 宇,唐孝炎,方 晨,等.北京市能见度下降与颗粒物污染的关系 [J]. *环境科学学报*, 2003,23(4):468-471.
- [14] 黄怡民,刘子锐,陈 宏,等.北京夏冬季霾天气下气溶胶水溶性离子粒径分布特征 [J]. *环境科学*, 2013,34(4):1236-1244.
- [15] 陈世训,沈灿燊.广州的气候. *中山大学学报(自然科学版)*, 1956,(2):128-153.
- [16] 谭吉华.广州灰霾期间气溶胶物化特性及其对能见度影响的初步研究 [D]. 中国科学院研究生院(广州地球化学研究所), 2007.
- [17] Li L, Huang Z X, Dong J G, et al. Real time bipolar time-of-flight mass spectrometer for analyzing single aerosol particles [J]. *International Journal of Mass Spectrometry*, 2011, 303(2/3):118-124.
- [18] QX/T113-2010 霾的观测和预报等级 [S].
- [19] 陈多宏,何俊杰,张国华,等.不同天气类型广东大气超级站细粒子污染特征初步研究 [J]. *地球化学*, 2014,43(3):217-223.
- [20] Taiwo A M, Harrison R M, Beddows D C S, et al. Source apportionment of single particles sampled at the industrially polluted town of Port Talbot, United Kingdom by ATOFMS [J]. *Atmospheric Environment*, 2014,97:155-165.
- [21] Hudson P K, Murphy D M, Cziczko D J, et al. Biomass-burning particle measurements: Characteristic composition and chemical processing [J]. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 2004,109(D23).DOI:10.1029/2003JD004398.
- [22] Schauer J J, Kleeman M J, Cass G R, et al. Measurement of emissions from air pollution sources 3. C-1-C-29 organic compounds from fire place combustion of wood [J]. *Environment Science & Technology*, 2001,35(9):1716-1728.
- [23] Healy R M, Sciare J, Poulain L, et al. Sources and mixing state of size-resolved elemental carbon particles in a European megacity: Paris [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2012,12(4):1681-1700.
- [24] Sodeman D A, Toner S M, Prather K A. Determination of single particle mass spectral signatures from light-duty vehicle emissions [J]. *Environment Science & Technology*, 2005,39(12): 4569-4580.
- [25] Dall'Osto M, Harrison R M. Chemical characterisation of single airborne particles in Athens (Greece) by ATOFMS [J]. *Atmospheric Environment*, 2006,40(39):7614-7631.
- [26] Liu D, Wenzel R J, Prather, K A. "Aerosol Time-of-Flight Mass Spectrometry during the Atlanta Supersite Experiment: 1. Measurements." [J]. *Journal of Geophysical Research*, 2003, 108(D7):8426-8442.
- [27] Bein K J, Zhao Y, Johnston M V, et al. Interactions between boreal wildfire and urban emissions [J]. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* (1984-2012), 2008,113(D7).
- [28] Silva P J, Liu D Y, Noble C A, et al. Size and chemical characterization of individual particles resulting from biomass burning of local Southern California species [J]. *Environmental Science & Technology*, 1999,33(18):3068-3076.
- [29] Moffet R C, Prather K A. In-situ measurement of the mixing state and optical properties of soot with implications for radiative forcing estimate [J]. *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America*, 2009,106(29): 11872-11877.
- [30] Moffet R C, de Foy B, Molina L T, et al. 2008. Measurement of ambient aerosols in northern Mexico City by single particle mass spectrometry [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 8(16): 4499-4516.
- [31] Qin X Y. 2007. Characterization of ambient aerosol composition and formation mechanisms and development of quantification methodologies utilizing ATOFMS [D]. San Diego: University of California.
- [32] Naoe H, Hasegawa S, Heintzenberg J, et al. State of mixture of atmospheric submicrometer black carbon particles and its effect on particulate light absorption [J]. *Atmospheric Environment*, 43,1296-1301,doi:10.1016/j.atmosenv.2008.11.031, 2009.

作者简介: 蒋 斌(1990-),男,湖南永州人,暨南大学环境学院硕士研究生,主要从事单颗粒气溶胶理化特征研究。