

DOI:10.7524/j.issn.0254-6108.2020010906

赵德龙, 周崑, 盛久江, 等. 基于飞机观测不同天气条件下北京地区黑碳气溶胶的垂直分布及其混合态特性[J]. 环境化学, 2021, 40(5): 1405-1412.

ZHAO Delong, ZHOU Wei, SHENG Jiujiang, et al. Vertical distribution and mixed state characteristics of black carbon aerosols in Beijing Area based on aircraft observation under different weather conditions[J]. Environmental Chemistry, 2021, 40 (5): 1405-1412.

## 基于飞机观测不同天气条件下北京地区黑碳气溶胶的垂直分布及其混合态特性\*

赵德龙<sup>1,2,3</sup>\*\* 周崑<sup>1,2,3</sup> 盛久江<sup>1,2,3</sup> 黄梦宇<sup>1,2,3</sup> 何晖<sup>1,2,3</sup> 丁德平<sup>1,2,3</sup>

(1. 北京市人工影响天气办公室, 北京, 100089; 2. 云降水物理研究和云水资源开发北京市重点实验室, 北京, 101200; 3. 中国气象局华北云降水野外科学实验基地, 北京, 101200)

**摘要** 利用机载单颗粒黑碳光度计 (SP2) 针对北京地区不同天气条件下黑碳 (BC, black carbon) 气溶胶的垂直分布特征进行了 10 次的飞机探测研究. 结果显示, 在霾和非霾条件下 BC 气溶胶的浓度都是随着高度升高而减小, 而且浓度变化在 1500 m 高度存在明显的分界线. 在 1500 m 以下, BC 气溶胶浓度变化梯度均较大, 霾条件下的 BC 气溶胶浓度约为非霾条件下的 4.3 倍, 在 1500 m 以上, BC 气溶胶浓度变化梯度均较小, 霾条件下的 BC 气溶胶浓度约为非霾条件下的 2.5 倍. BC 气溶胶粒子谱都呈单峰分布, 霾条件下峰值粒径主要要集中在 0.16  $\mu\text{m}$  在非霾条件下峰值粒径主要集中在 0.18  $\mu\text{m}$  在近地面, 霾条件下的平均内混比远远高于非霾条件下, 越往高空两种条件下的 BC 气溶胶的平均内混比越接近. 通过 CAMx 模拟了不同条件下的 BC 气溶胶, 发现霾污染天气下模拟的结果差异较大, 在非霾条件下的模拟结果要优于霾条件下的模拟结果, 这主要是由于在大部分模式中, 很少考虑黑碳的老化状态.

**关键词** 黑碳气溶胶, 垂直分布, 混合态, 粒径, 飞机探测, 北京地区.

## Vertical distribution and mixed state characteristics of black carbon aerosols in Beijing Area based on aircraft observation under different weather conditions

ZHAO Delong<sup>1,2,3</sup>\*\* ZHOU Wei<sup>1,2,3</sup> SHENG Jiujiang<sup>1,2,3</sup> HUANG Mengyu<sup>1,2,3</sup>  
HE Hui<sup>1,2,3</sup> DING Deping<sup>1,2,3</sup>

(1. Beijing Weather Modification Office, Beijing, 100089, China; 2. Beijing Key Laboratory of Cloud, Precipitation and Atmospheric Water Resources, Beijing, 101200, China; 3. Field Experiment Base of Cloud and Precipitation Research in North China, China Meteorological Administration, Beijing, 101200, China)

**Abstract** The airborne single particle soot photometer (SP2) was used in ten times of aircraft observation studies on vertical distribution characteristics of black carbon aerosol under different weather conditions in Beijing. The results showed that, under both haze and non-haze conditions, the concentration of black carbon aerosol decreased with the increase of the height, and there existed a clear boundary line for concentration change at the height of 1500 m. Below the height of 1500 m,

2020年1月9日收稿(Received: January 9, 2020).

\* 国家重点研发计划(2016YFA0602001)和国家自然科学基金(41605108)资助.

**Supported by** the National Key Research and Development Project of China (2016YFA0602001) and National Natural Science Foundation of China (41605108).

\*\* 通讯联系人 **Corresponding author**, Tel: 010-58991378, E-mail: zhaodelong@bj.cma.gov.cn

the gradient of BC aerosol concentration was large, and the BC aerosol concentration under haze conditions was about 4.3 times of that under non-haze conditions. Above the height of 1 500 meters, the gradient of BC aerosol concentration was small, and the BC aerosol concentration under haze conditions was about 2.5 times of that under non-haze conditions. It was also found that the BC aerosol particle spectrum had a single peak distribution, with the peak particle size mainly concentrated at 0.16  $\mu\text{m}$  under haze conditions, and 0.18  $\mu\text{m}$  under non-haze conditions. If close to the ground, the average internal mixing ratio under haze conditions was much higher than that under non-haze conditions, yet the average internal mixing ratios of BC aerosol under these two conditions become closer as the altitude gets higher. Additionally, via simulation by CAMx of the BC aerosols under different conditions, it was found that the simulated effects under haze condition were quite different, and the simulation results under non-haze conditions were better than that under haze conditions, which was mainly due to the fact that the aging state of black carbon was rarely considered in most modes.

**Keywords** black carbon aerosol, vertical distribution, mixed state, particle size, aircraft measurement, Beijing Area.

近几年,北京连续发生了严重的雾霾事件,相关研究已经开展了很多<sup>[1-6]</sup>.而黑碳(BC)气溶胶作为大气重要的组成成分,主要由含碳物质不完全燃烧产生的,会影响大气环境和人体健康.它也是大气气溶胶中最主要的光学吸收成分,可以通过直接效应影响太阳辐射,产生辐射强迫,加热大气,从而直接导致云的蒸发、减少<sup>[7-9]</sup>.BC气溶胶也可以作为云凝结核或直接作为冰核,改变云的微物理和辐射性质以及云的寿命,间接影响气候系统<sup>[10-13]</sup>.同时,BC气溶胶还可以参加非均相化学反应和气粒转化过程,对大气过程产生重要的影响<sup>[14]</sup>.

目前,在我国BC气溶胶的研究大多还是局限于光学和热光学两种观测方法,因为受到了滤膜和其他气溶胶特别是散射气溶胶粒子的影响,很难得到BC谱分布和混合态特征.而国外早已经针对BC气溶胶混合态、谱分布开展了众多的空中和地面的探测研究,尤其是美国Droplet Measurement Technologies(DMT)公司设计的单颗粒黑碳光度计(single particle soot photometer,简称SP2)已经成熟运用.至今,Cozic等<sup>[15]</sup>、Chwarz等<sup>[16]</sup>、Reddington等<sup>[17]</sup>、Baumgardner等<sup>[18]</sup>、Metcalf等<sup>[19]</sup>均利用SP2对BC气溶胶垂直特征、BC气溶胶的垂直混合态和谱分布特征进行了探测分析.我国这几年亦有利用SP2针对深圳<sup>[20]</sup>、北京及周边<sup>[21]</sup>、西安<sup>[22]</sup>、无锡<sup>[23]</sup>、南京<sup>[24]</sup>等地区的BC气溶胶浓度、混合态及季节变化特征的研究报道.然而,对于不同天气条件下BC气溶胶的垂直分布及其混合态特性研究较少.

本文选取其中10次飞行过程,对比深入分析了在不同大气条件下北京地区BC气溶胶谱分布、混合态信息和模拟结果的差异.旨在研究我国高空BC气溶胶的特征,为高空污染物的传输以及BC气溶胶气候效应,模式订正提供基础.

## 1 实验部分(Experimental section)

### 1.1 仪器和飞行方案

飞机为哈尔滨飞龙设计有限公司的运12系列3805型号飞机和空中国王系列350型号飞机,运12和空中国王飞机飞行速度分别为180—200  $\text{km}\cdot\text{h}^{-1}$ 和280—560  $\text{km}\cdot\text{h}^{-1}$ ,运12和空中国王飞机最大上升高度分别为4500 m和10000 m.两架飞机整体进气采样系统采用美国BMI(Brechtel Manufacturing Inc)公司的等速采样头Model 1200系统(图1),该系统能随着飞机的速度控制进气的流量.等速采样系统是利用飞机的动力被动进气,根据外界大气计算出整个进气流量,除去用户设定的仪器的固定流量,即为等速采样系统流量阀排掉的部分.该系统能起到稳定流量,减少乱流和紊流带来的采样异常,其传输效率对于 $<6\ \mu\text{m}$ 粒径下的粒子为95%.飞机的经纬度、高度等基本信息由AIMMES—20探头获得,分辨率为1 s.

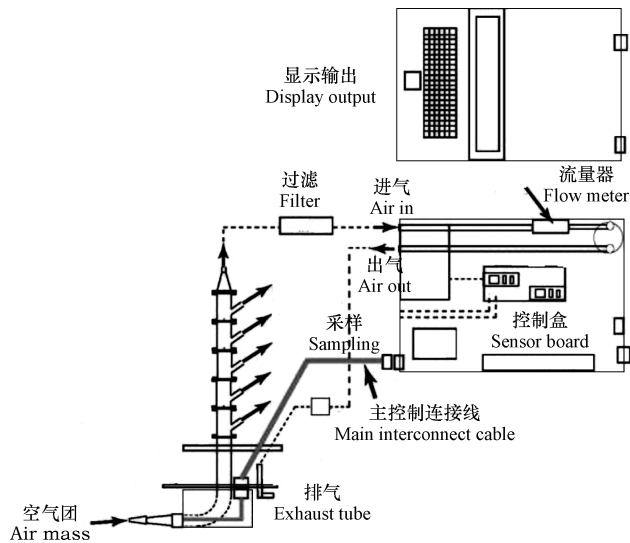


图1 等速采样头系统结构示意图

Fig.1 Schematic diagram of isokinetic sampling head

飞行方案主要在北京城区4—5环之间绕圈,在城区的飞行高度为2200—600 m,每300 m下降一个高度.起飞降落机场为北京昌平区的沙河机场(116.3°E, 40.2°N),飞行方案具体的飞行区域和高度如图2.

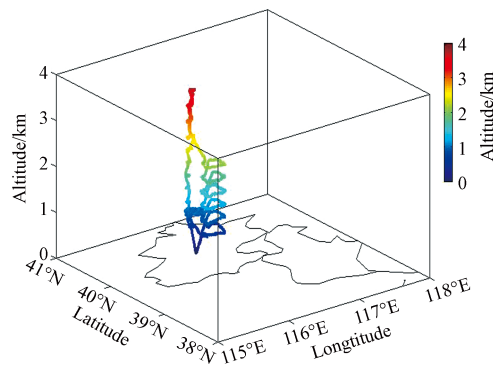


图2 环北京飞行区域示意图

Fig.2 Schematic diagram of the flight area around Beijing

## 1.2 单颗粒黑碳光度计 (Single particle soot photometer)

观测 BC 气溶胶采用美国 DMT 公司生产的在线单颗粒黑碳光度计. SP2 是通过使用光的散射、吸收和发射推断出粒子的直径、质量和单个气溶胶粒子的白热温度. 详细的仪器结构描述已有介绍<sup>[25-27]</sup>, 简单来说, 垂直方向上的粒子逐个进入到 SP2 激光腔内, 遇到腔内水平方向上持续的激光束(1064 nm)被加热产生光信号, 信号会被 4 个不同位置的光检测器检测到. 如果粒子是非光吸收粒子, 散射信号会被其中 2 个光学散射透镜探测到. 如果粒子是包裹着 BC 的气溶胶粒子, 激光会首先燃烧掉外层包裹物质并发出散射信号, 然后继续加热直至内部 BC 在吸光作用下气化, 并发出白炽光信号. 白炽光信号会被另外 2 个不同波段(宽波段是 350—800 nm 的光滤镜, 窄波段是 630—800 nm)光学滤镜检测到. 白炽光信号的强度峰值与 BC 含量成正比. 根据这个比例, 由单个粒子白炽信号强度计算出 BC 质量, 再根据单位时间内检测到的 BC 数量质量统计, 获得 BC 的数浓度和质量浓度.

本研究 SP2 设计流量为 120 vccm, 数据分辨率为每秒 1 个, 有效粒径范围为 0.04—0.47  $\mu\text{m}$ . BC 校准是每次飞行结束后进行质量和流量等校准, 质量校准采用胶体石墨样本, 这种方法大部分被 DMT 仪器使用者接受. 散射信号利用美国 TSI(Trust Science Innovation)公司的电迁移率扫描仪(SMPS, Scanning Mobility Particle Sizer)和气溶胶发生器筛选不同粒径下的聚苯乙烯乳胶球(PSL, polystyrene latex sphere)进行校准. 本文 SP2 的 BC 质量偏差为 $\pm 36\%$ <sup>[28]</sup>, 等效粒径(MED, Mass Equivalent Diameter)为 20%<sup>[29]</sup>. 本文计算均为标准大气压 1013.25 mb 下, BC 密度为 2  $\text{g}\cdot\text{cm}^{-3}$ , 温度为 273.15 K.

## 2 结果与讨论 (Results and discussion)

### 2.1 不同条件下 BC 气溶胶质量浓度的垂直分布

图 3 是在不同条件下的 BC 气溶胶质量浓度的垂直分布廓线图, 通过对比分析不同天气背景下北京城区上空 0—3600 m 垂直高度的 BC 气溶胶质量浓度分布可知, 霾天的 BC 气溶胶质量浓度较高, 质量浓度最大达到  $4.2 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ , 最小约  $0.03 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ , 相对于霾天, 非霾天 BC 气溶胶质量浓度较低, 质量浓度最大达到  $2.4 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ , 最小约为  $0.01 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ . 在霾和非霾条件下 BC 颗粒的浓度廓线都是随着高度的升高而减小, 而且浓度变化在 1500 m 高度有个明显的分界线. 在 1500 m 以下, 主要受人为条件的影响, BC 气溶胶浓度变化梯度较大, 在霾条件下主要集中在  $0.05\text{—}4.2 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ , 平均质量浓度约为  $1.49 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ , 非霾条件下主要集中在  $0.03\text{—}2.4 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ , 平均质量浓度约为  $0.35 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ , 霾条件下的 BC 气溶胶浓度约为非霾条件下的 4.3 倍. 在 1500 m 以上高空, 受下垫面影响较小, 主要受输送作用的影响, BC 气溶胶浓度变化梯度较小, 在霾条件下主要集中在  $0.03\text{—}0.6 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ , 平均质量浓度约为  $0.19 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ , 非霾条件下主要集中在  $0.01\text{—}0.2 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ , 平均质量浓度约为  $0.073 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ , 霾条件下的 BC 气溶胶浓度约为非霾条件下的 2.5 倍. 白天 BC 气溶胶主要来源于人为源和大气传输, 通过大气湍流过程不断混合, 迅速累计并输送到边界层顶, 根据 Zhang 等<sup>[30]</sup>和 Han 等<sup>[31]</sup>的研究, 一般湍流在边界层顶混合强度较低, 阻碍了气溶胶向自由大气的输送, 致使大量气溶胶聚集在近地面, 因此在低空大气中黑碳气溶胶浓度要远远高于高空大气, 尤其在有霾的天气条件下, 静稳的天气不能获得有利的扩散条件, BC 气溶胶在近地面迅速累计. 然后从图 3 可以看出在霾和非霾天气条件下, 在 1500 m 以上高度两种条件下的质量浓度接近并趋近平稳, 在高空 BC 气溶胶的浓度主要受大气水平输送的影响.

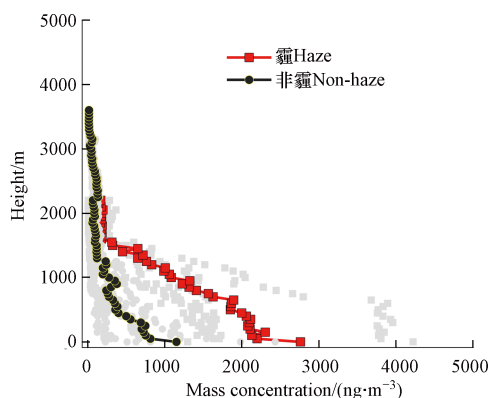


图 3 不同天气条件下黑碳气溶胶平均质量浓度的垂直分布

灰色小方块和灰色圆球分别代表 4 天霾天气和 6 天非霾天气条件下的黑碳气溶胶平均质量浓度的垂直分布

Fig.3 Vertical distribution of average mass concentration of black carbon aerosol under different weather conditions

### 2.2 不同条件下 BC 气溶胶粒子谱分布

气溶胶颗粒物的大小决定它们在大气中的寿命、物理和化学性质, 用数学方法描述它的质量浓度随粒子尺度的变化我们称之为粒子谱分布. 对 BC 气溶胶粒子的质量浓度做归一化处理得到图 4. 分析结果可知, BC 气溶胶颗粒通常很小, 大部分的 BC 气溶胶的粒径主要集中在  $0.05\text{—}0.5 \mu\text{m}$  之间, 非霾条件下峰值粒径主要集中在  $0.18 \mu\text{m}$ , 在霾条件下峰值粒径主要集中在  $0.16 \mu\text{m}$ , 霾条件下的 BC 气溶胶峰值粒径要小于非霾条件下的峰值粒径. 在不同天气条件下, BC 气溶胶的粒径分布存在明显差异, 以  $0.05\text{—}0.06 \mu\text{m}$  为例, 在霾条件该粒径下的 BC 气溶胶质量占总质量的 4.4%, 而在非霾条件该粒径下的 BC 气溶胶质量占总质量的 3.3%, 这表明在霾条件下附近大城市有更多的新鲜 BC 颗粒. 如表 1 所知在霾条件下北京的主风向为南风, 有来自南方的气团补充, 在非霾条件下, 北京的主风向为北风, 有来自北方的气团补充, 南部的气团主要来源于大城市当地的人为排放, 而北部的气团通常是老化的气团, 混合了不同的排放源. Schwarz 等<sup>[16]</sup>认为, 城市来源的 BC 颗粒的尺寸小于燃烧来源的生物质. 因此, 在霾条件下 BC 小粒子占比较大, 非霾条件下 BC 大粒子占比较大.

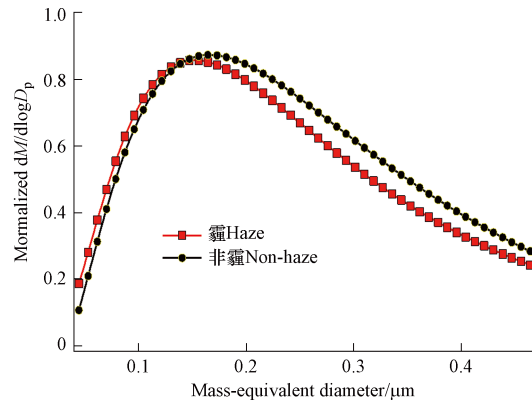


图 4 不同天气条件下黑碳气溶胶平均质量浓度的粒子谱分布

Fig.4 Particle spectrum distribution of average mass concentration of black carbon aerosol under different weather conditions

表 1 飞行统计

Table 1 The statistics of flight

| 区域<br>Region | 天气状况<br>Condition | 日期<br>Date | 北京时间<br>Time | (850 hpa)风向<br>Wind Direction | 能见度/km<br>Visibility | 平均相对湿度/%<br>Relative humidity |
|--------------|-------------------|------------|--------------|-------------------------------|----------------------|-------------------------------|
| 主城区Main city | 霾Haze             | 2012.05.19 | 09:30—12:15  | 西南Southwest                   | 5.6                  | 73                            |
|              |                   | 2012.05.31 | 09:35—12:15  | 西南Southwest                   | 10                   | 56                            |
|              |                   | 2018.06.12 | 09:25—11:03  | 东南Southeast                   | 8                    | 55                            |
|              |                   | 2018.07.20 | 09:55—11:45  | 南South                        | 5                    | 71                            |
|              | 非霾Non-haze        | 2012.05.03 | 10:20—13:50  | 西北Northwest                   | 17                   | 10                            |
|              |                   | 2012.05.23 | 09:15—12:40  | 西北Northwest                   | 21.9                 | 16                            |
|              |                   | 2012.06.11 | 09:05—12:00  | 西北Northwest                   | 27.1                 | 20                            |
|              |                   | 2012.06.16 | 09:30—12:30  | 西北Northwest                   | 14.3                 | 30                            |
|              |                   | 2018.05.11 | 09:17—11:40  | 东北Northeast                   | 14.6                 | 52                            |
|              |                   | 2018.06.27 | 10:55—12:53  | 西北Northwest                   | 33.6                 | 14                            |

### 2.3 不同条件下 BC 气溶胶混合态的垂直分布

黑碳气溶胶的混合态是 BC 颗粒的重要特征,因为它代表着 BC 的老化程度.新的 BC 颗粒外表不包裹其它组分,这种 BC 颗粒为外混态 BC,但是 BC 颗粒一旦排放到大气中会经历一系列的老化过程,比如:碰并,凝结和云/雾过程等<sup>[32]</sup>,因此,BC 颗粒的外围会包裹着硫酸盐,硝酸盐和有机物等组分,这种 BC 颗粒为内混态,SP2 能有效的识别内、外混态 BC 颗粒.通过对资料的统计分析,一共得到两条内混态 BC 颗粒百分比的垂直分布廓线.由图 5 可知,在近地面,霾条件下的内混态 BC 颗粒百分比较高,接近 55%,越往高空所占百分比越低,但是在 1500 m 高度有一个突变,内混比例出现一个升高的趋势.在非霾条件下近地面内混态 BC 颗粒百分比较低,大约为 20%,在 1500 m 内范围内混比值变化不明显,1500 m 以上内混比例变大.从图 5 看出,在近地面霾和非霾条件下的内混态 BC 颗粒百分比相差较大,但是越往高空走两种天气背景下的内混态 BC 颗粒百分比越接近,在 1500 m 高度之上,两种背景条件下的内混态 BC 颗粒百分比都是增加的.在 1500 m 以内,两种条件下的内混态 BC 颗粒随着高度升高呈现不同的趋势,如表 1 所知霾条件下湿度比非霾条件下高,BC 颗粒表面会有快速的吸湿增长,BC 颗粒表面快速被其它组分包裹,因此在霾条件下内混态 BC 颗粒比值较大.在 1500 m 以上,两种条件下的 BC 内混比例都是增大的,在非霾条件下相对湿度较低,BC 颗粒的吸湿性增长不活跃,内混比值增加跟区域传输中的老化有关,而在霾条件下 BC 的内混比增加跟本地湿度较大自身吸湿性增长有关.

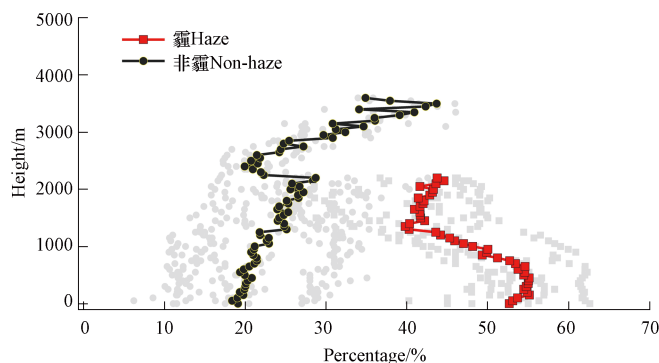


图5 不同天气条件下被包裹的BC混合百分比的垂直分布  
灰色小方块和灰色圆球分别代表4天霾天气和6天非霾天气条件下的黑碳气溶胶平均质量浓度的垂直分布

Fig.5 Vertical distribution of BC mixed percentages under different weather conditions

#### 2.4 不同条件下BC气溶胶质量浓度的模拟对比

本研究选择清华2012年MEIC源排放清单使用CAMx模式对5月23日非霾条件和5月19日霾条件BC气溶胶进行模拟. 首先我们对模拟结果进行验证, 主要采用数学统计量相关性 $R$ 来分析,  $R$ 值表示模拟值和观测值之间的变化趋势的吻合程度, 数值越接近1说明模拟效果越好. 通过对这两天模拟结果的相关性计算, 5月23日的 $R$ 值为0.92, 5月19日的 $R$ 值为0.8, 由 $R$ 值可知在霾条件下和非霾条件下, 模式都能很好的对BC气溶胶进行模拟, 但是在非霾条件下的模拟效果更好. 再通过BC气溶胶垂直方向上的浓度序列图可知, 在霾和非霾条件下模拟值都小于观测值, 所以CAMx模式对BC气溶胶的模拟都低估. 在非霾条件下观测值和模拟值的浓度相接近, 而且在垂直方向上的变化趋势也更接近. 在霾条件下的观测值和模拟值在垂直方向上变化趋势差异较大, 1500 m以内模拟的数值明显低于实际观测值, 而在1500 m以上, 差异较小, 这可能与模式中未考虑BC气溶胶在霾条件下老化速度有关. 在霾条件下, 考虑BC气溶胶老化的情况, 计算实际观测值中未被包裹的BC气溶胶的质量浓度, 通过图6(a)可知实际观测值中未被包裹的BC气溶胶的质量浓度与模拟的BC气溶胶的质量浓度垂直分布比较一致, 验证了上面的结果. 这很好的说明了混合态对于模式模拟BC气溶胶分布是至关重要的, 也是造成在不同天气条件下模式模拟黑碳差异的重要原因.

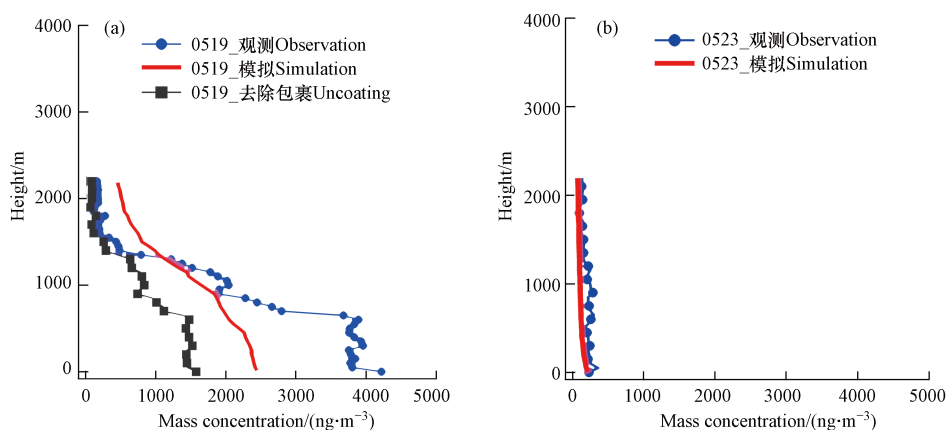


图6 不同天气条件下BC的模拟结果

Fig.6 Simulation results of BC under different weather conditions

### 3 结论(Conclusion)

本文利用机载的单颗粒黑碳光度计针对北京不同天气条件下黑碳气溶胶的垂直分布特征进行了10次的飞机探测研究, 结果表明:

(1)在霾和非霾条件下BC气溶胶的浓度都是随着高度升高而减小, 而且浓度变化在1500 m高度有个明显的分界线, 在1500 m以下, 主要受人为条件的影响, BC气溶胶浓度变化梯度较大. 在霾条件

下平均质量浓度约为  $1.49 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ , 非霾条件下约为  $0.35 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ , 霾条件下的 BC 气溶胶浓度约为非霾条件下的 4.3 倍. 在 1500 m 以上高空, 受下垫面影响较小, 主要受输送作用的影响, BC 气溶胶浓度变化梯度较小, 在霾条件下平均质量浓度约为  $0.19 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ , 非霾条件约为  $0.073 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ , 霾条件下的 BC 气溶胶浓度约为非霾条件下的 2.5 倍.

(2) 在霾和非霾条件下得到的 BC 气溶胶粒子谱都呈单峰分布, 粒子直径通常很小, 大部分的 BC 气溶胶的粒径主要集中在  $0.05\text{--}0.5 \mu\text{m}$  之间, 霾条件下峰值粒径主要集中在  $0.16 \mu\text{m}$ , 在非霾条件下峰值粒径主要集中在  $0.18 \mu\text{m}$ .

(3) 在近地面, 霾条件下的内混态 BC 气溶胶颗粒百分比比较高, 接近 55%, 越往高空所占百分比越低, 但是在 1500 m 高度有一个突变, 内混比例出现升高的趋势. 在非霾条件下近地面内混态 BC 气溶胶颗粒百分比比较低, 大约为 20%, 在 1500 m 内范围内混比值变化不明显, 1500 m 以上内混比例变大, 越往高空两种条件下的内混比有接近的趋势.

(4) 通过 CAMx 模拟了在不同条件下的 BC 气溶胶垂直分布特征, 在非霾条件下的模拟结果要比在霾条件下的模拟结果要好, 整体垂直分布梯度较为吻合. 在霾天气条件下模拟的与实测相差较大, 1500 m 以内模拟的数值明显低于实际观测值, 在 1500 m 以上差异较小, 这主要是由于模式中未考虑黑碳老化特性有关.

#### 参考文献 (References)

- [ 1 ] 于兴娜, 李新妹, 登增然登, 等. 北京雾霾天气期间气溶胶光学特性 [J]. 环境科学, 2012, 33(4): 1057-1062.  
YU X N, LI X M, DENG Z R, et al. Optical properties of aerosol during haze-fog episodes in Beijing [J]. Environmental Science, 2012, 33(4): 1057-1062 (in Chinese).
- [ 2 ] 常清, 杨复沫, 李兴华, 等. 北京冬季雾霾天气下颗粒物及其化学组分的粒径分布特征研究 [J]. 环境科学学报, 2015, 35(2): 363-370.  
CHANG Q, YANG F M, LI X H, et al. Characteristics of mass and chemical species size distributions of particulate matter during haze pollution in the winter in Beijing [J]. Acta Scientiae Circumstantiae, 2015, 35(2): 363-370 (in Chinese).
- [ 3 ] 王朔, 赵卫雄, 徐学哲, 等. 北京一次严重雾霾过程气溶胶光学特性与气象条件 [J]. 中国环境科学, 2016, 36(5): 1305-1312.  
WANG S, ZHAO W X, XU X Z, et al. Analysis of aerosol optical properties and meteorological parameters in a severe haze-fog episode in Beijing [J]. China Environmental Science, 2016, 36(5): 1305-1312 (in Chinese).
- [ 4 ] 赵秀娟, 蒲维维, 孟伟, 等. 北京地区秋季雾霾天  $\text{PM}_{2.5}$  污染与气溶胶光学特征分析 [J]. 环境科学, 2013, 34(2): 416-423.  
ZHAO X J, PU W W, MENG W, et al.  $\text{PM}_{2.5}$  Pollution and aerosol optical properties in fog and haze days during autumn and winter in Beijing area [J]. Environmental Science, 2013, 34(2): 416-423 (in Chinese).
- [ 5 ] ZHENG G J, DUAN F K, SU H, et al. Exploring the severe winter haze in Beijing: the impact of synoptic weather, regional transport and heterogeneous reactions [J]. Atmospheric Chemistry & Physics, 2015, 15(6): 2969-2983.
- [ 6 ] TAN J, DUAN J, ZHEN N, et al. Chemical characteristics and source of size-fractionated atmospheric particle in haze episode in Beijing [J]. Atmospheric Research, 2016, 167: 24-33.
- [ 7 ] RAMANATHAN V, CARMICHAEL G. Global and regional climate changes due to black carbon [J]. Nature Geoscience, 2008, 36(1): 335-358.
- [ 8 ] RAMANATHAN V, LI F, RAMANA M V, et al. Atmospheric brown clouds: Hemispherical and regional variations in long-range transport, absorption, and radiative forcing [J]. Journal of Geophysical Research, 2007, 112(D22): 365-371.
- [ 9 ] RAMANA M V, RAMANATHAN V, FENG Y, et al. Warming influenced by the ratio of black carbon to sulphate and the black-carbon source [J]. Nature Geoscience, 2010, 3(8): 542-545.
- [ 10 ] DEMOTT P J, CHEN Y, KREIDENWEIS S M, et al. Ice formation by black carbon particles [J]. Geophysical Research Letters, 1999, 26(16): 2429-2432.
- [ 11 ] MOHLER O, LINKE C, SAATHOFF H, et al. Ice nucleation on flame soot aerosol of different organic carbon content [J]. Meteorologische Zeitschrift, 2005, 14(4): 477-484.
- [ 12 ] MOHLER O, BÜTTNER S, LINKE C, et al. Effect of sulfuric acid coating on heterogeneous ice nucleation by soot aerosol particles [J]. Journal of Geophysical Research Atmospheres, 2005, 110(11): 1423-1436.
- [ 13 ] COZIC J, VERHEGGEN B, WEINGARTNER E, et al. Chemical composition of free tropospheric aerosol for PM1 and coarse mode at the high alpine site Jungfraujoch [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2008, 8(2): 407-423.
- [ 14 ] LADEN F, NEAS L M, DOCKERY D W, et al. Association of fine particulate matter from different sources with daily mortality in six U. S. cities. [J]. Environmental Health Perspectives, 2000, 108(10): 941-947.

- [15] COZIC J, MERTES S, VERHEGGEN B, et al. Black carbon enrichment in atmospheric ice particle residuals observed in lower tropospheric mixed phase clouds [J]. *Journal of Geophysical Research Atmospheres*, 2008, 113: D15209.
- [16] SCHWARZ J P, GAO R S, SPACKMAN J R, et al. Measurement of the mixing state, mass, and optical size of individual black carbon particles in urban and biomass burning emissions [J]. *Geophysical Research Letters*, 2008, 35: L13810.
- [17] REDDINGTON C L, MCMEEKING G, et al. The mass and number size distributions of black carbon aerosol over Europe [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2013, 13(9): 4917-4939.
- [18] BAUMGARDNER D, SUBRAMANIAN R, Twohy C, et al. Scavenging of black carbon by ice crystals over the northern Pacific [J]. *Geophysical Research Letters*, 2008, 35: L22815.
- [19] METCALF A R, CRAVEN J S, ENSBERG J J, et al. Black carbon aerosol over the Los Angeles Basin during CalNex [J]. *Journal of Geophysical Research Atmospheres*, 2012, 117: D00V13.
- [20] HUANG X F, SUN T L, ZENG L W, et al. Black carbon aerosol characterization in a coastal city in South China using a single particle soot photometer [J]. *Atmospheric Environment*, 2012, 51: 21-28.
- [21] ZHAO D L, TIE X X, GAO Y, et al. In-situ aircraft measurements of the vertical distribution of black carbon in the lower troposphere of Beijing, China, in the Spring and Summer Time [J]. *Atmosphere*, 2015, 6(5): 713-731.
- [22] WANG Q. Physicochemical characteristics of black carbon aerosol and its radiative impact in a polluted urban area of China [J]. *Journal of Geophysical Research-Atmospheres*, 2016, 20(121): 12505-12519.
- [23] 孙天乐, 何凌燕, 黄晓锋, 等. 无锡市大气PM<sub>2.5</sub>中黑碳的粒径分布与混合态特征 [J]. *中国环境科学*, 2015, 35(4): 970-975.  
SUN T L, HE L Y, HUANG X F, et al. Particle size distribution and mixed state characteristics of black carbon in atmospheric PM<sub>2.5</sub> in Wuxi [J]. *China Environmental Science*, 2015, 35(4): 970-975 (in Chinese).
- [24] 蒋磊, 汤莉莉, 潘良宝, 等. 南京冬季重污染过程中黑碳气溶胶的混合态及粒径分布 [J]. *环境科学*, 2017, 38(1): 13-21.  
JIANG L, TANG L L, PAN B L, et al. Size distribution and mixing state of black carbon aerosol in nanjing during a heavy winter pollution event [J]. *Environmental Science*, 2017, 38(1): 13-21 (in Chinese).
- [25] BAUMGARDNER D. Warming of the Arctic lower stratosphere by light absorbing particles [J]. *Geophysical Research Letters*, 2004, 31: L06117.
- [26] SCHWARZ J, GAO R, FAHEY D et al. Single-particle measurements of midlatitude black carbon and light-scattering aerosols from the boundary layer to the lower stratosphere [J]. *Journal of Geophysical Research*, 2006, 111: D16207.
- [27] MOTEKI N, KONDO Y, MIYAZAKI Y, et al. Evolution of mixing state of black carbon particles: Aircraft measurements over the western Pacific in March 2004 [J]. *Geophysical Research Letters*, 2007, 34(11): L11803.
- [28] GAO R S, HALL S R, SWARTZ W H, et al. Calculations of solar shortwave heating rates due to black carbon and ozone absorption using in situ measurements [J]. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 2008, 113: D14203.
- [29] SHIRAIWA M, KONDO Y, MOTEKI N, et al. Radiative impact of mixing state of black carbon aerosol in Asian outflow [J]. *Journal of Geophysical Research Atmospheres*, 2008, 113: D24210.
- [30] ZHANG Q, MA X C, TIE X, et al. Vertical distributions of aerosols under different weather conditions: Analysis of in-situ aircraft measurements in Beijing, China [J]. *Atmospheric Environment*, 2009, 43(34): 5526-5535.
- [31] HAN S, BIAN H, TIE X, et al. Impact of nocturnal planetary boundary layer on urban air pollutants: Measurements from a 250-m tower over Tianjin, China [J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2009, 162(1): 264-269.
- [32] SAATHOFF H, NAUMANN K H, SCHNAITER M, et al. Coating of soot and (NH<sub>4</sub>)<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> particles by ozonolysis products of α-pinene [J]. *Journal of Aerosol Science*, 2003, 34(210): 1297-1321.