

杨磊, 银燕, 杨绍忠, 等. 2013. 南京地区大气冰核浓度的测量及分析 [J]. 大气科学, 37 (3): 579–594, doi:10.3878/j.issn.1006-9895.2012.11252. Yang Lei, Yin Yan, Yang Shaozhong, et al. 2013. Measurement and analysis of atmospheric ice nuclei in Nanjing [J]. Chinese Journal of Atmospheric Sciences (in Chinese), 37 (3): 579–594.

南京地区大气冰核浓度的测量及分析

杨磊¹ 银燕¹ 杨绍忠² 蒋惠³ 肖辉³ 陈倩³ 苏航³ 陈聪³

1 南京信息工程大学气象灾害省部共建教育部重点实验室, 南京 210044

2 中国气象科学研究院中国气象局云雾物理重点开放实验室, 北京 100081

3 南京信息工程大学中国气象局大气物理与大气环境重点开放实验室, 南京 210044

摘 要 2011 年 5~8 月期间使用 5L 混合型云室以及静力扩散云室对南京不同成核机制的大气冰核进行了观测, 进而分析了近地层冰核浓度特征。结果表明: 活化温度为 -20°C 时, 5L 混合型云室观测的总冰核浓度为 20.11 个/L, 静力扩散云室模拟高水汽 (计算的云室内水面过饱和度为 5%) 和低水汽 (计算的云室内冰面过饱和度为 5%) 条件下冰核浓度分别为 0.93 个/L 以及 0.29 个/L。晴好条件下冰核浓度具有明显的日变化特征, 白天冰核浓度高于夜间; 在下午时段冰核浓度达到全天最高值, 这说明大气冰核可能与大气湍流强度、人类活动以及工业污染有关。降水对冰核的清除作用明显, 台风系统过程中冰核浓度明显增加。南京地区冰核浓度随温度降低和湿度增加而增加。后向轨迹模式分析表明东北海洋气团冰核浓度最高, 不同气团中冰核浓度的差异随着活化温度的降低而减小。个例分析秸秆燃烧生成的 PM_{10} (大气中直径小于或者等于 $1\mu\text{m}$ 的颗粒物) 与冰核关系发现燃烧产物对冰核有一定的贡献。

关键词 大气冰核 混合型云室 静力扩散云室

文章编号 1006-9895(2013)03-0579-16

中图分类号 P401

文献标识码 A

doi:10.3878/j.issn.1006-9895.2012.11242

Measurement and Analysis of Atmospheric Ice Nuclei in Nanjing

YANG Lei¹, YIN Yan¹, YANG Shaozhong², JIANG Hui³, XIAO Hui³, CHEN Qian³,
SU Hang³, and CHEN Cong³

1 Key Laboratory for Meteorological Disaster of the Ministry of Education, Nanjing University of Information Science & Technology, Nanjing 210044

2 Key Laboratory of Cloud Physics and Weather Modification of the China Meteorological Administration, Chinese Academy of Meteorological Sciences, Beijing 100081

3 Key Laboratory for Atmospheric Physics and Environment of the China Meteorological Administration, Nanjing University of Information Science & Technology, Nanjing 210044

Abstract The Ice Nuclei (IN) were observed in Nanjing from May to August 2011 using a 5 L mixing cloud chamber and a static diffusion cloud chamber, and the characteristics of different ice nuclei concentrations were examined. The results show that during the observation period, the mean concentration of total ice nuclei measured by the 5 L mixing cloud chamber was 20.11 L^{-1} , the concentration of IN under high water vapor conditions (5% calculated supersaturation with respect to water) and low water vapor conditions (5% calculated supersaturation with respect to ice) measured by the static diffusion cloud chamber was 0.928 L^{-1} and 0.291 L^{-1} , respectively. The IN under favorite conditions had a diurnal

收稿日期 2011-12-19, 2012-10-15 收修定稿

资助项目 国家自然科学基金资助项目 41030962, 江苏高校优势学科建设工程项目 PAPD, 江苏省 2011 年度普通高校研究生科研创新计划项目, 高等学校博士学科点专项科研基金博导类资助课题 20113228110002, 国家自然科学基金资助项目 40975084

作者简介 杨磊, 男, 1987 年出生, 硕士研究生, 研究方向: 云降水物理和气溶胶。E-mail: yanglei_nuist@163.com

通信作者 银燕, E-mail: yinyan@nuist.edu.cn

variation. The daytime concentration of IN was larger than that at night and peaked in the afternoon, which indicates that atmospheric IN is significantly influenced by turbulence intensity, human activities, and industrial pollution. The scavenging effect of precipitation on IN was obvious, and the concentration of IN increased during the typhoon system. The IN levels in the Nanjing area increased with decreasing temperatures and increasing humidity. The back trajectory model showed that the concentration of ice nuclei in the air mass from the northeast marine region was highest, and that the number of ice nuclei in different air masses decreased with decreasing activation temperature. A case analysis focused on the relationship between IN and PM_{10} (the particulate matter with diameter less than or equal to $1\ \mu m$) produced by biomass burning suggested that the product of the combustion may contribute to IN.

Keywords Atmospheric ice nuclei, Mixing cloud chamber, Static diffusion cold chamber

1 引言

大气气溶胶是悬浮在空气中的固体和液体微粒共同组成的多相体系。近年来,大气气溶胶成为全球辐射平衡以及云降水的研究热点,是影响全球辐射平衡以及水循环的最主要因素之一(Forster et al., 2007)。一方面,气溶胶可以通过散射和吸收影响全球辐射平衡(Haywood and Boucher, 2000);另一方面,气溶胶也会通过影响云的微物理特征、辐射特性以及降水,进而间接影响到地气系统的辐射收支(Lohmann and Feichter, 2005)。有关气溶胶如何充当云凝结核(Cloud Condensation Nuclei, CCN)影响暖云降水的研究很多,然而气溶胶作为冰核(Ice Nuclei, IN)对冷云影响的研究相对较少。

冰相云对降水(Lau and Wu, 2003)、大气化学(Peter, 1997)、全球辐射平衡(Liou, 1986)以及平流层水循环(Hartmann et al., 2001)起着重要作用。冰相云的研究不足限制了使用模式(Lin et al., 2002; Baker and Peter, 2008)以及遥感方法研究冰相云(Waliser et al., 2009)。大气中初始冰晶的形成有两种途径,同质核化和异质核化。同质核化通常发生在温度低于 $-38^\circ C$ 条件下。在温度高于 $-38^\circ C$ 时,无杂质的纯水滴只能借助于冰核才能转化为冰晶,因此大气冰核的研究是了解过冷云中冰晶形成的基础。异质核化机制主要分为四类,分别为凝华核化、凝结冻结核化、浸润冻结核化以及接触冻结核化。由于云中各种成核机制往往同时存在,因此异质核化较同质核化更为复杂。模式模拟结果证明冰核浓度是除垂直速度以外影响卷云中冰颗粒形成的另一主要因素,正是由于大气冰核的存在,使得冰相云云底高度更低,云底温度更高,从而影响云体内水成物分布、微物理特性、降水能力以及辐射特性(DeMott et al., 1998; Gierens, 2003; Kärcher and Lohmann, 2003)。目前人工降雨的基础就是建

立在自然大气中缺少冰核的基础上,通过增加大气冰核浓度促进冷云降水(盛裴轩和秦瑜, 1981)。因此,加深对大气冰核的观测,有助于我们研究气溶胶对云降水和辐射平衡的影响,以及为人工降雨作业提供理论依据。

早在 1957 年, Bigg (1957) 设计了快速膨胀云室(rapid expansion cloud chamber),也称为 Bigg (毕格)冰核云室,致力于观测大气中冰核浓度。1963 年, Bigg et al. (1963) 又提出了滤膜—扩散云室法(aerosol collection on membrane filters followed by processing in a diffusion chamber, 也称滤膜法)观测冰核,滤膜法具有气溶胶取样与活化显示处理分开、连续性取样、取样地点不受限制以及捕获率高等优点。Bigg and Hopwood (1963) 在南极洲观测得到活化温度分别为 $-10^\circ C$ 、 $-15^\circ C$ 和 $-20^\circ C$ 时,冰核浓度范围分别为 $1 \times 10^{-3} \sim 5 \times 10^{-3}$, $10 \times 10^{-3} \sim 20 \times 10^{-3}$ 和 0.1 个/L。Saxena and Weintraub (1988) 在 1983 年于南极洲使用滤膜法观测冰核,结果表明活化温度在 $-7 \sim -5^\circ C$ 时,冰核浓度可达 0.01~10 个/L。Rogers et al. (1998) 将连续流扩散云室(Continuous Flow Diffusion Chamber, CFDC)装载在飞机上观测美国上空对流层顶与平流层底之间高层云中冰核浓度,云室内冰核活化温度范围为 $-40 \sim -15^\circ C$,其云室水汽条件范围在冰面过饱和度(supersaturation with respect to ice, S_i) $S_i=0$ 到水面过饱和度(supersaturation with respect to water, S_w) $S_w=20\%$ 之间,结果显示冰核浓度范围为 0.1~500 个/L,低温高湿环境下冰核浓度更多,冰核与凝结核(Condensation Nuclei, CN)之间相关性不高。Santachiara et al. (2010) 在博洛尼亚附近观测 PM_{10} (PM_{10} 为大气中直径小于或等于 $1\ \mu m$ 的颗粒物)、 $PM_{2.5}$ ($PM_{2.5}$ 为大气中直径小于或等于 $2.5\ \mu m$ 的颗粒物)、 PM_{10} (PM_{10} 为大气中直径小于或者等于 $10\ \mu m$ 的颗粒物)以及总悬浮颗粒物 TSP (Total

Suspended Particulate) 中冰核浓度, 其使用云室的原理与 Langer and Rodgers (1975) 设计的动力扩散云室 (dynamic developing chamber) 相同, Santachiara 使用的云室过饱和度误差为 6%, 观测结果表明 PM_{10} 和 PM_{10} 中冰核分别占 TSP 冰核个数的 50% 和 70%~90%, 这说明较大的气溶胶颗粒更有利于形成冰核; 通过对比 $S_w=2\%$ ($S_i=20\%$) 和 $S_w=10\%$ ($S_i=32\%$) 冰核浓度, 证明高过饱和度情况下冰核浓度更多; 另外观测数据也证明了 IN 与 CN 之间不存在很好的相关性。Ardon-Dryer et al. (2011) 在 2009 年 1~2 月于南极高原 (海拔高度 2850 m) 使用热气球升空收集不同高度下的气溶胶样本, 然后在实验室使用静力真空水汽扩散云室 FRIDGE-TAU (FRankfurt Ice-nuclei Deposition freezinG Experiment, the Tel Aviv University version) 对浸润过采样气溶胶的水滴进行冻滴实验, 结果表明所有水滴在 $-27\sim-18^\circ\text{C}$ 范围内冻结, 50% 水滴平均冻结温度为 -24°C , 计算得到的浸润冻结核在 -23°C 时达到 1 个/L, 南极地区风速、降水以及气团轨迹对冰核浓度都有影响, 高空浸润冻结核浓度低于低空浓度说明了冰核主要来自近地面。另外, 很多国外学者分析了气溶胶浓度 (N_{aerosol}) 与冰核浓度 (N_{IN}) 之间的关系, 指出 N_{aerosol} 与 N_{IN} 之间函数关系通常为指数函数 (DeMott et al., 2003), 并且证明大于 $0.5\ \mu\text{m}$ 的 N_{aerosol} 与 N_{IN} 关系更加密切 (DeMott et al., 2003; Stith et al., 2009)。

国内也进行过一些冰核的观测研究。在北京 (游来光和石安英, 1964; 游来光等, 2002)、白城 (汪学林等, 1965)、贺兰山 (牛生杰等, 2000) 以及青海 (石爱丽等, 2006) 等地区都对冰核进行过观测, 观测冰核的方法主要有毕格混合云室 (Bigg, 1957) 和滤膜法 (Bigg et al., 1963)。游来光等 (2002) 在北京西郊使用毕格混合云室观测了冰核浓度, 发现冰核浓度在 20 世纪 60 年代到 90 年代之间平均增加约 15 倍, 并指出可能是人类活动导致了大气冰核浓度的增加。汪学林等 (1965) 发现白城地区在 -10°C 时存在活跃的冰核, 河套倒槽和内蒙古气旋导致当地冰核浓度增加。牛生杰等 (2000) 使用滤膜法观测贺兰山地区冰核浓度, 结果表明低云天气下冰核浓度比晴空和中高云系天气低, 风向对冰核原地的影响较小, 较大降雨的清除作用明显, 冰核浓度随高度增加呈减少的趋势。酆大雄等 (1994) 将我国 3 个地区黄土直接撒入 $2\ \text{m}^3$

等温云室进行成核率检测, 在 -15°C 时成核率可达到 $4\times 10^6/\text{g}$, 证明了黄土高原是大气冰核的重要源地。相对于国外研究而言, 国内冰核观测使用的仪器相对落后, 对于大气冰核的日变化规律及影响因子方面做了部分定性研究, 但是在我国大部分地区仍然缺少自然冰核的实地观测。

本次观测地点位于南京信息工程大学校园内 (32.21°N , 118.71°E , 海拔高度 22 m), 处于南京市江北工业区附近。近年来工业区不断扩大, 聚集了扬子石化、南钢、南京化工园等诸多大型化工企业, 而这类企业的生产、储运过程产生了大量污染物, 这势必会对工业区及其周边大气环境产生负面影响。国内学者对南京地区的气溶胶进行了大量的研究, 其中包括气溶胶的谱分布特征 (钱凌等, 2008; 谭稳等, 2010)、化学成分 (银燕等, 2009) 以及辐射特性 (陈宇等, 2009), 但尚未有南京工业区污染对冰核影响的研究。在污染严重的地区, 通常是吸湿性小粒子比较多 (银燕等, 2009), 这些由污染造成的小粒子是否也会造成冰核浓度的增加值得研究。尽管国内对于自然界中大气冰核的特性进行了一些观测, 但由于条件所限, 我国在这方面的研究还比较薄弱, 特别是在我国南方地区, 基本缺乏大气冰核的观测事实。因此, 研究我国南方大气冰核的分布特征, 对理解我国云降水形成的物理机制有着重要的理论意义。同时由于以往观测地点、观测日期、观测仪器原理、冰核活化条件以及冰核成核机制的不同造成了观测结果差异很大, 本研究对不同种类冰核浓度进行观测, 以便更好地认识大气中冰核浓度特征。

2 仪器与方法

本观测实验期间主要使用中国气象科学研究院杨绍忠研究员最新设计、搭建的 5L 混合型云室以及静力扩散云室观测不同活化条件下冰核浓度, 同时结合常规气象要素观测数据、气团轨迹模拟、火点卫星监测资料以及 PM_{10} 观测值分析南京地区夏季冰核浓度特征。本次观测集中于 2011 年 5~8 月, 其中主要观测时间为 2011 年 7 月 25 日~8 月 18 日。本文主要分析 7、8 月份冰核浓度特征, 其他月份冰核浓度仅在对比不同月份冰核浓度差异以及研究冰核浓度—温度谱时加以分析。下面对观测仪器、实验设计以及文章中分析数据使用的方法进行介绍。

2.1 冰核观测仪器和实验设计

2.1.1 5 L 混合型云室

图 1 为 5 L 混合云室结构图。云室内筒高为 440 mm, 内径为 145 mm, 糖盘上方为冰核活化区 (有效容积为 4.8 L), 糖盘用于接取下落的冰胚并使其外延增长, 糖盘内装有红糖溶液 (红糖与水质量比为 1:1)。内筒和外筒形成一个夹层, 夹层中装有防冻液, 防冻液中有螺旋状的制冷压缩机的蒸发盘管, 用于吸收热量, 使云室降温, 核化区的温度由中下部的感温元件测得。在内外筒下面设计有可使糖盘升降的电机驱动装置, 用于空气样本的吸入和排出。超声雾化器用水为蒸馏水, 它产生的常温雾经过埋设在冷媒中的三根铜管实现, 送雾气流中的杂质微粒可通过静电除尘装置进行清除。超声雾化器产雾可以延长通雾时间, 避免传统的人工呼吸过冷雾方法导致取样体积的不确定性。常温雾预冷后再进入云室, 这样可以减小常温雾直接进入云室对核化温度的干扰。云室最低温度可降到 -28°C , 温度测量分辨率为 0.1°C , 冷媒为汽车防冻液。观测中首先将云室温度降低到所需要的温度, 待云室内温度稳定后进行空气取样, 环境空气进入云室预冷后通入过冷雾, 待一段时间后升起糖盘进行冰核计数。因此, 5 L 混合型云室观测所有成核机制下冰核浓度。本次观测主要测量 $-25\sim-10^{\circ}\text{C}$ 范围内冰核浓度, 一组实验用时约 3 h。由于不同温度冰核数量有量级的差别, 故实际操作时只能凭肉眼计数并控制通雾时间。利用云室观测冰核浓度, 采用内差的方法计算 -10°C 、 -15°C 、 -20°C 、 -25°C 温度下冰核浓度。

2.1.2 静力扩散云室

本次观测通过设计合理的采样方案之后使用静力扩散云室 (杨绍忠等, 1995) 对采样膜进行冰核显现实验, 得到在某一温度和湿度条件下冰核浓度。图 2 给出静力扩散云室结构图, 云室主体由两块平行放置的、温度可控的金属板及边框构成。云室上下板均为 $140\times 140\times 5\text{ mm}$ 的镀铬的黄铜板。上板内表面为 $116\times 116\times 3\text{ mm}$ 的浅槽, 在浅槽中用去离子水冻结成平面作为冰晶活化和生长的水汽源。下板上表面放置四片直径 47 mm、厚 2 mm 的镀铬圆铜板。云室内高度为 8 mm。滤膜通过液状石蜡浸泡后置于云室下板上, 因此云室下板温度即为滤膜温度。在冰晶活化和生长时, 云室上部靠近冰面的表层为相对冰面过饱和, 并且上板冰面温

度高于下板。当水汽扩散达到平衡时, 滤膜处于这样一个定温、定湿的环境中, 上板冰面的水分子向下扩散, 被捕获的气溶胶活化并且逐渐长大成为可见的冰晶, 通过改变上下板的温差进行系列测定, 就可以得到冰核相应的温度谱和湿度谱。由此, 对于湿度检测的难题转为如何控制云室温度。学者设计静力扩散云室主要模拟凝华核化以及凝结冻结核化机制, 但是之后学者指出滤膜上采集的含有可溶性成分的气溶胶会长大成为稳定的水滴, 这些水滴会接触滤膜上的冰核进而冻结成可识别的冰晶, 因此该云室也可以模拟接触冻结机制 (Lala and Justo, 1972)。

云室中过饱和度是根据云室上下板的温度计算得到的。下板温度是冰核活化温度, 上板和下板温度之差决定了气溶胶活化的水汽条件。若上板和下板温度分别为 T_1 和 T_2 , 且 $T_1>T_2$ 。在理想状态下, 若下板没有水汽汇, 则下板表面的冰面过饱和度为

$$S_i = \frac{E_i(T_1) - E_i(T_2)}{E_i(T_2)} \times 100\%, \quad (1)$$

下板表面的水面过饱和度为

$$S_w = \frac{E_i(T_1) - E_w(T_2)}{E_w(T_2)} \times 100\%, \quad (2)$$

其中, S_i 为冰面过饱和度, S_w 为水面过饱和度, $E_i(T_1)$ 为上板在温度为 T_1 时冰面过饱和水汽压, $E_i(T_2)$ 和 $E_w(T_2)$ 为下板在温度为 T_2 时的冰面和水面饱和水汽压。文中使用 Goff-Gratch 公式 (董双林和崔宏光, 1992) 计算温度 T 所对应的冰面饱和水汽压和水面饱和水汽压。因此, 在已知活化温度和所需要的过饱和度就可以计算对应上板冰面饱和水汽压, 进而根据事先计算好的冰面饱和水汽压与温度之间的关系表, 得到所需设定上板冰面的温度。同样, 在上板和下板温度已知情况下, 可以计算得到云室水汽相对于冰面过饱和度 S_i 和水面过饱和度 S_w 。由于静力扩散云室温度场和湿度场的建立必须有一过程, 同时气溶胶在活化过程中会相互影响, 冰核处于水汽场变化过程中, 因此得到的结果是在云室能达到最大水汽湿度值时, 能够迅速核化的冰核浓度。因此, 采用静力扩散云室检测自然冰核的量值是偏低的, 并影响冰核湿度谱特征的分析。

静力扩散云室可对冰核活化的温湿度进行控制, 因此可实现初步定性研究水汽条件对冰核浓度

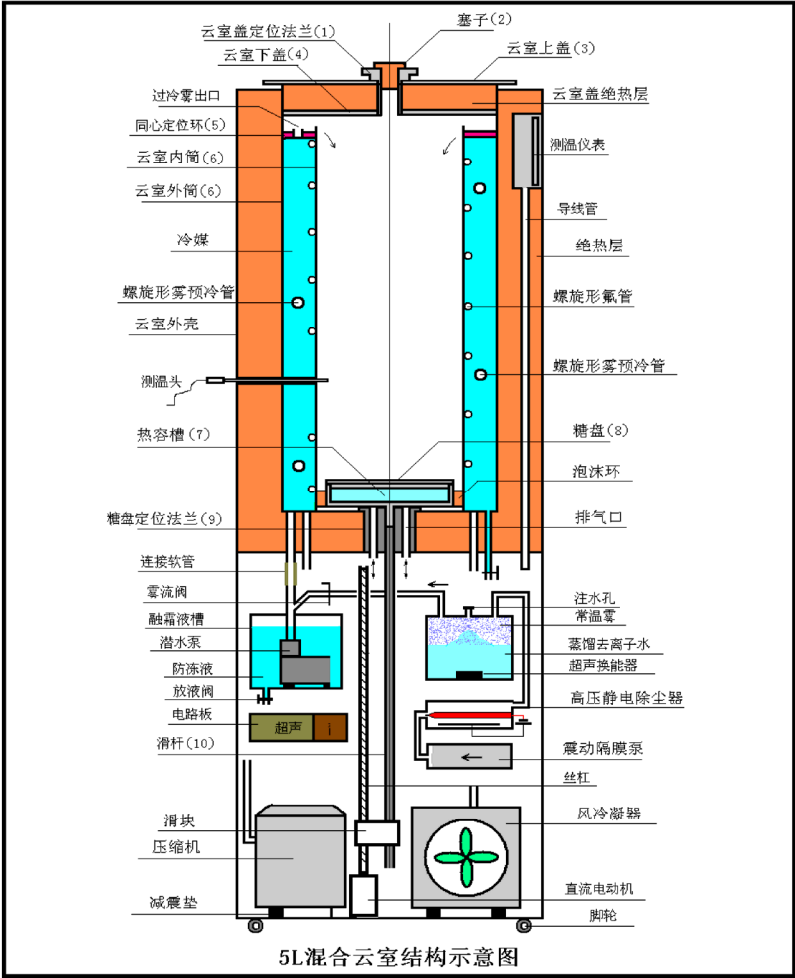


图 1 5 L 混合型云室结构图
Fig. 1 The configuration of 5 L mixing cloud chamber

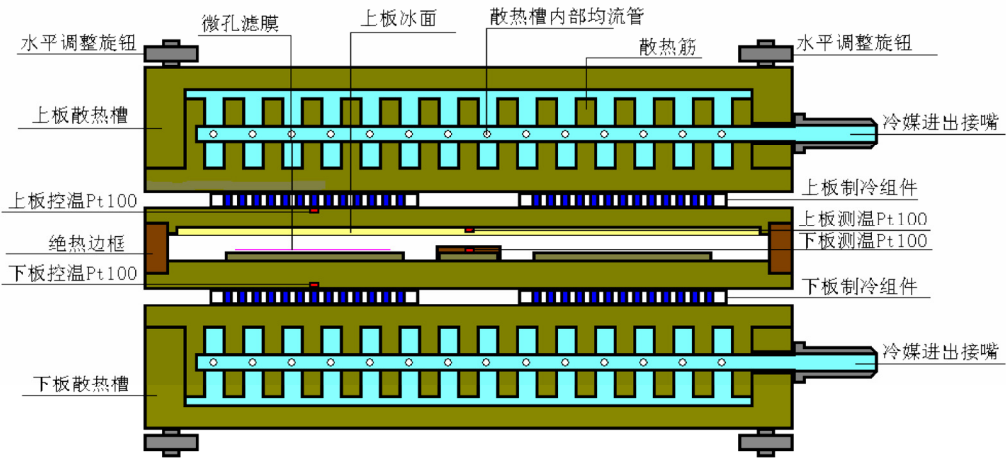


图 2 静力扩散云室结构图
Fig. 2 The configuration of the static diffusion chamber

的影响。为了获取高稳定度的控制效果，云室上下板都选用欧陆 818P4 温度控制仪，在 PID 调节方式下，加之铜板足够厚，有较大热容量，特别是与可初控温度的 200 L 冷媒箱相连，从而获得了理想的

温度控制效果。同时特制了分辨率为 0.01℃ 的温度测量仪，一是为了更好地测量显现云室温度的波动值；二是可以通过公式计算出考虑波动值后的湿度；三是使云室模拟的湿度尽量接近设定的过饱和

度。该仪表在使用前用标准电阻箱（100Ω 挡）作为输入做了稳定性实验，时间长达 24 h，未发现温度漂移。

在 30 min 显现时段内，上下板温度有 0.01~0.05℃ 的波动，云室温度波动会造成湿度波动。图 3 和表 1 给出实验中主要的两个活化条件下，根据每组实验过程中上下板的最低温度和最高温度计算出的云室过饱和度的频率分布以及统计量。在各个活化条件下，计算的水汽条件集中分布在所设定的湿度值， S_w 和 S_i 上下波动小于 1.5%。因此，尽管计算得到的 S_w 和 S_i 不是云室内实际的过饱和度，但是在无法测量静力扩散云室内部的过饱和度情况下，通过对比计算得到的过饱和度也可以定性的衡量云室内水汽含量的多少。

表 1 静力扩散云室过饱和度统计量
Table 1 The statistics of supersaturation in the static diffusion chamber

活化水汽条件	统计量					
	平均值	最大值	最小值	中值	上四分位数	下四分位数
$T_a=-20^{\circ}\text{C}$ $S_w=5\%$	5.00%	5.95%	4.13%	5.10%	4.71%	5.31%
$T_a=-20^{\circ}\text{C}$ $S_i=5\%$	5.26%	6.03%	4.42%	5.21%	5.11%	5.21%

在冰核显现实验过程中进行了本底冰核浓度观测，本底实验包括对实验室室内采样滤膜和空白滤膜进行活化实验。活化温度为 -10℃ 和 -15℃ 时，本底实验并未有冰晶出现。当活化温度 (T_a) 为 -20℃，本底冰核浓度平均值分别为 0.067 个/L ($S_w=5\%$) 和 0.017 个/L ($S_i=5\%$)，该浓度远小于野外观测冰核浓度。如果考虑本底浓度订正，此时只能取平均值进行订正。但由于各采样滤膜的背景浓度有所差异，仅仅用平均值订正冰核浓度，并不

能消除实际的背景误差。同时考虑活化处理时的背景计数应是在滤膜不经取样的条件下进行的，与实际滤膜有一定的差异。故在本实验中得到的冰核浓度不作本底订正处理。

到目前为止，国内外仍未有一个用于测量冰核的标准，不同学者根据所需观测的冰相核化机制设计了不同的冰核仪器。本文使用 5 L 混合型云室以及静力扩散云室虽然仍使用原始的计数方法，但是相对以往云室，经过改进后的云室进一步保证气溶胶在相同条件下进行冰相核化，因此提高了冰核数据的可比性。

2.1.3 冰核实验设计

由于本次观测使用的云室并非完全自动化，在满足研究需要的基础上，设计了合理的实验方案。5 L 混合型云室冰核实验每日观测 4 次，从 02:00（除特别说明外，本文时间都是指北京时间）开始，6 h 一次，通过剔除异常值数据，本文最终得到 -10℃、-15℃、-20℃ 以及 -25℃ 共 4 个温度点的 91 组数据，研究总冰核浓度特征。静力扩散云室采样每日 8 次，采样器可同时采样滤膜 4 张，每日 02:00 开始，每隔 3 h 采样一次，每次总采样空气体积 240 L，平均每张滤膜通过环境空气体积 60 L。采样后的滤膜置于静力扩散云室中进行冰核显现实验，共做冰核显现实验 752 组。滤膜为直径 47 mm、标称孔径 0.45 μm 的微孔滤膜。在云室冰核显现实验中，设置了不同温度和湿度来研究冰核浓度特征。由于静力扩散云室模拟不同湿度下冰核浓度特征，本次试验只是定性对比分析不同湿度条件下冰核浓度特征，对每日采样膜进行活化温度 $T_a=-20^{\circ}\text{C}$ 的冰核显现实验，分别设置低水汽条件 SL（计算静力扩散云室中的 S_i 为 5%）以及高水汽

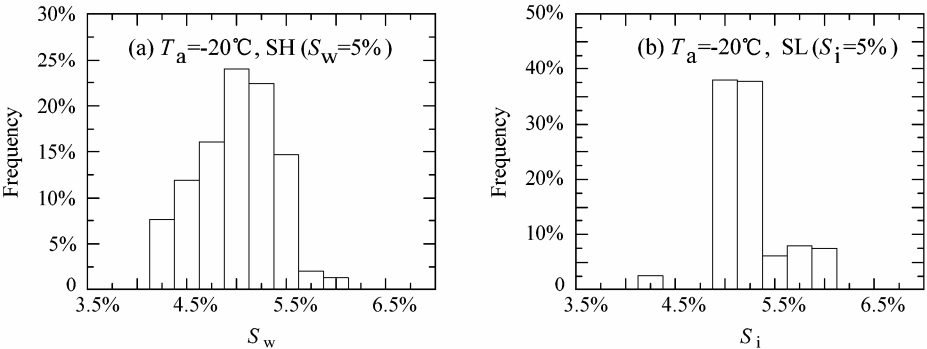


图 3 静力扩散云室过饱和度频率分布图 (T_a 为气溶胶活化温度)
Fig. 3 The frequency of supersaturation in the static diffusion chamber (T_a is the activate temperature, S_w and S_i are the supersaturation with respect to water and ice, respectively)

条件 SH(计算静力扩散云室中的 S_w 为 5%), 共 510 组实验数据以便研究 $T_a = -20^\circ\text{C}$ 时两个水汽条件下冰核浓度的日际变化特征; 另外, 在 SL 以及 SH 下, 分别设置其他不同活化温度, 每个活化条件下进行 20 组实验, 以便研究活化温度对冰核的影响。在显现实验中 $T_a = -20^\circ\text{C}$, 选择该温度可以了解近地面气溶胶在混合云温度下充当冰核的个数。Fukuta (1993) 根据水滴动力扩散增长理论证明了云滴的缓慢扩散增长会导致 S_w 高达 10%, 云顶附近的上升气流也会造成高的过饱和度。Jensen et al. (2001) 观测到热带对流层顶 S_i 能达到 10%~70%。同时 Rosinski (1995) 研究证明当 $S_w = 0\%$ 时, 凝结冻结核和凝华核的浓度仍然很低。章澄昌 (1987) 通过实验发现静力扩散云室在计算的水面过饱和度和 $S_w \geq 2\%$ 时, 实际水汽含量方可达到水面饱和。本文设置 SH 和 SL 也是为了更好地研究湿度对冰核的影响。在高水汽条件 SH (计算静力扩散云室中 $S_w = 5\% > 2\%$) 下, 云室中凝华核化、凝结冻结核化以及接触冻结核化同时发生, 在低水汽条件 SL (计算静力扩散云室中 $S_i = 5\% < S_w = 2\%$) 下, 云室中只存在凝华核化和接触冻结核化过程, 这样可以定性研究水汽条件对冰核浓度的影响。

2.2 其他资料介绍

本次观测在 2011 年 7 月 25~31 日期间使用美国热电公司生产的 FH-62-C14 型连续测尘仪测量大气中直径小于或等于 $1\ \mu\text{m}$ 颗粒物 PM_{10} 的质量浓度, 旨在研究 PM_{10} 与冰核的关系。该仪器系列利用 β 射线的衰减来连续测量悬浮尘粒和细粒子的质量浓度 (例如 TSP、 PM_{10} 、 $\text{PM}_{2.5}$ 、 PM_1)。FH-62-C14 型连续测尘仪采样密度 30 min, 测量范围 0~5000 $\mu\text{g}/\text{m}^3$, 最低探测值 6 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (1/2 h 平均值), 精度 2 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (24 h), 观测期间 PM_{10} 样本数共 271 个。

本文使用美国国家海洋和大气管理局的空气资源实验室和澳大利亚气象局联合研发的 HYSPLIT (HYbrid Single Particle Lagrangian Integrated Trajectory Model) 模型 (Draxler and Hess, 1998) 进行气团来源分析。模式资料的水平分辨率为 191 km, 垂直方向从 1000 hPa~50 hPa 分为 12 个等压面层, 时间间隔 6 h。模式模拟了 2011 年 7 月 24 日至 2011 年 8 月 17 日期间观测点 (32.21°N , 118.71°E) 气团来源, 共获得 96 条 36 h 后向轨迹, 轨迹起始点高度设置为 500 m, 计算后向轨迹的开始时间为一天记录时段的中间时刻 (北京时间 02:00), 采用

聚类分析的方法对所有 36 h 后向轨迹进行分类, 根据模式输出结果以及实际研究意义将轨迹分为 3 类。考虑到边界层的混合和扩散, 轨迹起始点高度选择 500 米。同时使用 HYSPLIT 模式对个别天气进行气团轨迹模拟。

FIRMS (Fire Information for Resource Management System) 的 Web Fire Mapper 网站 ([http://firefly.geog.umd.edu/firemap/\[2012-2-16\]](http://firefly.geog.umd.edu/firemap/[2012-2-16])) 提供火点产品的火点位置文件以及全球火点图。火点的卫星遥感监测传感器是 Terra 和 Aqua 卫星的 MODIS (Moderate Resolution Imaging Spectroradiometer), MODIS 是 NASA 的 EOS 系列卫星的主要探测仪器, 探测器每天覆盖全球 1 次, 具有 36 个光谱通道, 分布在 $0.4\sim 14\ \mu\text{m}$ 光谱范围。MODIS 火产品的算法原理是通过计算和对比中心点像元与周围像元温度的统计特征, 并设置判据和阈值来探测热异常 (何立明等, 2007)。Louis et al. (2003) 提出新的火点探测算法, 误差减小为原来的十分之一到一百分之一。

3 南京地区冰核浓度特征

3.1 冰核浓度的月变化及与其他类似观测对比

大气气溶胶通常受季节变化的影响, 其浓度以及物理化学特性都有所不同。国内学者研究证明我国春季北方沙尘会导致冰核浓度增加 (汪学林等, 1965), 而夏季雨水对冰核有明显的清除作用 (牛生杰等, 2000)。表 2 给出 5~8 月冰核浓度统计量, 南京地区 5 月冰核浓度高于其他 3 个月份, 这是因为 6~8 月为雨季, 降水对气溶胶的清除作用明显, 进而导致 6~8 月总冰核浓度低于 5 月份。 $T_a = -20^\circ\text{C}$, 5 L 混合型云室观测的所有成核机制冰核浓度平均值为 20.112 个/L, 静力扩散云室处理采样滤膜得到的 SL 和 SH 条件下冰核浓度平均值为 0.291 个/L 和 0.928 个/L。随着水汽条件增加, 冰核浓度明显增加, 更多的气溶胶冰相核化成为冰晶, 因此水汽条件是决定冰核浓度的主要因素。同时对比两云室观测冰核浓度差异发现, 静力扩散云室观测得到的冰核占混合云室观测的总冰核浓度的比例并不高, 导致两种云室观测结果差异较大的原因有: 第一, 5 L 混合型云室主要是对所有成核机制冰核进行观测, 并且气溶胶在充足水汽条件下冰相核化, 而静力扩散云室可以控制云室内水汽条件, 观测气溶胶的冰相成核机制仅仅是凝结冻结核化、凝

华核化以及接触冻结核化；第二，气溶胶在两种云室中活化条件是不同的，5 L 混合型云室中气溶胶是在更接近实际云条件下活化增长，静力扩散云室监测的是吸附在滤膜上的气溶胶，它同气溶胶显然有所差异；第三，两种冰核云室的误差和精度的不同也会导致最终冰核浓度的差异很大。

表 2 不同月份冰核浓度逐日统计量对比(单位: 个/L)(SL 为低水汽条件, SH 为高水汽条件)

Table 2 Comparison of statistics of daily atmospheric ice nuclei (IN) concentrations in different months (units: L⁻¹) (SL means low moisture condition, SH means high moisture condition)

统计量	$T_a=-20^{\circ}\text{C}$ 所有成核机制冰核浓度			$T_a=-20^{\circ}\text{C}$ SL 冰核浓度			$T_a=-20^{\circ}\text{C}$ SH 冰核浓度		
	平均值	最大值	最小值	平均	最大	最小	平均	最大	最小
	值	值	值	值	值	值	值	值	值
5 月	34.282	43.522	25.493	0.351	0.711	0.067	1.052	1.544	0.500
6 月	27.698	39.844	16.287	0.235	0.400	0.067	1.062	1.492	0.667
7 月	8.663	15.043	3.516	0.339	0.497	0.245	0.833	1.196	0.663
8 月	9.806	17.964	5.211	0.225	0.617	0.051	0.764	1.233	0.303
总平均值	20.112	—	—	0.291	—	—	0.928	—	—

表 3 对比了国内不同地区不同年代使用混合云室得到的活化温度 $T_a=-20^{\circ}\text{C}$ 时所有成核机制冰核浓度, 南京地区冰核高于北京和吉林 20 世纪 60 年代的观测结果, 但是低于 20 世纪 90 年代春季北京地区冰核浓度, 这是因为随着城市发展, 北京地区各个活化温度下冰核浓度在 20 世纪 60 年代到 90 年代近 30 年间平均增加了约 15 倍, 北京地区冰核受春季沙尘影响进而浓度较高(游来光等, 2002)。另外, 南京地区冰核浓度低于青海省河南县观测结果, 河南县为西北高海拔地区(海拔高度为 3415 m), 基本没有工业排放污染, 空气相对较洁净, 南京地区冰核浓度低于西北清洁地区也意味着我国华东地区冰核浓度较低。

表 3 混合云室 (-20°C) 冰核浓度观测结果比较
Table 3 Comparison of concentration of IN in mixing cloud chamber ($T_a=-20^{\circ}\text{C}$)

观测地点	观测时间	云室体 积 (L)	冰核平均 浓度 (个/L)	参考文献
吉林白城	1964 年 4~5 月	2	5.8	(汪学林等, 1965)
北京	1963 年 3~4 月	3.34	4.8	(游来光和石安英, 1964)
北京	1995 年 3~4 月	3.34	78.9	(游来光等, 2002)
青海河南县	2001 年 8 月	3.05	31.3	(李淑日等, 2003)
青海河南县	2003 年 10 月	3.05	47.4	(石爱丽等, 2006)
南京	2011 年 5~8 月	5.0	20.1	本文

3.2 冰核浓度日际变化

大气冰核受到环境条件的影响, 除了温湿条件外, 降水以及台风天气对冰核浓度都会有影响。图 4 为 4 个活化温度 (-10°C 、 -15°C 、 -20°C 以及 -25°C) 下总冰核浓度的逐日变化, 4 个活化温度下的冰核具有一致的逐日浓度变化特征, 这与游来光等(2002)使用同类云室在北京观测结论一致, 不同温度冰核浓度变化与原气溶胶的生成机制有关。

图 5 (a-i) 给出冰核、气象要素以及 PM_{10} 质量浓度的日际变化情况。观测期间出现多次雷阵雨天气, 往往在大雨之后又会伴随绵绵细雨, 本文只研究总降水量大于 10 mm 的降水对冰核的影响, 图 5 (f) 中共 4 次降水量大于 10 mm 的降水过程, 分别为 7 月 26 日, 8 月 2 日, 8 月 10 日和 8 月 11 日。结合图 5 (a-c) 分别对比 4 次降水开始前 24 h 和降水停止后 24 h 冰核平均浓度变化, 4 次降水过程后冰核浓度均明显减少。统计 4 次降水停止后 24 h 内 $T_a=-20^{\circ}\text{C}$ 所有成核机制冰核浓度平均值为 5.496 个/L, 对比表 2 中 7、8 月份冰核平均浓度, 发现降水对冰核的清除作用明显。8 月 6 日南京地区受“莲花”台风过程影响, 图 5 (g) 表征台风过程中南京近地面风速较大, 当日近地面平均风速为 2.829 m/s, 总冰核浓度在 6 日出现峰值, $T_a=-20^{\circ}\text{C}$ 总冰核浓度为 17.964 个/L, 这也证明台风过程会导致冰核浓度的增加。

3.3 冰核浓度逐时变化

大气冰核是气溶胶中的一部分, 大气冰核浓度的日变化特征值得研究。观测期间多次出现雷阵雨

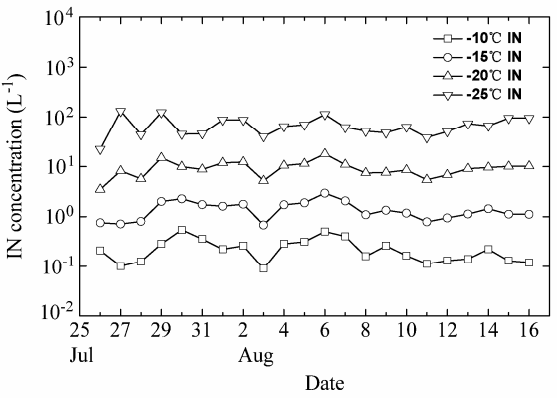


图 4 7 月 26 日至 8 月 16 日期间不同活化温度大气冰核浓度的逐日变化特征

Fig. 4 Interdiurnal variation of the concentrations of IN at different activate temperatures from 26 July to 16 August

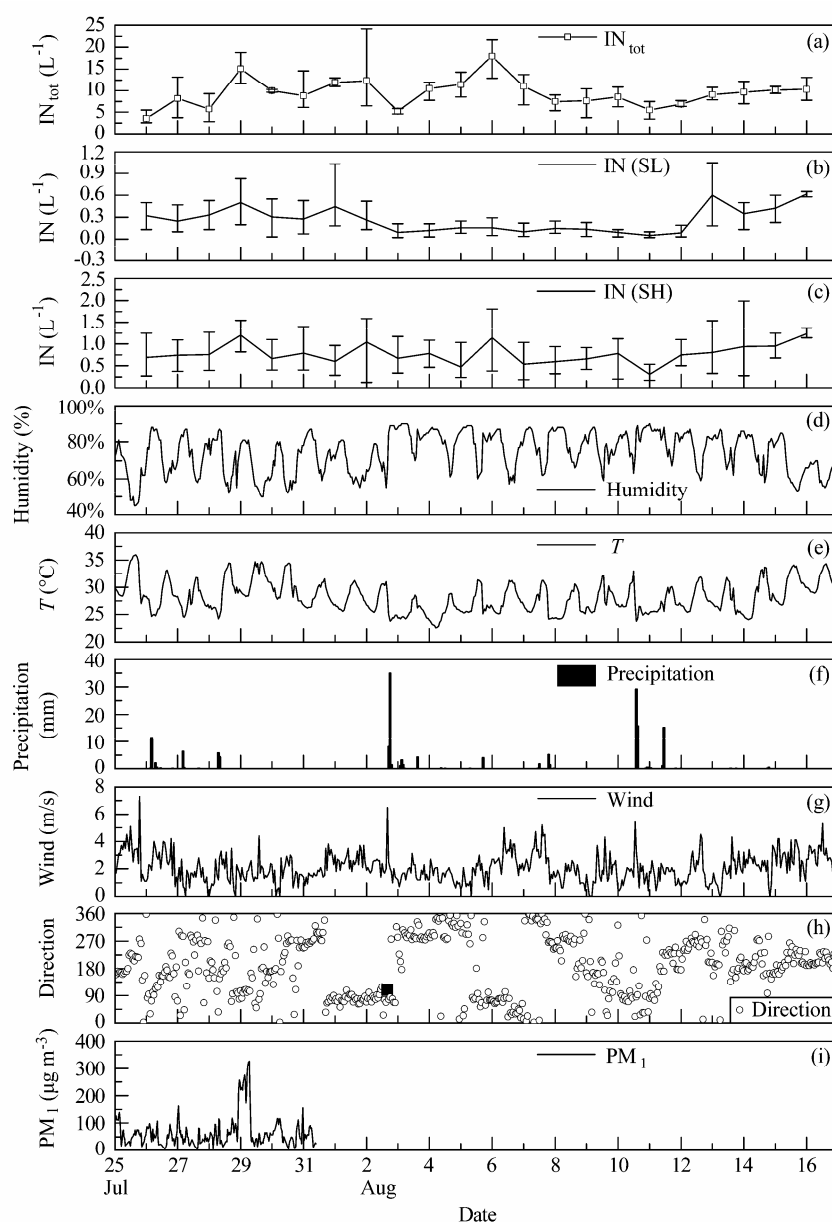


图5 冰核浓度、气象要素以及 PM_{10} (直径小于或等于 $1\text{ }\mu\text{m}$ 颗粒物)的质量浓度的日际变化: (a) $T_a=-20^{\circ}\text{C}$ 总冰核; (b) $T_a=-20^{\circ}\text{C}$ 低水汽条件冰核; (c) $T_a=-20^{\circ}\text{C}$ 高水汽条件冰核; (d) 湿度; (e) 温度; (f) 降水; (g) 风速; (h) 风向; (i) PM_{10} 质量浓度

Fig. 5 The interdiurnal variation of ice nuclei concentrations, atmospheric parameters, and PM_{10} (Particulate Matter with diameter less than or equal to $1\text{ }\mu\text{m}$) mass concentration: (a) $T_a=-20^{\circ}\text{C}$ total IN; (b) IN with $T_a=-20^{\circ}\text{C}$ and low water vapor; (c) IN with $T_a=-20^{\circ}\text{C}$ and high water vapor; (d) humidity; (e) temperature; (f) precipitation; (g) wind speed; (h) wind direction; (i) PM_{10} mass concentration

天气, 降水清除大气中可以充当冰核的气溶胶, 造成冰核浓度日变化特征不明显, 因此要想知道冰核浓度日变化特征就要避免降水的影响, 研究晴好天气总冰核浓度日变化特征更有意义。晴好天气共有冰核浓度-温度谱数据 60 组, 晴好天气对应各气象要素范围如下, 温度范围: $23.80\sim 28.15^{\circ}\text{C}$, 相对湿度范围: $47.2\%\sim 88.5\%$, 风速范围: $0.426\sim 4.170\text{ m/s}$ 。

结合图 6 (a) 和表 4 发现, 晴好天气白天冰核

浓度高于夜间, 在下午时段冰核浓度达到全天最高值。这是因为: 一方面白天湍流混合作用强, 将地面土壤里的颗粒物混合到大气导致白天冰核浓度较高; 另一方面人类活动、建筑尘埃、汽车尾气 (Schaefer, 1968) 以及工业污染 (Telford, 1960) 造成白天地面冰核浓度增加。对于异质成核过程, 质粒越小, 活化温度越低, 图 6 (a) 可见, -25°C 冰核日变化特征最为明显, 而该温度下冰核质粒对应大气中气溶胶尺度最小, 其明显的日变化特征与

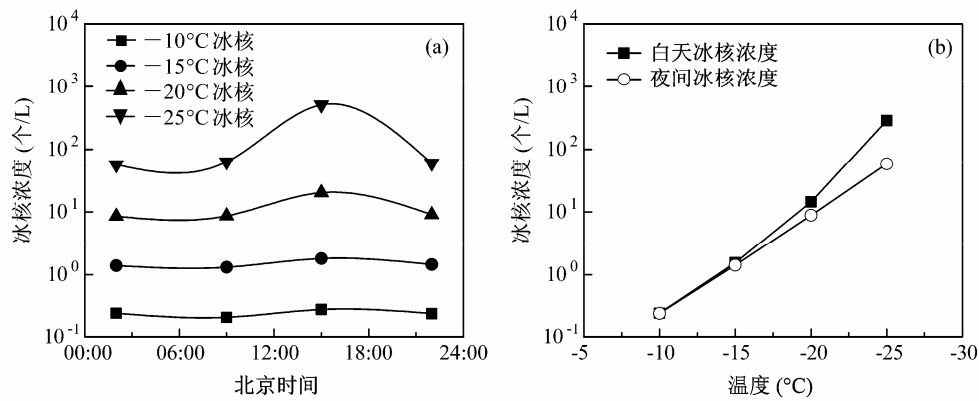


图6 (a) 晴好天气下冰核浓度日变化特征; (b) 晴好天气白天和夜间冰核浓度—温度谱曲线对比
Fig. 6 (a) Daily variation of the average concentration of ice nuclei under favorite conditions; (b) the comparison of ice nuclei concentrations in the daytime and at night under favorite conditions

大气中颗粒物的生成、清除过程密切相关。另外，图 6 (b) 显示白天和夜间冰核和活化温度的关系存在差异。

表 4 晴好天气下不同时段不同温度冰核浓度对比 (个/L)
Table 4 The comparison of IN concentration (L⁻¹) at different temperatures during different periods under favorite conditions

	—10°C 冰 核浓度	—15°C 冰 核浓度	—20°C 冰 核浓度	—25°C 冰 核浓度
上午 (08:00~11:00)	0.22	1.31	8.66	63.21
下午 (14:00~17:00)	0.28	1.80	20.29	514.49
夜间 (20:00~23:00)	0.24	1.44	9.08	60.11
深夜 (02:00~05:00)	0.25	1.38	8.59	56.84

3.4 大气冰核与活化温度的关系

大气冰核浓度随温度的降低呈指数增加 (Pruppacher and Klett, 1997):

$$N = N_0 e^{bT_a}, \tag{3}$$

(3) 式称为冰核数浓度的过冷却谱 (或冰核浓度—温度谱)。式中, T_a 表示冰核活化时的温度 (°C), N 代表单位体积内核化冰核数 (个/L), N_0 和 b 为参数, 其中 N_0 代表当温度为 0°C 时对应的冰核数, $-b$ 为在对数坐标系下冰核随温度降低增加的斜率。不同学者通过野外观测以及室内试验的方法得到了不同条件下冰核浓度过冷却谱经验公式, 这些经验公式也被许多模式所使用, 例如完全弹性三维冷云数值模式 (孔凡铀等, 1990), 二维面对称非静力分档气溶胶—云模式 (Yin et al., 2000), 以及中尺度模式 WRF (Weather Research and Forecast Model) 中 Morrison 云微物理参数化方案 (Morrison et al., 2005)。由于很少有关不同成核机制冰核浓度

—温度谱综合分析, 观测期间分别对所有成核机制下冰核以及在不同水汽条件下活化的冰核进行了观测, 进而对比分析不同成核机制冰核浓度特征。

图 7 (a-c) 给出了南京地区冰核浓度与温度之间关系, 并且与前人结果进行对比。表 5 中总结了国内外不同学者得到的冰核浓度—温度谱经验公式。图 7 (a) 中结果为全部颗粒物中所有成核机制下的冰核浓度以及温度谱经验公式, 图 7 (b) 为水汽条件分别为 SH 和 SL 情况下冰核浓度观测统计量, 而前人大多观测一定尺度段气溶胶中一种机制或者几种成核机制下冰核浓度 (Fletcher, 1962; Cooper, 1980; Meyers et al., 1992; DeMott et al., 2003; Ardon-Dryer et al., 2011)。在 -13.92°C 时, 南京地区总冰核浓度约为 1 个/L, 对于不同湿度 SH 和 SL 情况下冰核活化谱为 1 个/L 所对应的活化温度分别为 -20.78°C 以及 -23.03°C。图 7 (b) 中每个活化温度, 高过饱和度条件下冰核浓度都高于低过饱和度条件, 这也说明水汽条件影响着气溶胶的冰相核化能力。由于本文主要研究活化温度为 -20°C 时冰核浓度, -20°C 时冰核实验样本量远远超过其他条件下样本量, 因此图 7 (b) -20°C 时冰核浓度范围最大。

图 7 (c) 以及表 5 给出不同成核机制冰核浓度—温度谱, 并且对比了国内外冰核浓度—温度谱研究结果。对比国内同类混合云室观测结果, 南京地区不同活化温度下冰核浓度均小于北京和青海地区, 这和前文分析结果一致。另外本文混合云室观测的冰核浓度高于 Cooper, Meyers 以及 Ardon-Dryer 的结果, 这可能是因为混合云室模拟的是 4 种核化机制, 而其他学者仅是研究部分核化机制。

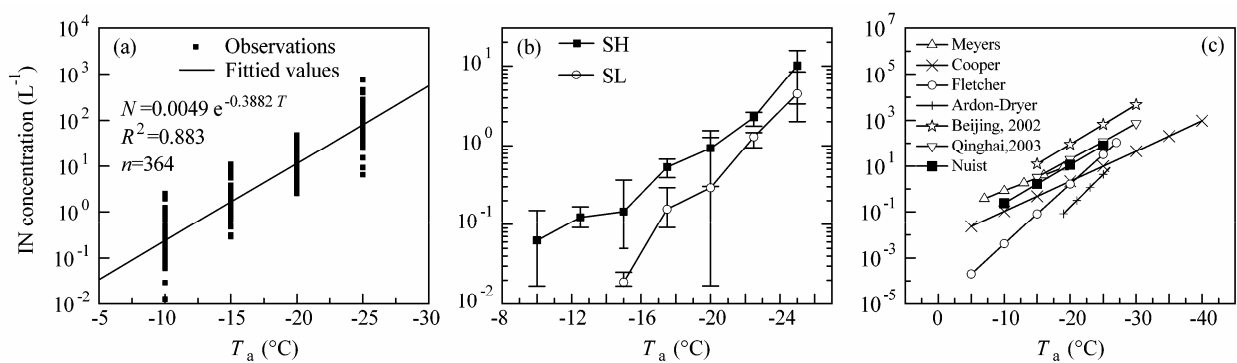


图 7 活化温度与冰核的关系：(a) 活化温度对总冰核浓度的影响， n 为样本数， R^2 为拟合公式的相关系数平方；(b) 不同水汽条件下活化温度对冰核浓度的影响；(c) 本文结果与前人结果对比

Fig. 7 The relationship of activate temperature and IN concentrations: (a) The effect of T_a on total ice nuclei, n is the number of sample, R^2 is the square of correlation coefficient of the fitting formula; (b) the effect of T_a on IN under different water vapor conditions; (c) the comparison with other previous results

表 5 冰核浓度—温度谱参数公式对比 (T_a 为温度)

Table 5 The comparison of different parameterization equations of ice nuclei

方案名称	公式	活化温度范围	成核机制	文献
Fletcher	$N = 10^{-5} \times \exp(-0.6 \times T_a)$	$-27^{\circ}\text{C} \sim 0^{\circ}\text{C}$	凝华、凝结冻结	(Fletcher, 1962)
Cooper	$N = 0.005 \times \exp(-0.304 \times T_a)$	$-40^{\circ}\text{C} \sim 0^{\circ}\text{C}$	凝华、凝结冻结	(Cooper, 1980)
Meyers	$N = 0.06 \times \exp(-0.262 \times T_a)$	$T < -2^{\circ}\text{C}$	接触冻结	(Meyers et al., 1992)
Ardon-Dryer	$N = 3 \times 10^{-7} \times \exp(-0.66 \times T_a)$	$-26^{\circ}\text{C} \sim -19^{\circ}\text{C}$	浸润冻结	(Ardon-Dryer et al., 2011)
Beijing, 1964	$N = 2.54 \times 10^{-3} \times \exp(-0.389 \times T_a)$	$-30^{\circ}\text{C} \sim -15^{\circ}\text{C}$	凝华、凝结冻结、接触冻结、浸润冻结	(游来光和石安英, 1964)
Beijing, 2002	$N = 0.034 \times \exp(-0.395 \times T_a)$	$-30^{\circ}\text{C} \sim -15^{\circ}\text{C}$	凝华、凝结冻结、接触冻结、浸润冻结	(游来光等, 2002)
Qinghai, 2003	$N = 0.015 \times \exp(-0.36 \times T_a)$	$-30^{\circ}\text{C} \sim -15^{\circ}\text{C}$	凝华、凝结冻结、接触冻结、浸润冻结	(李淑日等, 2003)
Nuist	$N = 0.0049 \times \exp(-0.388 \times T_a)$	$-25^{\circ}\text{C} \sim -10^{\circ}\text{C}$	凝华、凝结冻结、接触冻结、浸润冻结	本文
	$N = 0.0014 \times \exp(-0.316 \times T_a)$	$-25^{\circ}\text{C} \sim -10^{\circ}\text{C}$	凝华、凝结冻结、接触冻结	
	$N = 3 \times 10^{-6} \times \exp(-0.522 \times T_a)$	$-25^{\circ}\text{C} \sim -10^{\circ}\text{C}$	凝华、接触冻结	

但在 T_a 高于 -20°C 时，混合云室冰核浓度低于 Fletcher 观测的凝华以及凝结冻结核浓度，这可能是因为冰核仪器的原理以及观测地点冰核浓度差异造成的。总之，观测仪器的原理、观测冰核的成核机制以及观测地点和时间的不同都会造成冰核浓度的差异。

3.5 气团轨迹与冰核浓度的关系

为了解不同气团来源对大气冰核的影响，使用 HYSPLIT 后向轨迹模式对观测期间气团来源进行模拟，同时使用聚类分析方法将气团轨迹进行分类。图 8 (a) 给出观测点 500 m 高空轨迹分型，气团分 3 类。根据气团来向可以概括为：第 1 类，西南气团，共 36 条轨迹；第 2 类，局地气团，共 50 条轨迹；第 3 类，东北海洋气团，共 10 条轨迹。

把每条轨迹到达观测点所对应时间之前 1.5 h 和之后 1.5 h 内冰核浓度进行平均，并与轨迹的类型对应分类，对每一类轨迹对应的冰核浓度分别做统计分析得到图 8 (b)，表 6 给出不同轨迹下冰核浓度统计量。对比表 6 和图 8 得知，在较高的活化

温度时，海洋性气团冰核浓度最大，西南气团冰核浓度最小。随着活化温度的降低，三种气团的冰核浓度差异减小。在较低的活化温度 ($T_a = -25^{\circ}\text{C}$) 时，西南气团中冰核浓度超过了局地气团。三种气团中高活化温度 ($T_a = -10^{\circ}\text{C}$ 和 -15°C) 时冰核浓度差异较大，而往往较大粒径的气溶胶更容易充当冰核 (DeMott et al., 2003; Stith et al., 2009)，因此 3 类气团中大粒径气溶胶浓度差异可能是导致高 T_a 冰核浓度差异较大的原因。三类气团在经过观测点附近时受到局地排放源的影响导致三种气团中细粒子浓度差异较小，因此低 T_a 的冰核浓度差异较小。海洋气团中冰核浓度最大，其原因可能是：第一，海洋气团在海洋上空传输时间超过 24 h，在海洋气团经过时观测点相对湿度较高 ($\text{RH}_w = 78.0\%$)，气团登陆后与大陆气溶胶混合，在较高湿度情况下更多的气溶胶活化增长进而导致海洋气团中大颗粒较多，进而增加了海洋气团中冰核浓度；第二，海洋气溶胶在登陆后和大陆有机气溶胶黏合，有机气溶胶在海洋气溶胶表面形成憎水性薄膜，进而增

强气溶胶冰相核化能力 (Tervahattu et al., 2002); 第三, 海洋气溶胶同样可以作为冰核, Burrows et al. (2012) 提出海洋飞沫卷起的浮游生物和有机气溶胶同样也可以充当冰核, 这些海洋生物气溶胶的冰相成核能力与温度、湿度以及成核机制有关。总之, 我国海域生物气溶胶的冰相核化能力以及气溶胶在传输过程中冰相成核能力的改变有待于进一步研究。

表 6 不同气团轨迹冰核浓度统计值对比 (单位: 个/L)
Table 6 The comparison of descriptive statistics of ice nuclei concentration in different air masses (units: L⁻¹)

活化温度	轨迹类型	冰核浓度统计量			
		平均浓度 (个/L)	中值浓度 (个/L)	众数浓度 (个/L)	标准偏差
-10°C	1	0.168	0.118	0.15	0.160
	2	0.240	0.191	0.15	0.139
	3	0.405	0.442	0.55	0.231
-15°C	1	1.033	0.941	0.75	0.543
	2	1.483	1.277	1.00	0.675
	3	2.259	2.378	2.25	1.080
-20°C	1	7.706	8.224	7.52	3.249
	2	9.646	8.647	8.75	4.116
	3	13.055	13.179	13.75	5.273
-25°C	1	69.380	59.373	62.5	49.705
	2	66.185	54.601	50.0	34.964
	3	78.682	76.553	68.75	31.084

注: 中值浓度为每个活化条件下冰核浓度按照升序或者降序排列, 处于中间位置所对应的浓度; 众数浓度为每个活化条件下冰核浓度出现次数最多所对应的浓度。

3.6 PM₁ 增加对冰核影响的个例分析

2011 年 7 月 25 日~7 月 31 日期间使用 FH-62-C14 型连续测尘仪观测 PM₁ 质量浓度 (μg/m³)。图 5 (i) 中 7 月 29 日上午 PM₁ 浓度明显高于其他日, 质量浓度达到 110 μg/m³, 而 7 月 25 日~7 月 28 日 PM₁ 质量浓度平均值为 61 μg/m³。图 9 (a) 和 (b) 分别给出 7 月 28 日 (UTC) 和 7 月 29 日 (UTC) 南京周边火点分布, 图 9 (c) 和 (d) 分别给出 7 月 28、29 日 06:00 观测点上空 3 个高度 (32 m, 500 m, 1000 m) 24 h 后向气团轨迹。表 7 对比 7 月 28 日和 29 日 5 L 混合型云室观测得到的冰核浓度。对比分析得知, 7 月 28 日 (UTC) 南京周边火点数较少, 7 月 28 日 06:00 观测点上空 3 个高度气团都是来自于南京西南方向, 南京地区观测 PM₁ 质量浓度较低, 当日 T_a=-20°C 所有成核机制冰核平均浓度为 5.718 个/L; 7 月 29 日 (UTC) 南京地区东南方向扬州及上海一带火点数明显多于 7 月 28 日 (UTC),

7 月 29 日 06:00 观测点上空 3 个高度轨迹都来自于东南方, 图 5 (h) 表明 29 日上午风向从正东转向正南, 东南气团将燃烧产物输送到南京地区, 导致 PM₁ 增加, 当日 T_a=-20°C 所有成核机制冰核平均浓度为 15.043 个/L。张秋晨等 (2012) 指出南京地区秸秆焚烧污染天气 PM_{1.1} 以及 PM_{1.1}/PM_{2.1} 高于其他天气条件下。因此, 7 月 29 日南京较高的 PM₁ 以及周边较多火点表明该日较高的 PM₁ 是由于生物燃烧产生的, 较高的 PM₁ 对应较多的冰核也说明 PM₁ 对冰核浓度有一定的贡献。表 7 中两日 5L 混合型云室观测的冰核浓度比值表明, 各个活化温度下 29 日冰核浓度大于 28 日冰核浓度 2 倍, PM₁ 增加对低温冰核的影响更大。不同学者通过数值模拟和野外观测的方法证明生物燃烧生成气溶胶中含有较大比例的不可溶成分有利于提高这类气溶胶的冰相核化能力 (Diehl et al., 2006; Prenni et al., 2009)。Lin et al. (2006) 指出生物燃烧产物会抑制暖云过程, 同时作为冰核又促进冰相核化, 因此这类气溶胶对冷云的形成更为重要。

表 7 2011-07-28 与 2011-07-29 的 5 L 混合型云室观测冰核浓度对比
Table 7 The comparison of ice nuclei concentrations in 5-L mixing cloud chamber on 28 Jul 2011 and 29 Jul 2011

活化条件	7 月 28 日冰核浓度平均值 (个/L)	7 月 29 日冰核浓度平均值 (个/L)	29 日与 28 日冰核浓度比值
	浓度平均值 (个/L)	浓度平均值 (个/L)	
-10°C	0.125	0.284	2.268
-15°C	0.802	2.005	2.498
-20°C	5.718	15.043	2.631
-25°C	44.086	123.864	2.81

4 结论

本文使用 5 L 混合型云室以及静力扩散云室同步观测大气中冰核浓度, 同时结合气象要素、气团轨迹以及 PM₁ 质量浓度综合分析冰核浓度特征, 得到以下结论:

(1) 南京地区活化温度为 -20°C 时, 5 L 混合型云室观测的所有成核机制冰核浓度达到 20.112 个/L, 滤膜法采样后经过静力扩散云室得到的高水汽 (计算的云室内水面过饱和度为 5%) 和低水汽 (计算的云室内冰面过饱和度为 5%) 条件下冰核浓度分别为 0.928 个/L 和 0.291 个/L, 由于云室观测冰相核化机制、核化条件以及仪器差异等因素导致两种云室观测冰核浓度相差较大。南京地区冰核

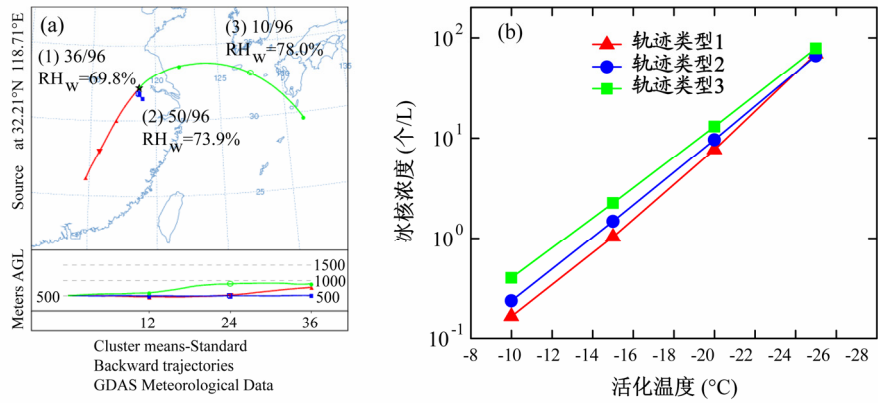


图 8 气团轨迹冰核浓度关系：(a) 气体轨迹分型；(b) 不同轨迹冰核浓度

Fig. 8 The relationship of ice nuclei and air mass cluster: (a) The air mass cluster types; (b) the comparison of ice nuclei concentrations from different air mass clusters

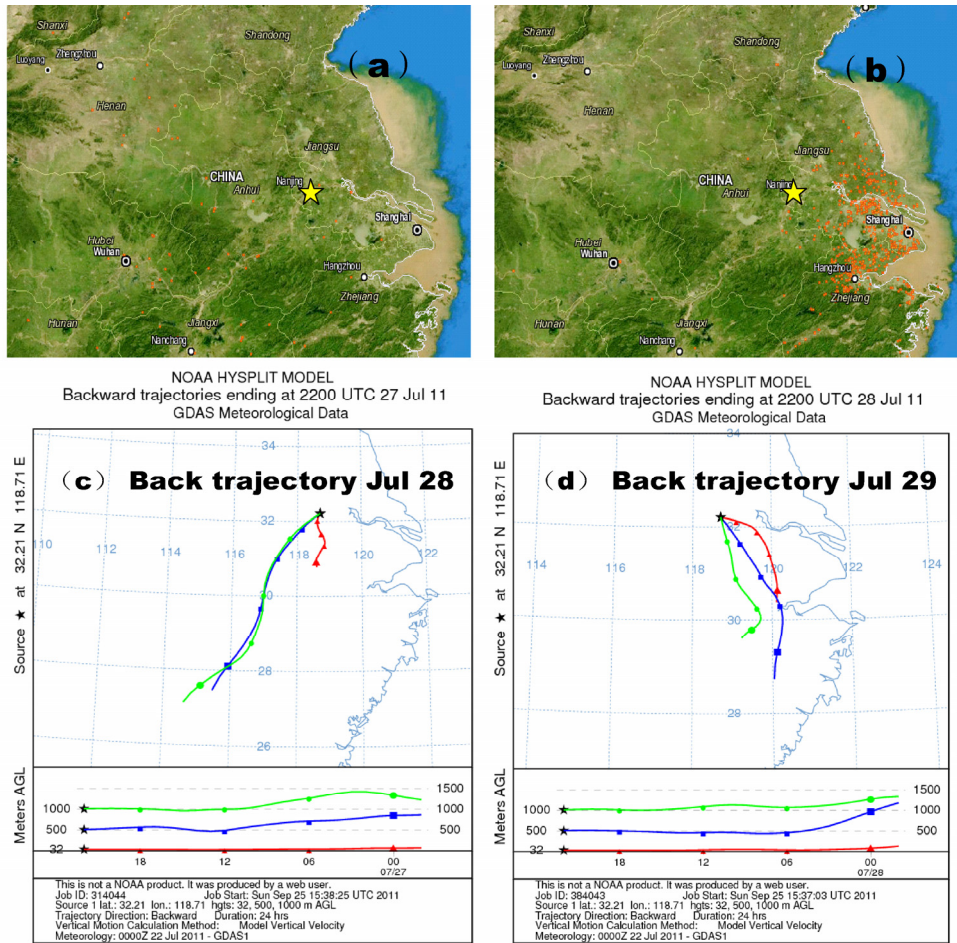


图 9 2011 年 7 月 28 日 (UTC) (a) 以及 7 月 29 日 (UTC) (b) 火情检测图 ([http://firefly.geog.umd.edu/firemap\[2012-2-16\]](http://firefly.geog.umd.edu/firemap[2012-2-16])); 2011 年 7 月 28 日 (c)、29 日 (d) 06 时南京地区 32 m, 500 m, 1000 m 24 小时后向轨迹图
Fig. 9 The fire data near Nanjing on July (a) 28 (UTC) and (b) 29 (UTC) in 2011 ([http://firefly.geog.umd.edu/firemap\[2012-2-16\]](http://firefly.geog.umd.edu/firemap[2012-2-16])); The air mass 24-h back trajectories at 32 m, 500 m, and 1000 m in Nanjing at 0600 on July (c) 28 and (d) 29

浓度低于北京和青海地区，说明我国南方冰核浓度较低。

(2) 南京地区 -10°C 、 -15°C 、 -20°C 以及 -25°C 共 4 个活化温度下冰核具有一致的逐日浓

度变化特征。晴好条件下冰核浓度具有明显的日变化特征，下午时段冰核浓度达到全天最高值，这可能与湍流强度、人类活动和工业污染有关。活化温度为 -25°C 时，冰核日变化特征最为明显，其明显

的日变化特征与大气中细颗粒物的生成和清除过程有关。南京地区降水过程对冰核清除作用明显,而在台风过程中冰核浓度增加。

(3) 南京地区冰核浓度随着活化温度降低以及过饱和度的增加而增加,温度和湿度是决定气溶胶冰相核化能力的最主要的环境因素。

(4) 根据聚类分析的方法将观测期间南京地区气团轨迹分为海洋气团,西南气团以及局地气团。海洋性气团中冰核浓度高于局地气团和西南气团,三种气团冰核浓度差异随活化温度的降低而减小。

(5) PM_{10} 对南京地区冰核影响的个例分析表明燃烧产物与冰核之间存在着一定的关系, PM_{10} 增加对应低温冰核的增加更为明显,但是生物燃烧气溶胶的冰相核化能力有待于进一步研究。

相对于以往冰核观测研究,本文使用了不同云室观测不同活化条件下的冰核浓度,由于观测仪器的原理和设计上,特别是在水汽的控制和湿度的测量上还存在某种程度的不确定性,本文只能初步分析不同活化条件下冰核浓度特征,以后需要设计更为精准的冰核仪器以便能够更好地模拟冰核活化过程。

致谢 感谢南京信息工程大学观测场提供基本气象要素资料以及两名匿名审稿专家提出的建设性修改意见。

参考文献 (References)

- Ardon-Dryer K, Levin Z, Lawson R P. 2011. Characteristics of immersion freezing nuclei at the South Pole station in Antarctica [J]. *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, 11 (1): 91–120.
- Baker M B, Peter T. 2008. Small-scale cloud processes and climate [J]. *Nature*, 451 (7176): 299–300.
- Bigg E K. 1957. A new technique for counting ice-forming nuclei in aerosols [J]. *Tellus*, 9 (3): 394–400.
- Bigg E K, Mossop S C, Meade R T, et al. 1963. The measurement of ice nucleus concentrations by means of Millipore filters [J]. *J. Appl. Meteor.*, 2 (2): 266–269.
- Bigg E K, Hopwood S. 1963. Ice nuclei in the Antarctic [J]. *J. Atmos. Sci.*, 20 (3): 185–188.
- Burrows S, Hoose C, Pöschl U, et al. 2012. Ice nuclei in marine air: Bioparticles or dust? [J]. *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, 12 (2): 4373–4416.
- 陈宇, 银燕, 钱凌, 等. 2009. 南京北郊 2007 年 10~12 月大气气溶胶吸收和散射特性的观测 [J]. *气候与环境研究*, 14 (6): 613–620.
- Chen Yu, Yin Yan, Qian Ling, et al. 2009. Observation of the absorption and scattering coefficients of atmospheric aerosols in the north suburb of Nanjing from October to December 2007 [J]. *Climatic and Environmental Research (in Chinese)*, 14 (6): 613–620.
- Cooper W A. 1980. A method of detecting contact ice nuclei using filter samples [C]// Preprints, Eighth International Conference on Cloud Physics. Clermont-Ferrand, France, 665–668.
- DeMott P J, Rogers D C, Kreidenweis S M, et al. 1998. The role of heterogeneous freezing nucleation in upper tropospheric clouds: Inferences from SUCCESS [J]. *Geophys. Res. Lett.*, 25 (9): 1387–1390.
- DeMott P J, Cziczo D J, Prenni A J, et al. 2003. Measurements of the concentration and composition of nuclei for cirrus formation [J]. *Proceedings of the National Academy of Sciences United States of America*, 100 (25): 14655–14660.
- Diehl K, Simmel M, Wurzler S. 2006. Numerical sensitivity studies on the impact of aerosol properties and drop freezing modes on the glaciation, microphysics, and dynamics of clouds [J]. *J. Geophys. Res.*, 111: D07202, doi:10.1029/2005JD005884.
- 董双林, 崔宏光. 1992. 饱和水汽压计算公式的分析比较及经验公式的改进 [J]. *应用气象学报*, 3 (4): 501–508.
- Dong Shuanglin, Cui Hongguang. 1992. Analysis of calculating formula and improvement of empirical formula for saturation vapor pressure [J]. *Quarterly Journal of Applied Meteorology (in Chinese)*, 3 (4): 501–508.
- Draxler R R, Hess G D. 1998. An overview of the Hysplit-4 modeling system for trajectories, dispersion, and deposition [J]. *Aust. Meteor. Mag.*, 47 (2): 295–308.
- 鄯大雄, 陈汝珍, 蒋耿旺. 1994. 黄土高原尘沙作为大气冰核的实验研究 [J]. *应用气象学报*, 5 (2): 129–134.
- Feng Daxiong, Chen Ruzhen, Jiang Gengwang. 1994. A laboratory study on the role of the LOESS particles as natural ice nuclei [J]. *Quarterly Journal of Applied Meteorology (in Chinese)*, 5 (2): 129–134.
- Fletcher N H. 1962. *Physics of Rain Clouds* [M]. Cambridge: Cambridge University Press, 386.
- Forster P, Ramaswamy V, Artaxo P, et al. 2007. Changes in Atmospheric Constituents and in Radiative Forcing [M]. Cambridge: Cambridge University Press, 129–234.
- Fukuta N. 1993. Water supersaturation in convective clouds [J]. *Atmos. Res.*, 30 (2–3): 105–126.
- Gierens K. 2003. On the transition between heterogeneous and homogeneous freezing [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 3 (2): 437–446.
- Hartmann D L, Holton J R, Fu Q. 2001. The heat balance of the tropical tropopause, cirrus, and stratospheric dehydration [J]. *Geophys. Res. Lett.*, 28 (10): 1969–1972.
- Haywood J, Boucher O. 2000. Estimates of the direct and indirect radiative forcing due to tropospheric aerosols: A review [J]. *Rev. Geophys.*, 38 (4): 513–543.
- 何立明, 王文杰, 王桥, 等. 2007. 中国秸秆焚烧的遥感监测与分析 [J]. *中国环境监测*, 23 (1): 42–50.
- He Liming, Wang Wenjie, Wang Qiao, et al. 2007. Evaluation of the agricultural residues burning reduction in China using MODIS fire product [J]. *Environmental Monitoring in China (in Chinese)*, 23 (1): 42–50.
- Jensen E J, Toon O B, Vay S A, et al. 2001. Prevalence of ice-supersaturated regions in the upper troposphere: Implications for optically thin ice cloud formation [J]. *J. Geophys. Res.*, 106 (D15): 17253–17266.
- Kärcher B, Lohmann U. 2003. A parameterization of cirrus cloud formation: Heterogeneous freezing [J]. *J. Geophys. Res.*, 108 (D14): 4402, doi:

- 10.1029/2002JD003220.
- 孔凡铀, 黄美元, 徐华英. 1990. 对流云中冰相过程的三维数值模拟 I: 模式建立及冷云参数化 [J]. 大气科学, 14 (4): 441–453. Kong Fanyou, Huang Meiyuan, Xu Huaying. 1990. Three-dimensional numerical simulation of ice phase microphysics in cumulus clouds. Part 1: Model establishment and ice phase parameterization [J]. Chinese Journal of Atmospheric Sciences (in Chinese), 14 (4): 441–453.
- Lala G G, Jiusto J E. 1972. Numerical estimates of humidity in a membrane-filter ice nucleus chamber [J]. J. Appl. Meteor., 11 (4): 674–683.
- Langer G, Rodgers J. 1975. An experimental study of the detection of ice nuclei on membrane filters and other substrata [J]. J. Appl. Meteor., 14 (4): 560–570.
- Lau K M, Wu H T. 2003. Warm rain processes over tropical oceans and climate implications [J]. Geophys. Res. Lett., 30 (24): 2290, doi: 10.1029/2003GL018567.
- 李淑日, 黄庚, 胡志晋. 2003. 黄河上游河南县地面大气冰核观测分析 [J]. 应用气象学报, 14 (S1): 41–48. Li Shuri, Huang Geng, Hu Zhijin. 2003. Analysis of ice nuclei in atmosphere in Henan county in upper reaches of Huanghe River [J]. Quarterly Journal of Applied Meteorology (in Chinese), 14 (S1): 41–48.
- Lin R F, Starr D O C, DeMott P J, et al. 2002. Cirrus parcel model comparison project. Phase 1: The critical components to simulate cirrus initiation explicitly [J]. J. Atmos. Sci., 59 (15): 2305–2329.
- Lin J C, Matsui T, Pielke R A, et al. 2006. Effects of biomass-burning-derived aerosols on precipitation and clouds in the Amazon Basin: A satellite-based empirical study [J]. J. Geophys. Res., 111 (D19): D19204, doi:10.1029/2005JD006884.
- Liou K N. 1986. Influence of cirrus clouds on weather and climate processes: A global perspective [J]. Mon. Weather Rev., 114 (6): 1167–1199.
- Lohmann U, Feichter J. 2005. Global indirect aerosol effects: A review [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 5 (3): 715–737.
- Louis G, Descloîtres J, Justice C O, et al. 2003. An enhanced contextual fire detection algorithm for MODIS [J]. Remote Sens. Environ., 87 (2–3): 273–282.
- Meyers M P, DeMott P J, Cotton W R. 1992. New primary ice-nucleation parameterizations in an explicit cloud model [J]. J. Appl. Meteor., 31 (7): 708–721.
- Morrison H, Curry J A, Khvorostyanov V I. 2005. A new double-moment microphysics parameterization for application in cloud and climate models. Part I: Description [J]. J. Atmos. Sci., 62 (6): 1665–1667.
- 牛生杰, 安夏兰, 陈跃, 等. 2000. 贺兰山地区大气冰核浓度的测量及初步分析 [J]. 南京气象学院学报, 23 (2): 294–298. Niu Shengjie, An Xialan, Chen Yue, et al. 2000. Measurements and analysis of concentrations of atmospheric ice nuclei in the Helanshan area [J]. Journal of Nanjing Institute of Meteorology (in Chinese), 23 (2): 294–298.
- Peter T. 1997. Microphysics and heterogeneous chemistry of polar stratospheric clouds [J]. Annu. Rev. Phys. Chem., 48 (1): 785–822.
- Prenni A J, DeMott P J, Rogers D C, et al. 2009. Ice nuclei characteristics from M-PACE and their relation to ice formation in clouds [J]. Tellus, Ser. B, 61 (2): 436–448.
- Pruppacher H R, Klett J D. 1997. Microphysics of Clouds and Precipitation [M]. 2nd edition. Dordrecht: Kluwer Academic Publishers, 309–360.
- 钱凌, 银燕, 童尧青, 等. 2008. 南京北郊大气细颗粒物的粒径分布特征 [J]. 中国环境科学, 28 (1): 18–22. Qian Ling, Yin Yan, Tong Yaoqing, et al. 2008. Characteristics of size distributions of atmospheric fine particles in the north suburban area of Nanjing [J]. China Environmental Science (in Chinese), 28 (1): 18–22.
- Rogers D C, DeMott P J, Kreidenweis S M, et al. 1998. Measurements of ice nucleating aerosols during SUCCESS [J]. Geophys. Res. Lett., 25 (9): 1383–1386.
- Rosinski J. 1995. Cloud condensation nuclei as a real source of ice forming nuclei in continental and marine air masses [J]. Atmos. Res., 38 (1): 351–359.
- Santachiara G, Di Matteo L, Prodi F, et al. 2010. Atmospheric particles acting as ice forming nuclei in different size ranges [J]. Atmos. Res., 96 (2): 266–272.
- Saxena V K, Weintraub D. 1988. Ice forming nuclei concentrations at Palmer station, Antarctica [C]. Atmospheric Aerosols and Nucleation, Springer Berlin/Heidelberg, 309: 679–682.
- Schaefer V J. 1968. Ice nuclei from auto exhaust and organic vapors [J]. J. Appl. Meteor., 7 (1): 148–149.
- 盛裴轩, 秦瑜. 1981. 云物理学基础 [M]. 北京: 农业出版社, 190–191. Sheng Peixuan, Qin Yu. 1981. The Foundation of Cloud Physics [M]. Beijing: Agriculture Press (in Chinese), 190–191.
- 石爱丽, 郑国光, 游来光. 2006. 2003 年秋季青海省河南县地面大气冰核观测分析 [J]. 应用气象学报, 17 (2): 245–249. Shi Aili, Zheng Guoguang, You Laiguang, et al. 2006. Observation and analysis on ice nucleus of Henan County of Qinghai province in autumn 2003 [J]. Journal of Applied Meteorological Science (in Chinese), 17 (2): 245–249.
- Stith J L, Ramanathan V, Cooper W A, et al. 2009. An overview of aircraft observations from the Pacific Dust Experiment campaign [J]. J. Geophys. Res., 114: D05207, doi:10.1029/2008JD010924.
- 谭稳, 银燕, 郭莉, 等. 2010. 南京夏季清洁与污染区气溶胶微物理特征分析 [J]. 环境科学与技术, 33 (S1): 280–286. Tan Wen, Yin Yan, Guo Li, et al. 2010. Analysis of the microphysical characteristics of aerosol particles in clean and pollution area in summer of Nanjing [J]. Environmental Science & Technology (in Chinese), 33 (S1): 280–286.
- Telford J W. 1960. Freezing nuclei from industrial processes [J]. J. Meteor., 17 (6): 676–679.
- Tervahattu H, Hartonen K, Kerminen V, et al. 2002. New evidence of an organic layer on marine aerosols [J]. J. Geophys. Res., 107 (D7): 4053, doi:10.1029/2000JD000282.
- Waliser D E, Li J F, Woods C P, et al. 2009. Cloud ice: A climate model challenge with signs and expectations of progress [J]. J. Geophys. Res., 114: D00A21, doi:10.1029/2008JD010015.
- 汪学林, 张万钧, 熊尚清. 1965. 白城地区春季的大气冰核 [J]. 气象学报, 35 (3): 273–279. Wang Xuelin, Zhang Wanjun, Xiong Shangqing. 1965. The ice nuclei of Baicheng area during spring [J]. Acta Meteorologica Sinica (in Chinese), 35 (3): 273–279.
- 杨绍忠, 马培民, 游来光. 1995. 用滤膜法观测大气冰核的静力扩散云室 [J]. 气象学报, 53 (1): 91–100. Yang Shaozhong, Ma Peimin, You

- Laiguang. 1995. A static diffusion chamber for detecting atmospheric ice nuclei by using filter technique [J]. *Acta Meteorologica Sinica* (in Chinese), 53 (1): 91–100.
- 银燕, 童尧青, 魏玉香, 等. 2009. 南京市大气细颗粒物化学成分分析 [J]. *大气科学学报*, 32 (6): 723–733. Yin Yan, Tong Yaoqing, Wei Yuxiang, et al. 2009. The analysis of chemistry composition of fine-mode particles in Nanjing [J]. *Transactions of Atmospheric Sciences* (in Chinese), 32 (6): 723–733.
- Yin Y, Levin Z, Reisin T G, et al. 2000. The effects of giant cloud condensation nuclei on the development of precipitation in convective clouds-a numerical study [J]. *Atmos. Res.*, 53 (1–3): 91–116.
- 游来光, 石安英. 1964. 北京地区 1963 年春季冰核浓度变化特点的观测分析 [J]. *气象学报*, 53 (1): 548–554. You Laiguang, Shi Anying. 1964. The measurement and analysis of ice-nucleus concentration at Peking during the period from March 18th to April 30th in 1963 [J]. *Acta Meteorologica Sinica* (in Chinese), 53 (1): 548–554.
- 游来光, 杨绍忠, 王祥国, 等. 2002. 1995 和 1996 年春季北京地区大气冰核浓度的观测与研究 [J]. *气象学报*, 60 (1): 101–109. You Laiguang, Yang Shaozhong, Wang Xiangguo, et al. 2002. Study of ice nuclei concentration at Beijing in spring of 1995 and 1996 [J]. *Acta Meteorologica Sinica* (in Chinese), 60 (1): 101–109.
- 章澄昌. 1987. 静力扩散云室中用滤膜测定自然冰核活化数的过饱和谱和温度谱 [J]. *南京气象学院学报*, 10 (1): 1–8. Zhang Chengchang. 1987. Measurement of supersaturation and temperature spectra of natural ice nuclei in a static vapour-diffusion chamber [J]. *Journal of Nanjing Institute of Meteorology* (in Chinese), 10 (1): 1–8.
- 张秋晨, 朱彬, 苏继峰, 等. 2012. 南京 3 类不同大气污染过程下气溶胶水溶性无机离子的特征研究 [J]. *环境科学*, 33 (6): 1944–1951. Zhang Qiuchen, Zhu Bin, Su Jifeng, et al. 2012. Characteristics of aerosol water-soluble inorganic ions in three types air-pollution incidents of Nanjing city[J]. *Environmental Science* (in Chinese), 33 (6): 1944–1951.