

陈学舜, 王自发, 李杰, 等. 2015. NAQPMS+APM 模式对北京冬季细粒子谱分布演变特征的数值模拟 [J]. 气候与环境研究, 20 (6): 611–619. Chen Xueshun, Wang Zifa, Li Jie, et al. 2015. Simulation of particle number size distribution in Beijing in winter using NAQPMS+APM model [J]. Climatic and Environmental Research (in Chinese), 20 (6): 611–619, doi:10.3878/j.issn.1006-9585.2015.15095.

## NAQPMS+APM 模式对北京冬季细粒子谱分布 演变特征的数值模拟

陈学舜<sup>1,2</sup> 王自发<sup>1</sup> 李杰<sup>1</sup> 余方群<sup>4</sup> 胡敏<sup>3</sup>

1 中国科学院大气物理研究所大气边界层物理和大气化学国家重点实验室, 北京 100029

2 中国科学院大学, 北京 100049

3 北京大学环境科学与工程学院环境模拟与污染控制国家重点联合实验室, 北京 100871

4 纽约州立大学奥尔巴尼分校, 美国奥尔巴尼 12203

**摘要** 利用包含详细微物理动力学机制的 NAQPMS+APM (Nested Air Quality Prediction Modeling System with Advanced Particle Microphysics) 模式, 对北京城市大气 2006 年 1 月 15 日至 2 月 13 日期间的粒子数浓度谱分布进行了模拟, 模式模拟结果合理, 能够很好地再现北京城市大气细粒子的数浓度谱分布演变特征。分析表明, 北京冬季大气新粒子形成事件频发, 核化作用使核模态粒子数浓度急剧升高; 污染累积时, 积聚模态粒子数浓度显著增大, 而核模态粒子数浓度很小, 粒子谱分布向大粒子端移动; 重污染期间, 粒子微物理混合作用强烈, 二次成分在一次粒子上的附着使一次粒子粒径显著增大, 二次成分可使一次粒子粒径增大 50% 以上, 积聚模态的二次粒子与一次粒子共同促进了污染的形成。在北京及其近周边区域, 北京南部和河北南部一次粒子数量多, 占据主导地位, 而在河北北部二次粒子则占主导地位。

**关键词** NAQPMS+APM 模式 粒子谱分布 一次粒子 二次粒子

文章编号 1006-9585 (2015) 06-0611-09

中图分类号 P402

文献标识码 A

doi:10.3878/j.issn.1006-9585.2015.15095

## Simulation of Particle Number Size Distribution in Beijing in Winter Using NAQPMS+APM Model

CHEN Xueshun<sup>1,2</sup>, WANG Zifa<sup>1</sup>, LI Jie<sup>1</sup>, YU Fangqun<sup>4</sup>, and HU Min<sup>3</sup>

1 State Key Laboratory of Atmospheric Boundary Layer Physics and Atmospheric Chemistry, Institute of Atmospheric Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100029

2 University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049

3 State Key Joint Laboratory of Environmental Simulation and Pollution Control, College of Environmental Sciences and Engineering, Peking University, Beijing 100871

4 State University of New York at Albany, USA, Albany 12203

**Abstract** Particle number size distribution in Beijing was simulated during the period 15 January to 13 March 2006 using NAQPMS+APM (Nested Air Quality Prediction Modeling System with Advanced Particle Microphysics). The simulated number size distribution of fine particles agreed well with observations. The simulation results showed that new

收稿日期 2015-04-20; 网络预出版日期 2015-07-14

资助项目 中国科学院战略性先导科技专项 XDB05030201, 国家自然科学基金 41225019

作者简介 陈学舜, 男, 1986 年出生, 博士, 主要研究方向为空气质量模拟。E-mail: chenxsh@mail.iap.ac.cn

通讯作者 王自发, E-mail: zifawang@mail.iap.ac.cn

particle formation occurred frequently. The nucleation-mode particle number concentration increased drastically due to the nucleation process during new particle formation. In pollution periods, the number concentration of accumulation-mode particles increased, while the nucleation-mode particle number concentration decreased obviously. Moreover, the particle number size distribution shifted towards larger diameters. In heavy pollution episodes, the particle size increased significantly due to intense mixing through microphysical processes. The sizes of primary particles could be 50% larger than their core size due to secondary species coating on them. Accumulation-mode secondary and primary particles together contributed to pollution formation. For Beijing and surrounding areas, the simulation results showed that primary particles dominated particle numbers in the south of Beijing and Hebei, while secondary particles were dominant in the northern part of Hebei.

**Keywords** NAQPMS+APM model, Particle number size distribution, Primary particle, Secondary particle

## 1 引言

北京市作为超大城市,其大气污染面临着严峻的形势。北京市环保局发布的环境空气质量报告显示,大气颗粒物已经成为北京城市大气的首要污染物。针对北京市的大气颗粒物污染问题,已有大量研究工作 (Ma et al., 2012),但已有研究特别是数值模拟研究主要关注颗粒物的质量浓度,对粒子数浓度的关注较少。近年来的研究结果显示,超细粒子(粒径小于 100 nm 的颗粒物)对人体健康的影响更为显著 (Donaldson et al., 1998, 2002; Delfino et al., 2005),且超细粒子也可作为云凝结核影响云雾过程 (Spracklen et al., 2008)。观测研究 (Wu et al., 2007) 表明,北京城市大气中超细粒子质量浓度占细粒子总质量浓度的比例几乎可以忽略,但其数浓度占粒子总数浓度的比例却高于 70%。因此,当前以粒子质量浓度为尺度的大气环境标准已不能全面反映北京市大气颗粒物对环境的不利影响。综合考虑粒子质量和数量浓度是目前细粒子研究的发展趋势。

细粒子的来源主要包括一次排放和二次生成。直接排放的细粒子主要来自于燃烧过程,包括化石燃料燃烧和生物质燃烧过程。二次生成是大气中的可凝气体在大气中凝结为分子簇继而长大成稳定颗粒物的过程。在研究中,若观测到的气溶胶数浓度谱分布随时间变化呈“香蕉型”,即粒径小于 10 nm 的粒子迅速生成,并能增长到较大的尺寸,便认为发生了所谓的“新粒子形成”(New Particle Formation, NPF) 事件。对粒子数浓度谱分布的观测研究表明,北京新粒子形成事件出现频率高,且其出现频次有显著的季节差异 (Wu et al., 2007),并有研究结果显示北京是新粒子的重要来源 (Wehner et

al., 2004)。观测分析表明,北京粒子谱分布的变化过程中,核化、凝结和碰并过程是重要的物理过程 (Wu et al., 2011),综合考虑各个物理过程对于理解新粒子形成和细粒子谱分布演变机制十分重要。

本文以中国科学院大气物理研究所的 NAQPMS+APM 模式模拟分析北京冬季的大气细粒子谱分布演变特征,结合观测数据从气象条件、大气化学条件及细粒子微观动力学机制上揭示大气细粒子谱分布的演变和新粒子形成的机理,并讨论本文所用模式的不确定性。

## 2 模式和观测数据简介

### 2.1 模式简介

本文所用模式为中国科学院大气物理研究所的 NAQPMS+APM 模式 (Wang et al., 2001, 2002, 2006; 王自发等, 2006; Yu and Luo, 2009; Li et al., 2011, 2012; Chen et al., 2014),在该模式中耦合了包含详细微物理过程的气溶胶动力学模块 (Turco et al., 1979; Yu and Turco, 1997, 2008; Yu and Luo, 2009), NAQPMS+APM 模式综合表征控制大气细粒子谱分布的化学、热力学和微观动力学过程,可对大气细粒子的微物理参数在三维空间上进行高分辨率模拟。

NAQPMS+APM 模式中的气溶胶包括二次粒子、黑碳 (Black Carbon, BC)、有机碳 (Organic Carbon, OC)、海盐和沙尘。本文中一次粒子指由直接排放产生的粒子,包括 BC、OC、海盐和沙尘,二次粒子指核化形成的粒子,携带了二次成分的一次粒子仍称为一次粒子。二次粒子是由核化作用形成的粒子,二次粒子共分为 40 档,粒子直径大小范围从 1.2 nm 至 12  $\mu\text{m}$ ,第一档对应核化形成的新粒子,从 1.2 nm 到 100 nm 分档较细以更好地模拟

新粒子的增长过程, 模式显式地计算成核率、新粒子的增长和碰并过程; 海盐粒子由海洋排放产生, 从 12 nm 至 12  $\mu\text{m}$  分为 20 档, 由于在 10 nm 以下的海盐粒子数浓度和质量浓度都很小, 模式不考虑 12 nm 以下的粒子, 模式计算各档海盐粒子的排放通量、增长及碰并过程; 沙尘粒子由沙源地产生, 沙尘粒子从 200 nm 到 12  $\mu\text{m}$  分为 4 档, 模式考虑其凝结增长和它对二次粒子的碰并清除过程; 碳质粒子主要由人为排放产生, 假设排放的粒子谱分布为对数正态分布 (Dentener et al., 2006), 模式考虑它的凝结增长和其对二次粒子的碰并清除作用。模式还考虑铵盐、硝酸盐、二次有机气溶胶 (Secondary Organic Aerosol, SOA) 对粒子的凝结增长作用和粒子的吸湿增长过程。在模式中的示踪物包括不同种类各档粒子及一次粒子上附着的二次成分。

本文在 Chen et al. (2014) 的基础上对 NAQPMS+APM 模式进行了进一步的发展, 将一次碳质粒子进行了详细的分档, 一次碳质粒子的粒径从 10 nm 到 10  $\mu\text{m}$  按等对数间隔总共分成了 28 档。由此, NAQPMS+APM 模式可以更加详细地模拟粒子谱分布特征。本文的模拟采用三重嵌套区域, 第一区域为东亚区域, 水平分辨率为 81 km, 第二区域为中国中东部, 水平分辨率为 27 km, 第三区域为北京及近周边地区, 水平分辨率为 9 km, 垂直分 20 层。NAQPMS+APM 模式的气象场由中尺度气象模式 WRF 提供, 在模拟时采用四维同化逼近方案, 使模式预报场向再分析场逼近。模拟所用排放源数据为 REAS\_V2 (Kurokawa et al., 2013)。本文的研究时段为 2006 年 1 月 15 日至 2 月 13 日, 模拟起始时间为 2006 年 1 月 1 日 00:00 (北京时间, 下同), 前 14 天作为预热时间以减小初值的影响, 模拟分析从 2006 年 1 月 15 日开始。

## 2.2 观测数据介绍

本文所用观测数据由北京大学环境科学与工程学院提供, 观测点位于北京市西北方向的北京大学校园内。观测平台在北京大学理科教学楼楼顶, 距离地面约 20 m。观测使用的仪器为双电迁移性颗粒物粒径分析仪 (TDMPMS) 和空气动力学颗粒物粒径分析仪 (APS), TDMPMS 测量 3~800 nm 的颗粒物粒径谱分布, APS 测量 0.45~10  $\mu\text{m}$  的颗粒物粒径谱分布, TDMPMS 和 APS 的数据相连接得到粒径范围为 3 nm 至 10  $\mu\text{m}$  的粒径谱分布, 观测数据

的整理方法详见 Wu et al. (2011)。由于观测数据的粒径分档和模式的粒径分档不一致, 本文在进行对比时将观测到的各档粒子数浓度分摊到了模式的粒径分档。本文的研究中核模态、爱根模态、积聚模态对应的粒径范围分别为 3~20 nm、20~100 nm、100 nm 至 1  $\mu\text{m}$ 。

## 3 结果和讨论

### 3.1 气象要素和污染过程分析

图 1 给出了北京大学观测站点的气象要素模拟结果, 包括风向、风速、温度和相对湿度的模拟情况。从图 1 可看出, 北京冬季的风向风速有显著的日循环特征, 山地—平原风气候特征 (王喜全等, 2008) 明显, 午后大多为偏南风且风速较小, 而在午前为偏北风且风速较大。温度基本在 -10~5  $^{\circ}\text{C}$  之间变化, 相对湿度总体较低, 大多数时次相对湿度都在 70% 以下。

图 2 给出了 2006 年 1 月 15 日至 2 月 13 日期间 NAQPMS+APM 模式对北京细粒子组分质量浓度模拟情况, 由粒子组分 (如图 2 所示) 及积聚模态粒子数浓度的变化可知, 在 1 月 15 日至 2 月 13 日期间, 北京经历了数次污染的形成和消散过程。1 月 17~18 日, 伴随着风速的下降和风向转为南风, 污染物浓度逐渐升高, 1 月 18~20 日, 风速基本维持在 4 m/s 以下, 相对湿度的变化幅度亦较小, 维持在 50% 左右, 20 日风速基本为偏北风, 之后污染物浓度出现了下降的趋势; 1 月 22~25 日, 风速从 22 日起下降, 23~25 日风速持续性偏小, 出现了一次污染的累积过程; 1 月 27~28 日, 污染物浓度保持较低状态, 但从 28 日中午开始, 相对湿度较高, 污染物快速累积, 29 日凌晨出现了污染物浓度的最高值, 而后风向转为北风, 风速的快速增大使污染程度快速减轻; 1 月 31 日, 风速基本在 2 m/s 以下, 污染物又出现了一次快速累积和消散的过程; 2 月 4~7 日, 风速持续性偏小, 污染物浓度较高; 2 月 7~11 日, 风速较大, 且为偏北风, 污染物浓度在一个较低的水平, 从 11 日开始, 风速下降, 出现了一次明显的污染累积过程。对照粒子组分浓度与积聚模态粒子的数浓度可看出, NAQPMS+APM 模式基本能够再现细粒子质量浓度的时间变化趋势。

### 3.2 粒子谱分布模拟分析

图 3 给出了 2006 年 1 月 15 日至 2 月 13 日粒

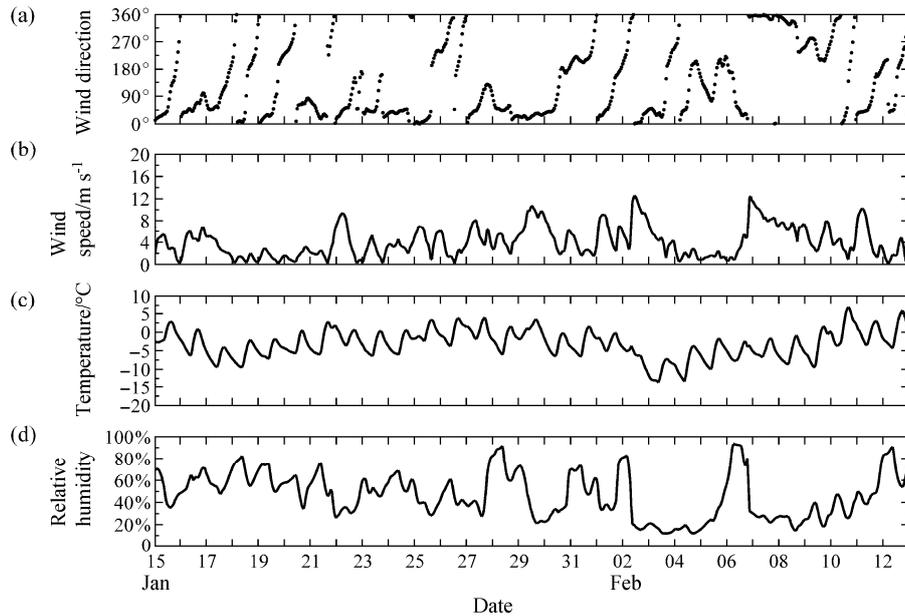


图 1 2006 年 1 月 15 日至 2 月 13 日 WRF 模式模拟得到的北京大学观测点 (a) 风向、(b) 风速、(c) 温度、(d) 相对湿度

Fig. 1 (a) Wind direction, (b) wind speed, (c) temperature, and (d) relative humidity simulated by WRF model at the station of Beijing University in the period from 15 Jan to 13 Feb, 2006

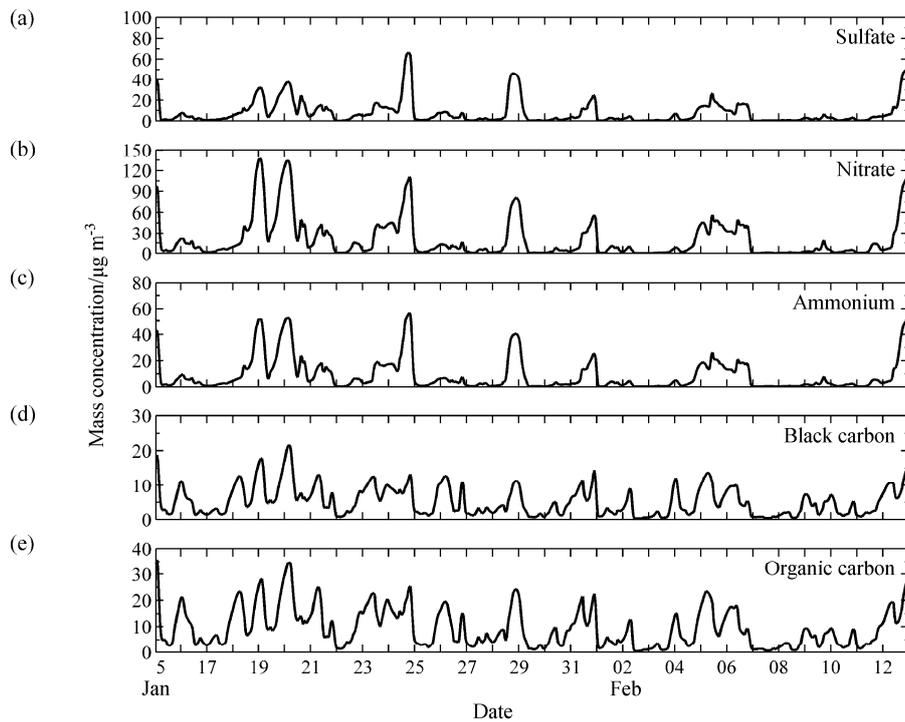


图 2 2006 年 1 月 15 日至 2 月 13 日 NAQPMS+APM 模式模拟得到的北京大学观测点细粒子组分 (a) 硫酸盐、(b) 硝酸盐、(c) 铵盐、(d) 黑碳、(e) 有机碳质量浓度

Fig. 2 Simulated mass concentrations of aerosol components (a) sulfate, (b) nitrate, (c) ammonium, (d) Black Carbon (BC), and (e) Organic Carbon (OC) at the station of Beijing University in the period from 15 Jan to 13 Feb, 2006

子谱分布的模拟与观测的对比情况。1 月 15 日，既有粒子浓度低，出现了一次显著的粒子形成过程（见图 3），在粒子谱分布上表现为 3~20 nm 谱段

出现了高值，核模态粒子数浓度在 15 日中午前出现了急剧的增高现象；1 月 16~17 日，污染物浓度保持在较低水平，从粒子谱分布可看出该时段粒子

粒径较小,分模态的粒子数浓度模拟与观测结果表明,在该时段积聚模态粒子数浓度处在较低的水平而核模态粒子数浓度则较高;污染物从1月17日下午开始累积,粒子粒径增大,在图3上表现为高值向大粒径端移动,18~19日,积聚模态的粒子数浓度保持在较高的水平,而核模态粒子数浓度很低;25日污染物被快速清除,核模态粒子数浓度爆发性的增加,出现了一次明显的新粒子生成过程,NAQPMS+APM模式很好地再现了这一过程;1月28日,污染累积过程出现,粒子谱分布的高值向大粒径端移动,积聚模态粒子数浓度快速增加;29日污染物质量浓度下降,29日中午出现了核模态粒子数浓度爆发性的增多现象,模式也重现了这一现象;30日下午开始污染物再次累积,粒子粒径增大;2月1日,风向转为北风,污染物被快速清除,2月1日出现了新粒子的形成;2月2日中午前,累积的污染物被快速清除,随后粒子核化形成,但由于较低的气态可凝物浓度,新形成的粒子未能增长到足够大,随着夜晚污染物的累积,小粒子被快速清除,模式很好地再现出了这一现象;2月3日,污染物浓度依然较低,出现了一次显著的新粒子形成事件,而后污染累积过程出现,粒子粒径增大,核模态粒子数浓度在较低水平;2月6日,模式显著高估了核模态和爱根核模态粒子数浓度,这是由于2月6日中午,相对湿度高达90%,尽管模式计算得到的成核率较低,但吸湿因子高于1.75以上,铵盐和硝酸盐的浓度也较高,使小粒子增长过快,出现了与观测相比不合理的数值。该结果表明,高相对湿度条件下模式在二次组分浓度及粒子吸湿增长因子的模拟方面仍然不足,存在较大的不确定性。2月7日、8日,风向为偏北风,风速较大,污染物浓度低,二次粒子的形成呈现“脉冲”式,即快速高强度形成而后快速消失的特征,其原因是既有粒子浓度低,核化容易发生,但由于新粒子缺乏凝结核增长所需可凝气体,新粒子仍可被既有的大粒子快速碰并清除。2月11日也出现了新粒子形成现象,且随着污染的累积,新粒子也持续增长。上述分析结果表明,NAQPMS+APM模式能够再现北京冬季大气细粒子谱分布的演变特征,对控制粒子谱分布的关键物理化学过程刻画合理。

NAQPMS+APM模式可以对一次粒子和二次粒子的谱分布进行区分(如图4所示)。由图4可看出,当污染累积时,一次粒子粒径也增大,如1

月17~19日的污染累积过程,在此期间,二次组分质量浓度增加。由图5中的一次粒子增长因子 $F_{grow}$ 可知,污染累积时,二次组分可使一次粒子粒径持续增长,二次成分可使一次粒子粒径增大50%以上,粒子谱分布向大粒径端移动,即表明二次成分累积更快,微物理混合作用强烈,白天核化形成且能够长大存活下来的二次粒子与一次粒子叠加,共同促进了细粒子污染的形成。微物理过程的合理描述对粒子谱分布特别是污染累积时粒子谱分布演变十分重要。在污染较轻的时段,如2月7~8日,尽管白天有大量的二次粒子形成,但由于缺乏足够的可凝气体,二次粒子只是出现了“脉冲式”的快速形成和湮灭现象,很难长大到显著影响大气能见度的积聚模态(见图4)。

此外,从图3和图6可看出,核模态粒子基本在中午前两小时开始形成,而在中午以后则很快消失,其时间变化呈锯齿状,有显著的日变化特征,这表明核模态粒子主要受局地大气环境条件的控制。白天,随着光照的增强,可凝气体硫酸气形成,进而硫酸气核化形成新粒子,但这些新粒子的大多数被既有粒子快速碰并清除,很快在粒子谱图上消失。爱根模态粒子数浓度随时间的演变受二次粒子和一次粒子的共同控制,二次的爱根模态粒子与一次的爱根模态粒子呈现反位相的变化特征,二次的爱根模态粒子随时间的变化比核模态粒子平缓,其在大气中的存留时间相比核模态较长。积聚模态的二次粒子随时间的变化与一次粒子有较好的一致性,其随时间的变化主要受气象条件的影响。

以上结果表明,在冬季,NAQPMS+APM模式能够很好地模拟出污染的生消演变过程,对粒子谱分布的变化过程亦有较强的再现能力,能够合理地描述大气细粒子的微观动力过程,可以合理地用来解释大气细粒子的微物理特征。但是模式高估了核模态的粒子数浓度,核化强度存在过高的现象,对积聚模态的粒子数浓度亦有一定的高估。

### 3.3 大气细粒子数浓度分布特征

图7给出了北京及近周边地区2006年1月15日至2月13日平均粒子数浓度分布特征。由图7可看出,一次粒子数浓度与二次粒子数浓度的空间分布显著不同。一次粒子数浓度的空间分布与北京及近周边地区排放源的空间分布较为一致,高值主要位于北京及河北的南部,高值可达 $20000\text{ cm}^{-3}$ 以上。二次粒子的高值区域则位于下风向较为清洁的

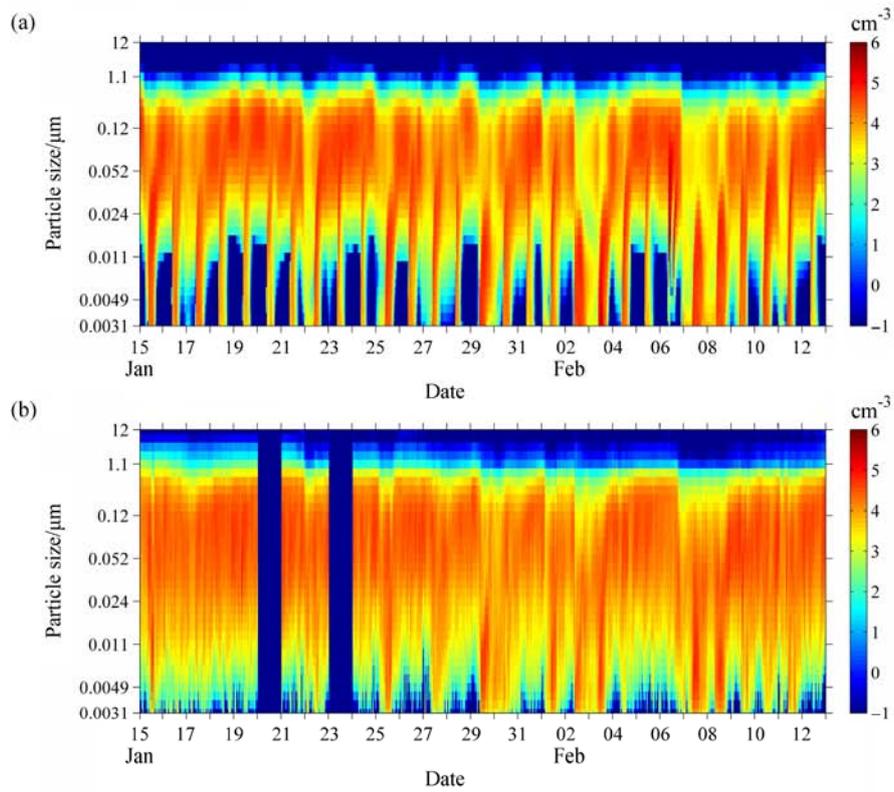


图3 2006年1月15日至2月13日北京大学观测点粒子谱分布 (a) 模拟与 (b) 观测对比

Fig. 3 (a) Simulated and (b) observed particles number size distribution at the station of Beijing University in the period from 15 Jan to 13 Feb, 2006

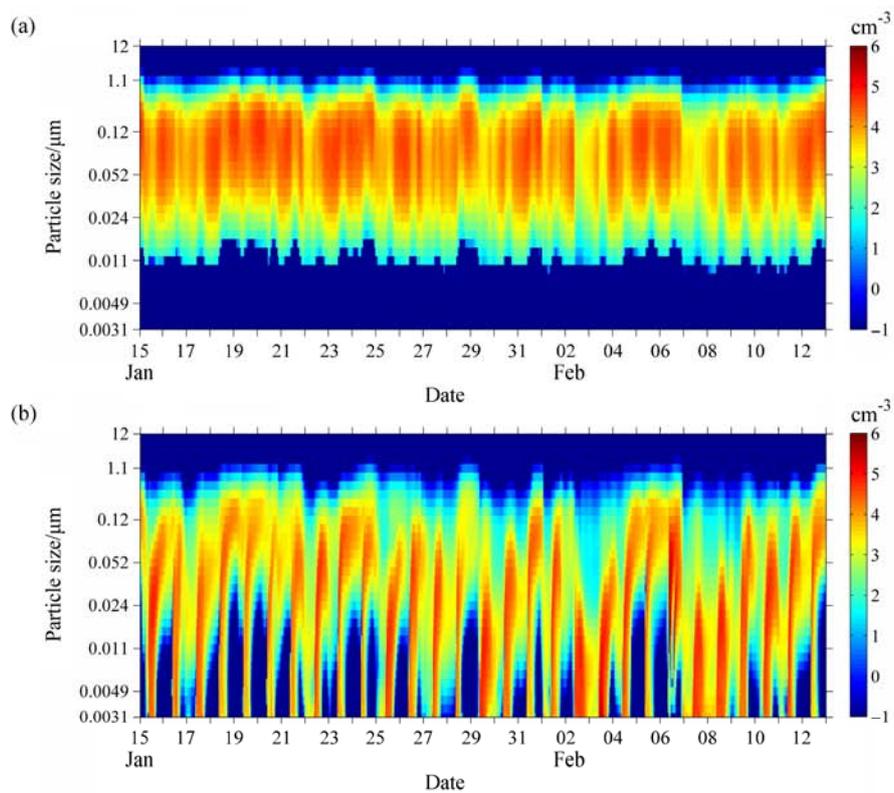


图4 2006年1月15日至2月13日北京大学观测点 (a) 一次粒子和 (b) 二次粒子谱分布模拟

Fig. 4 Simulated (a) primary and (b) secondary particles number size distribution at the station of Beijing University in the period from 15 Jan to 13 Feb, 2006

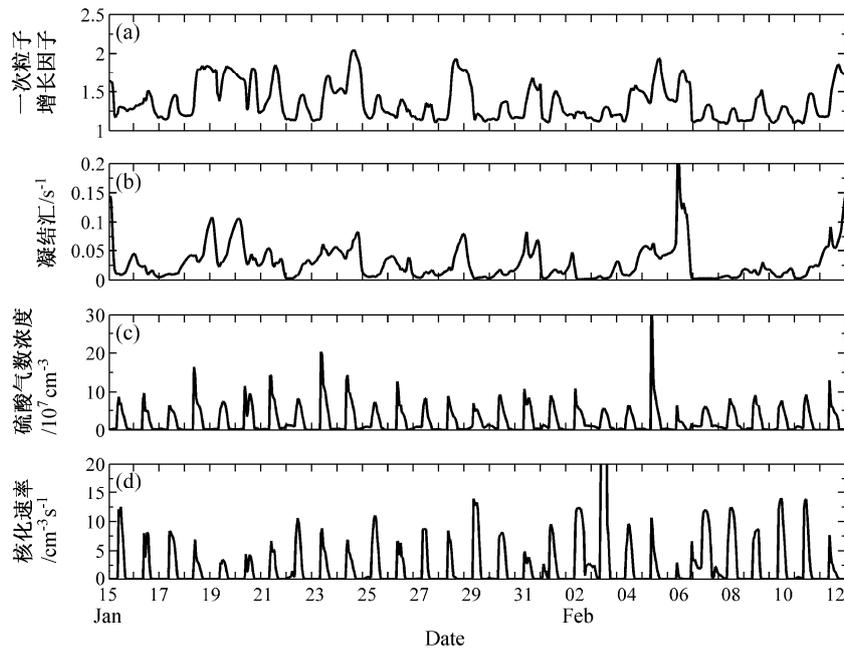


图5 2006年1月15日至2月13日模拟得到的北京大学观测点细粒子微物理参数: (a) 一次粒子增长因子; (b) 凝结汇; (c) 硫酸气数浓度; (d) 核化速率

Fig. 5 Simulated microphysics parameters of fine particles at the station of Beijing University in the period from 15 Jan to 13 Feb, 2006: (a) Growth factor of primary particles due to coating secondary species; (b) condensation sink; (c) molecular concentration of sulfuric acid gas; (d) nucleation rates

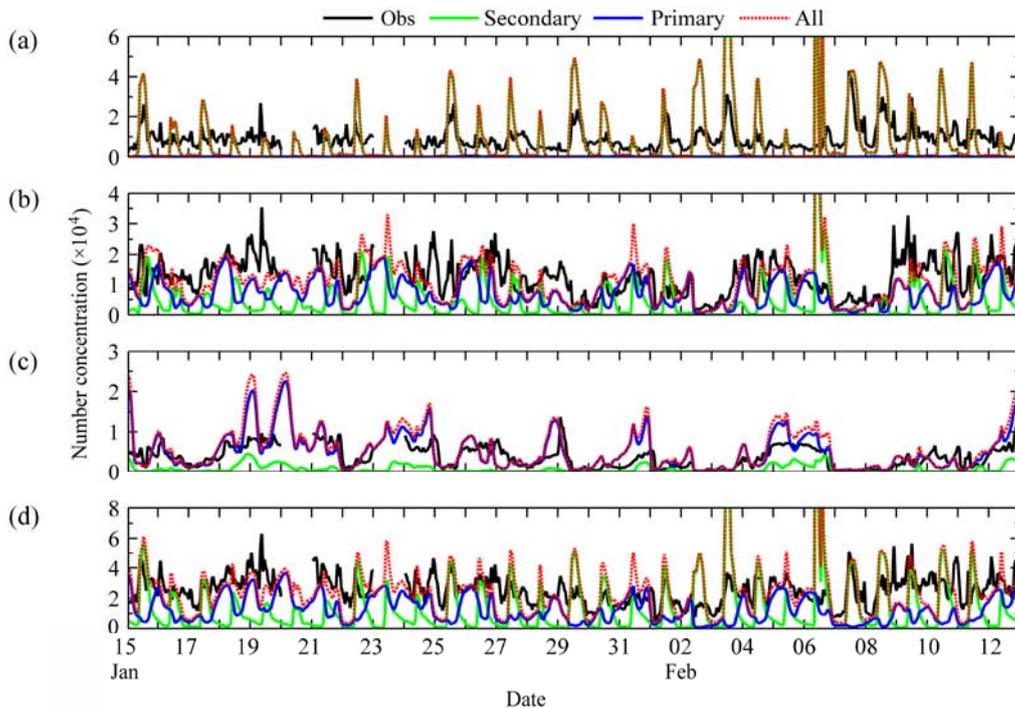


图6 2006年1月15日至2月13日北京大学观测点 (a) 核模态数浓度、(b) 爱根模态数浓度、(c) 积聚模态数浓度、(d) 总粒子数浓度模拟与观测 (黑色实线表观测的全部粒子, 绿色实线表模拟的二次粒子, 蓝色实线表模拟的一次粒子, 红色点划线表模拟的全部粒子)

Fig. 6 Simulated and observed particles number concentrations in (a) nucleation mode, (b) aiten mode, (c) accumulation mode, and (d) total particles at the station of Beijing University in the period from 15 Jan to 13 Feb, 2006 (black solid lines denote observed particles, green solid lines denote simulated secondary particles, blue solid lines denote simulated primary particles, and red dashed lines denote simulated particles)

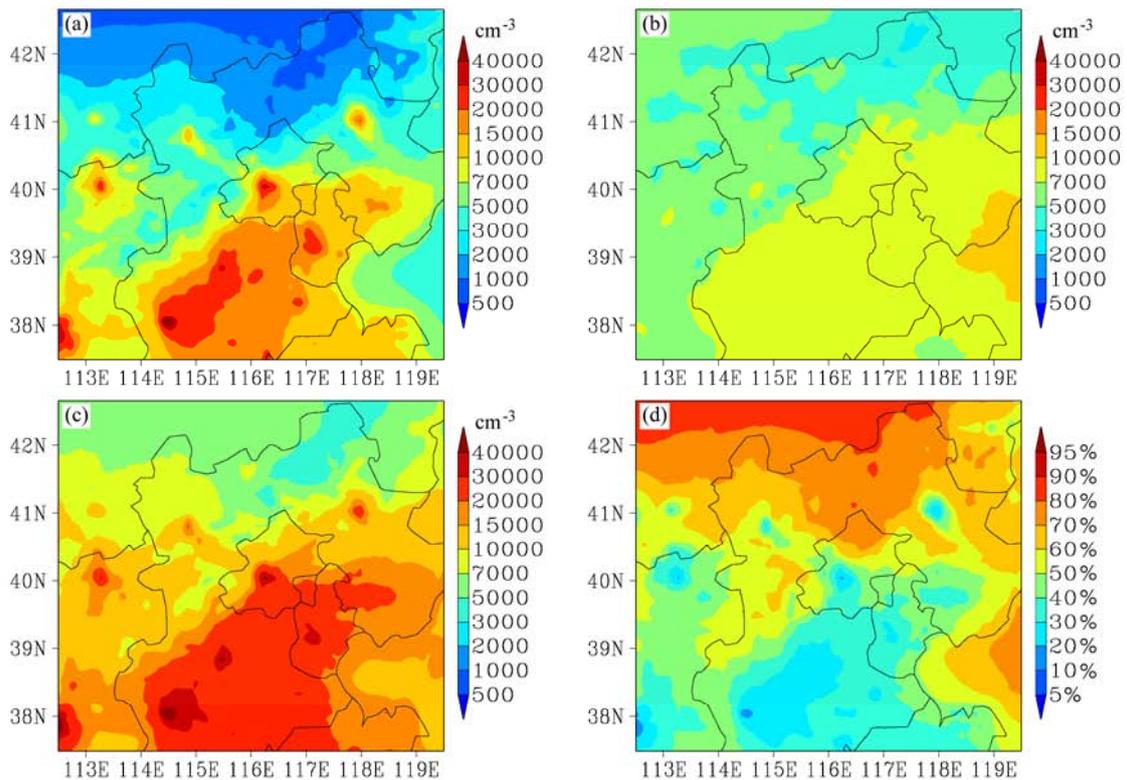


图7 2006年1月15日至2月13日平均北京及近周边地区 (a) 一次粒子数浓度、(b) 二次粒子数浓度、(c) 粒子总数浓度、(d) 二次粒子数浓度占总粒子数浓度的百分比

Fig. 7 Averaged (a) number concentration of primary particles, (b) number concentration of secondary particles, (c) number concentration of all particles, and (d) number concentration fraction of secondary particles in Beijing and its surrounding areas in the period from 15 Jan to 13 Feb, 2006

河北东部, 对分模态的粒子数浓度的考查可发现, 该区域主要是核模态和爱根模态的二次粒子, 而积聚模态的二次粒子数浓度很小。这表明在清洁地区, 小粒子更易存在于大气之中, 但由于可凝气体浓度低, 这些粒子不易长大。从图7的粒子总数浓度空间分布可看出, 其与一次粒子的空间分布具有很好的相似性, 一次粒子数浓度高值区也是粒子总数浓度的高值区。从二次粒子占粒子总数浓度的比例可看出, 河北北部二次粒子占主导地位, 而在北京及河北南部一次粒子占主导地位, 但二次粒子对粒子数浓度的贡献不可忽略, 其绝对数值可达到  $7000 \text{ cm}^{-3}$ 。北京和河北南部污染程度高, 一次粒子数浓度大, 一方面限制了成核, 另一方面使成核形成的粒子易被碰并清除使其不易在大气中生存。刻画北京及近周边的粒子谱分布特征需综合考虑核化、凝结和碰并等微物理动力过程。

## 4 结论

本文利用最新发展的 NAQPMS+APM 模式,

模拟分析了北京冬季 2006 年 1 月 15 日至 2 月 13 日的大气细粒子谱分布演变特征。与观测的对比发现, NAQPMS+APM 模式可合理地再现出北京细粒子谱分布演变特征, 模拟分析结果表明: 1) 在冬季, 北京城市大气新粒子形成事件出现频率高, 新粒子形成时核模态粒子数浓度急剧增加; 2) 不同模态粒子数浓度时间变化特征有显著差异, 核模态和爱根模态的二次粒子时间变化趋势基本与一次粒子反位相, 而积聚模态的二次粒子与一次粒子的变化基本同步; 3) 污染累积时, 积聚模态的粒子数浓度显著增多, 粒子谱分布向大粒子端移动, 微物理混合作用强烈, 二次成分可使一次粒子粒径增大 50%以上, 粒子混合状态发生重要改变; 4) 北京南部和河北南部一次粒子占据主导地位, 但二次粒子数浓度也有较大的数值, 而在河北北部二次粒子则占主导地位。

本文利用 NAQPMS+APM 模式对北京冬季的粒子谱分布长期连续演变特征做了细致模拟, 今后还需结合粒子组分和粒子光学性质参数对 NAQPMS+APM 模式进行全面的评估, 进一步量化

核化方案、一次粒子排放谱分布及粒子吸湿增长方面的不确定性,并深入研究不同组分和各微物理过程对粒子谱分布模拟的影响。

**致谢** 感谢北京大学环境科学与工程学院提供粒子谱分布观测数据,感谢《气候与环境研究》编辑部老师为本文编辑付出的辛勤劳动。

### 参考文献 (References)

- Chen X S, Wang Z F, Li J, et al. 2014. Development of a regional chemical transport model with size-resolved aerosol microphysics and its application on aerosol number concentration simulation over China [J]. SOLA, 10: 83–87, doi: 10.2151/sola.2014-017.
- Dentener F, Kinne S, Bond T, et al. 2006. Emissions of primary aerosol and precursor gases in the years 2000 and 1750 prescribed data-sets for AeroCom [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 6 (12): 4321–4344, doi: 10.5194/acp-6-4321-2006.
- Delfino R J, Sioutas C, Malik S. 2005. Potential role of ultrafine particles in associations between airborne particle mass and cardiovascular health [J]. Environmental Health Perspectives, 113 (8): 934–946, doi: 10.1289/ehp.7938.
- Donaldson K, Li X Y, MacNee W, et al. 1998. Ultrafine (Nanometre) particle mediated lung injury [J]. Journal of Aerosol Science, 29 (5–6): 553–560, doi: 10.1016/S0021-8502(97)00464-3.
- Donaldson K, Brown D, Clouter A, et al. 2002. The pulmonary toxicology of ultrafine particles [J]. Journal of Aerosol Medicine, 15 (2): 213–220, doi: 10.1089/089426802320282338.
- Kurokawa J, Ohara T, Morikawa T, et al. 2013. Emissions of air pollutants and greenhouse gases over Asian regions during 2000–2008: Regional Emission inventory in ASia (REAS) version 2 [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 13 (21): 11019–11058, doi: 10.5194/acp-13-11019-2013.
- Li J, Wang Z, Wang X, et al. 2011. Impacts of aerosols on summertime tropospheric photolysis frequencies and photochemistry over Central Eastern China [J]. Atmos. Environ., 45 (10): 1817–1829, doi: 10.1016/j.atmosenv.2011.01.016.
- Li J, Wang Z, Zhuang G, et al. 2012. Mixing of Asian mineral dust with anthropogenic pollutants over East Asia: A model case study of a super-duststorm in March 2010 [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 12 (16): 7591–7607, doi: 10.5194/acp-12-7591-2012.
- Ma J Z, Xu X B, Zhao C S, et al. 2012. A review of atmospheric chemistry research in China: Photochemical smog, haze pollution, and gas-aerosol interactions [J]. Advances in Atmospheric Sciences, 29 (5): 1006–1026, doi: 10.1007/s00376-012-1188-7.
- Spracklen D V, Carslaw K S, Kulmala M, et al. 2008. Contribution of particle formation to global cloud condensation nuclei concentrations [J]. Geophys. Res. Lett., 35 (6): L06808, doi: 10.1029/2007GL033038.
- Turco R P, Hamill P, Toon O B, et al. 1979. A one-dimensional model describing aerosol formation and evolution in the stratosphere: Part I. Physical processes and mathematical analogs [J]. J. Atmos. Sci., 36 (4): 699–717, doi: 10.1175/1520-0469(1979)036<0699:AODMDA>2.0.CO;2.
- Wang Z, Maeda T, Hayashi M, et al. 2001. A nested air quality prediction modeling system for urban and regional scales: Application for high-ozone episode in Taiwan [J]. Water, Air, and Soil Pollution, 130 (1–4): 391–396, doi: 10.1023/A:1013833217916.
- Wang Z F, Akimoto H, Uno I. 2002. Neutralization of soil aerosol and its impact on the distribution of acid rain over east Asia: Observations and model results [J]. J. Geophys. Res., 107 (D19): ACH 6-1–ACH 6-12, doi: 10.1029/2001JD001040.
- Wang Z F, Li J, Wang X Q, et al. 2006. Modeling of regional high ozone episode observed at two mountain sites (Mt. Tai and Huang) in East China [J]. Journal of Atmospheric Chemistry, 55 (3): 253–272, doi: 10.1007/s10874-006-9038-6.
- Wehner B, Wiedensohler A, Tuch T M, et al. 2004. Variability of the aerosol number size distribution in Beijing, China: New particle formation, dust storms, and high continental background [J]. Geophys. Res. Lett., 31 (22): L22108, doi: 10.1029/2004GL021596.
- Wu Z J, Hu M, Liu S, et al. 2007. New particle formation in Beijing, China: Statistical analysis of a 1-year data set [J]. J. Geophys. Res., 112 (D9): D09209, doi: 10.1029/2006JD007406.
- Wu Z J, Hu M, Yue D L, et al. 2011. Evolution of particle number size distribution in an urban atmosphere during episodes of heavy pollution and new particle formation [J]. Science China Earth Sciences, 54 (11): 1772–1778, doi: 10.1007/s11430-011-4227-9.
- Yu F Q, Turco R P. 1997. The role of ions in the formation and evolution of particles in aircraft plumes [J]. Geophys. Res. Lett., 24 (15): 1927–1930, doi: 10.1029/97GL01822.
- Yu F, Turco R P. 2008. Case studies of particle formation events observed in boreal forests: Implications for nucleation mechanisms [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 8 (20): 6085–102, doi: 10.5194/acp-8-6085-2008.
- Yu F, Luo G. 2009. Simulation of particle size distribution with a global aerosol model: Contribution of nucleation to aerosol and CCN number concentrations [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 9 (20): 7691–7710, doi: 10.5194/acp-9-7691-2009.
- 王喜全, 王自发, 龚晏邦, 等. 2008. 北京城区热岛环流对山地—平原风的调节作用 [J]. 气候与环境研究, 13 (5): 639–644. Wang Xiquan, Wang Zifa, Gong Yanbang, et al. 2008. Modulation of urban heat island circulation on mountain–plain wind in the Beijing area [J]. Climatic and Environmental Research (in Chinese), 13 (5): 639–644.
- 王自发, 谢付莹, 王喜全, 等. 2006. 嵌套网格空气质量预报模式系统的发展与应用 [J]. 大气科学, 30 (5): 778–790. Wang Zifa, Xie Fuying, Wang Xiquan, et al. 2006. Development and application of nested air quality prediction modeling system [J]. Chinese Journal of Atmospheric Sciences (in Chinese), 30 (5): 778–790.