



大气气溶胶直接测量技术: 光学和化学特性评论

张玉容, 韩永*

中山大学大气科学学院, 空间大气物理前沿科学与技术组(ASAG), 珠海 519082

* 通讯作者, E-mail: hany66@mail.sysu.edu.cn

收稿日期: 2025-01-02; 收修改稿日期: 2025-06-26; 接受日期: 2025-08-29; 网络版发表日期: 2025-10-17

国家自然科学基金项目(42027804、41775026和41075012)和国家自然科学基金委员会共享航次计划项目(42349907)资助

摘要 准确测量气溶胶的光学和化学特性, 对于研究气溶胶的辐射强迫效应以及理解新粒子的形成、生长和演化过程具有重要意义. 本文评论了过去20年来气溶胶光学和化学特性直接测量技术的发展进程, 涵盖的气溶胶光学特性参数包括吸收系数、散射系数、消光系数和单次散射反照率. 本文总结了每类测量技术在实验室和现场应用中的优势、局限性与适用性, 并探讨了未来该领域在技术改进与仪器研发的发展方向. 此外, 本文简要阐述了气溶胶对气候系统与环境的潜在影响, 以及暴露于高浓度超细颗粒物所带来的健康风险. 建议提升现有技术的测量精度与环境适应性, 同时重点推动能够实现多光谱、多粒径范围参数同步测量的创新仪器研发. 这些直接测量技术的持续进步, 将为气溶胶科学研究及相关仪器的发展提供有力支撑.

关键词 气溶胶, 直接测量技术, 光学特性, 化学成分, 气候效应与健康风险

1 引言

大气气溶胶在调节地-气系统的辐射平衡以及气候系统能量收支中发挥着关键作用. 它们通过直接散射和吸收太阳辐射, 以及与云的相互作用影响大气辐射过程(Stephens等, 2015; Li等, 2022; IPCC, 2023; Che等, 2024). 在量化人类活动引起的大气成分变化相关的辐射强迫时, 气溶胶辐射效应仍是最大的不确定性来源之一(Bellouin等, 2020; IPCC, 2023). 这种不确定性主要来源于气溶胶光学性质的多样性及其强烈的时空变化特征, 而这些性质又受其化学成分和微物理特性的影响(Lee等, 2016; Ramaswamy等, 2019; Bellouin等, 2020). 不同类型的气溶胶, 如硫酸盐、硝酸

盐、黑碳和棕碳等, 在太阳辐射的散射和吸收能力上存在显著差异(Li等, 2022), 而这些差异根本上与其化学组分的种类、比例及混合状态密切相关. 此外, 大气过程如老化以及内部或外部混合等也会显著改变气溶胶的光学性质, 进而增加其辐射影响评估的复杂性(Liu等, 2016; Yao等, 2022). 因此, 对气溶胶光学和化学性质的可靠观测无疑对深化气溶胶-辐射相互作用的理解、减少气候强迫估计中的不确定性具有重要的科学意义.

气溶胶粒子通常根据粒径被分为成核模、积聚模和粗模(Whitby, 1978; Seinfeld和Pandis, 2016)等三种模态. 其中, 超细粒子(UFPs, 粒径<100nm)在气溶胶数浓度中占主导地位. 由于具有较大的比表面积和对有

中文引用格式: 张玉容, 韩永. 2025. 大气气溶胶直接测量技术: 光学和化学特性评论. 中国科学: 地球科学, 55(11): 3590–3619, doi: 10.1360/N072025-0002

英文引用格式: Zhang Y, Han Y. 2025. Direct measurement techniques for atmospheric aerosol: Optical and chemical properties review. Science China Earth Sciences, 68(11): 3454–3481, <https://doi.org/10.1007/s11430-025-1681-y>

毒有机化合物的强吸附能力, UFPs对人体健康构成显著威胁(Kwon等, 2020). 高浓度的UFPs还会影响云凝结核(CCN)的形成, 进而影响全球气候系统(Pierce和Adams, 2007; Fan等, 2018). 此外, 诸如黑碳等吸光性UFPs可经历凝结和包覆等过程, 形成更大的吸光团聚体, 显著改变其光学特性(Zhang等, 2025). 因此, 深入认识UFPs在气候、环境及健康风险方面的影响, 对于减少气候模型不确定性、改善空气质量管理 and 开展健康风险评估至关重要.

气溶胶环境效应研究的深入开展, 高度依赖于先进测量技术的持续发展与应用. 近年来, 研究人员开发了多种技术用于获取气溶胶性质. 基于卫星遥感观测和数值模式模拟的技术, 可提供全球尺度的气溶胶数据, 在环境监测和气候预测中发挥着至关重要的作用(Kanakidou等, 2005; Yang等, 2013; Kokhanovsky, 2013; 李正强等, 2019; Palmer, 2019; Si等, 2021; Chen等, 2022). 然而, 这些技术通常需要其他数据进行校正与验证. 相比之下, 直接测量技术可提供高精度的实时观测数据, 不仅有助于深化对气溶胶光学性质和化学组成的理解, 也是校准遥感数据、提高其准确性不可或缺的关键手段. 因此, 本文将重点综述近年来气溶胶直接测量技术的进展.

迄今为止, 关于气溶胶测量技术的发展已有诸多报道. 诸如McMurry(2000)和韩永等(2008)系统探讨了气溶胶性质测量的基本原理与早期进展. 近年, Zhang和Han(2025)综述了近20年来气溶胶物理性质测量的发展情况. 在光学性质测量方面, Li J等(2011)回顾了主要的气溶胶测量技术, Liu等(2023)总结了数值模拟、地基观测和遥感反演在气溶胶光学参数研究中的应用进展, Nakayama等(2021)聚焦于光谱测量技术的发展, Moosmüller等(2009)则对气溶胶光吸收测量技术进行了深入综述, Li J等(2011)和曹渊等(2021)重点探讨了光声光谱技术(PAS)在多种应用场景中的发展与挑战. 在化学成分分析方面, Zhou W等(2020)研究了自2001年以来亚洲地区气溶胶化学组成的时空演变, 强调了气溶胶质谱仪(AMS)的能力. Zhang等(2022)进一步回顾了用于大气团簇及小于20nm气溶胶粒子的在线实时测量技术. 此外, 非弹性散射光谱技术也被广泛用于气溶胶化学表征. 例如, Pan(2015)综述了激光诱导荧光(LIF)在生物气溶胶和有机碳颗粒检测中的应用, Estefany等(2023)总结了

拉曼光谱在气溶胶成分分析中的最新进展与新兴趋势等.

据我们所知, 过去20年来, 由于新技术的快速发展, 尚缺乏同时涵盖气溶胶光学和化学特性直接测量技术的综合评述. 为填补这一研究不足, 本文尽可能全面地评论用于直接测量气溶胶吸收系数、散射系数、消光系数、单次散射反照率(SSA)以及化学组成的关键技术. 本综述重点介绍各类测量技术的基本原理, 评估其优势与局限性, 并探讨未来的技术发展方向和仪器改进建议. 此外, 还简要讨论了气溶胶在气候与环境系统中的潜在影响, 以及暴露于高浓度UFPs所引发的健康风险.

2 气溶胶光学特性直接测量技术

气溶胶通过吸收和散射太阳辐射直接影响全球气候(Jacobson, 2001; Menon等, 2002; Li等, 2022), 同时也可通过与云的相互作用间接影响气候系统(Koren等, 2004; Lack等, 2009a; Cappa等, 2012). 气溶胶与辐射的相互作用, 主要表现为散射和吸收过程等光学性质. 辐射与颗粒之间的散射、吸收或二者共同作用, 会导致入射光的削弱, 即消光现象. 此外, 可通过测量消光系数(α_{ext})与散射系数(α_{scat}), 来计算SSA, 该参数表示散射光占总衰减光的比率(Abo Riziq等, 2007; Liu等, 2014). 气溶胶的光学性质与其物理和化学特性密切相关. 目前, 多种气候模型已被广泛用于计算混合组分气溶胶的辐射特性, 但在选择最合适的模拟方法方面仍存在较大不确定性. 与消光和散射测量相比, 气溶胶光吸收的测量通常具有更大且尚不明确的不确定性(Sheridan等, 2005). 因此, 为了降低气溶胶辐射强迫估算的不确定性, 提升气溶胶光学性质测量的精度至关重要. 图1展示了气溶胶光学性质的主要测量技术, 本节重点介绍了相关实验设计、测量原理以及优缺点.

2.1 光散射系数

气溶胶的光散射过程是影响大气辐射传输的关键因素(Liou和Takano, 1994). 散射特性的变化能够显著影响地-气系统中的行星反照率, 进而改变地球的能量平衡, 并可能引发气候变化(Emde等, 2010; Dou等, 2012). 此外, 气溶胶的散射信息作为其物理参数的载体, 可用于有效反演粒径谱和复折射率(也称复折射指

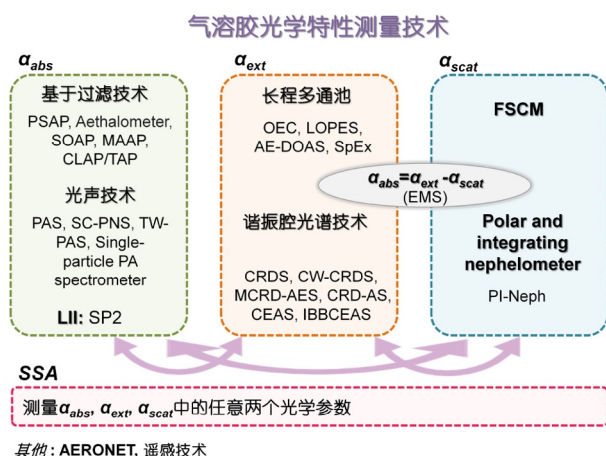


图1 气溶胶光学特性测量技术概述

各测量技术的缩略词(例如, PSAS、SOAP、MAAP等)列于网络版附表S1中

数)等特性。为深入理解这些过程, 构建高精度的散射模型与散射测量技术至关重要。

2.1.1 前向散射仪

前向散射能见度仪(FSCM)是一种通过测量大气中特定角度的前向散射光强来量化 α_{scat} , 从而获取大气能见度的仪器(Winstanley和Adams, 1975; 韩永等, 2008)。 α_{scat} 的计算是通过在接近主散射角(约33°)的视场内测量散射光强实现的, 随后再通过光电转换方法计算出大气能见度。然而, 需要注意的是, 主散射角附近的散射相函数对气溶胶变化较为敏感。若采用固定的大气散射相函数值, 可能会导致超过10%的测量误差。因此, FSCM在使用过程中需在多种气象条件下布点, 以获取相应的散射相函数, 从而实现更为精确的能见度评估(孙学金等, 2009)。目前, FSCM已被广泛应用, 并已实现商业化。

2.1.2 偏振与积分浊度计

积分浊度计(IN)可用于定量测量气溶胶对光的总散射量(Beuttell和Brewer, 1949)。通过引入光子计数探测器(Charlson等, 1974), IN能够测量低至 0.1 Mm^{-1} 的 α_{scat} , 该数值约为正常大气压下无颗粒空气 α_{scat} 的1%。然而, 典型的IN很难真正测量全空间的散射光, 通常只能在 $7^\circ \sim 170^\circ$ 的视角范围内工作(Anderson T L等, 1996; Varma等, 2003; Bond等, 2009; Miles等, 2011)。

对于亚微米颗粒, 典型的截断误差约为10%~15%(Anderson J R等, 1996; Ensor和Waggoner, 1970; Sloane等, 1991)。随着颗粒粒径的增大, 粗粒子($>5 \mu\text{m}$)在散射中的贡献被显著低估, 误差可能高达50%, 这主要由于粗粒子易在采样入口沉积。此外, 在高湿条件($\text{RH} > 90\%$)下, 气溶胶加热引起的液滴蒸发误差也可能显著(McMurry, 2000)。因此, α_{scat} 的现场测量通常在 RH 低于30%~40%条件下进行(Titos等, 2016), 这也意味着这种测量并不能完全代表真实环境条件。目前已部署多种加湿系统, 旨在揭示吸湿过程对散射增强的影响。其中一种方法是使用两个或三个浊度计, 在固定 RH 水平下测量气溶胶散射特性(Hegg等, 2002; Pekour等, 2013); 另一种则为扫描 RH 系统(Andrews等, 2006)。由于扫描时间较长(通常需数十分钟), 它不适用于机载应用。因此, 机载测量通常采用固定湿度系统进行。

IN可测量多分散粒子系统的总 α_{scat} 。为了获得浑浊介质中光散射的更全面数据, 还需测量角向散射分布, 如偏振浊度计。一类是采用单个探测器围绕散射体旋转, 从而在不同时刻测量各方向上的散射光强(Tyler和Richardson, 1958; Quiney和Carswell, 1972; Hansen和Evans, 1980); 另一类则是使用一系列探测器围绕散射体排列, 同时测量各方向上的散射光(Gayet等, 1997; Barkey和Liou, 2001; Hespel等, 2001)。相较而言, 前者角度分辨率高, 但测量速度较慢; 如果散射体随时间发生变化, 不同角度的测量结果不能准确反映该散射体的散射情况。后者虽角度分辨率较低, 但可同时测量同一散射体在不同角度的 α_{scat} 。随着现代光纤技术的发展, 可将光纤环绕散射腔排列, 采集各方向散射光并传送至探测器, 从而显著提升角度分辨率。此外, 光纤阵列与扫描盘的有效利用使得使用单个光电倍增管探测散射光成为可能, 从而实现单粒子 α_{scat} 测量(Ulanowski等, 2002)。

受偏振浊度计的启发, 开发了一种旋转共焦成像系统, 可在 55° 视场范围内($70^\circ \sim 125^\circ$)快速扫描散射相函数(Castagner和Bigio, 2007)。该系统不仅可实现快速扫描, 还可通过对连续扫描结果进行平均以显著提升信噪比, 从而扩展检测系统的动态范围。另一种原位仪器是偏振成像浊度计(PI-Neph)(Dolgos和Martins, 2014), 结合成像技术, 能够在 $3^\circ \sim 176^\circ$ 的宽角度范围内, 同时测量三个波长(473、532和671nm)的散射光强, 获取 α_{scat} 及其角向分布。PI-Neph可测量最低至 10 Mm^{-1} 的

散射强度, 适用于许多气溶胶条件下AERONET灵敏度不足的情况, 并已应用于机载观测(Espinosa等, 2017, 2018, 2019).

2.2 消光系数

气溶胶的光学消光是由其对光的散射与吸收共同作用所引起的(徐学哲等, 2014). 目前, 常用的测量技术包括长程多通池与高灵敏度腔增强光谱技术.

2.2.1 长程多通池

长程多通池是实现直接、有效测量 α_{ext} 的重要工具(见表1). Virkkula等(2005b) 开发的光学消光池(OEC)可用于测量467、530和660nm波长下的 α_{ext} , 但其光学路径仅为330.2cm. 长光程消光光谱仪(LOPES)(Schnaiter等, 2005)是一种新型的折叠路径消光池, 光程长度可达10m, 光谱覆盖范围为中紫外(200nm)至近红外(1015nm), 具有2.5nm的光谱分辨率, 最低检测限为20Mm⁻¹. 在上述研究中, 由于光程长度的限制, 它们更适用于实验室气溶胶或环境中近源气溶胶羽流的检

测(Chartier和Greenslade, 2012).

为进一步提升光程长度, Chartier和Greenslade(2012)开发了多程气溶胶消光差分吸收光谱仪(AE-DOAS), 可实现从中紫外至近红外波段的 α_{ext} 直接测量. 该系统由一个光谱仪与White多通道反射池(White, 1942)连接组成, 其光程可调节至约20m. AE-DOAS对PSL颗粒的 α_{ext} 测量平均检测限为32.5Mm⁻¹. White池是一种相对稳定的三镜结构, 能够接受大数值孔径的入射光束, 但需要更大的体积来实现更长的光路. Jordan等(2015)提出的光谱气溶胶消光仪(SpEx)是在AE-DOAS基础上的改进版本, 可实现300~700nm范围内环境气溶胶消光的原位测量, 具备更快的数据采集速度和更高的灵敏度. SpEx在50s积分时间下的检测限为3.5~5.7Mm⁻¹, 能够同时监测气溶胶光学、化学及物理性质的演变过程. 张启磊等(2015)采用Chernin多通池(Chernin, 2001)测量了粒径为250nm的单分散硫酸铵气溶胶在300、532和600nm波长下的 α_{ext} , 其对应的消光截面分别为1.410×10⁻⁹、3.727×10⁻¹⁰和2.948×10⁻¹⁰cm². Chernin池由五个具有相同曲率半径的凹面

表 1 α_{ext} 测量技术概述

仪器	光程长度/光源类型	波长(nm)	检测限	参考文献
OEC	330.2cm	467、530和660nm	30Mm ⁻¹ (蓝光和绿光); 15Mm ⁻¹ (红光)	Virkkula等, 2005b
LOPES	10m	紫外(200nm)至近红外(1015nm)	20Mm ⁻¹	Schnaiter等, 2005
AE-DOAS	约20m	220~1050nm	32.5Mm ⁻¹ (235~700nm, 平均值); 最低检测限(180s)为12.6Mm ⁻¹ (366nm)和6.2Mm ⁻¹ (350nm)	Chartier和Greenslade, 2012
SpEx	最优路径长度为39.4m	300~700nm	12~23Mm ⁻¹ (3 σ); 3~6Mm ⁻¹ (小时平均)	Jordan等, 2015
Chernin cell	38.4m	300nm, 532nm和600nm	探测灵敏度为18Mm ⁻¹ (5s 积分时间, 30次平均); 消光截面(单分散硫酸铵)为1.410×10 ⁻⁹ 、3.727×10 ⁻¹⁰ 和2.948×10 ⁻¹⁰ cm ²	张启磊等, 2015
CW-CRD	数千米	690nm和1550nm	最低灵敏度: 1.5×10 ⁻⁶ m ⁻¹ (1.5Mm ⁻¹)	Strawa等, 2003
MCRD-AES	—	360~663nm	0.5Mm ⁻¹	Li J等, 2019
CRDS (open-path)	开放光路	674.22nm (中心波长)	0.05Mm ⁻¹ (1 σ)	Gordon等, 2015
	宽带激光	400~550nm	估计净精度6.7%; 15Mm ⁻¹ (3 σ)	John等, 2021
	氙灯	335~375nm	总不确定约7%(352nm)	Chen和Venables, 2011
IBBCEAS	LED	360~390nm; 385~420nm	折射率: nigrosin为(1.78±0.03)+(0.19±0.08)i(360nm)和(1.63±0.03)+(0.21±0.05)i(420nm); Suwannee River fulvic acid为 (1.71±0.02)+(0.07±0.06)i(360nm)和 (1.66±0.02)+(0.06±0.04)i(420nm)	Washenfelder等, 2013
	非相干钨丝灯	570~590nm	3.4~35Mm ⁻¹	Thompson和Spangler, 2006

反射镜组成, 相较于White池, 具有更高的腔体镜面利用率、更小的体积、更优的像差控制能力及更高的稳定性(Olson, 1984; Reesor, 1951). 该系统在38.4m光程下的检测限为 18Mm^{-1} .

为了在大气环境中实现更精确的 α_{ext} 测量, 仪器的探测灵敏度必须超过 1Mm^{-1} (Moosmüller等, 2005). 长程多通池技术具有中等灵敏度, 更适用于实验室或近源气溶胶的观测, 其灵敏度可通过延长光程加以提升. 然而, 在实际应用中, 长光程透射测量可能受到大气光学扰动和热透镜效应的影响, 从而引入系统误差.

2.2.2 谐振腔光谱技术

为克服有限光程对 α_{ext} 精确测量所带来的限制, 一个可行的方案是引入在紧凑的高反射率装置中实现更长的光路, 例如腔衰荡光谱(CRDS)和腔增强吸收光谱(CEAS)技术. 此类方法能够在紧凑的吸收池(通常约1m)内实现从数公里至数十公里的有效光程, 从而显著提高检测灵敏度(Bulatov等, 2002; Thompson等, 2002; Strawa等, 2003; Moosmüller等, 2005).

CRDS由O'Keefe和Deacon(1988)首次提出, 自此迅速发展. CRDS最初被用于环境颗粒物检测(Sappey等, 1998), 随后拓展至实验室和现场条件下的 α_{ext} 测量(Smith和Atkinson, 2001). 目前, CRDS技术已广泛应用于该研究领域. Strawa等(2003)率先将连续波腔衰荡(CW-CRD)技术用于气溶胶研究, 利用690nm和1550nm波长的二极管激光器, 实现了约 $1.5 \times 10^{-6}\text{m}^{-1}$ 的最小 α_{ext} 检测限. 在与腔体 90° 的位置放置散射探测器, 不仅能够获取 α_{scat} , 同时也可测得 α_{ext} , 从而直接推导出SSA.

典型的CRDS系统可实现快速且精确的测量, 但通常受限于离散的激光波长. 过去十年中, CRDS在拓展波长范围方面取得了显著进展(表1). Miles等(2010)开发了一种可覆盖540~570nm波段的CRDS系统, 用于测量 α_{ext} . 近年来, Li J等(2019)构建了多波长腔衰荡气溶胶消光光谱仪(MCRD-AES). 该仪器利用可调谐光源及四个并联腔体, 波长覆盖从紫外到近红外(360~663nm), 最低可检测 α_{ext} 为 0.5Mm^{-1} . 这些宽带光谱仪器进一步证实了波长测量在气溶胶光学特性研究中的巨大潜力. 此外, CRDS技术也已应用于高湿度环境下的测量. 例如, Michel Flores等(2012)利用加湿腔环形气溶胶光谱仪(CRD-AS)测量了80%和90% RH条件下的 α_{ext} . 当RH超过90%~95%时, 由于冷凝及大颗粒

损失, 实验操作难度大幅增加. 一种新型开路气溶胶CRDS系统有效改善了多尘和潮湿环境中的 α_{ext} 测量, 从而确定了高RH条件下(>90%)气溶胶消光增强因子的有效测量(Gordon等, 2015). 该系统在1s平均时间内的 1σ 检测限为 0.05Mm^{-1} , 与传统闭路CRDS相当, 并可用于机载部署以校验证气溶胶光学厚度(AOD)的遥感测量. 此外, 将CRDS与光镊技术相结合, 可实现从整体气溶胶测量向单颗粒粒子测量的转变(Cotterell等, 2014; Wang C等, 2015).

与传统吸收光谱技术不同, CRDS优势在于它不依赖激光束的绝对能量, 从而确保测量精度不受激光输出波动特性的影响. CRDS在稳定、高精度的光学腔内实现了极长的有效光程(数公里)(Thompson和Spangler, 2006), 提供了超高灵敏度, 适用于痕量气溶胶的野外观测以及高湿环境下的测量. 相比之下, 基于二极管激光器的CEAS技术则通过测量透射谐振腔的光强来获取 α_{ext} (Engeln等, 1998). CEAS在保留传统直接吸收光谱技术操作简便性的同时, 兼具高灵敏度与结构稳定性. 尽管CEAS在稳健性和光谱分辨率方面表现出色, 但其在宽波段, 尤其是短波波段应用方面仍显不足(Engeln等, 1998). 非相干宽带腔增强吸收光谱(IBBCEAS)(Fiedler等, 2003)是近年来发展起来的一种新型技术, 可视为CEAS与传统吸收光谱的结合体, 在保持高灵敏度的同时, 进一步简化了结构. IBBCEAS具有CEAS的所有优势, 包括高灵敏度、结构紧凑、稳定性强及短积分时间(通常为数秒至数分钟). 尽管其光谱分辨率低于CEAS和基于二极管激光器的其他技术, 但仍易于实现 1cm^{-1} 以下的分辨率. 目前, IBBCEAS正迅速发展, 可用的光源包括宽带激光器(John等, 2021)、氙灯(Chen和Venables, 2011)、LED(Gherman等, 2008; Langridge等, 2008; Washenfelder等, 2013)及钨灯(Thompson和Spangler, 2006), 成功应用于对大气痕量气体和气溶胶的高灵敏度检测(Washenfelder等, 2013; Zhao等, 2013). 具体仪器参数见表1.

2.3 光吸收系数

吸光性气溶胶主要由碳质气溶胶和矿物尘埃组成(Moosmüller等, 2009), 其对全球辐射强迫的影响仅次于 CO_2 (1.56W m^{-2}), 与 CH_4 (0.47W m^{-2})相当(Andreae和Gelencsér, 2006; Jacobson, 2001; Radney等, 2017). 气溶

胶光吸收对气候变化和空气质量方面的相关影响存在很大的不确定性, 包括对人类健康(Pope III和Dockery, 2006)及大气能见度(Chow等, 2002)的潜在影响, 因此推动了相关测量技术的不断发展. 在理论计算方面, 对于球形颗粒的吸收率, 可采用米散射理论(Kerker, 1969)进行求解. 然而, 针对任意形状颗粒的光吸收计算则需借助近似模型或更高阶的数值方法, 如T矩阵方法和离散偶极子近似(DDA)(Draine和Flatau, 1994; Mishchenko等, 1996), 这些方法可能引入一定程度的不确定性. 实现对气溶胶吸收特性的定量测量仍是一项挑战. 目前已有多种离线测量技术广泛应用于气溶胶研究中. 例如, 热/光学碳分析仪(如DRI2015和DRI2001)通常用于分析基于滤膜采样的光学吸收特性, 尤其适用于研究棕碳和识别碳质气溶胶的来源(Chen等, 2015; Zhang等, 2021). 此外, 液体波导毛细管池(LWCC)(Páscoa等, 2012)结合颗粒物采样器(如颗粒入液采样器, Brechtel 4001型号)及分析仪器(如总有机碳分析仪, Sievers 900型号), 可用于测量 α_{abs} (Bali等, 2024). 然而, 关于离线测量技术此处不再详细讨论, 我们将重点介绍用于确定 α_{abs} 的在线直接测量技术, 并讨论各技术的潜在系统误差及降低策略.

2.3.1 基于过滤器的技术

用于测定 α_{abs} 的最广泛使用的仪器是滤光光度计(表2). 通过基于实时滤波器的气溶胶光吸收测量方法来持续监测滤波器的透射率, 从而根据透射率的时间变化获得实时 α_{abs} . 常见仪器包括颗粒烟尘吸收光度计(PSAP, 由Radiance Research制造)(Bond等, 1999; Virkkula等, 2005a)及Magee Scientific公司推出的Aethalometer(包括单波长和最多七波长版本)(Arnott等, 2005; Hansen等, 1984; Weingartner等, 2003). 与PSAP类似的光谱吸收光度计(SOAP)(Müller等, 2009)采用氙-卤素宽光谱光源, 并结合光谱仪, 能在300~800nm范围内测量 α_{abs} , 有效光谱分辨率为50nm. 然而, 传统基于过滤的方法容易受到滤膜材料及沉积在滤膜表面的气溶胶颗粒多重散射的影响, 产生较大测量误差(Virkkula等, 2007). 多角度吸收光度计(MAAP, ThermoESM/Anderson)通过测量不同角度的滤膜正面反射率来校正这些误差, 从而更准确估算气溶胶及滤膜介质的多重散射效应(Petzold等, 2005; Petzold和Schönlinner, 2004). MAAP在流速为 16.7 L min^{-1} , 2min平均

的条件下, 其检测下限约为 1 Mm^{-1} .

尽管以上设备在 α_{abs} 检测方面有广泛应用, 但在长期监测中仍表现出局限性. 例如, MAAP仅提供单波长测量; PSAP可能需要频繁(每小时至每日)更换滤膜; 而Aethalometer缺乏广泛认可的校准方案(Collaud Coen等, 2010). 为克服这些不足, Ogren等(2017)开发出连续光吸收光度计(CLAP), 其商业版本为三色吸收光度计(TAP). TAP在467、528和652nm三个中心波长处进行测量, 可用于评估SSA及吸收Ångström指数(AAE)等气候相关光学参数的光谱依赖性. TAP的检测下限可达 0.02 Mm^{-1} , 每小时平均精度为4%.

上述仪器均使用纤维状滤膜基底, 这有助于增强粒子的多次散射光吸收和信号放大, 从而提高了灵敏度, 但也使仪器校准变得更复杂(Lewis等, 2008; Moosmüller等, 2009). 相较于原位测量仪器, 这类技术易于使用、成本较低且适合无人值守, 但容易产生伪影. 据文献报道, 基于滤膜的非原位吸收测量方法的不确定性可高达20%~30%(Cremer等, 2017). 因此, 在使用基于滤波的方法进行测量时, 必须进行校准实验以降低和量化其不确定度. 目前最直接的校准方式是通过 α_{ext} 与 α_{scat} 之差来估算 α_{abs} , 这一方法已被作为一种吸收估算准则加以应用.

目前基于地面的 α_{abs} 测量缺乏垂直分布信息, 而这些信息对于完善大气模型和准确量化气溶胶辐射强迫具有重要意义. 利用微型传感器的无人机系统(UAS)或系留气球可以经济高效地获取高分辨率的垂直剖面数据, 成为弥补观测空白的重要手段. Pikridas等(2019)全面评估了三种商业化微型吸收监测仪: AE51、单通道三色吸收光度计(STAP)和基于AE51构建的双波长原型仪(DWP)(规格见表2). 结果表明, STAP与DWP在 α_{abs} 测量方面与AE33具有很强的一致性, 而AE51的相关性较弱($R^2=0.76$), 这可能主要源于其信噪比较差. 在880nm处观察到对 α_{abs} 的系统性高估, 相对于AE33, STAP高估了约+10%, AE51高估了约+40%, DWP高估了约+30%. 然而, 在对飞行数据应用平滑算法后, DWP与AE51表现出良好一致性, 而STAP始终低估约12%, 这一偏差与地面验证结果一致. 这些结果凸显了UAS平台在大气气溶胶研究方面的巨大潜力. 通过实现高分辨率垂直剖面分析, 此类系统非常适合弥补气候敏感地区的关键观测空白, 代表着气溶胶监测能力的显著进步(B等, 2025).

表 2 基于滤光片的实时光吸收测量技术概述

仪器	波长(nm)	检测限	黑碳浓度	厂商
PSAP	467、530和660nm	低估5%~7%; 散射校正(3 λ PSAP)由0.013(467nm)提高至0.020(660nm)	—	Radiance Research Inc.
AE33	370、470、520、590、660、880和950nm		<0.005 $\mu\text{g m}^{-3}$ (1h平均)	Magee Scientific Company http://www.mageesci.com
SOAP	300~800nm, 分辨率50nm	不确定度: 0.6 Mm^{-1} (300nm)、0.3 Mm^{-1} (600nm)和0.5 Mm^{-1} (700nm)(10min平均)	—	—
MAAP (model 5012)	670nm	<0.66 Mm^{-1} (2min平均); <0.33 Mm^{-1} (10min平均); <0.13 Mm^{-1} (30min平均)	<100 ng m^{-3} (2min平均); <50 ng m^{-3} (10min平均); <20 ng m^{-3} (30min平均)	Thermo Fisher Scientific Inc. http://www.thermo.com
CLAP	467、528和652nm	0.02 Mm^{-1} ; 小时精度4%; 不确定性为20%~40%	—	Tricolor Absorption Photometer
STAP (formerly ABS)	450、525和624nm	~0.2 Mm^{-1} (60s平均)	—	Brehtel Inc
AE51	880nm	—	0~1 mg m^{-3} ; (± 0.100) $\mu\text{g BC m}^{-3}$ (1min平均)	Aethlabs
DWP	370nm和880nm	—	0~1 mg m^{-3} ; (± 0.100) $\mu\text{g BC m}^{-3}$ (1min平均)	改进自AE51

2.3.2 光声法

自1977年起, 光声光谱技术(PAS)被广泛应用于气溶胶光吸收特性的测量, 并迅速发展成为一种原位、高时间分辨率的直接测量技术(Terhune和Anderson, 1977). 在早期阶段, PAS主要基于单波长光源进行测量. Arnott等(2006)首次使用PAS量化高空气溶胶在红光波段(676nm)的 α_{abs} . 近年来, Davies等(2019)使用PAS评估了TAP的性能, 结果表明两者具有良好相关性, 但基于滤膜的测量普遍高估了吸收强度, 偏差高达45%, 且该偏差随波长及所采用的校正方法而异. 与基于过滤的技术不同, PAS不易受颗粒在滤膜上沉积和浓集的影响, 其灵敏度主要取决于激光功率. 为了提升系统灵敏度, Lack等(2006)将PAS与腔衰荡系统相结合, 利用532nm激光测量气溶胶的光吸收和SSA. 通过激光在光声池中的多次反射, 有效提升了光强, 使系统的检出限显著提高到0.08 Mm^{-1} , 仪器整体精度约为5%. 相比于精度为20%~35%(不考虑滤膜散射响应)的滤膜法, 该系统显著降低了测量不确定性.

气溶胶对太阳辐射的吸收与散射效应通常取决于粒子显著的波长相关性, 因此拓宽测量波段范围对于有效获取全面的气溶胶吸收光谱至关重要. Lewis等(2008)提出采用两束功率调制激光器(405nm和870nm)构建双波长PAS仪器, 同时测量气溶胶和气体

在紫外至近红外波段的光吸收与散射. 相比于单波长PAS, 双波长PAS能在更短采样时间实现效率最大化, 且仅需在单个波长下进行校准, 从而简化操作并最大程度地减少误差. 基于此原理, 开发出首台三波长光声烟尘光谱仪(PASS-3), 可同步测量405、532和781nm三个波长的 α_{abs} 、 α_{scat} 和 α_{ext} . Ajtai等(2010)将Nd:YAG激光器(基波为1064nm, 谐波为532、355和266nm)与四个光声池组合, 能够测量从紫外至近红外光谱范围内烟尘或烟尘气溶胶混合物随波长变化的 α_{abs} , 进一步扩展了波长光谱. 然而, 该系统结构复杂, 且体积较大. 为进一步扩展波段覆盖并提升便携性, Sharma等(2013)创新性的提出多波长光声浊度光谱仪(SC-PNS), 它将白光超连续谱激光器与光声和浊度仪相结合, 可测量417、475、542、607和675nm五个波段的 α_{abs} 与 α_{scat} , 所用超连续光源波长范围覆盖400~2200nm, 目标波段由光学干涉滤光片选取. 最近, Cao等(2021)研发了基于单一光声池-多腔耦合的三波长光声光谱仪(TW-PAS). 该系统在单一光声池内耦合三个共振频率不同的声腔, 可实现404、637和805nm三束激光同时工作, 且无信号干扰. 所有声信号均由一个麦克风检测, 测量结果与已有研究数据一致, 展示出良好的一致性与稳定性.

PAS已被广泛应用于气溶胶粒子集合的研究(Gya-

wali等, 2012; Krieger等, 2012; McMurry, 2000), 但其是否适用于单颗粒气溶胶的研究仍存在争议. 单个气溶胶粒子作为气溶胶集合体的基本单元, 具有独特的化学组成信息. 在过去的十年中, 单个气溶胶粒子的光学捕获取得了实质性进展(Wang C等, 2015; Gong等, 2018). Mitchem等(2006)结合光镊与拉曼光谱技术, 研究了空气中单个气溶胶液滴的热力学性质; 此外, Rkiouak等(2014)报道了通过光镊捕获的单个球形固体粒子的拉曼光谱. 这些研究极大地推动了单颗粒气溶胶光学性质的研究. 为实现单颗粒气溶胶地光吸收测量, Cremer等(2016)首次将光镊与PAS结合, 研制出首个单粒子光声光谱仪, 成功对单个光学捕获的纳米液滴进行光声测量, 验证了激光捕获结合PAS进行单液滴测量的可行性. 由此可见, 基于光镊的PAS技术在单颗粒气溶胶吸收特性研究中具有良好的发展潜力.

环境条件(如RH)对气溶胶光学特性具有显著影响. Langridge等(2013)首次评估了PAS在高RH条件下测量吸收的适用性. 结果表明, 在干燥条件和90%RH之间, PAS的灵敏度显著增加约1.25倍. 但亲水性颗粒在高RH下显示出强烈的低偏差, 在90%RH时低至0.4. 相反, 另一些研究(Lack等, 2009b)发现PAS信号随RH升高而增强. 这些现象可能源于气溶胶光学吸收性质在高RH下的变化, 也可能是光声信号在湿润条件下存在系统性偏差所致(Diveky等, 2020).

PAS不受散射效应的影响, 在气溶胶吸收测量中展现出独特优势(Cremer等, 2017). 目前, PAS正处于快速发展阶段, 同时实现多波长检测已成为主流(Wang G等, 2019; 陈杰等, 2020; Cao等, 2021). PAS为评估气溶胶对全球辐射强迫与气候变化影响提供了有效的测量手段, 并被广泛认可为一种实用的痕量气体与气溶胶测量技术(Haisch, 2012; Liu等, 2018; Yu等, 2019; 曹渊等, 2021).

2.3.3 消光减散射技术

获取 α_{abs} 的间接方法主要为消光减散射技术(EMS). 该方法通过OEC、CRDS、CEAS等技术测量 α_{ext} , 再利用正向散射能见度仪、IN等设备测量 α_{scat} , 二者之差即为 α_{abs} (Strawa等, 2003; Moosmüller等, 2005). 理想情况下, 应同时进行两项测量, 以最大限度减少由于样品的时空不均匀性所引起的系统误差, 并提高测量灵敏度. 在实际应用中, α_{scat} 与 α_{ext} 通常由不

同仪器独立测量, 这可能导致测量过程中样品温度变化、RH差异, 以及在高湿条件下吸湿性颗粒粒径变化等问题, 进而引入 α_{abs} 计算误差(Moosmüller等, 2009). 值得注意的是, 由于这两项的测量均存在不确定性, EMS法往往会产生SSA大于1的不合理结果, 尤其在高值SSA情况下, α_{abs} 是由两个近似值相减得到的, 这种相减误差会被显著放大(Fischer和Smith, 2018). 因此, 亟需开展深入的交叉比对研究, 以降低不确定性.

还有一些直接测量 α_{abs} 的技术, 我们在此仅作简要介绍. 例如, 基于折叠式Jamin干涉仪装置可实现约 0.2Mm^{-1} 的 α_{abs} 灵敏度(Sedlacek, 2006; Sedlacek和Lee, 2007). 与共振光声仪器相比, 它的优势在于能够灵活调整调制频率, 从而避开背景噪声的共振频带, 提升信噪比. 激光诱导白炽(LII)是一种用于表征耐热气溶胶光吸收特性的技术, 通过高功率密度激光束将光吸收性气溶胶加热至极高温度, 随后检测其在可见光或近可见光波段的热辐射或白炽发光信号. LII技术通常原位测量烟尘颗粒, 例如单颗粒烟尘光度计(SP2)(Stephens等, 2003; Baumgardner等, 2004; Schwarz等, 2006). 与其他方法相比, SP2的独特优势在于可测量单个颗粒中难挥发性黑碳的质量及其混合状态. 然而, 在重污染环境中, SP2存在一定测量偏差. SP2和其他LII仪器虽基于气溶胶光吸收原理, 但并不直接量化 α_{abs} , 通常需要将获得的黑碳质量浓度乘以估算的黑碳质量吸收效率来间接获得(Moosmüller等, 2009).

除直接测量技术外, 遥感技术作为一种重要手段, 近年来在全球范围内广泛用于探测气溶胶光吸收特性(Dubovik等, 2019; Si等, 2021; Chen等, 2022). 例如激光雷达系统(Comerón等, 2017; Ceolato和Berg, 2021)、太阳光度计(Nakajima等, 2020; Xia等, 2021), 以及基于卫星的遥感探测系统(Kaufman等, 2002; Hersey等, 2015). 目前, 遥感与现场直接测量技术相结合已成为综合分析气溶胶光学特性的关键手段.

2.4 单次散射反照率

SSA定义为 α_{scat} 与 α_{ext} 之比, 数值范围从0(完全吸收性颗粒)到1(完全散射性颗粒)(Heintzenberg等, 1997; Hallquist等, 2009; Ramanathan等, 2001). SSA反映了气溶胶吸收与散射之间的相对强度, 是决定气溶胶辐射强迫效应(正或负)的关键参数之一(Russell等, 2002). 不同气溶胶类型的SSA差异显著, 且在不同波

长下表现出不同的变化趋势(Wang J等, 2015). 目前, SSA的测量仍存在较大偏差, 难以达到理想的精度水平(Russell等, 2010). 因此, 准确量化SSA对于研究气溶胶辐射强迫尤为重要.

α_{ext} 是 α_{abs} 与 α_{scat} 之和, 因此, SSA的常用测定方法为测量上述三个光学参数中的任意两个. 如前所述, α_{abs} 可以使用基于过滤的技术或PAS获得, α_{scat} 可以采用IN测量, 而 α_{ext} 通常由CRDS/CEAS获取. 提高光学参数的测量精度和灵敏度是提高SSA测量准确性的关键. 然而, 不同仪器测量误差的累积、样品的不均匀性以及实验条件的差异, 都会引入SSA的测量误差, 这是当前误差来源的主要因素之一. 近年来, 研究人员开发了一系列原位测量系统, 可在同一气溶胶样本中同时测量 α_{ext} 、 α_{abs} 和 α_{scat} 中任意两项参数. 集成光声-浊度计(结合PAS和积分球(IS))可同时测量 α_{abs} 和 α_{scat} (Abu-Rahmah等, 2006; Gyawali等, 2012; Sharma等, 2013). 通过腔衰荡浊度计(Strawa等, 2003; Sanford等, 2008)、腔衰荡积分球浊度计(Thompson等, 2008; Ma和Thompson, 2012)以及单次散射反照率光谱仪(如CAPS-PMssa(Onasch等, 2015)), 可同时测量 α_{ext} 和 α_{scat} , 从而便于SSA的原位评估. 相比非原位技术, 原位测量将SSA的不确定性降低至约3%(Moosmüller等, 2009).

SSA的光谱特征与气溶胶颗粒的粒径、化学组成及混合状态密切相关, 不同类型的气溶胶表现出显著的SSA差异(Russell等, 2010). 单波长原位技术难以准确揭示其波长依赖性. 随着人们对棕碳光谱特性的研究日益深入, 开发能够在短波波段量化SSA的技术势在必行(Andreae和Gelencsér, 2006). 表3总结了近年来发展的多波长或宽波段SSA直接测量技术.

CAPS-PMssa在单一仪器内实现了同一体积样本中消光与散射的同步测量, 从而获取SSA, 可在450~780nm的波长覆盖范围内提供快速、实时的响应测量(Onasch等, 2015). 与双仪器组合测量SSA相比, CAPS-PMssa最大限度地减少了采样误差. 近期, Zhou J等(2020)报道了一种加湿腔增强反照率仪(H-CEA), 该系统集成了宽带腔增强气溶胶消光光谱仪(BBCES)反照率计与湿度控制系统, 实现了在10%~88%RH条件下, 532nm处光学吸湿增长因子($f(RH)_{ext,scat,abs}$ 和SSA)的同步测量. H-CEA的采样时间为6秒, 3σ 探测限分别为0.81、0.25和0.77Mm⁻¹. 使用实验室制备的聚苯乙烯乳胶球与硫酸铵气溶胶评估了H-CEA的精度, 结果表明 α_{ext} 、 α_{scat} 、 α_{abs} 及SSA的总不确定度分别为3.8%、3.5%、5.2%和3.3%. 同样, Carrico等(2021)在CAPS-PMssa中集成湿度控制系统, 开发了加湿单散

表 3 直接测量SSA技术的最新进展

仪器	波长(nm)	仪器组成	可测量参数	检测限/精确度/不确定性	参考文献
CAPS-PMssa	450~780nm	CAPS(α_{ext}), 积分散射测量法(α_{scat})	α_{ext} 、 α_{scat} 和SSA	精确度(1s, 1 σ)为<1Mm ⁻¹ ; SSA为(0.91±0.03)	Onasch等, 2015
H-CEA	518~554nm(α_{ext}); 528~537nm(α_{scat}); 532nm(α_{abs} , SSA)	BBCES反照率仪, RH控制系统	$f(RH)_{ext,scat,abs}$ 和SSA	α_{ext} 、 α_{scat} 和 α_{abs} 的检测限(6s, 3 σ)分别低于0.81、0.25和0.77Mm ⁻¹ ; α_{ext} 、 α_{scat} 、 α_{abs} 和SSA的总不确定性分别为3.8%、3.5%、5.2%和3.3%	Zhou J等, 2020
H-CAPS-PMssa	(450±10)nm	CAPS(α_{ext}), 积分散射测量法(α_{scat})	α_{ext} 、 α_{scat} 、 α_{abs} 和SSA	检测限(1s)为2Mm ⁻¹ ; SSA为0.3~0.65 (Dp =100~400nm); σ_{ap} 提高1.05~1.20 (RH=80%)	Carrico等, 2021
A2S2	450、630nm	CAPS(α_{ext}), 积分散射测量法(α_{scat})	α_{scat} 、 α_{ext} 和SSA	α_{scat} 和 α_{ext} 的检测限分别为2Mm ⁻¹ (450nm)和1Mm ⁻¹ (630nm); SSA为0.86(450nm)和0.88(630nm)	Yu等, 2024
基于IBBCEAS的腔增强气溶胶单散射反照率仪	445~480nm	IBBCEAS(α_{ext}), IS和PMT(α_{scat})	α_{ext} 、 α_{scat} 、 α_{abs} 、SSA和NO ₂	α_{scat} 和 α_{ext} 的检测限(54s)分别为0.22和0.09Mm ⁻¹ ; α_{scat} 、 α_{ext} 和SSA的不确定性分别为4%、5%和5%	Zhao等, 2014
三波长腔增强反照率仪	365、532和660nm	BBCES(α_{ext}), IS和PMT(α_{scat})	α_{ext} 、 α_{scat} 、 α_{abs} 和SSA	α_{ext} 的检测限(60s, 3 σ)分别为0.40Mm ⁻¹ (365nm)、0.04Mm ⁻¹ (532nm)和0.28Mm ⁻¹ (660nm); α_{abs} 的检测限(60s, 3 σ)分别为0.43Mm ⁻¹ (365nm)、0.04Mm ⁻¹ (532nm)和0.47Mm ⁻¹ (660nm); α_{scat} 、 α_{ext} 、 α_{abs} 和SSA的不确定性分别为3%、3.3%、4.5%和5.5%	Xu等, 2018

射反照率仪(H-CAPS-PMssa), 有效克服了由于镜面吹扫流控湿、加热及腔体RH控制带来的噪声问题. 该设备适用于粒径 $D < 400\text{nm}$ 的气溶胶, 且SSA随RH增大而上升, 增强幅度在小粒径颗粒中最为显著. CAPS-PMssa快速响应和紧凑设计使其非常适用于机载测量任务. 最近, Yu等(2024)将该系统升级为双波长配置(450和630nm), 称为气溶胶吸收光谱分析仪(A2S2), 以更好地满足机载平台对气溶胶光学特性测量的需求. 他们的研究表明, 在1Hz采样频率下, α_{scat} 和 α_{ext} 的检测限约为 2Mm^{-1} (450nm)和 1Mm^{-1} (630nm). 在ACROSS飞行活动期间测得的平均SSA分别为0.86(450nm)和0.88(630nm). 这些发现表明A2S2是评估模拟研究气溶胶直接和半直接辐射效应的有力工具. 除了CAPS-PMssa系列外, 还有其他原位测量技术也得到了发展. 例如, Zhao等(2014)报道了一种基于IBB-CEAS的腔增强型气溶胶单散射反照率仪, 该仪器集成了IS, 可直接测量 α_{ext} 和 α_{scat} . 其中, IBBCEAS可评估445~480nm光谱范围内的气溶胶消光光谱, 同时, IS内部的单通道光电倍增管可在465~474nm(半峰全宽FWHM约为9nm)范围测量散射信号. 与PAS不同, IBB-CEAS不受RH影响(或受RH影响较小), 适用于高湿环境下的气溶胶光学性质研究, 尤其适用于测定黑碳与棕碳等吸光性气溶胶的复折射率. 若采用多通道光电倍增管或高灵敏度光谱仪, 还可实现 α_{scat} 的宽带、波长分辨测量. 最近, Xu等(2018)开发了一种三波长腔增强反照率仪, 配置了三个结构相同的测量通道, 能够实时测量365、532和660nm波长下的 α_{ext} 、 α_{scat} 、 α_{abs} 和SSA, 其总不确定度估计分别小于3.3%、3.0%、4.5%和5.5%. 因此, 宽波段反照率仪对于气溶胶光学参数测量与分类研究具有重要应用价值.

AERONET通过太阳光度计提供了最广泛的AOD地面观测数据集, 覆盖了非洲、南美洲和亚洲等多个重要的气溶胶源区(Li等, 2014), 在此也应予以特别提及. AERONET的AOD数据与卫星观测结果的比较已被广泛用于评估卫星观测的不确定性、改进反演算法开发以及提升数据同化性能(Omar等, 2013; Sinyuk等, 2012; Wei等, 2020).

3 气溶胶化学成分测量技术

气溶胶的化学成分是其光学性质与辐射效应的决

定因素, 对于理解新粒子的形成、生长和演化过程具有重要意义(Hu等, 2005). UFPs($\text{PM} < 100\text{nm}$)的化学组成及其分布对气候、环境与健康可能产生显著影响. 众所周知, 化学传输模型能够在较大的时空尺度上模拟化学组分的浓度分布. 然而, 由于模型初始化依赖于目前仍存在较大不确定性的网格化排放清单(Bond等, 1998; Cooke等, 1999), 因此模拟结果存在显著的不确定性. 原位测量技术对于监测气溶胶化学组成、追踪与识别排放源、理解气候环境以及新粒子形成和增长机制具有重要价值. 迄今为止, 已发展出多种技术用于定量分析气溶胶的化学组成, 其中大多数已应用于环境观测, 少部分仍主要用于实验室研究. 本节将讨论目前用于气溶胶化学组成测量的主要技术方法, 涵盖离线分析技术与基于质谱(MS)原理的在线测量方法.

3.1 离线测量技术

使用滤膜或撞击器采集的尺寸分辨样品, 可借助离线技术(如离子色谱(IC)或MS)进行后续化学分析, 这些技术是应用最广泛的传统测量技术(Mäkelä等, 2001; Geller等, 2002; Tao等, 2016). 纳米微孔均匀沉积撞击器(nano-MOUDI)可收集Da小至约10nm的颗粒, 而低压撞击器(LPI)可捕获小至7.7nm的颗粒(Mäkelä等, 2001; Arffman等, 2014). 通过水凝结原理将颗粒粒径放大, 生长管采样器可捕获小至5nm的颗粒(Hering和Stolzenburg, 2005). 然而, 这些方法采样时间分辨率较低, 往往需3h甚至更长, 且半挥发性有机物的挥发性显著增加了测量不确定度(Wang和John, 1988; McMurry, 2000).

电子显微镜(EM)被证明是用于离线气溶胶化学性质测量的基础工具(McMurry, 2000; Mäkelä等, 2002). 颗粒被捕获在滤膜或撞击器上, 并在真空条件下受到电子束照射. 通过分析电子与粒子相互作用产生的X射线能谱, 可以获取有关元素组成的信息. EM的主要限制是样品统计处理耗时较长. 为解决该问题, 已开发并应用了自动化系统(Casuccio等, 1983; Schwoeble等, 1988). 此外, 一些易挥发的有机化合物(如硝酸盐)通常无法通过X射线检测识别, 导致分析结果存在误差(Huang和Turpin, 1996; McInnes等, 1997). 尽管存在这些局限性, EM技术仍能同时提供粒子的形态和成分信息, 且成本较低、操作简便.

MS技术在气溶胶化学测量领域具有里程碑意义,能够实时和离线分析气溶胶,极大推动了大气科学的发展(Laskin等, 2012; Pratt和Prather, 2012a, 2012b). 离线质谱可对气溶胶样品进行彻底的分子水平分析. 例如, 激光微探针质谱(LAMMS)是一种商业化的离线测量方法, 可用于单颗粒的化学组分分析(Wieser等, 1980). 此方法通过强脉冲激光照射采集到的颗粒物, 并利用MS进行成分分析, 检测限达 10^{-20} ~ 10^{-18} g, 空间分辨率约为 $1\mu\text{m}$, 但数据采集通常存在较长的时间延迟.

气相色谱质谱法(GC/MS)可对气溶胶样品中的有机物进行定量离线表征, 但仅适用于热稳定性较好、分子量较小的化合物(González等, 2011; Schnelle-Kreis等, 2011). 其他质谱技术还包括质子转移反应质谱(PTRMS)(Hanson等, 2011)、液相色谱质谱(LC/MS)(Kitanovski等, 2011)、大气固体分析探针质谱(ASAP-MS)(Kitanovski等, 2011)等, 均可对有机组分进行分析. 有关离线质谱方法的应用已被系统总结(Laskin等, 2012; Pratt和Prather, 2012a), 为深入理解大气气溶胶的来源与化学反应机制提供了重要支持.

3.2 基于质谱的实时测量技术

MS因其高灵敏度和定量表征物质化学组成的能力, 展现出广泛的应用潜力. 目前, 已经开发出多种在线质谱方法, 用于实时监测气溶胶的化学组成(Laskin等, 2012; Johnston和Kerecman, 2019; Zhou W等, 2020). 图2和表4汇总展示了各类化学成分测量的技术手段. 本节对这些技术在实验室研究和现场观测中的核心原理、优势和局限性进行了全面的评述.

3.2.1 气溶胶质谱仪(AMS)

由Aerodyne Research公司设计并研发的AMS被广泛应用于实时气溶胶化学成分分析. 该系统结合了热汽化与电子碰撞(EI)质谱法, 可实现对空气动力学直径为50~1500nm范围内的非耐火材料(NR)颗粒物化学组成及其质量-粒径关系的实时测量(Canagaratna等, 2007; Pratt和Prather, 2012b). AMS主要由气溶胶采样入口、粒径分级模块及颗粒物化学组分检测系统三部分组成. 气溶胶颗粒首先通过气动透镜系统聚焦形成窄束粒子流, 并被引入真空检测室. 在高真空环境(约 10^{-5} Pa)下, NR颗粒撞击在约600℃的高温表面时瞬间

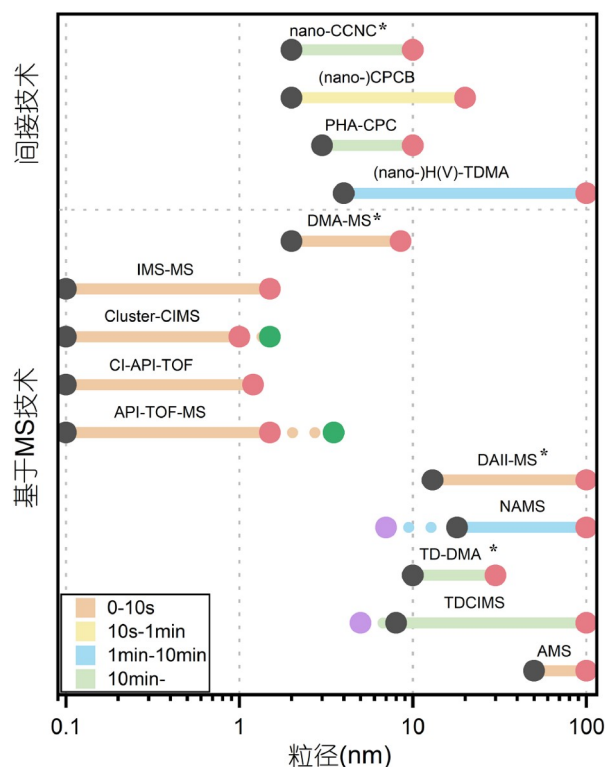


图2 超细颗粒物(UFPs)实时化学成分测量技术概览 (韩永, 2025)

技术所填充的颜色表示其响应时间, 虚线表示该技术尚未在对应粒径范围内应用于现场测量. “*”表示该技术尚未用于现场监测. 各测量技术的缩略词列于网络版附表S1中

汽化, 经EI电离后进入质谱仪分析其化学成分.

最初版本的AMS即为四极杆气溶胶质谱仪(Q-AMS), 其核心为四极杆质谱仪(Q), 通过EI电离方式提供平均化学成分信息(Jimenez等, 2003). 虽然Q-AMS具备单颗粒分析能力, 但因其颗粒汽化时间尺度内无法完成整个质谱扫描, 所以通常仅能获取每个颗粒的一个质荷比(m/z)信息. 为克服上述限制, 后续开发了飞行时间质谱仪(TOFMS), 能够获取全范围的粒径分辨质谱, 以及单个颗粒随粒径变化的完整质谱(Drewnick等, 2005). 与Q-AMS相比, TOF-AMS具有更高的占空比, 灵敏度提升约30倍(DeCarlo等, 2006). 标准TOF-AMS的分辨率约为1000, 为进一步提升分辨率, 已发展出高分辨飞行时间气溶胶质谱仪(HR-TOF-AMS)(DeCarlo等, 2006), 其分辨率在V模式下可达2100, 在W模式下可达4300. V模式表示离子沿常规反射路径飞行, 而W模式则通过延长离子飞行路径提升分辨率. 虽然EI电离具有许多优点, 但大量的有机分

子裂解导致质谱图复杂, 难以对特定有机化合物进行明确的分子检测. 为了提高有机气溶胶分类的准确性, 近年来广泛引入软电离技术, 如真空紫外光电离(VUV)、锂离子电离、电子俘获电离等, 这些技术可以有效减少有机物裂解现象. 通过与HR-TOF-AMS耦合, 能够获取更丰富的有机气溶胶成分信息. 尽管HR-TOF-AMS具有较高的质谱分辨率, 但其成本高昂、操作复杂、维护要求高. 为此, 开发了气溶胶化学组成在线监测仪(ACSM)(Ng等, 2011)及TOF-ACSM(Fröhlich等, 2013), 用于实时表征亚微米气溶胶的质量浓度和化学组成. 它们与AMS在原理上有相似之处, 但其特点是结构更紧凑、经济高效、用户友好, 并且能长期保持稳定运行. 与ACSM($<0.2 \mu\text{g m}^{-3}$)相比, TOF-ACSM的检测灵敏度提高了3~8倍, 最低检测限低于 30 ng m^{-3} , 具体取决于测量物种.

3.2.2 气溶胶飞行时间质谱技术(ATOFMS)

不同于AMS通过热汽化测量颗粒物整体样本的化学性质, ATOFMS采用脉冲激光对单颗粒逐个解析, 从而实现化学成分的实时测量(Gard等, 1997; Prather等, 1994). 最初版本的ATOFMS采用收敛式喷嘴进样口、两束532nm激光用于粒子触发和粒径测量, 266nm紫外激光用于激光解析电离(LDI), 并通过双极性反射式TOFMS进行质谱分析. ATOFMS可用于分析约 $0.2\sim 3 \mu\text{m}$ 范围内颗粒的化学成分, 并已由TSI公司实现商业化(型号为3800), 在众多外场观测项目中得到广泛应用(Zhou等, 2006; Dall'Osto等, 2007). 为提高颗粒传输效率并降低最小采样尺寸, 将传统的收敛喷嘴进样口替换为气动透镜进样系统. 颗粒通过气动透镜聚焦引入仪器, 接着在增强型光散射系统中实现空气动力学粒径测量, 随后由ATOFMS检测. 改进后的仪器能够测量 $100 \text{ nm}\sim 3 \mu\text{m}$ 范围内的颗粒(型号3800~100, TSI公司)(Dall'Osto等, 2009, 2006; Drewnick等, 2008).

ATOFMS旨在实时测定单个气溶胶颗粒的粒径和化学组成, 不仅有助于溯源颗粒的排放来源, 还能揭示其在环境与健康效应中的关键作用. 迄今为止, 已经报道了多种单颗粒质谱仪, 其中ATOFMS是典型代表之一(Li等, 2017). 其他常见仪器还包括: 粒子分析激光质谱仪(PALMS)(Murphy和Thomson, 1995)、快速单颗粒质谱仪(RSMS)(Phares等, 2002)、生物气溶胶质谱仪(BAMS)(Steele等, 2003)、纳米气溶胶质谱仪

(NAMS)(Wang等, 2006)以及单颗粒气溶胶质谱仪(SPAMS)(Li L等, 2011). 这些仪器的设计原理和应用性能已由Pratt和Prather进行了系统总结(Pratt和Prather, 2012b).

3.2.3 亚20nm化学成分的直接测量技术

基于MS的直接测量技术, 例如AMS或ATOFMS, 已被广泛应用于研究大气颗粒物的化学组成. 然而, 气动透镜传输效率较低, 难以有效测量粒径小于 50 nm 的气溶胶颗粒. 为了获取 20 nm 以下的颗粒, 有必要对气溶胶样本进行预处理, 将其与大颗粒实现有效分离. 颗粒质量与粒径的立方成正比, 在测量环境中纳米颗粒时, 仪器的灵敏度面临巨大挑战, 因为样品质量通常非常低. 目前, 已有多种仪器被研发用于准确测定粒径分辨的环境纳米颗粒化学成分. 这些技术在本节中简要介绍, 并汇总在表4中.

热解析技术为在线测量纳米颗粒成分提供了可能. 热解析化学电离质谱仪(TDCIMS)可实现分子组成的半定量分析(Smith等, 2004; Voisin等, 2003). TDCIMS采用单极电荷发生器使粒子带电, 利用差分迁移率分析仪(DMA)实现粒径分级, 并通过静电沉积法收集带电粒子(通常为 $1\sim 10 \text{ pg}$). 随后, 颗粒被转移至解析区和化学电离区进行样品的化学分析. 在实验室实验中, 采样时间约为 $5\sim 10 \text{ min}$, 而环境测量通常为 $10\sim 30 \text{ min}$. 一般来说, 并行使用多个DMA可以提高采样流量和传输效率, 从而增加样品采集量. Smith等(2010)首次在各种大气环境中部署TDCIMS, 以研究粒径分辨的纳米颗粒的化学信息. 目前, TDCIMS技术不断得到改进, 例如由Gonser和Held(2013)开发的带电超细颗粒化学分析仪(CACHUP). CACHUP采用 70 eV 电子电离源替代化学电离源, 能够分析小于 30 nm 的颗粒, 最小可检测粒径为 25 nm . 热解析差分电迁移分析仪(TD-DMA)(Wagner等, 2018)是一种与TDCIMS类似的技术, 它利用化学电离质谱仪(CIMS)对解析组分进行检测, 能够分析 $10\sim 30 \text{ nm}$ 范围内的粒径分辨颗粒的化学成分. 然而, 样本质量会影响上述技术的最小检测粒径, 从而导致耗时较长. 对于实验室产生的颗粒, 可实现亚 5 nm 的测量, 但持续的 10 nm 以下环境测量仍十分稀缺, 这严重制约了气溶胶化学组成测量范围向纳米簇扩展.

NAMS可实时表征空气中的单个纳米颗粒的元素

表 4 化学成分实时测量技术概述^{a)}

仪器	方法	粒径范围	相关参数	测量对象	参考文献
AMS	基于MS技术	50~1500nm	检测限为 $0.25\mu\text{g m}^{-3}$ (NH_4NO_3 , 3min)	大气粒子	Jayne等, 2000; Jimenez等, 2003
HR-TOF-AMS	基于MS技术	35nm~1.5 μm	分辨率为2100(V)和4300(W); 检测限为 $<0.04\mu\text{g m}^{-3}$ (1min, 亚微米气溶胶); 时间分辨率为0.5Hz	有机物;大多数硝酸盐和硫酸盐	DeCarlo等, 2006
ACSM	基于MS技术	75~650nm	检测限为 $<0.2\mu\text{g m}^{-3}$ (30min)	非耐火亚微米颗粒物	Ng等, 2011
TOF-ACSM	基于MS技术	150nm~1 μm	$M/\Delta M$ 为600; 检测限为 $<30\text{ng m}^{-3}$ (30min)	非耐火亚微米颗粒物	Fröhlich等, 2013
ATOFMS	基于MS技术	100nm~3 μm (TSI 3800~100)	质量范围为1~800Da; 质谱分辨率为500m/ Δm	大气粒子	Dall'Osto等, 2006, 2009; Drewnick等, 2008
TDCIMS	热解析, 基于MS技术	(5)8~100nm	采样时间为5~10min(实验室条件)和10~30min(环境条件); 硫酸铵最小可测质量为1~5pg	大气粒子	Perraud等, 2020; Smith等, 2004; Voisin等, 2003
CAChUP	热解析, 基于MS技术	25~30nm	最小可测质量为0.5~5ng($\text{C}_{10}\text{H}_{16}$)	大气粒子	Gonser和Held, 2013
TD-DMA*	热解析, 基于MS技术	10~30nm	分析物气溶胶最小质量浓度为 27pg m^{-3} (所有尺寸); 811pg m^{-3} (15nm硫酸); 最小可检测质量为10pg(硫酸)	气体, 大气粒子	Wagner等, 2018
NAMS	基于MS技术	(7)18~100nm	可测浓度为 $>10^5\text{particles cm}^{-3}$	纳米颗粒	Wang等, 2006
DAII-MS*	基于MS技术, 加热	13~100nm	分析物气溶胶的最小质量浓度为 10^5pg m^{-3} (聚丙二醇)	纳米颗粒	Horan等, 2017a
API-TOF-MS	基于MS技术	0.1~1.5(3.5)nm	质量精度为0.002%; 质量分辨率为3000Th/Th; 最大质量为1400Da (实验室20kDa)	环境离子, 中性簇	Sipilä等, 2016
CI-API-TOF-MS	基于MS技术	0.1~1.2nm	检测限为 $3.6\times 10^4\text{molecules cm}^{-3}$ (15min); 最大质量为2200Da	中性分子团簇	Jokinen等, 2012
Cluster-CIMS	基于MS技术	0.1~1(1.5)nm	含3个或4个 H_2SO_4 , 浓度约为 $10^6\text{particles cm}^{-3}$	中性分子团簇	Zhao等, 2010
IMS-MS/ DMA-MS*	基于迁移率	0.1~1.5nm 2~8.5nm	同时测量团簇离子的迁移率和质荷比, 纳米粒子的质量分析	纳米团簇	Krechmer等, 2016; Ouyang等, 2015

a) “*”表示该技术尚未用于现场监测. 括号内的数据表示在实验室条件下可以测量到的最小或最大尺寸. 各测量技术的缩略词列于网络版附表S1中

组成, 适用于7~150nm范围的颗粒(Wang等, 2006; Horan等, 2017b). NAMS采用单极充电器使颗粒带电, 带电颗粒通过气动进样口聚焦并经四极杆离子导引器传输, 随后被四极杆离子阱捕获. 在高功率Nd: YAG脉冲激光照射下, 颗粒达到完全电离极限, 并通过TOFMS进行化学分析. 与AMS相比, NAMS更侧重于亚50nm颗粒的化学成分测量, 在实验室中可测至7nm, 在外场测量中最低可达18nm. 由于样品质量浓度有限以及气动透镜透过率较低, 目前NAMS的测量尺寸尚未扩展至气溶胶纳米团簇, 但从理论上是可行的(Wang和Johnston, 2006; Bzdek等, 2012, 2014). 将NAMS与其他技术联用, 有望扩展可测量粒径范围, 获取更全面的

化学成分信息. 此外, 在脉冲激光作用下, 气溶胶颗粒被视为完全电离并分解为原子或离子. 因此, NAMS仅能提供元素组成的定量分析, 在分子结构推断方面仍面临较大挑战(Smith等, 2021).

液滴辅助进样电离质谱法(DAII-MS)是一种无需样品预处理的潜在在线检测技术(Horan等, 2017a). DAII基于进样电离原理(Pagnotti等, 2011), 利用水基冷凝法(Hering和Stolzenburg, 2005)形成液滴. 液滴随后流入加热毛细管进样口, 迅速蒸发并离子化, 进入MS进行成分分析. 在实验室中成功获取了13nm的聚丙二醇(PPG)气溶胶的高质量谱图, 验证了DAII对PPG气溶胶的卓越灵敏度. 液滴的大小取决于气溶胶的数

浓度, 而非其初始粒径, 最终形成的液滴尺寸通常为1~3 μm . 分子检测的灵敏度随着颗粒尺寸的减小而提高(Kerecman等, 2021). 目前的实验室研究已证明了该技术在研究NPF方面的潜力.

尽管上述MS技术在实时检测颗粒化学成分方面表现出色, 但当颗粒尺寸小于10nm时, 确保足够的样品浓度仍然具有挑战性(Smith等, 2021). 因此, 对亚10nm颗粒的识别与定量分析依然是化学分析中的重大挑战.

3.2.4 超纳米大气团簇的直接测量技术

分子簇的有效直径约为1nm, 在理解NPF现象中起着至关重要的作用, 对气候变化和人类健康具有重大影响. 近年来, 随着MS技术的发展, 测量范围已扩展至超纳米尺度, 能够表征粒径约为3nm的分子簇. 典型仪器包括化学电离-大气压接口-飞行时间质谱仪(CI-API-TOFMS)(Jokinen等, 2012)、簇化学电离质谱仪(Cluster-CIMS)(Zhao等, 2010)以及离子迁移质谱仪(IMS-MS)(May和McLean, 2015), 如表4所示.

API-TOF由TOF和大气压接口(API)组成, 具有质量精度优于0.002%和质量分辨率达3000Th/Th的优势(Junninen等, 2010), 可在无需额外电离的情况下直接测量天然带电离子簇, 从而有效保护簇结构在电离过程中不发生解离. API-TOF已成功识别来自雾化样品中的高浓度硫酸-氨团簇, 这表明该仪器在NPF研究中的广阔应用潜力和价值. 此外, 纳米团簇中常包含大量具有相同标称质量的大气成分. 与Q相比, TOFMS具有更高的灵敏度和分辨率, 并适用于广泛的环境测量范围. API-TOFMS可在环境中检测分子量高达2kDa(约1.5nm)的化合物, 在实验室条件下测量范围可扩展至20kDa(约3.5nm)(Sipilä等, 2016). 目前, API-TOFMS已由Tofwerk AG公司实现商业化, 并被广泛部署于全球多个地区开展环境监测(Jokinen等, 2012; Sarnela等, 2015; Bianchi等, 2016, 2017; Kürten等, 2016; Sipilä等, 2016; Yao等, 2018).

化学电离质谱(CI)-MS为研究环境中性分子簇提供了关键的测量手段, 其中典型代表为CI-API-TOF(Jokinen等, 2012). 该仪器将CI与API-TOF联用, 可实现硫酸团簇的高灵敏度检测, 在15min平均时间内的最低检测限达 $3.6 \times 10^4 \text{ molecules cm}^{-3}$, 是一种高稳定性、高灵敏度的分子硫酸检测工具. 在CI源中, 试剂离子可

通过放射源(Jokinen等, 2012)、X射线源(Massoli等, 2018)或电晕放电(Kürten等, 2011)产生. 随后, 中性化合物在不同压力下的反应器中通过质子转移或加合反应与试剂离子发生电荷转移. 目前, CI-API-TOF已被广泛应用于测量多种中性分子簇的分子组成, 揭示与NPF过程相关的关键机制, 包括 $(\text{H}_2\text{SO}_4)_n$ (Jokinen等, 2012)、 H_2SO_4 -胺类(Kürten等, 2014)、 HNO_3NH_3 (Wang等, 2020)和碘氧酸类(He等, 2021). CI-API-TOF可检测最大质量达2.2kDa、球形等效直径约1.2nm的环境团簇(Sipilä等, 2016; Zhang等, 2022).

另一种常用于大气中性团簇测量的仪器为Cluster-CIMS(Zhao等, 2010), 其工作原理与CI-API-TOF类似, 利用 NO_3 通过质子转移或加合反应使中性团簇带电. Cluster-CIMS首次用于测量 H_2SO_4 团簇, 最大检测粒径约为1nm, 经实验室校准后可扩展至1.5nm. 然而, Cluster-CIMS采用Q作为质量分析器, 这限制了簇离子的高分辨率识别. 显然, 利用CIMS识别大气中的中性团簇是至关重要的. 然而, CI过程导致团簇发生电荷诱导解离反应, 且电离效率的波动可能会引入测量偏差, 从而增加簇分子识别的不确定性.

基于迁移率的方法(如离子迁移谱(IMS)和DMA)通常将MS作为离子检测器. 这些方法可在采样过程中尽量减少仪器引入的干扰效应, 更有效地保留团簇结构. 由于其检测原理不依赖于化学分离, 这些方法被证明在不同粒径和成分条件下均具有良好的通用性. IMS-MS(May和McLean, 2015)可同时测量团簇离子的迁移率和 m/z (Krechmer等, 2016). 根据所施加的电场不同, IMS-MS可分为几种主流技术, 包括施加直流电场的漂移管离子迁移谱仪(DTIMS)和DMA(McDaniel等, 1962; Gillig等, 2004), 以及施加非均匀电场的高场非对称离子迁移率谱仪(FAIMS)(Purves和Guevremont, 1999)、DMS(Shvartsburg, 2008)和行波离子迁移谱仪(TWIMS)(Giles等, 2004; May和McLean, 2015). DMA-MS(Rus等, 2010)将DMA和MS相结合, 可实现纳米颗粒的迁移率和质量分析(Hogan Jr和Mora, 2009; Hogan Jr等, 2011). 团簇离子首先在高分辨DMA中根据特定迁移率进行分选, 随后由MS检测. 目前, DMA-MS主要用于实验室研究, 已成功用于表征大气分子簇的物理和化学特性, 如密度、热稳定性、水合状态及有机蒸汽吸附能力(Oberreit等, 2014, 2015; Ouyang等, 2015; Thomas等, 2016; Ahonen等, 2019; Smith等, 2021). 该

技术可检测2~8.5nm迁移率直径的团簇粒子。与API-TOF及CI-API-TOF相比, DMA-MS更为先进, 可同时获得粒子的理化信息。

相较于IMS-MS, DMA-MS在气溶胶纳米簇测量方面具有显著优势, 例如可在常压、接近室温条件下工作, 并可灵活选用多种载气, 有助于提高团簇稳定性(Oberreit等, 2015)。因此, 该技术在研究大气团簇的物理化学性质以及新粒子生成与生长机制方面具有广阔的应用前景。

值得注意的是, 上述超纳米团簇测量技术在实际环境中的最大可测粒径通常小于实验室条件, 主要由于随着粒径的增加, 大气团簇的数浓度显著降低。此外, 许多化合物(尤其是水)可能会在MS采样过程中发生蒸发或分解, 导致扩散损失和碎裂现象, 进而引起测量偏差。因此, 为了进一步拓展检测粒径范围, 亟需将高质量检测能力与高分辨、精确分子组分识别技术相结合(Passananti等, 2019; Smith等, 2021)。

尽管直接在线MS技术能够实时获取气溶胶的化学成分数据, 但在3~10nm粒径范围仍面临诸多挑战。在质谱检测中, 3~10nm范围内的颗粒难以顺利通过样品前处理阶段并保持足够的样品浓度。而3~10nm粒子的电离效率较低。因此, 如何全面覆盖从大气团簇到纳米粒子的化学成分测量, 依然是直接检测技术需突破的关键问题。气溶胶的物理性质和化学组成密切相关, 其化学组成会影响颗粒的吸湿性、挥发性等特定物理特性, 从而为反演气溶胶的化学成分提供了可行性。此类方法通常基于CPC技术(如脉冲高度分析冷凝粒子计数器(PHA-CPC)(Saros等, 1996), 纳米CPC电池(CPCB)(Kulmala等, 2007), 纳米云凝聚核计数器(nano-CCNC)(Wang Z等, 2015)等), 或基于串联差分电迁移率分析仪(TDMA)技术(如(nano-)H(V)-TDMA)(Hämeri等, 2001; Keskinen等, 2013; Sakurai等, 2005; Smith等, 2021; Wu, 2017; Zhang等, 2022), 相关研究进展已在网络版附录中总结。这些间接技术能够对已知物理性质的化合物类别进行解析和半定量分析, 但通常不适用于对单一化学组分的直接识别与定量分析。这一能力对于深入了解从大气团簇到纳米尺度粒子的化学组成至关重要。因此, 我们建议应优先开发新型仪器, 以提升直接检测技术的采样效率, 扩大可测粒径范围, 或提高间接技术的化学分辨能力。未来的研究方向应聚焦于颗粒物物理与化学性质的同步测量, 这有助

于提升气溶胶模型的准确性, 并加深对气溶胶形成与演化机制的理解。

4 UFPs的气候和环境效应及健康风险

UFPs是指空气动力学直径小于或等于0.1 μm 的气溶胶颗粒, 在环境空气中构成了绝大多数的颗粒数浓度。UFPs可直接来源于燃烧过程的排放(Jones和Harrison, 2016), 也可通过气态前体物的反应和/或成核, 以及放射性衰变在大气中生成(Kulmala, 2003; Kulmala等, 2004; Biswas和Wu, 2005)。随着工业的迅猛发展, 人类对人为源UFPs的暴露水平显著升高。UFPs可在大气中发生远距离输送, 对气候、环境和人类健康产生一系列潜在影响, 包括辐射强迫(Fan等, 2018; Shrivastava等, 2024; Sun等, 2024), 能见度(Lei等, 2024)和健康风险(Harrison和Yin, 2000; Bălă等, 2021; Zhai等, 2024), 如图3所示。

气溶胶通过散射和吸收入射的太阳短波辐射, 直接影响地球的辐射平衡(Coakley Jr等, 1983; Yu和Huang, 2023)。其次, 气溶胶作为CCN或冰核, 可改变云的光学和微物理特性及降水过程, 从而间接影响气候(Pierce和Adams, 2007)。再次, 沉积在雪地和冰面的气溶胶颗粒会改变地表反照率, 加速冰雪融化, 进而影响地球能量平衡, 促进海平面上升(Lohmann和Feichter, 2005; Bond等, 2013)。气溶胶还可能参与涉及臭氧的异相反应, 从而影响大气臭氧浓度, 并间接改变气候(罗云峰等, 1998)。此外, UFPs作为粒径较小的气溶胶, 可发生聚集、包裹等微物理过程, 形成内部混合的吸光颗粒, 从而显著改变其光学特性, 例如在黑碳中观察到的现象(Zhang等, 2025)。由于气溶胶在组分、粒径分布、混合状态及光学特性方面的复杂性, 其间接辐射效应仍存在较大不确定性。气溶胶通过吸收和散射太阳辐射, 改变太阳光的强度和传播方向, 导致大气能见度下降(Husar等, 2000; Pan等, 2009; Singh等, 2017; Wang X等, 2019)。

UFPs通常具有较短的大气寿命(10nm颗粒的寿命约为15min(Kittelson, 1998)), 并且会快速生长, 形成细颗粒物($\text{PM}_{2.5}$), 通过远距离输送, 导致区域空气质量下降。此外, 气溶胶颗粒沉积于土壤和水中, 会对生态系统和水质造成不良影响。城市和工业环境中的UFPs主要来源于柴油排放、生物质燃烧和垃圾焚烧(Shi和

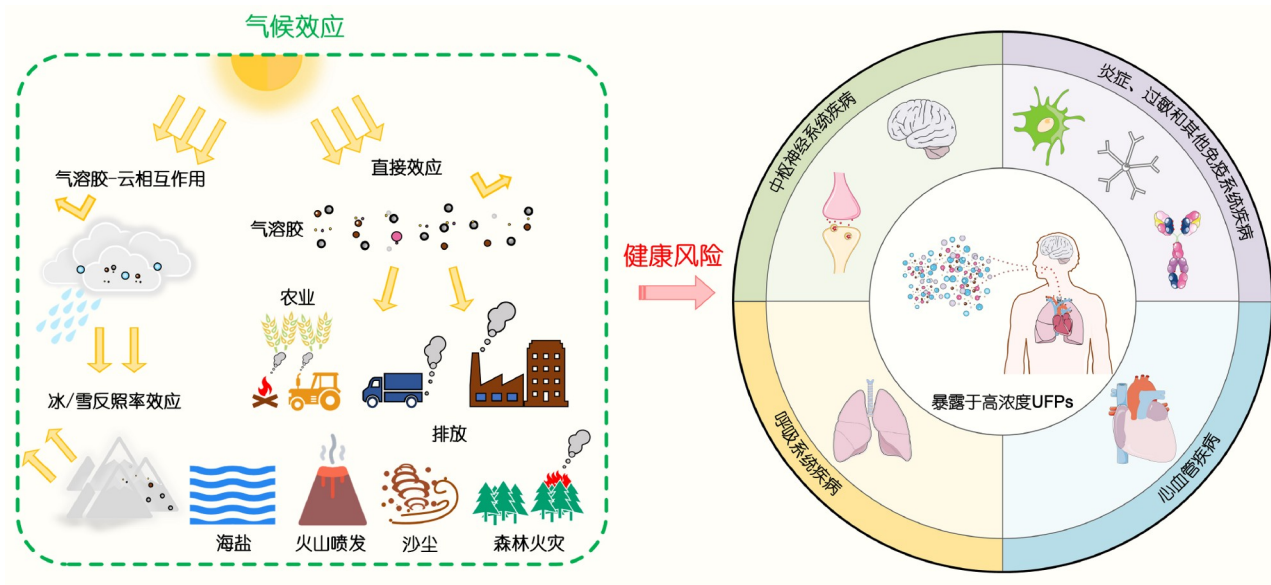


图3 UFPs的气候效应和健康风险

Harrison, 1999; Maruf Hossain等, 2012; Jones和Harrison, 2016). 自人类世工业革命以来, 颗粒物污染已成为最严重的大气污染物之一, 在地方、区域乃至全球尺度上急剧上升(Pöschl和Shiraiwa, 2015; Finlayson-Pitts, 2017). 长期暴露于高浓度、高比表面积(UFPs)中, 会对健康造成不利影响, 例如引发呼吸系统疾病、中枢神经系统疾病和心血管疾病(Kumar等, 2013). 据世界卫生组织估计, 2019年全球室外环境空气污染导致过早死亡人数高达420万人(Ambient (outdoor) air pollution, [https://www.who.int/news-room/fact-sheets/detail/ambient-\(outdoor\)-air-quality-and-health](https://www.who.int/news-room/fact-sheets/detail/ambient-(outdoor)-air-quality-and-health)). 大量研究证据也已证实空气污染已成为全球对人类健康最严重的环境威胁之一(Shiraiwa等, 2017; Arfin等, 2023).

吸入的UFPs粒径小、扩散性强, 能高效沉积于人体肺部, 约占沉积气溶胶总量的90% (Witschger和Fabriès, 2005). 大量的UFPs沉积于肺部, 极易导致颗粒移位, 诱发恶性病变, 并增加患癌风险(Ferin等, 1992, 1994; Sturm, 2011). 其次, UFPs可通过血液和淋巴系统转运至肺外器官, 其中心血管系统是研究重点. 暴露于高浓度的UFPs会导致心脏自主神经功能变化、心率变异性和心肌缺血风险增加(Semmler等, 2004; Oberdörster等, 2005; Pope III和Dockery, 2006). 大量证据表明, UFPs暴露与心肺疾病的发生及总体死亡率密切相关(Stölzel等, 2007; Pui等, 2014). 第三, UFPs可

沿神经元的轴突和树突进入中枢神经系统和神经节, 对中枢神经系统产生毒性作用(Kumar等, 2013). 此外, UFPs还可吸附多种有毒物质, 作为生物相互作用的平台, 在人体内扩散和运输这些有毒物质, 损害组织或细胞, 刺激免疫系统调控并诱发炎症反应(Beck-Speier等, 2001; Kumar等, 2013). 已有大量研究明确了UFPs对人类健康的不利影响. 然而, 应当指出, 纳米颗粒的尺寸与许多生物大分子(如酶和受体)相似, 因而能在不改变生物分子结构的情况下与细胞内的生物分子发生相互作用(Biswas和Wu, 2005). 从这一点来看, 纳米医学的发展为将UFPs应用于癌症诊断、预防和治疗提供了潜在可能, 为改善人类健康开辟了广阔的应用前景.

为了有效评估和减缓气溶胶对公众健康的影响, 必须深入理解颗粒物的化学组成, 以及新粒子在大气中的成核和生长机制. 因此, 推进用于测量和验证大气成分变化的精密仪器和技术的发展, 理解关键大气过程, 对于进一步探索是有益的.

5 总结与展望

可靠的气溶胶光学与化学特性测量技术对于定量评估气候辐射强迫以及深入理解新粒子的形成、生长和演化过程具有重要意义. 本文综述了近年来气溶胶光学特性和化学成分的直接测量技术与仪器的发展进

展, 为气溶胶科学研究及仪器研制提供了有力支撑. 此外, 本文简要阐述了气溶胶在气候与环境中的作用, 以及长期暴露于高浓度UFPs所带来的潜在健康风险.

研究表明, 这些技术提供了关键数据, 显著提升了我们对气溶胶光学与化学特性及其在气候调节、环境演变与健康影响方面的理解. 然而, 目前尚无一种测量技术或仪器能够全面覆盖大气气溶胶在整个粒径范围及光谱范围内的多参数特性测量需求. 因此, 仍需在以下几个方面开展深入研究与技术创新:

(1) 为进一步加深对气溶胶光学特性的理解, 亟需提升现有技术的测量精度、时空分辨率, 并拓宽其适用环境范围. 不同类型的气溶胶具有不同的吸湿性, 其光学特性对RH变化高度敏感, 尤其是在光散射方面, 这对气候辐射强迫的准确评估尤为关键. 集成加湿系统已被成功应用于机载平台, 用以评估不同RH条件下的光学参数. 开放式光学系统也在高RH环境下展现出良好的适应性. 此外, 宽带光谱技术(如MCRD-AES和ICCCEAS)在评估多波长气溶胶光学特性方面表现出巨大潜力. 未来应注重发展新型测量原理和技术, 逐步构建覆盖多维参数的大气气溶胶光学测量系统.

(2) 基于质谱的技术可以有效获取气溶胶的化学成分, 但对粒径为3~10nm的气溶胶粒子的化学特性定量表征仍面临重大挑战. 尽管间接技术已应用于3~10nm范围内的测量, 并增进了我们对新粒子成核与生长机制的理解, 但其目前仅能提供气溶胶成分的定性信息, 如有机物的质量或体积分数等, 尚不能实现从大气团簇到微米级颗粒的全尺寸范围覆盖. 除了尺寸范围的限制外, 当前仪器在测量气溶胶全面化学成分(包括无机组分、有机物、金属氧化物、黑碳和其他组分)方面仍存在明显不足. 为此, 我们建议发展创新型仪器, 以提高直接技术的收集效率, 扩大可测量尺寸的分辨率范围, 或提高间接技术的化学分辨率. 同时, 强化不同测量技术之间的系统比较, 尤其是在重叠粒径范围内的直接和间接技术, 以构建更全面、精确的了解气溶胶的化学成分.

值得注意的是, 地基与空基遥感技术, 以及气候模型已被广泛应用于环境监测与气候预测. 将这些手段与高精度的现场直接测量相结合, 对于深入分析气溶胶特性、理解关键大气过程和追踪污染源也是重要的.

致谢 该航次(NORC2024-07)由“实验6”号科考船实施, 在此一并致谢. 作者感谢两位匿名审稿人提出的富有洞察力和建设性的意见, 他们的宝贵意见对提高本文质量至关重要.

补充材料 本文的补充材料见网络版<http://earthcn.sci-china.com>. 补充材料为作者提供的原始数据, 作者对其学术质量和内容负责.

参考文献

- 曹渊, 彭杰, 王瑞峰, 刘锟, 高晓明. 2021. 声光光谱测量气溶胶光吸收研究进展. *量子电子学报*, 38: 593
- 陈杰, 钱仙妹, 刘强, 郑健捷, 朱文越, 李学彬. 2020. 1064nm波长大气气溶胶光吸收特性. *光谱学与光谱分析*, 40: 2989–2995
- 韩永. 2025. 大气探测学导论. 南京: 南京大学出版社. 454
- 韩永, 王体健, 饶瑞中, 王英俭. 2008. 大气气溶胶物理光学特性研究进展. *物理学报*, 57: 7396–7407
- 李正强, 谢一淞, 张莹, 李雷, 许华, 李凯涛, 李东辉. 2019. 大气气溶胶成分遥感研究进展. *遥感学报*, 23: 359–373
- 罗云峰, 周秀骥, 李维亮. 1998. 大气气溶胶辐射强迫及气候效应的研究现状. *地球科学进展*, 13: 63–72
- 孙学金, 王晓蕾, 李浩, 张伟星, 严卫. 2009. 大气探测学. 北京: 气象出版社. 452
- 徐学哲, 赵卫雄, 董美丽, 顾学军, 胡长进, 盖艳波, 高晓明, 黄伟, 张为俊. 2014. 腔增强/衰荡光谱应用于气溶胶消光检测研究进展. *量子光学学报*, 31: 477–488
- 张启磊, 徐学哲, 赵卫雄, 崔执凤, 张为俊. 2015. Chernin型多通池用于气溶胶消光系数的测量研究. *光学学报*, 35: 340–345
- Abo Riziq A, Erlick C, Dinar E, Rudich Y. 2007. Optical properties of absorbing and non-absorbing aerosols retrieved by cavity ring down (CRD) spectroscopy. *Atmos Chem Phys*, 7: 1523–1536
- Abu-Rahmah A, Arnott W P, Moosmüller H. 2006. Integrating nephelometer with a low truncation angle and an extended calibration scheme. *Meas Sci Technol*, 17: 1723–1732
- Ahonen L, Li C, Kubečka J, Iyer S, Vehkamäki H, Petäjä T, Kulmala M, Hogan Jr C J. 2019. Ion mobility-mass spectrometry of iodine pentoxide-iodic acid hybrid cluster anions in dry and humidified atmospheres. *J Phys Chem Lett*, 10: 1935–1941
- Ajtai T, Filep Á, Schnaiter M, Linke C, Vragel M, Bozóki Z, Szabó G, Leisner T. 2010. A novel multi-wavelength photoacoustic spectrometer for the measurement of the UV-vis-NIR spectral absorption coefficient of atmospheric aerosols. *J Aerosol Sci*, 41: 1020–1029
- Anderson J R, Buseck P R, Patterson T L, Arimoto R. 1996. Characterization of the Bermuda tropospheric aerosol by combined

- individual-particle and bulk-aerosol analysis. *Atmos Environ*, 30: 319–338
- Anderson T L, Covert D S, Marshall S F, Laucks M L, Charlson R J, Waggoner A P, Ogren J A, Caldow R, Holm R L, Quant F R, Sem G J, Wiedensohler A, Ahlquist N A, Bates T S. 1996. Performance characteristics of a high-sensitivity, three-wavelength, total scatter/backscatter nephelometer. *J Atmos Ocean Technol*, 13: 967–986
- Andreae M O, Gelencsér A. 2006. Black carbon or brown carbon? The nature of light-absorbing carbonaceous aerosols. *Atmos Chem Phys*, 6: 3131–3148
- Andrews E, Sheridan P J, Fiebig M, McComiskey A, Ogren J A, Arnott P, Covert D, Elleman R, Gasparini R, Collins D, Jonsson H, Schmid B, Wang J. 2006. Comparison of methods for deriving aerosol asymmetry parameter. *J Geophys Res*, 111: 2004JD005734
- Arffman A, Yli-Ojanperä J, Kalliokoski J, Harra J, Pirjola L, Karjalainen P, Rönkkö T, Keskinen J. 2014. High-resolution low-pressure cascade impactor. *J Aerosol Sci*, 78: 97–109
- Arfin T, Pillai A M, Mathew N, Tirpude A, Bang R, Mondal P. 2023. An overview of atmospheric aerosol and their effects on human health. *Environ Sci Pollut Res*, 30: 125347–125369
- Arnott W P, Hamasha K, Moosmüller H, Sheridan P J, Ogren J A. 2005. Towards aerosol light-absorption measurements with a 7-wavelength aethalometer: Evaluation with a photoacoustic instrument and 3-wavelength nephelometer. *Aerosol Sci Tech*, 39: 17–29
- Arnott W P, Walker J W, Moosmüller H, Elleman R A, Jonsson H H, Buzorius G, Conant W C, Flagan R C, Seinfeld J H. 2006. Photoacoustic insight for aerosol light absorption aloft from meteorological aircraft and comparison with particle soot absorption photometer measurements: DOE Southern Great Plains climate research facility and the coastal stratocumulus imposed perturbation experiments. *J Geophys Res*, 111: D05S02
- B P, Kalgutkar S, Nikam M, Mukherjee S. 2025. Lower atmospheric profiling for climate studies pertaining to aerosols, radiation and turbulence using Unmanned Aerial System in India: Initial results. *Atmos Environ*, 351: 121211
- Bălă G P, Răjnoveanu R M, Tudorache E, Motișan R, Oancea C. 2021. Air pollution exposure—The (in)visible risk factor for respiratory diseases. *Environ Sci Pollut Res*, 28: 19615–19628
- Bali K, Banerji S, Campbell J R, Bhakta A V, Chen L W A, Holmes C D, Mao J. 2024. Measurements of brown carbon and its optical properties from boreal forest fires in Alaska summer. *Atmos Environ*, 324: 120436
- Barkey B, Liou K N. 2001. Polar nephelometer for light-scattering measurements of ice crystals. *Opt Lett*, 26: 232–234
- Baumgardner D, Kok G, Raga G. 2004. Warming of the Arctic lower stratosphere by light absorbing particles. *Geophys Res Lett*, 31: L06117
- Beck-Speier I, Dayal N, Karg E, Maier K L, Roth C, Ziesenis A, Heyder J. 2001. Agglomerates of ultrafine particles of elemental carbon and TiO₂ induce generation of lipid mediators in alveolar macrophages. *Environ Health Perspect*, 109: 613–618
- Bellouin N, Quaas J, Gryspeerdt E, Kinne S, Stier P, Watson-Parris D, Boucher O, Carslaw K S, Christensen M, Daniau A L, Dufresne J L, Feingold G, Fiedler S, Forster P, Gettelman A, Haywood J M, Lohmann U, Malavelle F, Mauritsen T, McCoy D T, Myhre G, Mülmenstädt J, Neubauer D, Possner A, Rugenstein M, Sato Y, Schulz M, Schwartz S E, Sourdeval O, Storelvmo T, Toll V, Winker D, Stevens B. 2020. Bounding global aerosol radiative forcing of climate change. *Rev Geophys*, 58: e2019RG000660
- Beuttell R G, Brewer A W. 1949. Instruments for the measurement of the visual range. *J Sci Instrum*, 26: 357–359
- Bianchi F, Tröstl J, Junninen H, Frege C, Henne S, Hoyle C R, Molteni U, Herrmann E, Adamov A, Bukowiecki N, Chen X, Duplissy J, Gysel M, Hutterli M, Kangasluoma J, Kontkanen J, Kürten A, Manninen H E, Münch S, Peräkylä O, Petäjä T, Rondo L, Williamson C, Weingartner E, Curtius J, Worsnop D R, Kulmala M, Dommen J, Baltensperger U. 2016. New particle formation in the free troposphere: A question of chemistry and timing. *Science*, 352: 1109–1112
- Bianchi F, Garmash O, He X, Yan C, Iyer S, Rosendahl I, Xu Z, Rissanen M P, Riva M, Taipale R, Sarnela N, Petäjä T, Worsnop D R, Kulmala M, Ehn M, Junninen H. 2017. The role of highly oxygenated molecules (HOMs) in determining the composition of ambient ions in the boreal forest. *Atmos Chem Phys*, 17: 13819–13831
- Biswas P, Wu C Y. 2005. Nanoparticles and the environment. *J Air Waste Manage Assoc*, 55: 708–746
- Bond T C, Charlson R J, Heintzenberg J. 1998. Quantifying the emission of light-absorbing particles: Measurements tailored to climate studies. *Geophys Res Lett*, 25: 337–340
- Bond T C, Anderson T L, Campbell D. 1999. Calibration and intercomparison of filter-based measurements of visible light absorption by aerosols. *Aerosol Sci Tech*, 30: 582–600
- Bond T C, Covert D S, Müller T. 2009. Truncation and angular-scattering corrections for absorbing aerosol in the TSI 3563 nephelometer. *Aerosol Sci Tech*, 43: 866–871
- Bond T C, Doherty S J, Fahey D W, Forster P M, Berntsen T, DeAngelo B J, Flanner M G, Ghan S, Kärcher B, Koch D, Kinne S, Kondo Y, Quinn P K, Sarofim M C, Schultz M G, Schulz M, Venkataraman C, Zhang H, Zhang S, Bellouin N, Guttikunda S K, Hopke P K, Jacobson M Z, Kaiser J W, Klimont Z, Lohmann U, Schwarz J P, Shindell D, Storelvmo T, Warren S G, Zender C S.

2013. Bounding the role of black carbon in the climate system: A scientific assessment. *J Geophys Res-Atmos*, 118: 5380–5552
- Bulatov V, Fisher M, Schechter I. 2002. Aerosol analysis by cavity-ring-down laser spectroscopy. *Anal Chim Acta*, 466: 1–9
- Bzdek B R, Zordan C A, Pennington M R, Luther III G W, Johnston M V. 2012. Quantitative assessment of the sulfuric acid contribution to new particle growth. *Environ Sci Technol*, 46: 4365–4373
- Bzdek B R, Lawler M J, Horan A J, Pennington M R, DePalma J W, Zhao J, Smith J N, Johnston M V. 2014. Molecular constraints on particle growth during new particle formation. *Geophys Res Lett*, 41: 6045–6054
- Canagaratna M R, Jayne J T, Jimenez J L, Allan J D, Alfarra M R, Zhang Q, Onasch T B, Drewnick F, Coe H, Middlebrook A, Delia A, Williams L R, Trimborn A M, Northway M J, DeCarlo P F, Kolb C E, Davidovits P, Worsnop D R. 2007. Chemical and microphysical characterization of ambient aerosols with the aerodyne aerosol mass spectrometer. *Mass Spectrometry Rev*, 26: 185–222
- Cao Y, Liu K, Wang R, Chen W, Gao X. 2021. Three-wavelength measurement of aerosol absorption using a multi-resonator coupled photoacoustic spectrometer. *Opt Express*, 29: 2258–2269
- Cappa C D, Onasch T B, Massoli P, Worsnop D R, Bates T S, Cross E S, Davidovits P, Hakala J, Hayden K L, Jobson B T, Kolesar K R, Lack D A, Lerner B M, Li S M, Mellon D, Nuaaman I, Olfert J S, Petäjä T, Quinn P K, Song C, Subramanian R, Williams E J, Zaveri R A. 2012. Radiative absorption enhancements due to the mixing state of atmospheric black carbon. *Science*, 337: 1078–1081
- Carrico C M, Capek T J, Gorkowski K J, Lam J T, Gulick S, Karacaoglu J, Lee J E, Dungan C, Aiken A C, Onasch T B, Freedman A, Mazzoleni C, Dubey M K. 2021. Humidified single-scattering albedometer (H-CAPS-PM_{SSA}): Design, data analysis, and validation. *Aerosol Sci Tech*, 55: 749–768
- Castagner J L, Bigio I J. 2007. Particle sizing with a fast polar nephelometer. *Appl Opt*, 46: 527–532
- Casuccio G S, Janocko P B, Lee R J, Kelly J F, Dattner S L, Mgebroff J S. 1983. The use of computer controlled scanning electron microscopy in environmental studies. *J Air Pollution Control Assoc*, 33: 937–943
- Ceolato R, Berg M J. 2021. Aerosol light extinction and backscattering: A review with a lidar perspective. *J Quant Spectrosc Ra*, 262: 107492
- Charlson R J, Porch W M, Waggoner A P, Ahlquist N C. 1974. Background aerosol light scattering characteristics: Nephelometric observations at Mauna Loa Observatory compared with results at other remote locations. *Tellus A-Dynamic Meteorol Oceanogr*, 26: 345–360
- Chartier R T, Greenslade M E. 2012. Initial investigation of the wavelength dependence of optical properties measured with a new multi-pass Aerosol Extinction Differential Optical Absorption Spectrometer (AE-DOAS). *Atmos Meas Tech*, 5: 709–721
- Che H, Xia X, Zhao H, Li L, Gui K, Zheng Y, Song J, Qi B, Zhu J, Miao Y, Wang Y, Wang Z, Wang H, Dubovik O, Holben B, Chen H, Shi G, Zhang X. 2024. Aerosol optical and radiative properties and their environmental effects in China: A review. *Earth-Sci Rev*, 248: 104634
- Chen C, Dubovik O, Schuster G L, Chin M, Henze D K, Lapyonok T, Li Z, Derimian Y, Zhang Y. 2022. Multi-angular polarimetric remote sensing to pinpoint global aerosol absorption and direct radiative forcing. *Nat Commun*, 13: 7459
- Chen J, Venables D S. 2011. A broadband optical cavity spectrometer for measuring weak near-ultraviolet absorption spectra of gases. *Atmos Meas Tech*, 4: 425–436
- Chen L W A, Chow J C, Wang X L, Robles J A, Sumlin B J, Lowenthal D H, Zimmermann R, Watson J G. 2015. Multi-wavelength optical measurement to enhance thermal/optical analysis for carbonaceous aerosol. *Atmos Meas Tech*, 8: 451–461
- Chernin S M. 2001. Development of optical multipass matrix systems. *J Modern Opt*, 48: 619–632
- Chow J C, Bachmann J D, Wierman S S G, Mathai Invited Di C V, Malm Invited Di W C, White Invited Di W H, Mueller Contributi P K, Kumar Contributi N, Watson J G. 2002. Visibility: Science and regulation. *J Air Waste Manage Assoc*, 52: 973–999
- Coakley Jr J A, Cess R D, Yurevich F B. 1983. The effect of tropospheric aerosols on the Earth's radiation budget: A parameterization for climate models. *J Atmos Sci*, 40: 116–138
- Collaud Coen M, Weingartner E, Apituley A, Ceburnis D, Fierz-Schmidhauser R, Flentje H, Henzing J S, Jennings S G, Moerman M, Petzold A, Schmid O, Baltensperger U. 2010. Minimizing light absorption measurement artifacts of the Aethalometer: Evaluation of five correction algorithms. *Atmos Meas Tech*, 3: 457–474
- Comerón A, Muñoz-Porcar C, Rocadenbosch F, Rodríguez-Gómez A, Sicard M. 2017. Current research in lidar technology used for the remote sensing of atmospheric aerosols. *Sensors*, 17: 1450
- Cooke W F, Liousse C, Cachier H, Feichter J. 1999. Construction of a 1°×1° fossil fuel emission data set for carbonaceous aerosol and implementation and radiative impact in the ECHAM4 model. *J Geophys Res-Atmos*, 104: 22137–22162
- Cotterell M I, Mason B J, Carruthers A E, Walker J S, Orr-Ewing A J, Reid J P. 2014. Measurements of the evaporation and hygroscopic response of single fine-mode aerosol particles using a Bessel beam optical trap. *Phys Chem Chem Phys*, 16: 2118–2128
- Cremer J W, Thaler K M, Haisch C, Signorelli R. 2016. Photoacoustics of single laser-trapped nanodroplets for the direct observation of

- nanofocusing in aerosol photokinetics. *Nat Commun*, 7: 10941
- Cremer J W, Covert P A, Parmentier E A, Signorell R. 2017. Direct measurement of photoacoustic signal sensitivity to aerosol particle size. *J Phys Chem Lett*, 8: 3398–3403
- Dall'Osto M, Harrison R M, Beddows D C S, Freney E J, Heal M R, Donovan R J. 2006. Single-particle detection efficiencies of aerosol time-of-flight mass spectrometry during the North Atlantic marine boundary layer experiment. *Environ Sci Technol*, 40: 5029–5035
- Dall'Osto M, Harrison R M, Charpanidou E, Loupa G, Rapsomanikis S. 2007. Characterisation of indoor airborne particles by using real-time aerosol mass spectrometry. *Sci Total Environ*, 384: 120–133
- Dall'Osto M, Harrison R M, Coe H, Williams P. 2009. Real-time secondary aerosol formation during a fog event in London. *Atmos Chem Phys*, 9: 2459–2469
- Davies N W, Fox C, Szpek K, Cotterell M I, Taylor J W, Allan J D, Williams P I, Trembath J, Haywood J M, Langridge J M. 2019. Evaluating biases in filter-based aerosol absorption measurements using photoacoustic spectroscopy. *Atmos Meas Tech*, 12: 3417–3434
- DeCarlo P F, Kimmel J R, Trimborn A, Northway M J, Jayne J T, Aiken A C, Gonin M, Fuhrer K, Horvath T, Docherty K S, Worsnop D R, Jimenez J L. 2006. Field-deployable, high-resolution, time-of-flight aerosol mass spectrometer. *Anal Chem*, 78: 8281–8289
- Diveky M E, Roy S, David G, Cremer J W, Signorell R. 2020. Fundamental investigation of photoacoustic signal generation from single aerosol particles at varying relative humidity. *Photoacoustics*, 18: 100170
- Dolgos G, Martins J V. 2014. Polarized Imaging Nephelometer for *in situ* airborne measurements of aerosol light scattering. *Opt Express*, 22: 21972
- Dou T, Xiao C, Shindell D T, Liu J, Eleftheriadis K, Ming J, Qin D. 2012. The distribution of snow black carbon observed in the Arctic and compared to the GISS-PUCCINI model. *Atmos Chem Phys*, 12: 7995–8007
- Draine B T, Flatau P J. 1994. Discrete-dipole approximation for scattering calculations. *J Opt Soc Am A*, 11: 1491–1499
- Drewnick F, Hings S S, DeCarlo P, Jayne J T, Gonin M, Fuhrer K, Weimer S, Jimenez J L, Demerjian K L, Borrmann S, Worsnop D R. 2005. A new time-of-flight aerosol mass spectrometer (TOF-AMS) —Instrument description and first field deployment. *Aerosol Sci Tech*, 39: 637–658
- Drewnick F, Dallosto M, Harrison R. 2008. Characterization of aerosol particles from grass mowing by joint deployment of ToF-AMS and ATOFMS instruments. *Atmos Environ*, 42: 3006–3017
- Dubovik O, Li Z, Mishchenko M I, Tanré D, Karol Y, Bojkov B, Cairns B, Diner D J, Espinosa W R, Goloub P, Gu X, Hasekamp O, Hong J, Hou W, Knobelspiesse K D, Landgraf J, Li L, Litvinov P, Liu Y, Lopatin A, Marbach T, Maring H, Martins V, Meijer Y, Milinevsky G, Mukai S, Parol F, Qiao Y, Remer L, Rietjens J, Sano I, Stammes P, Stamnes S, Sun X, Tabary P, Travis L D, Waquet F, Xu F, Yan C, Yin D. 2019. Polarimetric remote sensing of atmospheric aerosols: Instruments, methodologies, results, and perspectives. *J Quant Spectrosc Ra*, 224: 474–511
- Emde C, Buras R, Mayer B, Blumthaler M. 2010. The impact of aerosols on polarized sky radiance: Model development, validation, and applications. *Atmos Chem Phys*, 10: 383–396
- Engeln R, Berden G, Peeters R, Meijer G. 1998. Cavity enhanced absorption and cavity enhanced magnetic rotation spectroscopy. *Rev Sci Instrum*, 69: 3763–3769
- Ensor D S, Waggoner A P. 1970. Angular truncation error in the integrating nephelometer. *Atmos Environ*, 4: 481–487
- Espinosa W R, Remer L A, Dubovik O, Ziemba L, Beyersdorf A, Orozco D, Schuster G, Lapyonok T, Fuertes D, Martins J V. 2017. Retrievals of aerosol optical and microphysical properties from Imaging Polar Nephelometer scattering measurements. *Atmos Meas Tech*, 10: 811–824
- Espinosa W R, Martins J V, Remer L A, Puthukkudy A, Orozco D, Dolgos G. 2018. *In situ* measurements of angular-dependent light scattering by aerosols over the contiguous United States. *Atmos Chem Phys*, 18: 3737–3754
- Espinosa W R, Martins J V, Remer L A, Dubovik O, Lapyonok T, Fuertes D, Puthukkudy A, Orozco D, Ziemba L, Thornhill K L, Levy R. 2019. Retrievals of aerosol size distribution, spherical fraction, and complex refractive index from airborne *in situ* angular light scattering and absorption measurements. *J Geophys Res-Atmos*, 124: 7997–8024
- Estefany C, Sun Z, Hong Z, Du J. 2023. Raman spectroscopy for profiling physical and chemical properties of atmospheric aerosol particles: A review. *Ecotoxicol Environ Saf*, 249: 114405
- Fan J, Rosenfeld D, Zhang Y, Giangrande S E, Li Z, Machado L A T, Martin S T, Yang Y, Wang J, Artaxo P, Barbosa H M J, Braga R C, Comstock J M, Feng Z, Gao W, Gomes H B, Mei F, Pöhlker C, Pöhlker M L, Pöschl U, de Souza R A F. 2018. Substantial convection and precipitation enhancements by ultrafine aerosol particles. *Science*, 359: 411–418
- Ferin J, Oberdörster G, Penney D P. 1992. Pulmonary retention of ultrafine and fine particles in rats. *Am J Respir Cell Mol Biol*, 6: 535–542
- Ferin J, Oberdörster G, Soderholm S C, Gelein R. 1994. The rate of dose delivery affects pulmonary interstitialization of particles in rats. *Ann Occup Hyg*, 38: 289–293
- Fiedler S E, Hese A, Ruth A A. 2003. Incoherent broad-band cavity-

- enhanced absorption spectroscopy. *Chem Phys Lett*, 371: 284–294
- Finlayson-Pitts B J. 2017. Introductory lecture: Atmospheric chemistry in the Anthropocene. *Faraday Discuss*, 200: 11–58
- Fischer D A, Smith G D. 2018. A portable, four-wavelength, single-cell photoacoustic spectrometer for ambient aerosol absorption. *Aerosol Sci Tech*, 52: 393–406
- Fröhlich R, Cubison M J, Slowik J G, Bukowiecki N, Prévôt A S H, Baltensperger U, Schneider J, Kimmel J R, Gonin M, Rohner U, Worsnop D R, Jayne J T. 2013. The ToF-ACSM: A portable aerosol chemical speciation monitor with TOFMS detection. *Atmos Meas Tech*, 6: 3225–3241
- Gard E, Mayer J E, Morrical B D, Dienes T, Fergenson D P, Prather K A. 1997. Real-time analysis of individual atmospheric aerosol particles: Design and performance of a portable ATOFMS. *Anal Chem*, 69: 4083–4091
- Gayet J F, Crépel O, Fournel J F, Oshchepkov S. 1997. A new airborne polar Nephelometer for the measurements of optical and microphysical cloud properties. Part I: Theoretical design. *Ann Geophys*, 15: 451–459
- Geller M D, Kim S, Misra C, Sioutas C, Olson B A, Marple V A. 2002. A methodology for measuring size-dependent chemical composition of ultrafine particles. *Aerosol Sci Tech*, 36: 748–762
- Gherman T, Venables D S, Vaughan S, Orphal J, Ruth A A. 2008. Incoherent broadband cavity-enhanced absorption spectroscopy in the near-ultraviolet: Application to HONO and NO₂. *Environ Sci Technol*, 42: 890–895
- Giles K, Pringle S D, Worthington K R, Little D, Wildgoose J L, Bateman R H. 2004. Applications of a travelling wave-based radio-frequency-only stacked ring ion guide. *Rapid Comm Mass Spectrometry*, 18: 2401–2414
- Gillig K J, Ruotolo B T, Stone E G, Russell D H. 2004. An electrostatic focusing ion guide for ion mobility-mass spectrometry. *Int J Mass Spectrometry*, 239: 43–49
- Gong Z, Pan Y L, Videen G, Wang C. 2018. Optical trapping and manipulation of single particles in air: Principles, technical details, and applications. *J Quant Spectrosc Ra*, 214: 94–119
- Gonser S G, Held A. 2013. A chemical analyzer for charged ultrafine particles. *Atmos Meas Tech*, 6: 2339–2348
- González N J D, Borg-Karlson A K, Redeby J P, Nozière B, Krejci R, Pei Y, Dommen J, Prévôt A S H. 2011. New method for resolving the enantiomeric composition of 2-methyltetrols in atmospheric organic aerosols. *J Chromatogr A*, 1218: 9288–9294
- Gordon T D, Wagner N L, Richardson M S, Law D C, Wolfe D, Eloranta E W, Brock C A, Erdesz F, Murphy D M. 2015. Design of a novel open-path aerosol extinction cavity ringdown spectrometer. *Aerosol Sci Tech*, 49: 717–726
- Gyawali M, Arnott W P, Zaveri R A, Song C, Moosmüller H, Liu L, Mishchenko M I, Chen L W A, Green M C, Watson J G, Chow J C. 2012. Photoacoustic optical properties at UV, VIS, and near IR wavelengths for laboratory generated and winter time ambient urban aerosols. *Atmos Chem Phys*, 12: 2587–2601
- Haisch C. 2012. Photoacoustic spectroscopy for analytical measurements. *Meas Sci Technol*, 23: 012001
- Hallquist M, Wenger J C, Baltensperger U, Rudich Y, Simpson D, Claeys M, Dommen J, Donahue N M, George C, Goldstein A H, Hamilton J F, Herrmann H, Hoffmann T, Iinuma Y, Jang M, Jenkin M E, Jimenez J L, Kiendler-Scharr A, Maenhaut W, McFiggans G, Mentel T F, Monod A, Prévôt A S H, Seinfeld J H, Surratt J D, Szmigielski R, Wildt J. 2009. The formation, properties and impact of secondary organic aerosol: Current and emerging issues. *Atmos Chem Phys*, 9: 5155–5236
- Hämeri K, Väkevä M, Aalto P P, Kulmala M, Swietlicki E, Zhou J, Seidl W, Becker E, O’dowd C D. 2001. Hygroscopic and CCN properties of aerosol particles in boreal forests. *Tellus B-Chem Phys Meteorol*, 53: 359–379
- Hansen A D A, Rosen H, Novakov T. 1984. The aethalometer—An instrument for the real-time measurement of optical absorption by aerosol particles. *Sci Total Environ*, 36: 191–196
- Hansen M Z, Evans W H. 1980. Polar nephelometer for atmospheric particulate studies. *Appl Opt*, 19: 3389–3395
- Hanson D R, McMurphy P H, Jiang J, Tanner D, Huey L G. 2011. Ambient pressure proton transfer mass spectrometry: Detection of amines and ammonia. *Environ Sci Technol*, 45: 8881–8888
- Harrison R M, Yin J. 2000. Particulate matter in the atmosphere: Which particle properties are important for its effects on health? *Sci Total Environ*, 249: 85–101
- He X C, Tham Y J, Dada L, Wang M, Finkenzeller H, Stolzenburg D, Iyer S, Simon M, Kürten A, Shen J, Rörup B, Rissanen M, Schobesberger S, Baalbaki R, Wang D S, Koenig T K, Jokinen T, Sarnela N, Beck L J, Almeida J, Amanatidis S, Amorim A, Ataei F, Baccarini A, Bertozzi B, Bianchi F, Brilke S, Caudillo L, Chen D, Chiu R, Chu B, Dias A, Ding A, Dommen J, Duplissy J, El Haddad I, Gonzalez Carracedo L, Granzin M, Hansel A, Heinritzi M, Hofbauer V, Junninen H, Kangasluoma J, Kempainen D, Kim C, Kong W, Krechmer J E, Kvashin A, Laitinen T, Lamkaddam H, Lee C P, Lehtipalo K, Leiminger M, Li Z, Makhmutov V, Manninen H E, Marie G, Marten R, Mathot S, Mauldin R L, Mentler B, Möhler O, Müller T, Nie W, Onnela A, Petäjä T, Pfeifer J, Philippov M, Raniathkumar A, Saiz-Lopez A, Salma I, Scholz W, Schuchmann S, Schulze B, Steiner G, Stozhkov Y, Tauber C, Tomé A, Thakur R C, Väisänen O, Vazquez-Pufleau M, Wagner A C, Wang Y, Weber S K, Winkler P M, Wu Y, Xiao M, Yan C, Ye Q, Ylisirniö A, Zauner-

- Wieczorek M, Zha Q, Zhou P, Flagan R C, Curtius J, Baltensperger U, Kulmala M, Kerminen V M, Kurtén T, Donahue N M, Volkamer R, Kirkby J, Worsnop D R, Sipilä M. 2021. Role of iodine oxoacids in atmospheric aerosol nucleation. *Science*, 371: 589–595
- Hegg D A, Covert D S, Crahan K, Jonssen H. 2002. The dependence of aerosol light-scattering on RH over the Pacific Ocean. *Geophys Res Lett*, 29: 60-1–60-4
- Heintzenberg J, Charlson R J, Clarke A D, Liousse C, Ramaswamy V, Shine K P, Wendisch M, Helas G. 1997. Measurements and modelling of aerosol single-scattering albedo: Progress, problems and prospects. *Contrib Atmos Phys*, 70: 249–263
- Hering S V, Stolzenburg M R. 2005. A method for particle size amplification by water condensation in a laminar, thermally diffusive flow. *Aerosol Sci Tech*, 39: 428–436
- Hersey S P, Garland R M, Crosbie E, Shingler T, Sorooshian A, Piketh S, Burger R. 2015. An overview of regional and local characteristics of aerosols in South Africa using satellite, ground, and modeling data. *Atmos Chem Phys*, 15: 4259–4278
- Hessel L, Delfour A, Guilleme B. 2001. Mie light-scattering granulometer with an adaptive numerical filtering method II Experiments. *Appl Opt*, 40: 974–985
- Hogan Jr C J, Ruotolo B T, Robinson C V, Fernandez de la Mora J. 2011. Tandem differential mobility analysis-mass spectrometry reveals partial gas-phase collapse of the GroEL complex. *J Phys Chem B*, 115: 3614–3621
- Horan A J, Apsokardu M J, Johnston M V. 2017a. Droplet assisted inlet ionization for online analysis of airborne nanoparticles. *Anal Chem*, 89: 1059–1062
- Horan A J, Krasnomowitz J M, Johnston M V. 2017b. Particle size and chemical composition effects on elemental analysis with the nano aerosol mass spectrometer. *Aerosol Sci Tech*, 51: 1135–1143
- Hu R M, Blanchet J P, Girard E. 2005. Evaluation of the direct and indirect radiative and climate effects of aerosols over the western Arctic. *J Geophys Res*, 110: 2004JD005043
- Huang P F, Turpin B. 1996. Reduction of sampling and analytical errors for electron microscopic analysis of atmospheric aerosols. *Atmos Environ*, 30: 4137–4148
- Husar R B, Husar J D, Martin L. 2000. Distribution of continental surface aerosol extinction based on visual range data. *Atmos Environ*, 34: 5067–5078
- Intergovernmental Panel on Climate Change (IPCC). 2023. Climate Change 2021–The Physical Science Basis: Working Group I Contribution to the Sixth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change. Cambridge: Cambridge University Press. 2339
- Jacobson M Z. 2001. Strong radiative heating due to the mixing state of black carbon in atmospheric aerosols. *Nature*, 409: 695–697
- Jayne J T, Leard D C, Zhang X, Davidovits P, Smith K A, Kolb C E, Worsnop D R. 2000. Development of an aerosol mass spectrometer for size and composition analysis of submicron particles. *Aerosol Sci Tech*, 33: 49–70
- Jimenez J L, Jayne J T, Shi Q, Kolb C E, Worsnop D R, Yourshaw I, Seinfeld J H, Flagan R C, Zhang X, Smith K A, Morris J W, Davidovits P. 2003. Ambient aerosol sampling using the aerodyne aerosol mass spectrometer. *J Geophys Res*, 108: 2001JD001213
- John S, Wang M, Chen J, Pakkatil A, Du Y, Zhang J, Ramachandran A, Saseendran A, Thomas A P, Viswanathan D, Mazzoleni C, Varma R. 2021. A broadband cavity-enhanced spectrometer for atmospheric aerosol light extinction measurements. *Aerosol Sci Tech*, 55: 1264–1276
- Johnston M V, Kerecman D E. 2019. Molecular characterization of atmospheric organic aerosol by mass spectrometry. *Annu Rev Anal Chem*, 12: 247–274
- Jokinen T, Sipilä M, Junninen H, Ehn M, Lönn G, Hakala J, Petäjä T, Mauldin III R L, Kulmala M, Worsnop D R. 2012. Atmospheric sulphuric acid and neutral cluster measurements using CI-API-TOF. *Atmos Chem Phys*, 12: 4117–4125
- Jones A M, Harrison R M. 2016. Emission of ultrafine particles from the incineration of municipal solid waste: A review. *Atmos Environ*, 140: 519–528
- Jordan C E, Anderson B E, Beyersdorf A J, Corr C A, Dibb J E, Greenslade M E, Martin R F, Moore R H, Scheuer E, Shook M A, Thornhill K L, Troop D, Winstead E L, Ziemba L D. 2015. Spectral aerosol extinction (SpEx): A new instrument for *in situ* ambient aerosol extinction measurements across the UV/visible wavelength range. *Atmos Meas Tech*, 8: 4755–4771
- Hogan Jr C J, Fernández de la Mora J. 2009. Tandem ion mobility-mass spectrometry (IMS-MS) study of ion evaporation from ionic liquid-acetonitrile nanodrops. *Phys Chem Chem Phys*, 11: 8079–8090
- Junninen H, Ehn M, Petäjä T, Luosujärvi L, Kotiaho T, Kostianinen R, Rohner U, Gonin M, Fuhrer K, Kulmala M, Worsnop D R. 2010. A high-resolution mass spectrometer to measure atmospheric ion composition. *Atmos Meas Tech*, 3: 1039–1053
- Kanakidou M, Seinfeld J H, Pandis S N, Barnes I, Dentener F J, Facchini M C, Van Dingenen R, Ervens B, Nenes A, Nielsen C J, Swietlicki E, Putaud J P, Balkanski Y, Fuzzi S, Horth J, Moortgat G K, Winterhalter R, Myhre C E L, Tsigaridis K, Vignati E, Stephanou E G, Wilson J. 2005. Organic aerosol and global climate modelling: A review. *Atmos Chem Phys*, 5: 1053–1123
- Kaufman Y J, Tanré D, Boucher O. 2002. A satellite view of aerosols in the climate system. *Nature*, 419: 215–223
- Kerecman D E, Apsokardu M J, Talledo S L, Taylor Jr. M S, Haugh D

- N, Zhang Y, Johnston M V. 2021. Online characterization of organic aerosol by condensational growth into aqueous droplets coupled with droplet-assisted ionization. *Anal Chem*, 93: 2793–2801
- Kerker M. 1969. *The Scattering of Light and Other Electromagnetic Radiation*. New York: Academic Press. 666
- Keskinen H, Virtanen A, Joutsensaari J, Tsaikogeoorgas G, Duplissy J, Schobesberger S, Gysel M, Riccobono F, Slowik J G, Bianchi F, Yli-Juuti T, Lehtipalo K, Rondo L, Breitenlechner M, Kupc A, Almeida J, Amorim A, Dunne E M, Downard A J, Ehrhart S, Franchin A, Kajos M K, Kirkby J, Kürten A, Nieminen T, Makhmutov V, Mathot S, Miettinen P, Onnela A, Petäjä T, Praplan A, Santos F D, Schallhart S, Sipilä M, Stozhkov Y, Tomé A, Vaattovaara P, Wimmer D, Prevot A, Dommen J, Donahue N M, Flagan R C, Weingartner E, Viisanen Y, Riipinen I, Hansel A, Curtius J, Kulmala M, Worsnop D R, Baltensperger U, Wex H, Stratmann F, Laaksonen A. 2013. Evolution of particle composition in CLOUD nucleation experiments. *Atmos Chem Phys*, 13: 5587–5600
- Kitanovski Z, Grgić I, Veber M. 2011. Characterization of carboxylic acids in atmospheric aerosols using hydrophilic interaction liquid chromatography tandem mass spectrometry. *J Chromatogr A*, 1218: 4417–4425
- Kittelson D B. 1998. Engines and nanoparticles. *J Aerosol Sci*, 29: 575–588
- Kokhanovsky A A. 2013. Remote sensing of atmospheric aerosol using spaceborne optical observations. *Earth-Sci Rev*, 116: 95–108
- Koren I, Kaufman Y J, Remer L A, Martins J V. 2004. Measurement of the effect of Amazon smoke on inhibition of cloud formation. *Science*, 303: 1342–1345
- Krechmer J E, Groessl M, Zhang X, Junninen H, Massoli P, Lambe A T, Kimmel J R, Cubison M J, Graf S, Lin Y H, Budisulistiorini S H, Zhang H, Surratt J D, Knochenmuss R, Jayne J T, Worsnop D R, Jimenez J L, Canagaratna M R. 2016. Ion mobility spectrometry-mass spectrometry (IMS-MS) for on- and offline analysis of atmospheric gas and aerosol species. *Atmos Meas Tech*, 9: 3245–3262
- Krieger U K, Marcolli C, Reid J P. 2012. Exploring the complexity of aerosol particle properties and processes using single particle techniques. *Chem Soc Rev*, 41: 6631
- Kulmala M. 2003. How particles nucleate and grow. *Science*, 302: 1000–1001
- Kulmala M, Vehkamäki H, Petäjä T, Dal Maso M, Lauri A, Kerminen V M, Birmili W, McMurry P H. 2004. Formation and growth rates of ultrafine atmospheric particles: A review of observations. *J Aerosol Sci*, 35: 143–176
- Kulmala M, Mordas G, Petäjä T, Grönholm T, Aalto P P, Vehkamäki H, Hienola A I, Herrmann E, Sipilä M, Riipinen I, Manninen H E, Hämeri K, Stratmann F, Bilde M, Winkler P M, Birmili W, Wagner P E. 2007. The condensation particle counter battery (CPCB): A new tool to investigate the activation properties of nanoparticles. *J Aerosol Sci*, 38: 289–304
- Kumar S, Verma M K, Srivastava A K. 2013. Ultrafine particles in urban ambient air and their health perspectives. *Rev Environ Health*, 28: 117
- Kürten A, Rondo L, Ehrhart S, Curtius J. 2011. Performance of a corona ion source for measurement of sulfuric acid by chemical ionization mass spectrometry. *Atmos Meas Tech*, 4: 437–443
- Kürten A, Jokinen T, Simon M, Sipilä M, Sarnela N, Junninen H, Adamov A, Almeida J, Amorim A, Bianchi F, Breitenlechner M, Dommen J, Donahue N M, Duplissy J, Ehrhart S, Flagan R C, Franchin A, Hakala J, Hansel A, Heinritzi M, Hutterli M, Kangasluoma J, Kirkby J, Laaksonen A, Lehtipalo K, Leiminger M, Makhmutov V, Mathot S, Onnela A, Petäjä T, Praplan A P, Riccobono F, Rissanen M P, Rondo L, Schobesberger S, Seinfeld J H, Steiner G, Tomé A, Tröstl J, Winkler P M, Williamson C, Wimmer D, Ye P, Baltensperger U, Carslaw K S, Kulmala M, Worsnop D R, Curtius J. 2014. Neutral molecular cluster formation of sulfuric acid-dimethylamine observed in real time under atmospheric conditions. *Proc Natl Acad Sci USA*, 111: 15019–15024
- Kürten A, Bergen A, Heinritzi M, Leiminger M, Lorenz V, Piel F, Simon M, Sitals R, Wagner A C, Curtius J. 2016. Observation of new particle formation and measurement of sulfuric acid, ammonia, amines and highly oxidized organic molecules at a rural site in central Germany. *Atmos Chem Phys*, 16: 12793–12813
- Kwon H S, Ryu M H, Carlsten C. 2020. Ultrafine particles: Unique physicochemical properties relevant to health and disease. *Exp Mol Med*, 52: 318–328
- Lack D A, Lovejoy E R, Baynard T, Pettersson A, Ravishankara A R. 2006. Aerosol absorption measurement using photoacoustic spectroscopy: Sensitivity, calibration, and uncertainty developments. *Aerosol Sci Tech*, 40: 697–708
- Lack D A, Cappa C D, Cross E S, Massoli P, Ahern A T, Davidovits P, Onasch T B. 2009a. Absorption enhancement of coated absorbing aerosols: Validation of the photo-acoustic technique for measuring the enhancement. *Aerosol Sci Tech*, 43: 1006–1012
- Lack D A, Quinn P K, Massoli P, Bates T S, Coffman D, Covert D S, Sierau B, Tucker S, Baynard T, Lovejoy E, Murphy D M, Ravishankara A R. 2009b. Relative humidity dependence of light absorption by mineral dust after long-range atmospheric transport from the Sahara. *Geophys Res Lett*, 36: 2009GL041002
- Langridge J M, Ball S M, Shillings A J L, Jones R L. 2008. A

- broadband absorption spectrometer using light emitting diodes for ultrasensitive, *in situ* trace gas detection. *Rev Sci Instrum*, 79: 123110
- Langridge J M, Richardson M S, Lack D A, Brock C A, Murphy D M. 2013. Limitations of the photoacoustic technique for aerosol absorption measurement at high relative humidity. *Aerosol Sci Tech*, 47: 1163–1173
- Laskin A, Laskin J, Nizkorodov S A. 2012. Mass spectrometric approaches for chemical characterisation of atmospheric aerosols: Critical review of the most recent advances. *Environ Chem*, 9: 163
- Lee L A, Reddington C L, Carslaw K S. 2016. On the relationship between aerosol model uncertainty and radiative forcing uncertainty. *Proc Natl Acad Sci USA*, 113: 5820–5827
- Lei T, Xiang W, Zhao B, Hou C, Ge M, Wang W. 2024. Advances in analysis of atmospheric ultrafine particles and application in air quality, climate, and health research. *Sci Total Environ*, 949: 175045
- Lewis K, Arnott W P, Moosmüller H, Wold C E. 2008. Strong spectral variation of biomass smoke light absorption and single scattering albedo observed with a novel dual-wavelength photoacoustic instrument. *J Geophys Res*, 113: 2007JD009699
- Li J, Chen W, Yu B. 2011. Recent progress on infrared photoacoustic spectroscopy techniques. *Appl Spectr Rev*, 46: 440–471
- Li J, Carlson B E, Dubovik O, Laciš A A. 2014. Recent trends in aerosol optical properties derived from AERONET measurements. *Atmos Chem Phys*, 14: 12271–12289
- Li J, Wang W, Li K, Zhang W, Ge M, Peng C. 2019. Development and application of the multi-wavelength cavity ring-down aerosol extinction spectrometer. *J Environ Sci*, 76: 227–237
- Li J, Carlson B E, Yung Y L, Lv D, Hansen J, Penner J E, Liao H, Ramaswamy V, Kahn R A, Zhang P, Dubovik O, Ding A, Laciš A A, Zhang L, Dong Y. 2022. Scattering and absorbing aerosols in the climate system. *Nat Rev Earth Environ*, 3: 363–379
- Li L, Huang Z, Dong J, Li M, Gao W, Nian H, Fu Z, Zhang G, Bi X, Cheng P, Zhou Z. 2011. Real time bipolar time-of-flight mass spectrometer for analyzing single aerosol particles. *Int J Mass Spectrometry*, 303: 118–124
- Li Y J, Sun Y, Zhang Q, Li X, Li M, Zhou Z, Chan C K. 2017. Real-time chemical characterization of atmospheric particulate matter in China: A review. *Atmos Environ*, 158: 270–304
- Liou K N, Takano Y. 1994. Light scattering by nonspherical particles: Remote sensing and climatic implications. *Atmos Res*, 31: 271–298
- Liu J, Lin P, Laskin A, Laskin J, Kathmann S M, Wise M, Caylor R, Imholt F, Selimovic V, Shilling J E. 2016. Optical properties and aging of light-absorbing secondary organic aerosol. *Atmos Chem Phys*, 16: 12815–12827
- Liu K, Cao Y, Wang G, Zhang W, Chen W, Gao X. 2018. A novel photoacoustic spectroscopy gas sensor using a low cost polyvinylidene fluoride film. *Sens Actuat B-Chem*, 277: 571–575
- Liu Y, Jia R, Dai T, Xie Y, Shi G. 2014. A review of aerosol optical properties and radiative effects. *J Meteorol Res*, 28: 1003–1028
- Liu Y, Huang J, Huang F. 2023. A comprehensive review on study methods of aerosol optical properties in different dimensions. *IEEE Access*, 11: 36763–36786
- Lohmann U, Feichter J. 2005. Global indirect aerosol effects: A review. *Atmos Chem Phys*, 5: 715–737
- Ma L, Thompson J E. 2012. Optical properties of dispersed aerosols in the near ultraviolet (355 nm): Measurement approach and initial data. *Anal Chem*, 84: 5611–5617
- Mäkelä J M, Yli-Koivisto S, Hiltunen V, Seidl W, Swietlicki E, Teinilä K, Sillanpää M, Koponen I K, Paatero J, Rosman K, Hämeri K. 2001. Chemical composition of aerosol during particle formation events in boreal forest. *Tellus B-Chem Phys Meteorol*, 53: 380–393
- Mäkelä J M, Hoffmann T, Holzke C, Väkevä M, Suni T, Mattila T, Aalto P P, Tapper U, Kauppinen E I, O'Dowd C D. 2002. Biogenic iodine emissions and identification of end-products in coastal ultrafine particles during nucleation bursts. *J Geophys Res*, 107: PAR-14
- Maruf Hossain A M M, Park S, Kim J S, Park K. 2012. Volatility and mixing states of ultrafine particles from biomass burning. *J Hazard Mater*, 205-206: 189–197
- Massoli P, Stark H, Canagaratna M R, Krechmer J E, Xu L, Ng N L, Mauldin III R L, Yan C, Kimmel J, Miszta P K, Jimenez J L, Jayne J T, Worsnop D R. 2018. Ambient measurements of highly oxidized gas-phase molecules during the southern oxidant and aerosol study (SOAS) 2013. *ACS Earth Space Chem*, 2: 653–672
- May J C, McLean J A. 2015. Ion mobility-mass spectrometry: Time-dispersive instrumentation. *Anal Chem*, 87: 1422–1436
- McDaniel E W, Martin D W, Barnes W S. 1962. Drift tube-mass spectrometer for studies of low-energy ion-molecule reactions. *Rev Sci Instrum*, 33: 2–7
- McInnes L, Covert D, Baker B. 1997. The number of sea-salt, sulfate, and carbonaceous particles in the marine atmosphere: EM measurements consistent with the ambient size distribution. *Tellus B-Chem Phys Meteorol*, 49: 300–313
- McMurry P H. 2000. A review of atmospheric aerosol measurements. *Atmos Environ*, 34: 1959–1999
- Menon S, Hansen J, Nazarenko L, Luo Y. 2002. Climate effects of black carbon aerosols in China and India. *Science*, 297: 2250–2253
- Michel Flores J, Bar-Or R Z, Bluvshstein N, Abo-Riziq A, Kostinski A, Borrmann S, Koren I, Koren I, Rudich Y. 2012. Absorbing aerosols at high relative humidity: Linking hygroscopic growth to optical properties. *Atmos Chem Phys*, 12: 5511–5521

- Miles R E H, Rudić S, Orr-Ewing A J, Reid J P. 2010. Measurements of the wavelength dependent extinction of aerosols by cavity ring down spectroscopy. *Phys Chem Chem Phys*, 12: 3914–3920
- Miles R E H, Carruthers A E, Reid J P. 2011. Novel optical techniques for measurements of light extinction, scattering and absorption by single aerosol particles. *Laser & Photonics Rev*, 5: 534–552
- Mishchenko M I, Travis L D, Mackowski D W. 1996. T-matrix computations of light scattering by nonspherical particles: A review. *J Quant Spectrosc Ra*, 55: 535–575
- Mitchem L, Buajareern J, Hopkins R J, Ward A D, Gilham R J J, Johnston R L, Reid J P. 2006. Spectroscopy of growing and evaporating water droplets: Exploring the variation in equilibrium droplet size with relative humidity. *J Phys Chem A*, 110: 8116–8125
- Moosmüller H, Varma R, Arnott W P. 2005. Cavity ring-down and cavity-enhanced detection techniques for the measurement of aerosol extinction. *Aerosol Sci Tech*, 39: 30–39
- Moosmüller H, Chakrabarty R K, Arnott W P. 2009. Aerosol light absorption and its measurement: A review. *J Quant Spectrosc Ra*, 110: 844–878
- Müller T, Schladitz A, Massling A, Kaaden N, Kandler K, Wiedensohler A. 2009. Spectral absorption coefficients and imaginary parts of refractive indices of Saharan dust during SAMUM-1. *Tellus B-Chem Phys Meteorol*, 61: 79–95
- Murphy D M, Thomson D S. 1995. Laser ionization mass spectroscopy of single aerosol particles. *Aerosol Sci Tech*, 22: 237–249
- Nakajima T, Campanelli M, Che H, Estellés V, Irie H, Kim S W, Kim J, Liu D, Nishizawa T, Pandithurai G, Soni V K, Thana B, Tugjurn N U, Aoki K, Go S, Hashimoto M, Higurashi A, Kazadzis S, Khatri P, Kouremeti N, Kudo R, Marengo F, Momoi M, Ningombam S S, Ryder C L, Uchiyama A, Yamazaki A. 2020. An overview of and issues with sky radiometer technology and SKYNET. *Atmos Meas Tech*, 13: 4195–4218
- Nakayama T, Weixiong Z, Weijun Z. 2021. *Advances in Spectroscopic Monitoring of the Atmosphere*. Amsterdam: Elsevier. 345–412
- Ng N L, Herndon S C, Trimborn A, Canagaratna M R, Croteau P L, Onasch T B, Sueper D, Worsnop D R, Zhang Q, Sun Y L, Jayne J T. 2011. An aerosol chemical speciation monitor (ACSM) for routine monitoring of the composition and mass concentrations of ambient aerosol. *Aerosol Sci Tech*, 45: 780–794
- O’Keefe A, Deacon D A G. 1988. Cavity ring-down optical spectrometer for absorption measurements using pulsed laser sources. *Rev Sci Instrum*, 59: 2544–2551
- Oberdörster G, Oberdörster E, Oberdörster J. 2005. Nanotoxicology: An emerging discipline evolving from studies of ultrafine particles. *Environ Health Perspect*, 113: 823–839
- Oberreit D R, McMurry P H, Hogan C J. 2014. Analysis of heterogeneous uptake by nanoparticles via differential mobility analysis-drift tube ion mobility spectrometry. *Phys Chem Chem Phys*, 16: 6968–6979
- Oberreit D, Rawat V K, Larriba-Andaluz C, Ouyang H, McMurry P H, Hogan Jr C J. 2015. Analysis of heterogeneous water vapor uptake by metal iodide cluster ions via differential mobility analysis-mass spectrometry. *J Chem Phys*, 143: 104204
- Olson W B. 1984. Minimization of volume and astigmatism in White cells for use with circular sources and apertures. *Appl Opt*, 23: 1580–1585
- Ogren J A, Wendell J, Andrews E, Sheridan P J. 2017. Continuous light absorption photometer for long-term studies. *Atmos Meas Tech*, 10: 4805–4818
- Omar A H, Winker D M, Tackett J L, Giles D M, Kar J, Liu Z, Vaughan M A, Powell K A, Trepte C R. 2013. CALIOP and AERONET aerosol optical depth comparisons: One size fits none. *J Geophys Res-Atmos*, 118: 4748–4766
- Onasch T B, Massoli P, Kebedian P L, Hills F B, Bacon F W, Freedman A. 2015. Single Scattering Albedo Monitor for Airborne Particulates. *Aerosol Sci Tech*, 49: 267–279
- Ouyang H, He S, Larriba-Andaluz C, Hogan Jr C J. 2015. IMS-MS and IMS-IMS investigation of the structure and stability of dimethylamine-sulfuric acid nanoclusters. *J Phys Chem A*, 119: 2026–2036
- Pagnotti V S, Chubaty N D, McEwen C N. 2011. Solvent assisted inlet ionization: An ultrasensitive new liquid introduction ionization method for mass spectrometry. *Anal Chem*, 83: 3981–3985
- Palmer T N. 2019. Stochastic weather and climate models. *Nat Rev Phys*, 1: 463–471
- Pan Y L. 2015. Detection and characterization of biological and other organic-carbon aerosol particles in atmosphere using fluorescence. *J Quant Spectrosc Ra*, 150: 12–35
- Pan X L, Yan P, Tang J, Ma J Z, Wang Z F, Gbaguidi A, Sun Y L. 2009. Observational study of influence of aerosol hygroscopic growth on scattering coefficient over rural area near Beijing mega-city. *Atmos Chem Phys*, 9: 7519–7530
- Páscoa R N M J, Tóth I V, Rangel A O S S. 2012. Review on recent applications of the liquid waveguide capillary cell in flow based analysis techniques to enhance the sensitivity of spectroscopic detection methods. *Anal Chim Acta*, 739: 1–13
- Passananti M, Zapadinsky E, Zanca T, Kangasluoma J, Myllys N, Rissanen M P, Kurtén T, Ehn M, Attoui M, Vehkamäki H. 2019. How well can we predict cluster fragmentation inside a mass spectrometer? *Chem Commun*, 55: 5946–5949
- Pekour M S, Schmid B, Chand D, Hubbe J M, Kluzek C D, Nelson D A, Tomlinson J M, Cziczo D J. 2013. Development of a new

- airborne humidigraph system. *Aerosol Sci Tech*, 47: 201–207
- Perraud V, Li X, Jiang J, Finlayson-Pitts B J, Smith J N. 2020. Size-resolved chemical composition of sub-20 nm particles from methanesulfonic acid reactions with methylamine and ammonia. *ACS Earth Space Chem*, 4: 1182–1194
- Petzold A, Schönlinner M. 2004. Multi-angle absorption photometry—A new method for the measurement of aerosol light absorption and atmospheric black carbon. *J Aerosol Sci*, 35: 421–441
- Petzold A, Schloesser H, Sheridan P J, Arnott W P, Ogren J A, Virkkula A. 2005. Evaluation of multiangle absorption photometry for measuring aerosol light absorption. *Aerosol Sci Tech*, 39: 40–51
- Phares D J, Rhoads K P, Wexler A S. 2002. Performance of a single ultrafine particle mass spectrometer. *Aerosol Sci Tech*, 36: 583–592
- Pierce J R, Adams P J. 2007. Efficiency of cloud condensation nuclei formation from ultrafine particles. *Atmos Chem Phys*, 7: 1367–1379
- Pikridas M, Bezantakos S, Močnik G, Keleshis C, Brechtel F, Stavroulas I, Demetriades G, Antoniou P, Vouterakos P, Argyrides M, Liakakou E, Drinovec L, Marinou E, Amiridis V, Vrekoussis M, Mihalopoulos N, Sciare J. 2019. On-flight intercomparison of three miniature aerosol absorption sensors using unmanned aerial systems (UASs). *Atmos Meas Tech*, 12: 6425–6447
- Pope III C A, Dockery D W. 2006. Health effects of fine particulate air pollution: Lines that connect. *J Air Waste Manage Assoc*, 56: 709–742
- Pöschl U, Shiraiwa M. 2015. Multiphase chemistry at the atmosphere-biosphere interface influencing climate and public health in the anthropocene. *Chem Rev*, 115: 4440–4475
- Prather K A, Nordmeyer T, Salt K. 1994. Real-time characterization of individual aerosol particles using time-of-flight mass spectrometry. *Anal Chem*, 66: 1403–1407
- Pratt K A, Prather K A. 2012a. Mass spectrometry of atmospheric aerosols—Recent developments and applications. Part I: Off-line mass spectrometry techniques. *Mass Spectrometry Rev*, 31: 1–16
- Pratt K A, Prather K A. 2012b. Mass spectrometry of atmospheric aerosols—Recent developments and applications. Part II: On-line mass spectrometry techniques. *Mass Spectrometry Rev*, 31: 17–48
- Pui D Y H, Chen S C, Zuo Z. 2014. PM_{2.5} in China: Measurements, sources, visibility and health effects, and mitigation. *Particuology*, 13: 1–26
- Purves R W, Guevremont R. 1999. Electrospray ionization high-field asymmetric waveform ion mobility spectrometry-mass spectrometry. *Anal Chem*, 71: 2346–2357
- Quiney R G, Carswell A I. 1972. Laboratory measurements of light scattering by simulated atmospheric aerosols. *Appl Opt*, 11: 1611–1618
- Radney J G, You R, Zachariah M R, Zangmeister C D. 2017. Direct *in situ* mass specific absorption spectra of biomass burning particles generated from smoldering hard and softwoods. *Environ Sci Technol*, 51: 5622–5629
- Ramanathan V, Crutzen P J, Kiehl J T, Rosenfeld D. 2001. Aerosols, climate, and the hydrological cycle. *Science*, 294: 2119–2124
- Ramaswamy V, Collins W, Haywood J, Lean J, Mahowald N, Myhre G, Naik V, Shine K P, Soden B, Stenchikov G, Storelvmo T. 2019. Radiative forcing of climate: The historical evolution of the radiative forcing concept, the forcing agents and their quantification, and applications. *Meteorol Monogr*, 59: 14.1–14.101
- Reesor T R. 1951. The astigmatism of a multiple path absorption cell. *J Opt Soc Am*, 41: 1059–1060
- Rkiouak L, Tang M J, Camp J C J, McGregor J, Watson I M, Cox R A, Kalberer M, Ward A D, Pope F D. 2014. Optical trapping and Raman spectroscopy of solid particles. *Phys Chem Chem Phys*, 16: 11426–11434
- Rus J, Moro D, Sillero J A, Royuela J, Casado A, Estevez-Molinero F, Fernández de la Mora J. 2010. IMS-MS studies based on coupling a differential mobility analyzer (DMA) to commercial API-MS systems. *Int J Mass Spectrometry*, 298: 30–40
- Russell P B, Redemann J, Schmid B, Bergstrom R W, Livingston J M, McIntosh D M, Ramirez S A, Hartley S, Hobbs P V, Quinn P K, Carrico C M, Rood M J, Öström E, Noone K J, von Hoyningen-Huene W, Remer L. 2002. Comparison of aerosol single scattering albedos derived by diverse techniques in two North Atlantic experiments. *J Atmos Sci*, 59: 609–619
- Russell P B, Bergstrom R W, Shinzuka Y, Clarke A D, DeCarlo P F, Jimenez J L, Livingston J M, Redemann J, Dubovik O, Strawa A. 2010. Absorption Angstrom Exponent in AERONET and related data as an indicator of aerosol composition. *Atmos Chem Phys*, 10: 1155–1169
- Sakurai H, Fink M A, McMurry P H, Mauldin L, Moore K F, Smith J N, Eisele F L. 2005. Hygroscopicity and volatility of 4–10 nm particles during summertime atmospheric nucleation events in urban Atlanta. *J Geophys Res*, 110: D22S04
- Sanford T J, Murphy D M, Thomson D S, Fox R W. 2008. Albedo measurements and optical sizing of single aerosol particles. *Aerosol Sci Tech*, 42: 958–969
- Sapcey A D, Hill E S, Settersten T, Linne M A. 1998. Fixed-frequency cavity ringdown diagnostic for atmospheric particulate matter. *Opt Lett*, 23: 954–956
- Sarnela N, Jokinen T, Nieminen T, Lehtipalo K, Junninen H, Kangasluoma J, Hakala J, Taipale R, Schobesberger S, Sipilä M, Larnimaa K, Westerholm H, Heijari J, Kerminen V M, Petäjä T, Kulmala M. 2015. Sulphuric acid and aerosol particle production in the vicinity of an oil refinery. *Atmos Environ*, 119: 156–166

- Saros M T, Weber R J, Marti J J, McMurry P H. 1996. Ultrafine aerosol measurement using a condensation nucleus counter with pulse height analysis. *Aerosol Sci Tech*, 25: 200–213
- Schnaiter M, Schmid O, Petzold A, Fritzsche L, Klein K F, Andreae M O, Helas G, Thielmann A, Gimmler M, Möhler O, Linke C, Schurath U. 2005. Measurement of wavelength-resolved light absorption by aerosols utilizing a UV-VIS extinction cell. *Aerosol Sci Tech*, 39: 249–260
- Schnelle-Kreis J, Orasche J, Abbaszade G, Schäfer K, Harlos D P, Hansen A D A, Zimmermann R. 2011. Application of direct thermal desorption gas chromatography time-of-flight mass spectrometry for determination of nonpolar organics in low-volume samples from ambient particulate matter and personal samplers. *Anal Bioanal Chem*, 401: 3083–3094
- Schwarz J P, Gao R S, Fahey D W, Thomson D S, Watts L A, Wilson J C, Reeves J M, Darbeheshti M, Baumgardner D G, Kok G L, Chung S H, Schulz M, Hendricks J, Lauer A, Kärcher B, Slowik J G, Rosenlof K H, Thompson T L, Langford A O, Loewenstein M, Aikin K C. 2006. Single-particle measurements of midlatitude black carbon and light-scattering aerosols from the boundary layer to the lower stratosphere. *J Geophys Res*, 111: D16207
- Schwoeble A J, Dalley A M, Henderson B C, Casuccio G S. 1988. Computer-controlled SEM and microimaging of fine particles. *JOM*, 40: 11–14
- Sedlacek A J. 2006. Real-time detection of ambient aerosols using photothermal interferometry: Folded Jamin interferometer. *Rev Sci Instrum*, 77: 064903
- Sedlacek A, Lee J. 2007. Photothermal interferometric aerosol absorption spectrometry. *Aerosol Sci Tech*, 41: 1089–1101
- Seinfeld J H, Pandis S N. 2016. Atmospheric Chemistry and Physics: From Air Pollution to Climate Change. 3rd ed. New York: Wiley. 1152
- Semmler M, Seitz J, Erbe F, Mayer P, Heyder J, Oberdörster G, Kreyling W G. 2004. Long-term clearance kinetics of inhaled ultrafine insoluble iridium particles from the rat lung, including transient translocation into secondary organs. *Inhalation Toxicol*, 16: 453–459
- Sharma N, Arnold I J, Moosmüller H, Arnott W P, Mazzoleni C. 2013. Photoacoustic and nephelometric spectroscopy of aerosol optical properties with a supercontinuum light source. *Atmos Meas Tech*, 6: 3501–3513
- Sheridan P J, Arnott W P, Ogren J A, Andrews E, Atkinson D B, Covert D S, Moosmüller H, Petzold A, Schmid B, Strawa A W, Varma R, Virkkula A. 2005. The reno aerosol optics study: An evaluation of aerosol absorption measurement methods. *Aerosol Sci Tech*, 39: 1–16
- Shi J P, Harrison R M. 1999. Investigation of ultrafine particle formation during diesel exhaust dilution. *Environ Sci Technol*, 33: 3730–3736
- Shiraiwa M, Ueda K, Pozzer A, Lammel G, Kampf C J, Fushimi A, Enami S, Arangio A M, Fröhlich-Nowoisky J, Fujitani Y, Furuyama A, Lakey P S J, Lelieveld J, Lucas K, Morino Y, Pöschl U, Takahama S, Takami A, Tong H, Weber B, Yoshino A, Sato K. 2017. Aerosol health effects from molecular to global scales. *Environ Sci Technol*, 51: 13545–13567
- Shrivastava M, Fan J, Zhang Y, Rasool Q Z, Zhao B, Shen J, Pierce J R, Jathar S H, Akherati A, Zhang J, Zaveri R A, Gaudet B, Liu Y, Andreae M O, Pöhlker M L, Donahue N M, Wang Y, Seinfeld J H. 2024. Intense formation of secondary ultrafine particles from Amazonian vegetation fires and their invigoration of deep clouds and precipitation. *One Earth*, 7: 1029–1043
- Shvartsburg A A. 2008. Differential Ion Mobility Spectrometry: Nonlinear Ion Transport and Fundamentals of FAIMS. Boca Raton: CRC Press. 322
- Si Y, Lu Q, Zhang X, Hu X, Wang F, Li L, Gu S. 2021. A review of advances in the retrieval of aerosol properties by remote sensing multi-angle technology. *Atmos Environ*, 244: 117928
- Singh A, Bloss W J, Pope F D. 2017. 60 years of UK visibility measurements: Impact of meteorology and atmospheric pollutants on visibility. *Atmos Chem Phys*, 17: 2085–2101
- Sinyuk A, Holben B N, Smirnov A, Eck T F, Slutsker I, Schafer J S, Giles D M, Sorokin M. 2012. Assessment of error in aerosol optical depth measured by AERONET due to aerosol forward scattering. *Geophys Res Lett*, 39: L23806
- Sipilä M, Sarnela N, Jokinen T, Henschel H, Junninen H, Kontkanen J, Richters S, Kangasluoma J, Franchin A, Peräkylä O, Rissanen M P, Ehn M, Vehkamäki H, Kurten T, Berndt T, Petäjä T, Worsnop D, Ceburnis D, Kerminen V M, Kulmala M, O'Dowd C. 2016. Molecular-scale evidence of aerosol particle formation via sequential addition of HIO₃. *Nature*, 537: 532–534
- Sloane C S, Rood M J, Rogers C F. 1991. Measurements of aerosol particle size: Improved precision by simultaneous use of optical particle counter and nephelometer. *Aerosol Sci Tech*, 14: 289–301
- Smith J D, Atkinson D B. 2001. A portable pulsed cavity ring-down transmissometer for measurement of the optical extinction of the atmospheric aerosol. *Analyst*, 126: 1216–1220
- Smith J N, Moore K F, McMurry P H, Eisele F L. 2004. Atmospheric measurements of sub-20 nm diameter particle chemical composition by thermal desorption chemical ionization mass spectrometry. *Aerosol Sci Tech*, 38: 100–110
- Smith J N, Barsanti K C, Friedli H R, Ehn M, Kulmala M, Collins D R, Scheckman J H, Williams B J, McMurry P H. 2010. Observations of

- aminium salts in atmospheric nanoparticles and possible climatic implications. *Proc Natl Acad Sci USA*, 107: 6634–6639
- Smith J N, Draper D C, Chee S, Dam M, Glicker H, Myers D, Thomas A E, Lawler M J, Myllys N. 2021. Atmospheric clusters to nanoparticles: Recent progress and challenges in closing the gap in chemical composition. *J Aerosol Sci*, 153: 105733
- Steele P T, Tobias H J, Fergenson D P, Pitesky M E, Horn J M, Czerwieniec G A, Russell S C, Lebrilla C B, Gard E E, Frank M. 2003. Laser power dependence of mass spectral signatures from individual bacterial spores in bioaerosol mass spectrometry. *Anal Chem*, 75: 5480–5487
- Stephens G L, O'Brien D, Webster P J, Pilewski P, Kato S, Li J. 2015. The albedo of Earth. *Rev Geophys*, 53: 141–163
- Stephens M, Turner N, Sandberg J. 2003. Particle identification by laser-induced incandescence in a solid-state laser cavity. *Appl Opt*, 42: 3726–3736
- Stölzel M, Breitner S, Cyrys J, Pitz M, Wölke G, Kreyling W, Heinrich J, Wichmann H E, Peters A. 2007. Daily mortality and particulate matter in different size classes in Erfurt, Germany. *J Expo Sci Environ Epidemiol*, 17: 458–467
- Strawa A W, Castaneda R, Owano T, Baer D S, Paldus B A. 2003. The measurement of aerosol optical properties using continuous wave cavity ring-down techniques. *J Atmos Ocean Technol*, 20: 454–465
- Sturm R. 2011. Theoretical and experimental approaches to the deposition and clearance of ultrafine carcinogens in the human respiratory tract. *Thoracic Cancer*, 2: 61–68
- Sun J, Hermann M, Weinhold K, Merkel M, Birmili W, Yang Y, Tuch T, Flentje H, Briel B, Ries L, Couret C, Elsasser M, Sohmer R, Wirtz K, Meinhardt F, Schütze M, Bath O, Hellack B, Kerminen V M, Kulmala M, Ma N, Wiedensohler A. 2024. Measurement report: Contribution of atmospheric new particle formation to ultrafine particle concentration, cloud condensation nuclei, and radiative forcing—Results from 5-year observations in central Europe. *Atmos Chem Phys*, 24: 10667–10687
- Tao Y, Ye X, Jiang S, Yang X, Chen J, Xie Y, Wang R. 2016. Effects of amines on particle growth observed in new particle formation events. *J Geophys Res-Atmos*, 121: 324–335
- Terhune R W, Anderson J E. 1977. Spectrophone measurements of the absorption of visible light by aerosols in the atmosphere. *Opt Lett*, 1: 70–72
- Thomas J M, He S, Larriba-Andaluz C, DePalma J W, Johnston M V, Hogan Jr C J. 2016. Ion mobility spectrometry-mass spectrometry examination of the structures, stabilities, and extents of hydration of dimethylamine-sulfuric acid clusters. *Phys Chem Chem Phys*, 18: 22962–22972
- Thompson J E, Spangler H D. 2006. Tungsten source integrated cavity output spectroscopy for the determination of ambient atmospheric extinction coefficient. *Appl Opt*, 45: 2465
- Thompson J E, Smith B W, Winefordner J D. 2002. Monitoring atmospheric particulate matter through cavity ring-down spectroscopy. *Anal Chem*, 74: 1962–1967
- Thompson J E, Barta N, Policarpio D, DuVall R. 2008. A fixed frequency aerosol albedometer. *Opt Express*, 16: 2191–2205
- Titos G, Cazorla A, Zieger P, Andrews E, Lyamani H, Granados-Muñoz M J, Olmo F J, Alados-Arboledas L. 2016. Effect of hygroscopic growth on the aerosol light-scattering coefficient: A review of measurements, techniques and error sources. *Atmos Environ*, 141: 494–507
- Tyler J E, Richardson W H. 1958. Nephelometer for the measurement of volume scattering function *in situ*. *J Opt Soc Am*, 48: 354–357
- Ulanowski Z, Greenaway R S, Kaye P H, Ludlow I K. 2002. Laser diffractometer for single-particle scattering measurements. *Meas Sci Technol*, 13: 292–296
- Varma R, Moosmüller H, Arnott W P. 2003. Toward an ideal integrating nephelometer. *Opt Lett*, 28: 1007–1009
- Virkkula A, Ahlquist N C, Covert D S, Arnott W P, Sheridan P J, Quinn P K, Coffman D J. 2005a. Modification, calibration and a field test of an instrument for measuring light absorption by particles. *Aerosol Sci Tech*, 39: 68–83
- Virkkula A, Ahlquist N C, Covert D S, Sheridan P J, Arnott W P, Ogren J A. 2005b. A three-wavelength optical extinction cell for measuring aerosol light extinction and its application to determining light absorption coefficient. *Aerosol Sci Tech*, 39: 52–67
- Virkkula A, Mäkelä T, Hillamo R, Yli-Tuomi T, Hirsikko A, Hämeri K, Koponen I K. 2007. A simple procedure for correcting loading effects of aethalometer data. *J Air Waste Manage Assoc*, 57: 1214–1222
- Voisin D, Smith J N, Sakurai H, McMurry P H, Eisele F L. 2003. Thermal desorption chemical ionization mass spectrometer for ultrafine particle chemical composition. *Aerosol Sci Tech*, 37: 471–475
- Wagner A C, Bergen A, Brilke S, Fuchs C, Ernst M, Hoker J, Heinritzi M, Simon M, Böhner B, Curtius J, Kürten A. 2018. Size-resolved online chemical analysis of nanoaerosol particles: A thermal desorption differential mobility analyzer coupled to a chemical ionization time-of-flight mass spectrometer. *Atmos Meas Tech*, 11: 5489–5506
- Wang C, Gong Z, Pan Y L, Videen G. 2015. Optical trap-cavity ringdown spectroscopy as a single-aerosol-particle-scope. *Appl Phys Lett*, 107: 241903
- Wang G, Kulinski P, Hubert P, Deguine A, Petitprez D, Crumeyrolle S, Fertein E, Deboudt K, Flament P, Sigrist M W, Yi H, Chen W D.

2019. Filter-free light absorption measurement of volcanic ashes and ambient particulate matter using multi-wavelength photoacoustic spectroscopy. *Prog Electromagn Res*, 166: 59–74
- Wang H C, John W. 1988. Characteristics of the berner impactor for sampling inorganic ions. *Aerosol Sci Tech*, 8: 157–172
- Wang J, Zhu C, Zhu Y, Chen S. 2015. Characterization of Aerosol Properties in Beijing from Long-Term AERONET Monitoring (2003–2012). *J Ind Soc Remote Sens*, 43: 825–839
- Wang M, Kong W, Marten R, He X C, Chen D, Pfeifer J, Heitto A, Kontkanen J, Dada L, Kürten A, Yli-Juuti T, Manninen H E, Amanatidis S, Amorim A, Baalbaki R, Baccarini A, Bell D M, Bertozzi B, Bräkling S, Brilke S, Murillo L C, Chiu R, Chu B, De Menezes L P, Duplissy J, Finkenzeller H, Carracedo L G, Granzin M, Guida R, Hansel A, Hofbauer V, Krechmer J, Lehtipalo K, Lamkaddam H, Lampimäki M, Lee C P, Makhmutov V, Marie G, Mathot S, Mauldin R L, Mentler B, Müller T, Onnela A, Partoll E, Petäjä T, Philippov M, Pospisilova V, Ranjithkumar A, Rissanen M, Rörup B, Scholz W, Shen J, Simon M, Sipilä M, Steiner G, Stolzenburg D, Tham Y J, Tomé A, Wagner A C, Wang D S, Wang Y, Weber S K, Winkler P M, Wlasits P J, Wu Y, Xiao M, Ye Q, Zauner-Wieczorek M, Zhou X, Volkamer R, Riipinen I, Dommen J, Curtius J, Baltensperger U, Kulmala M, Worsnop D R, Kirkby J, Seinfeld J H, El-Haddad I, Flagan R C, Donahue N M. 2020. Rapid growth of new atmospheric particles by nitric acid and ammonia condensation. *Nature*, 581: 184–189
- Wang S, Johnston M V. 2006. Airborne nanoparticle characterization with a digital ion trap-reflectron time of flight mass spectrometer. *Int J Mass Spectrometry*, 258: 50–57
- Wang S, Zordan C A, Johnston M V. 2006. Chemical characterization of individual, airborne sub-10-nm particles and molecules. *Anal Chem*, 78: 1750–1754
- Wang X, Zhang R, Yu W. 2019. The effects of PM_{2.5} concentrations and relative humidity on atmospheric visibility in Beijing. *J Geophys Res-Atmos*, 124: 2235–2259
- Wang Z, Su H, Wang X, Ma N, Wiedensohler A, Pöschl U, Cheng Y. 2015. Scanning supersaturation condensation particle counter applied as a nano-CCN counter for size-resolved analysis of the hygroscopicity and chemical composition of nanoparticles. *Atmos Meas Tech*, 8: 2161–2172
- Washenfeller R A, Flores J M, Brock C A, Brown S S, Rudich Y. 2013. Broadband measurements of aerosol extinction in the ultraviolet spectral region. *Atmos Meas Tech*, 6: 861–877
- Wei X, Chang N B, Bai K, Gao W. 2020. Satellite remote sensing of aerosol optical depth: Advances, challenges, and perspectives. *Crit Rev Environ Sci Tech*, 50: 1640–1725
- Weingartner E, Saathoff H, Schnaiter M, Streit N, Bitnar B, Baltensperger U. 2003. Absorption of light by soot particles: Determination of the absorption coefficient by means of aethalometers. *J Aerosol Sci*, 34: 1445–1463
- Whitby K T. 1978. The physical characteristics of sulfur aerosols. *Atmos Environ (1967)*, 12: 135–159
- White J U. 1942. Long optical paths of large aperture. *J Opt Soc Am*, 32: 285–288
- Wieser P, Wurster R, Seiler H. 1980. Identification of airborne particles by laser induced mass spectroscopy. *Atmos Environ*, 14: 485–494
- Winstanley J V, Adams M J. 1975. Point Visibility Meter: A forward scatter instrument for the measurement of aerosol extinction coefficient. *Appl Opt*, 14: 2151–2157
- Witschger O, Fabriès J F. 2005. Particules ultra-fines et santé au travail 1-caractéristiques et effets potentiels sur la santé. *Cah Notes Doc-Inst. Natl Sécurité*, 199: 21–35
- Wu Z. 2017. Gain insight into chemical components driving new particle growth on a basis of particle hygroscopicity and volatility measurements: A short review. *Curr Pollution Rep*, 3: 175–181
- Xia X, Che H, Shi H, Chen H, Zhang X, Wang P, Goloub P, Holben B. 2021. Advances in sunphotometer-measured aerosol optical properties and related topics in China: Impetus and perspectives. *Atmos Res*, 249: 105286
- Xu X, Zhao W, Fang B, Zhou J, Wang S, Zhang W, Venables D S, Chen W. 2018. Three-wavelength cavity-enhanced albedometer for measuring wavelength-dependent optical properties and single-scattering albedo of aerosols. *Opt Express*, 26: 33484–33500
- Yang J, Gong P, Fu R, Zhang M, Chen J, Liang S, Xu B, Shi J, Dickinson R. 2013. The role of satellite remote sensing in climate change studies. *Nat Clim Change*, 3: 875–883
- Yao L, Garmash O, Bianchi F, Zheng J, Yan C, Kontkanen J, Junninen H, Mazon S B, Ehn M, Paasonen P, Sipilä M, Wang M, Wang X, Xiao S, Chen H, Lu Y, Zhang B, Wang D, Fu Q, Geng F H, Li L, Wang H, Qiao L, Yang X, Chen J, Kerminen V M, Petäjä T, Worsnop D R, Kulmala M, Wang L J S. 2018. Atmospheric new particle formation from sulfuric acid and amines in a Chinese megacity. *Science*, 361: 278–281
- Yao Y, Curtis J H, Ching J, Zheng Z, Riemer N. 2022. Quantifying the effects of mixing state on aerosol optical properties. *Atmos Chem Phys*, 22: 9265–9282
- Yu C, Pangui E, Tu K, Cazaunau M, Feingesicht M, Xavier L, Bourrianne T, Michoud V, Cantrell C, Onasch T B, Freedman A, Formenti P. 2024. Characterisation of particle single-scattering albedo with a modified airborne dual-wavelength CAPS monitor. *Atmos Meas Tech*, 17: 3419–3437
- Yu Q, Huang Y. 2023. Distributions and trends of the aerosol direct radiative effect in the 21st century: Aerosol and environmental

- contributions. *J Geophys Res-Atmos*, 128: e2022JD037716
- Yu Z, Magoon G, Assif J, Brown W, Miake-Lye R. 2019. A single-pass RGB differential photoacoustic spectrometer (RGB-DPAS) for aerosol absorption measurement at 473, 532, and 671 nm. *Aerosol Sci Tech*, 53: 94–105
- Zhai J, Shao S, Yang X, Zeng Y, Fu T M, Zhu L, Shen H, Ye J, Wang C, Tao S. 2024. Chemically resolved respiratory deposition of ultrafine particles characterized by number concentration in the urban atmosphere. *Environ Sci Technol*, 58: 16507–16516
- Zhang K, Xu Z, Gao J, Xu Z, Wang Z. 2022. Review of online measurement techniques for chemical composition of atmospheric clusters and sub-20 nm particles. *Front Environ Sci*, 10: 937006
- Zhang X, Trzepla K, White W, Raffuse S, Hyslop N P. 2021. Intercomparison of thermal-optical carbon measurements by Sunset and Desert Research Institute (DRI) analyzers using the IMPRO-VE_A protocol. *Atmos Meas Tech*, 14: 3217–3231
- Zhang Y, Han Y. 2025. Direct measurement techniques for atmospheric aerosol: Physical properties review. *Atmos Environ*, 344: 121034
- Zhang Z, Wang Y, Chen X, Xu L, Zheng Z, Ching J, Zhu S, Liu D, Li W. 2025. Absorption enhancement and shielding effect of brown organic coating on black carbon aerosols. *NPJ Clim Atmos Sci*, 8: 102
- Zhao J, Eisele F L, Titcombe M, Kuang C, McMurry P H. 2010. Chemical ionization mass spectrometric measurements of atmospheric neutral clusters using the cluster-CIMS. *J Geophys Res*, 115: 2009JD012606
- Zhao W, Dong M, Chen W, Gu X, Hu C, Gao X, Huang W, Zhang W. 2013. Wavelength-resolved optical extinction measurements of aerosols using broad-band cavity-enhanced absorption spectroscopy over the spectral range of 445–480 nm. *Anal Chem*, 85: 2260–2268
- Zhao W, Xu X, Dong M, Chen W, Gu X, Hu C, Huang Y, Gao X, Huang W, Zhang W. 2014. Development of a cavity-enhanced aerosol albedometer. *Atmos Meas Tech*, 7: 2551–2566
- Zhou J, Xu X, Zhao W, Fang B, Liu Q, Cai Y, Zhang W, Venables D S, Chen W. 2020. Simultaneous measurements of the relative-humidity-dependent aerosol light extinction, scattering, absorption, and single-scattering albedo with a humidified cavity-enhanced albedometer. *Atmos Meas Tech*, 13: 2623–2634
- Zhou L, Hopke P K, Venkatachari P. 2006. Cluster analysis of single particle mass spectra measured at Flushing, NY. *Anal Chim Acta*, 555: 47–56
- Zhou W, Xu W, Kim H, Zhang Q, Fu P, Worsnop D R, Sun Y. 2020. A review of aerosol chemistry in Asia: Insights from aerosol mass spectrometer measurements. *Environ Sci-Processes Impacts*, 22: 1616–1653

(责任编辑: 车慧正)