

WPSTM-TEOMTM-MOUDITM的对比及大气气溶胶密度研究

高健¹, 周杨¹, 王进^{1*}, 王韬², 王文兴¹

(1. 山东大学环境研究院, 济南 250100; 2. 香港理工大学土木及结构工程学系, 香港)

摘要:通过对 2005 年夏季上海、北京地区大气气溶胶观测中 3 种不同原理气溶胶分析及采样仪的对比, 考察了颗粒物个数浓度粒径分布仪(WPSTM)、锥形元件振荡微量天平(TEOMTM)以及微孔颗粒物分级撞击采样器(MOUDITM)在运行中所得数据的可比性。其中 TEOMTM测量 PM_{2.5} 质量浓度与 WPSTM计算 PM_{2.5} 质量浓度数据的相关系数分别为 0.77 和 0.79, 并发现在粗粒子颗粒物比例较高的时段二者相关性分别提高为 0.91 和 0.84。MOUDITM分级质量浓度与 WPSTM计算分级质量浓度数据对比显示, 除最小粒径分级外其他分级均有较好相关性(R 分布在 0.76 ~ 0.92)。应用 2 组不同对比数据推测了上海和北京观测点 PM_{2.5} 颗粒物密度, 研究发现上海采样点颗粒物密度约为 $1.70 \text{ g} \cdot \text{cm}^{-3}$, 而北京采样点颗粒物密度约为 $1.50 \text{ g} \cdot \text{cm}^{-3}$ 。

关键词: 宽范围颗粒物分光计(WPSTM); 锥形元件振荡微量天平(TEOMTM); 微孔均匀撞击式采样器(MOUDITM); 气溶胶密度

中图分类号: X513 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2007)09-1929-06

Inter-comparison of WPSTM-TEOMTM-MOUDITM and Investigation on Particle Density

GAO Jian¹, ZHOU Yang¹, WANG Jin¹, WANG Tao², WANG Wen-xing¹

(1. Environment Research Institute, Shandong University, Ji'nan 250100, China; 2. Department of Civil and Structural Engineering, Hong Kong Polytechnic University, Hong Kong, China)

Abstract: Three aerosol samplers and analyzers were used to characterize aerosol size and mass at two sites downwind of Shanghai and Beijing urban center in summer 2005. Inter-comparison was performed for the mass concentration determined by WPSTM, TEOMTM and MOUDITM. The data got from TEOM and WPS showed the correlation factor of 0.77 and 0.79. And strong correlation has been found during the hour when coarse mode particles were dominated ($R = 0.91$ and 0.84). Also, comparison between data from WPS and MOUDI showed good correlation in difference size ranges (R ranged from 0.76 to 0.92) except the minimum stage. The particle densities at the two sites were determined based on the observed real time PM_{2.5} mass concentration and particle mass distribution data, respectively. The density of particles in Shanghai site was found to be around $1.70 \text{ g} \cdot \text{cm}^{-3}$ while the Beijing site had a value of $1.50 \text{ g} \cdot \text{cm}^{-3}$.

Key words: WPSTM; TEOMTM; MOUDITM; particle density

深入研究发现, 大气颗粒物由于细颗粒物体积小、重量轻且数量多, 在大气中停留的时间长, 输送距离远, 影响范围大, 对环境及人体的危害远高于粗粒子^[1~4]。随着对大气细颗粒物(PM_{2.5})带来的环境问题研究的增加, 针对细颗粒物的采样技术也有了长足地发展。颗粒物质量浓度实时采样装置、颗粒物分级采样器及颗粒物计数器在大气颗粒物研究中发挥了重要作用。May^[5]设计了第 1 台串联分级式膜采样器, 而开发宽范围气溶胶计数分析仪的最早尝试可以追溯到 1975 年^[6], 这些气溶胶采样及分析仪器的开发为了解大气颗粒物的物理化学形态提供了条件。大气气溶胶密度是反映气溶胶特征的重要参数之一, 体现了不同大气环境下颗粒物中化学成分的差异及成分在不同粒径颗粒物中的分布特征。我国城市地区颗粒物排放量巨大, 同时细颗粒物的前体

气体污染物如二氧化硫、氮氧化物, 以及与超细颗粒物增长相关的污染物如大气有机物等排放量也十分惊人, 这些因素可能造成我国大气气溶胶成分特征及粒径分布大大异于国外^[7~10]。

为此, 本研究针对我国典型大城市地区的细颗粒物密度特征进行了深入探讨, 以期为进一步了解细粒子污染特点和空气污染评价提供科学依据。

1 材料与方法

1.1 观测点及采样时间

收稿日期: 2006-12-29; 修订日期: 2007-03-25

基金项目: 香港研究资助局项目 (PolyU5144/04E); 中国博士后科学基金项目 (20060390990)

作者简介: 高健(1979 ~), 男, 博士研究生, 主要研究方向为大气颗粒物粒径分布、核化及微物理过程。

* 通讯联系人, E-mail: wangjin@sdu.edu.cn

于 2005-04 ~ 2005-08 分别对上海市下风方向观测点-太仓地区和北京市下风方向观测点-昌平地区的颗粒物个数浓度、 $\text{PM}_{2.5}$ 质量浓度和粒径分布特征数据以及相关的大气污染物(O_3 、 CO 、 SO_2 、 NO_x 、黑炭气溶胶)进行了观测. 太仓观测点位于上海市区西北方向约 44 km 处的太仓市北郊太仓气象站楼顶, 地面高度 20 m, 受一定交通源的影响; 而北京昌平观测点设置于昌平北部十三陵卧龙坡, 海拔 500 m, 属于偏远山区观测点, 距离北京市区大约 50 km.

1.2 实验仪器

观测中使用颗粒物个数浓度粒径分布分析仪为美国 MSP 公司生产的宽范围颗粒物分光计(WPS-wide particle spectrometer model 1000XP), 可以测量颗粒物空气动力学直径从 10 nm ~ 10 μm 颗粒物个数浓度, 同时还可以用于计算颗粒物的表面积浓度和体积浓度. 此仪器是目前首台可以将测量的粒径范围涵盖埃根核模态、积聚模态和粗粒子模态的粒径分布测量仪器. 仪器包括微分动态分析仪(DMA)、凝结核计数器(CPC)和激光气溶胶分光计(LPS), 前两者用来测量 0.01 ~ 0.5 μm 的气溶胶粒径分布特征, 可以将粒径范围分至 96 个单级进行测量; 后者用来测量 0.35 ~ 10 μm 的气溶胶粒径分布特征, 可以分为 24 个粒径单级. 其中 DMA 的进样流量为 0.3 L/min, LPS 的进样流量为 0.7 L/min. 观测中使用的时间分辨率为 8 min, 即在 8 min 内仪器扫描 10 ~ 10 000 nm 粒径范围并测量出颗粒物个数. 仪器在出厂前使用 NIST SRM 1691 和 SRM 1963 PSL 标准颗粒物(平均直径为 0.269 μm 和 0.1007 μm)对 DMA 进行标定. CPC 配有双蓄液池设计, 用于防止样品空气中凝结水气对工作液体的污染. LPS 在标定中使用 NIST 标准颗粒物.

$\text{PM}_{2.5}$ 质量浓度由美国 RP 公司生产锥形元件振荡微量天平 (TEOM1400a) 大气颗粒物监测器 (Rupprecht & Patashnick Co., Inc., Albany, NY) 测量. TEOM1400a 系列环境颗粒物监测仪是以滤膜为基础连续实时测量环境中悬浮粒子质量浓度的监测仪. 仪器的核心部件 TEOM (tapered element oscillating microbalance) 锥形元件振荡微天平为石英锥形管, 滤膜置于锥形管顶端, 振荡频率取决于锥形管的物理特性及滤膜质量, 用于直接测量实时收集在滤膜上的颗粒物质量. 该仪器利用憎水性材料[特氟纶 (Teflon) 涂膜的硼硅酸盐玻璃纤维]作为质量传感器中用于称重的滤膜材料, 同时采样气流在进入质量传感器之前被预热到 50℃ (高于环境温度), 以保证

传感器中的滤膜在很低湿度条件下进行采集. 观测中 $\text{PM}_{2.5}$ 进样系统总流量 16.7 L/min 被等动力分为 3.0 L/min 采样流量和 13.7 L/min 排气流量.

微孔均匀撞击式采样器 (MOUDI™) 是一种多级气溶胶采样设备. 本实验中使用的是八级分段采样器 Model 100, 采样流量为 30 L/min, 可以将大气颗粒物按 18、5.6、3.2、1.8、1.0、0.56、0.32 和 0.18 μm 进行分级采样. 实验中采用的采样薄膜为 47 mm 铝膜, 采样中用旋转电机保证采样膜均匀接受颗粒物. 后期实验室称量使用塞多利斯 ME 5-F 天平 (精度 0.001 mg).

2 结果与讨论

2.1 WPS 数据与 TEOM 数据比较

WPS 每个样品的分析时间为 8 min, 在其间样品空气的数密度粒径分布特征同时给出. 通过这些粒径分布数据并假设所有气溶胶颗粒物是理想中的球形, 笔者计算了观测期内不同粒径范围内的气溶胶颗粒物的体积浓度. 在观测中设定颗粒物折射系数为 1.45, 气溶胶密度默认为 $1 \text{ g} \cdot \text{cm}^{-3}$, 观测期间的颗粒物体积浓度就可以近似的代表质量浓度, 而 TEOM 采集 $\text{PM}_{2.5}$ 质量浓度数据可以认为包含了粒径小于 2.5 μm 颗粒物的真实密度信息. McMurry 等^[11] 在研究中提出利用最小二乘法考察 $\text{PM}_{2.5}$ 质量浓度与对应颗粒物体积浓度的关系可以较好地确定颗粒物密度, 并通过在美国 Atlanta 观测数据的计算确定在相对湿度 3% ~ 6% 时颗粒物密度为 $1.5 \sim 1.7 \text{ g} \cdot \text{cm}^{-3}$. Woo^[12] 也应用相同的方法在 Atlanta 测定到颗粒物密度为 $1.63 \text{ g} \cdot \text{cm}^{-3}$, 质量浓度与体积浓度的相关系数 $R = 0.90$. Stanier 等^[13] 在美国 Pittsburgh 测定干颗粒物密度为 $1.52 \text{ g} \cdot \text{cm}^{-3}$, 二者相关系数 $R = 0.97$. 这与 Hand 等^[14] 在 Texas 西南和 Tuch 等^[15] 在德国 Erfurt 用类似方法观测到的颗粒物密度结果相似 [Texas 西南 (1.56 ± 0.12) $\text{g} \cdot \text{cm}^{-3}$, 德国 Erfurt $1.5 \text{ g} \cdot \text{cm}^{-3}$].

图 1 给出的是上海和北京观测点观测期间 TEOM 采集 $\text{PM}_{2.5}$ 质量浓度数据与 WPS 分析计算所得 $\text{PM}_{2.5}$ 体积浓度数据的比较关系, 其数据采用半小时平均值. 上海观测点颗粒物质量浓度与体积浓度之比为 1.72; 北京观测发现质量浓度与体积浓度之比为 1.51. 如果仅仅从两者比值来看, 上海和北京观测地区颗粒物的密度可以近似地认为是 $1.72 \text{ g} \cdot \text{cm}^{-3}$ 和 $1.51 \text{ g} \cdot \text{cm}^{-3}$. 值得注意的是相对于国外观

测的同类结果,在上海和北京观测到的颗粒物质量浓度与体积浓度相关性并不太高,相关系数分别为 0.77 和 0.79. 一般来说可以认为相关性较好的数据代表了颗粒物密度较为均一的特征. 而在考察 2 观测点 PM_{2.5} 质量浓度与颗粒物体积浓度时间序列(未给出)后发现,不同 PM_{2.5} 质量浓度下的细颗粒物与粗颗粒物体积浓度比例有较大差别,将 2 观测点粗颗粒物体积浓度比例较大的时段数据进行分离(上

海观测点 1~2.5 μm 颗粒物体积浓度比例 > 40%, 北京观测点 > 50%), 图 1 中所示三角标记为分离数据,发现相关系数提高为 0.91 和 0.84, 而颗粒物密度计算结果为 1.77 g·cm⁻³ 和 1.27 g·cm⁻³. 这说明对于不同粒径范围的颗粒物其化学成分组成可能差异较大,颗粒物密度也随之存在较大差异,而仅从质量浓度和体积浓度的比值来确定颗粒物密度是不精确的.

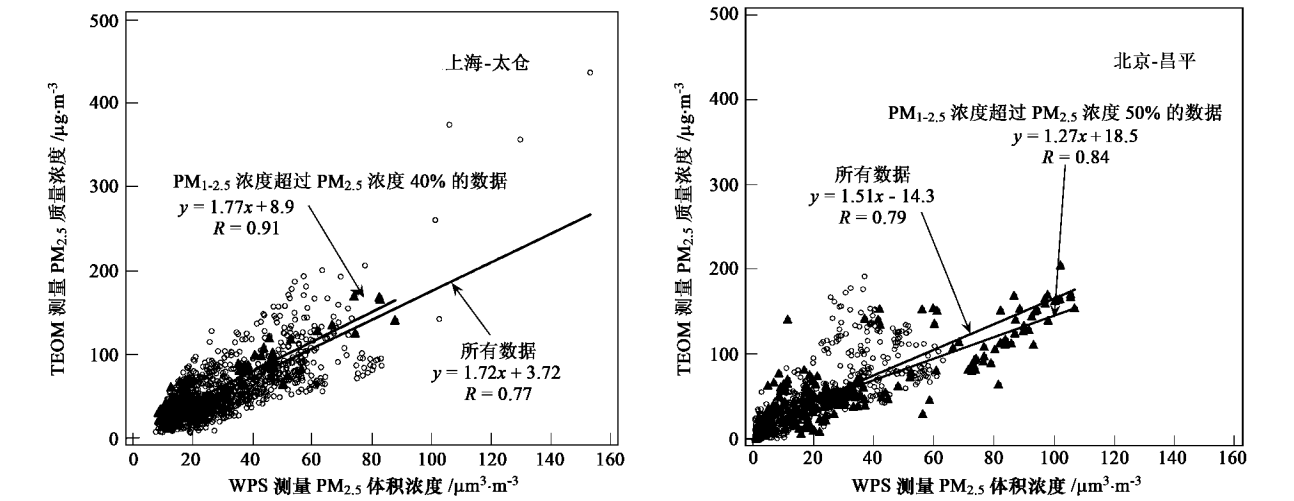


图 1 TEOM 测量 PM_{2.5} 质量浓度与 WPS 计算 PM_{2.5} 质量浓度对比

Fig. 1 Comparison of Mass concentration between TEOM data and WPS calculated results

研究中发现北京观测点颗粒物密度小于上海观测点,可能是由于 2 个观测点的大气环境本质不同决定的. 北京观测点位于山地环境,地面植被覆盖率较高,且远离城市污染源,其主要成分可能是二次气溶胶[如(NH₄)₂SO₄、NH₄HSO₄、二次有机气溶胶等],其密度较小,而密度较大的地壳成分(如 SiO₂、Al₂O₃、Fe₂O₃、CaO 等)较少. 上海观测点位于城郊,但临近主要交通道路,可能受到一定地面扬尘的影响,导致颗粒物密度偏高.

2.2 WPS 数据与 MOUDI 数据比较

观测期间颗粒物质量浓度粒径分布数据由微孔均匀撞击式采样器(MOUDI)采集获得,采样时间为每天 10:10 至第 2 d 09:10. 采样用膜为 47 mm 铝膜,应用前在 550 ℃ 条件下烘烤 24 h,采集回实验室应用塞多利斯 ME 5-F 天平(精度 0.001 mg)进行称重. 应用同期由 WPS 采集颗粒物个数浓度计算了相应粒径范围内颗粒物质量密度($dM/dlgD_p$),研究中将 10~10 000 nm 的颗粒物粒径范围划分为 10 个粒径级(0.21、0.41、0.52、0.72、1.00、1.37、2.13、4.10、5.88、8.94 μm),并将其与 MOUDI 质量粒径分布对

应的粒径级数据进行了对比. 图 2 所示为上海、北京观测点观测质量与体积浓度粒径分布. MOUDI 数据上海观测点颗粒物质量密度($dM/dlgD_p$)在 0.32~0.56 μm 和 5.6~10 μm 存在 2 个峰值,而北京观测点质量密度($dM/dlgD_p$)的峰值处于 0.56~1 μm 和 5.6~10 μm 之间. 上海观测点 WPS 计算质量密度呈现 3 峰分布,分别在 0.52~0.71 μm、1.37 μm、4.17~5.88 μm 出现峰值,与同期 MOUDI 数据的主要差别在于 1.37 μm 的峰值;北京观测点 WPS 结果与 MOUDI 结果拟合较好,总体呈现双峰分布,分别在 0.72~1.37 μm 和 4.17~5.88 μm 出现峰值.

为了全面地考察 2 种采样分析方法的可比性,按照 WPS 粒径范围 0.009 9~0.33 μm、0.33~0.55 μm、0.55~0.99 μm、0.99~2.1 μm、2.1~3.5 μm、3.5~5.9 μm、5.9~10 μm 计算了颗粒物质量浓度,分别对应 MOUDI 采样中 0~0.32 μm、0.32~0.56 μm、0.56~1 μm、1~1.8 μm、1.8~3.2 μm、3.2~5.6 μm 及 5.6~10 μm 分级,并将其与所对应粒径级的 MOUDI 采样数据进行对比.

图 3 所示为上海、北京观测点 7 个粒径范围内 2

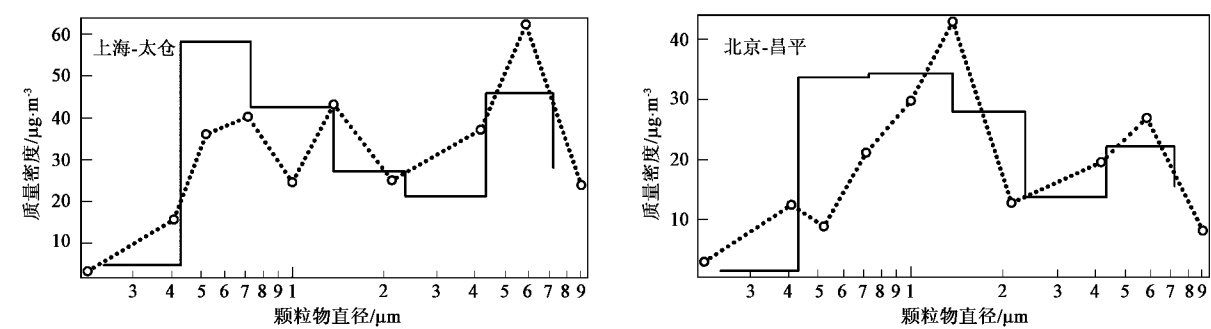


图 2 MOUDI 测量颗粒物质量分布与 WPS 计算颗粒物质量分布对比
Fig.2 Comparison of mass distribution between MOUDI data and WPS calculated results

组数据的对比结果. 其中上海观测点共获得 5 个样品, 北京观测点观测获得 7 个样品. 除了最低分级($0 \sim 0.32 \mu\text{m}$)粒径范围内二者无明显关系($R = 0.33$)外, 其他 6 个分级内 MOUDI 数据与 WPS 数据具有良好的相关性, R 分别为 0.82、0.85、0.92、0.91、0.91、0.76. Shen 等^[16]在观测中也发现在最后分级的粒径范围内 MOUDI 数据和颗粒物体积浓度数据缺乏相关性, 并发现分级膜采样浓度往往高于颗粒物计数器计算浓度, 而从图 2 及图 3(d)、3(g)可以看出, 在部分颗粒分级中 MOUDI 数据又低于 WPS 数据. Pak 等^[17]提出这种现象可能是由于采样时颗粒物在某些粒径分级层采样膜上的回弹作用造成的, 上层捕集板上的颗粒物回弹到气流或被气流吹走, 带到下一级切割器, 造成下一级切割器切割直径变大, 从而在上、下层级层采样中均会造成偏差. 由于在本研究的采样过程中没有使用硅胶对铝膜进行处理, 颗粒物回弹现象会有一定影响.

2.3 观测点颗粒物密度分析

由上述讨论可知, 仅凭借 TEOM 数据与 WPS 数据的对比来确定观测期间颗粒物密度的方法并不准确. 因此在本研究中利用 WPS 与 MOUDI 数据的对比结果针对不同粒径范围内的颗粒物密度进行了考察. 考虑到 2 个观测点 MOUDI 采集样品数的限制, 为了降低计算中的相对偏差, 在此使用了 RMA 回归斜率法计算颗粒物密度. 需要指出的是, 这里的 RMA(reduced-major-axis)回归斜率与常规最小二乘法的计算有些差别, 主要原因是最小二乘法的理想应用应该是 x 轴的变量没有误差, 而实际观测的颗粒物浓度均存在误差, 所以在这种情况下使用最小二乘法得到的拟合曲线并非是最理想的. 详细的做法可参见文献[18 ~ 20], 但用该回归方法得到的斜率能更科学地反映 2 组观测数据之间的比例关系.

表 1 所示为应用 RMA 回归斜率法计算所得 2 个观测点 7 个颗粒物粒径范围内的颗粒物密度. 可以看到对于相关性来说, 上海观测点 $5.6 \sim 10 \mu\text{m}$ 范围、北京观测点 $0 \sim 0.32 \mu\text{m}$ 范围内相关性较差. 值得注意的是上海观测点大于 $3.2 \mu\text{m}$ ($3.2 \sim 5.6 \mu\text{m}$ 和 $5.6 \sim 10 \mu\text{m}$)的颗粒物密度大于北京观测点, 可能是前者大粒径颗粒物中地壳物质较多所造成的.

由于观测点各粒径范围内颗粒物体积浓度比例不同, 图 4 给出了基于 WPS 个数浓度数据计算的 2 个观测点颗粒物体积浓度百分比. 基于 2 个观测点 7 个颗粒物粒径范围内颗粒物体积浓度选择 $0 \sim 3.2 \mu\text{m}$ 粒径范围内的 5 个粒径分级进行 RMA 颗粒物近似密度加权平均(表 1), 对应 $\text{PM}_{2.5}$ 的 WPS 计算质量浓度. 在此之所以称为颗粒物近似密度, 是因为 MOUDI 采样中除去碰撞损失造成的误差, 还应考虑膜采样中挥发性物质分解挥发造成的误差: MOUDI 采样为环境温度采样, 颗粒物中的挥发性成分如硝酸铵和有机成分等在采样和后期的称量过程中会因挥发分解而使颗粒物采样质量浓度比实际大气浓度有一定差距. 经计算获得上海观测点颗粒物密度为 $1.66 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$, 这与应用观测期间观测点粗颗粒物质量浓度比例较大时段数据计算的颗粒物密度($1.77 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$)比较明显偏低, 但比较 TEOM 与 WPS 计算所得密度($1.71 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$)则略低. 如 2.2 中论述, 在 MOUDI 采样中发现在较高粒径分级采样中由于颗粒物的反弹作用粗粒径颗粒物有一定损耗, 可能使密度较高的粗颗粒物在质量粒径分布中比例有所下降, 从而拉低了密度计算结果. 考虑以上原因, 上海观测点 $\text{PM}_{2.5}$ 颗粒物密度应约为 $1.70 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$. 而北京观测点计算中得到最小粒径分级 $0 \sim 0.32 \mu\text{m}$ 级数据的 RMA 密度为 $0.07 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$, 且 WPS 数据与 MOUDI 数据相关性最低, 因此在密度计算中忽略.

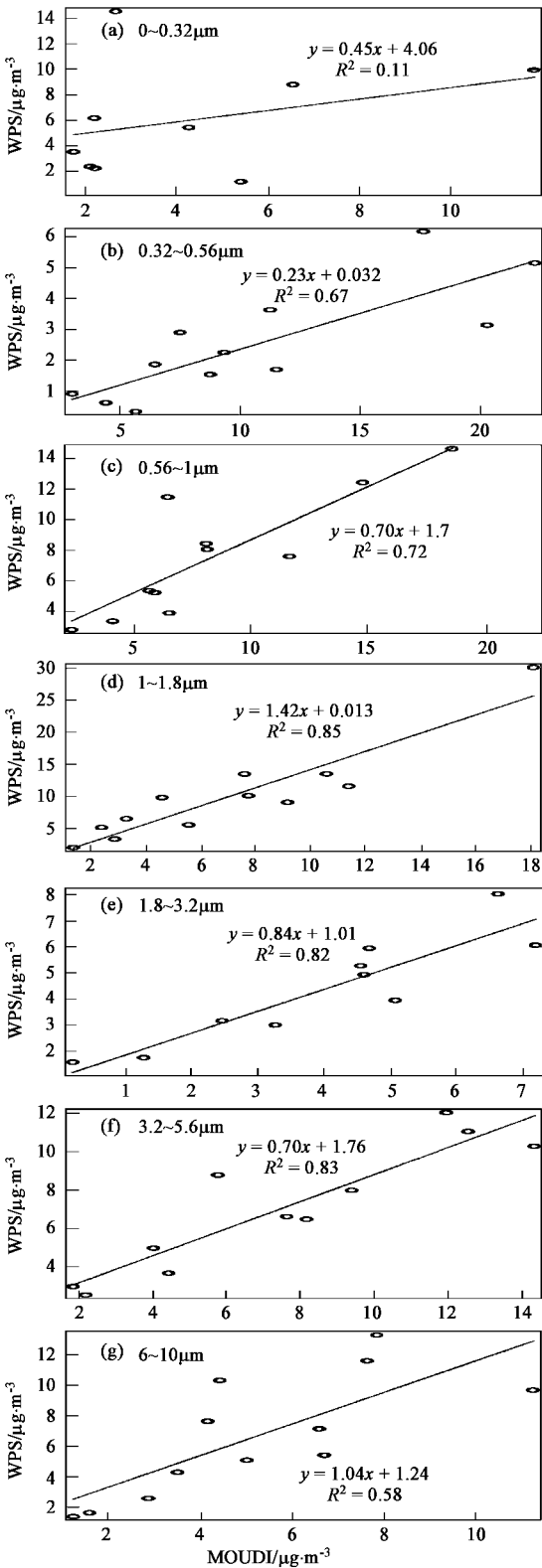


图3 各分级中 WPS 计算质量浓度与 MOUDI 采样质量浓度比较
Fig.3 Comparison of mass concentrations between WPS calculated results and MOUDI data in different particle size ranges

RMA 密度加权平均后所得为 1.50 g·cm⁻³, TEOM 与 WPS 计算所得密度 1.51 g·cm⁻³ 相比较为一致, 因此

笔者推测北京观测点夏季颗粒物密度可能分布于 1.5 g·cm⁻³ 左右. 由于采样分析及密度计算中数据受到多种因素影响, 要准确确定 2 观测点的颗粒物密度还需要对 2 地气溶胶化学成分的粒径分布进行准确的分析, 这也是本研究下一步将需要开展的工作.

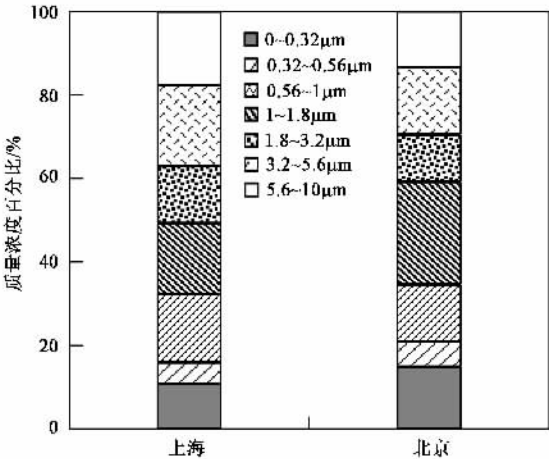


图4 观测点颗粒物质量浓度在不同粒径范围内的百分比分布
Fig.4 Percentage of volume concentrations in different size ranges

表1 观测点不同粒径范围内 WPS 计算质量浓度与 MOUDI 采样质量浓度比较相关系数及 RMA 密度

Table 1 Corresponding factor of WPS calculated mass concentration vs. MOUDI data and RMA density in different particle ranges					
粒径下限 <i>l</i> /μm	粒径上限 <i>l</i> /μm	上海		北京	
		<i>R</i>	RMA 计算密度 /g·cm ⁻³	<i>R</i>	RMA 计算密度 /g·cm ⁻³
0	0.32	0.68	0.81	0.79	0.07
0.32	0.56	0.71	6.15	0.90	2.54
0.56	1.00	0.82	1.54	0.84	2.83
1.00	1.80	0.70	1.22	0.96	0.61
1.80	3.20	0.98	0.92	0.96	1.46
3.20	5.60	0.68	2.18	0.96	1.46
5.60	10.0	0.33	1.37	0.95	1.04

3 结论

- (1) 在大气气溶胶观测中使用颗粒物数浓度分布仪(WPSTM)、锥形元件振荡微量天平(TEOMTM)所得数据进行了对比, 上海、北京观测点相关系数分别为 0.77、0.79, 观测点粗粒子模态颗粒物比例较高时段二者相关性较强, 相关系数分别为 0.91 和 0.84, 说明利用颗粒物数浓度分布数据计算质量浓度时粗粒子模态颗粒物密度分布更加均一.
- (2) MOUDITM采样数据与 WPSTM计算结果对比除最小粒径级相关性较差外其余粒径级相关性良

好,小粒径级中 2 种不同采样系统的差异可能是由于颗粒物的回弹作用造成的.

(3) 使用 RMA 回归斜率法计算 MOUDI 与 WPS 对比下的不同粒径范围内颗粒物密度,可以推测上海观测点夏季细颗粒物密度约为 $1.70\text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$,北京观测点夏季颗粒物密度约为 $1.50\text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$.

参考文献:

[1] Wichmann H E, Peters A. Epidemiological evidence of the effects of ultrafine particle exposure [J]. Philosophical Transactions of the Royal Society, 2000, **358**: 2751 ~ 2769.

[2] 杨复沫,贺克斌,马永亮,等. 北京大气 PM_{2.5} 中微量元素的浓度变化特征与来源 [J]. 环境科学, 2003, **24**(6): 33 ~ 37.

[3] Englert N. Fine particles and human health—a review of epidemiological studies [J]. Toxicology Letters, 2004, **149**: 235 ~ 242.

[4] Dentener F, Stevenson D, Ellingsen K, *et al.* The Global Atmospheric Environment for the Next Generation [J]. Environ Science Technology, 2006, **40**: 3586 ~ 3594.

[5] May K R. The cascade impactor: An instrument for sampling coarse aerosol [J]. J Sci Instrum, 1945, **22**: 187 ~ 195.

[6] Whitby K T, Clark W E, Marple V A, *et al.* Characterization of California Aerosols I. Size Distributions of Freeway Aerosols [J]. Atmospheric Environment, 1975, **9**: 463 ~ 482.

[7] 王会祥,唐孝炎,王木林,等. 长江三角洲痕量气态污染物的时空分布特征 [J]. 中国科学(D 辑), 2003, **33**(2): 114 ~ 118.

[8] 赵鹏,朱彤,梁宝生,等. 北京郊区农田夏季大气颗粒物质量和离子成分谱分布特征 [J]. 环境科学, 2006, **27**(2): 193 ~ 199.

[9] Yue W S, Li X L, Liu J F, *et al.* Characterization of PM_{2.5} in the ambient air of Shanghai city by analyzing individual particles [J]. Science of the Total Environment, 2006, **368**: 916 ~ 925.

[10] Cheunga H C, Wang T, Baumann K, *et al.* Influence of regional pollution outflow on the concentrations of fine particulate matter and visibility in the coastal area of southern China [J]. Atmospheric

Environment, 2005, **39**: 6463 ~ 6474.

[11] McMurry P H, Wang X, Park K, *et al.* The relationship between mass and mobility for atmospheric particles: A new technique for measuring particle density [J]. Aerosol Sci Technol, 2002, **36**(2): 227 ~ 238.

[12] Woo K S. Measurement of atmospheric aerosols: size distributions of nanoparticles, estimation of size distribution moments and control of relative humidity [D]. The university of Minnesota, 2003. 41 ~ 42.

[13] Stanier C O, Khlystov A Y, Pandis S N. Ambient aerosol size distributions and number concentrations measured during the Pittsburgh Air Quality Study (PAQS) [J]. Atmospheric Environment, 2004, **38**(20): 3275 ~ 3284.

[14] Hand J L, Kreidenweis S M. A new method for retrieving particle refractive index and effective density from aerosol size distribution data [J]. Aerosol Sci Technol, 2002, **36**(10): 1012 ~ 1026.

[15] Tuch T, Brand P, Wichmann H E, *et al.* Variation of Particle Number and Mass Concentration in Various Size Ranges of Ambient Aerosols in Eastern Germany [J]. Atmospheric Environment, 1997, **31**(24): 4193 ~ 4197.

[16] Shen S, Jaques P A, Zhu Y, *et al.* Evaluation of the SMPS-APS system as a continuous monitor for measuring PM_{2.5}, PM₁₀ and coarse PM_{2.5-10} [J]. Atmospheric Environ, 2002, **36**(24): 3939 ~ 3950.

[17] Pak S S, Liu B Y H, Rubuw K L. Effect of coating thickness on particle bounce in inertial impactor [J]. Aerosol Sci Technol, 1992, **16**: 141 ~ 150.

[18] Hirsch N Y, Gilroy E J. Methods of fitting a straight line to data: Examples in water resources [J]. Water Res Bull, 1984, **20**: 705 ~ 711.

[19] Karatzas K, Papadopoulos A. Regression analysis and urban air quality forecasting: An application for the city of Athens [J]. Global Nest: the Int J, 2002, **4**: 153 ~ 162.

[20] Brook J R, Strawbridge K B, Snyder B J, *et al.* Towards an understanding of the fine particle variations in the LfV: integration of chemical, physical and meteorological observations [J]. Atmospheric Environment, 2004, **38**: 5775 ~ 5788.