

大气微纳米颗粒物特征、来源及环境效应

邵龙义^{1*}, 郭子钰¹, 曹亚鑫^{1*}, 杨书申², Timothy P. Jones³, 琚宜文⁴, 王文华⁵, 李红⁶, 牛红亚⁷, 刘鹏举⁸, Kelly Bérubé⁹

¹ 中国矿业大学(北京)地球科学与测绘工程学院, 北京 100083

² 中原工学院智慧能源与环境学院, 郑州 450007

³ School of Earth and Environmental Sciences, Cardiff University, Cardiff CF10 3YE, Wales, UK

⁴ 地球系统数值模拟与应用全国重点实验室, 中国科学院大学地球与行星科学学院, 北京 101408

⁵ 东北大学秦皇岛分校资源与材料学院, 秦皇岛 066004

⁶ 中国环境科学研究院, 北京 100012

⁷ 河北工程大学地球科学与工程学院, 邯郸 056038

⁸ 环境模拟与污染控制国家重点联合实验室, 清华大学环境学院, 北京, 100084

⁹ School of Biosciences, Cardiff University, Cardiff CF10 3AX, Wales, UK

*通讯作者: ShaoL@cumt.edu.cn; caoyaxinxin@126.com

摘要: 纳米地球科学作为一门前沿学科, 有着重要的科学意义和价值, 其在环境科学领域的发展主要涉及纳米微粒的污染问题, 其中, 大气微纳米颗粒物是当前的研究热点之一。大气微纳米颗粒物是指悬浮于空气中微米级和纳米级的颗粒物, 主要来源于自然过程和人为活动, 会恶化空气质量, 损害人体健康, 同时在生态系统和气候的变化过程中起着关键的作用。准确识别大气微纳米颗粒物的来源和充分理解其物理化学特征对治理大气污染和保护公众健康至关重要。本文概述了大气微纳米颗粒物的物理化学特征, 总结了相关检测分析技术, 详细阐述了源解析方法, 探讨了各种相关的化学转化过程以及相伴随的环境效应、气候效应、健康效应及对全球地球化学循环等的影响, 最后展望了大气微纳米颗粒物的研究前景, 目的是进一步推动大气微纳米颗粒物研究的发展。

关键词: 大气微纳米颗粒物, 理化特征, 来源解析, 塑料微粒, 地球化学循环, 健康效应

Atmospheric micro- and nano- particles: characteristics, sources, and environmental behavior

Longyi Shao ^{1*}, Ziyu Guo ¹, Yaxin Cao ^{1*}, Shushen Yang ², Timothy P. Jones ³, Yiwen Ju ⁴, Wenhua Wang ⁵, Hong Li ⁶, Hongya Niu ⁷, Pengju Liu ⁸, Kelly Bérubé ⁹

¹ College of Geoscience and Surveying Engineering, China University of Mining and Technology (Beijing), Beijing 100083, China

² School of Smart Energy & Environment Engineering, Zhongyuan University of Technology, Zhengzhou 450007, China

³ School of Earth and Environmental Sciences, Cardiff University, Museum Avenue, Cardiff, CF10 3YE, UK

⁴ National Key Laboratory of Earth System Numerical Modeling and Application, College of Earth and Planetary Sciences, University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 101408, China

⁵ School of Resources and Materials, Northeastern University at Qinhuangdao, Qinhuangdao, 066004, China

⁶ Chinese Research Academy of Environmental Sciences, Beijing 100012, China

⁷ Key Laboratory of Resource Exploration Research of Hebei Province, Hebei University of Engineering, Handan 056038, China

⁸ State Key Joint Laboratory of Environment Simulation and Pollution Control, School of Environment, Tsinghua University, Beijing, 100084, China

⁹ School of Biosciences, Cardiff University, Museum Avenue, Cardiff CF10 3AX, Wales, UK

*Corresponding author: ShaoL@cumtb.edu.cn; caoyaxinxin@126.com

Abstract: Atmospheric particulate matter (PM), composed of suspended solid and liquid particles, is a complex mixture that varies in size, morphology, and chemical composition. With growing recognition of their environmental and health impacts, research has increasingly focused on micro- and nano- particles such as fine particles (PM_{2.5}), and ultrafine particles (<100 nm). Since 2013, China has implemented a series of clean air actions, leading to notable improvements in air quality. However, as PM_{2.5} mass concentrations decline, the relative contribution of ultrafine and newly formed particles has gained attention due to their higher number concentrations, larger specific surface areas, and stronger bioavailability. These properties enable them to penetrate deep into the respiratory system and interact with biological tissues, posing potentially greater health risks.

Atmospheric micro- and nano- particles exhibit diverse physical and chemical characteristics, such as size distribution, morphology, and mixing state. Their chemical

components are complex, encompassing secondary inorganic ions, secondary organic aerosols, carbonaceous matter, heavy metals, and emerging pollutants such as microplastics and engineered nanomaterials. Formation processes involve gas-to-particle conversion, nucleation, condensation, and heterogeneous reactions. New particle formation events contribute significantly to particle number concentrations and typically occur under low pre-existing surface area conditions with high precursor gas availability. After formation, particles undergo aging, coating, and mixing, which modify their physicochemical properties and atmospheric behaviors.

Given their heterogeneity, individual particle analysis has become a powerful approach for characterizing detailed particle properties. High-resolution microscopy and spectroscopy, such as scanning electron microscopy (SEM), transmission electron microscopy (TEM), atomic force microscopy (AFM), energy-dispersive X-ray spectroscopy (EDS), and Raman spectroscopy, allow for the determination of morphology, size, internal structure, and elemental composition of individual particles. Based on these features, particles can be classified into sub-types such as soot aggregates, mineral dust, fly ash, metal particles, and carbonaceous matter, providing insights into their sources and atmospheric processing pathways.

Atmospheric micro- and nano- particles also participate in global biogeochemical cycles through long-range transport and deposition processes. They can act as carriers of carbon, nitrogen, sulfur, and trace metals, influencing nutrient deposition in remote ecosystems such as oceans and polar regions. Interactions with clouds and precipitation contribute to the redistribution of reactive species, thereby affecting atmospheric chemistry and climate regulation.

The health effects of these particles are strongly linked to their size, surface properties, and chemical composition. Smaller particles have greater potential to deposit in the alveolar regions of the lungs, translocate into the bloodstream, and reach extrapulmonary organs. Their large surface areas enhance the capacity to adsorb and transport toxic substances such as heavy metals and persistent organic pollutants. Inhalation exposure can induce oxidative stress, inflammation, and other adverse biological responses. The presence of emerging contaminants, including microplastics and engineered nanomaterials, further complicates risk assessment due to their diverse physicochemical behaviors and potential for combined effects with conventional pollutants.

Despite recent advances, major challenges remain in detecting nanoscale particles, integrating number-based monitoring into regulatory frameworks, and linking physicochemical properties with environmental and biological effects. Future research should be focused on improving analytical sensitivity, refining source apportionment techniques, and evaluating the combined impacts of emerging pollutants such as microplastics with traditional atmospheric particles. A comprehensive understanding of these aspects is essential for developing effective air quality management strategies and mitigating the impacts of micro- and nano- particles on both the environment and human health.

Keywords: Atmospheric micro- and nano- particles, physical and chemical characteristics, source analysis, microplastics, geochemical cycles, health effects.

大气颗粒物(PM)是指悬浮在大气中的所有固态或液态的颗粒^[1]。由于对人体健康和环境有影响的主要是其中粒径在微米级和纳米级,目前对大气颗粒物的研究主要集中在粒径较小的颗粒,如 PM₁₀、PM_{2.5} 和 PM₁,随着人们认识的不断深入,超细颗粒物(ultra-fine particles, UFP)也已经引起了广泛关注^[2]。本文将大气中微米级及纳米级颗粒物统称为微纳米颗粒物(mn-PM)。PM₁₀指环境空气中空气动力学直径(Aerodynamic Equivalent Diameter, AED)不大于 10 μm 的颗粒物,也称可吸入颗粒物。PM_{2.5}指环境空气中 AED 不大于 2.5 μm 的颗粒物,也称细颗粒物。PM₁是指环境空气中 AED 不大于 1 μm 的颗粒物。UFP 是指环境空气中 AED 不大于 0.1 μm 的颗粒物,又称为纳米颗粒物^[3]。

从 2013 年开始,中国启动了三个阶段(2013-2017 年实行的“大气污染防治行动计划”、2018-2020 年“打赢蓝天保卫战三年行动计划”、2023 年开始的“空气质量持续改善行动计划”)的清洁空气行动,发布了一系列大气污染防治的政策和法规,全国空气质量整体得到改善^[4],全国城市 PM_{2.5} 浓度明显下降,根据《中国生态环境状况公报》,全国 339 个城市 PM_{2.5} 的年平均浓度从 2015 年的 46 μg/m³ 下降到了 2023 年的 30 μg/m³。2023 年京津冀及周边地区 PM_{2.5} 和 PM₁₀ 的年平均浓度分别为 43 μg/m³ 和 75 μg/m³,长三角地区 PM_{2.5} 和 PM₁₀ 的年平均浓度分别为 32 μg/m³ 和 54 μg/m³,汾渭平原 PM_{2.5} 和 PM₁₀ 的年平均浓度分别为 43 μg/m³ 和 78 μg/m³,这些地区 PM_{2.5} 和 PM₁₀ 的年平均浓度虽然有所下降,但仍然高于全国 339 个城市的平均浓度(30 μg/m³; 53 μg/m³)。虽然我国大气污染治理工作取得了举世瞩目的成就,但重点区域的大气微纳米颗粒物污染依然严峻。

大气微纳米颗粒物除了会降低空气质量外,还会对人体健康、动植物发育和器物表面造成影响,对气候造成直接或间接影响。因此大气微纳米颗粒物受到了地球科学和环境科学界的高度关注。本文总结了近年发表在大气颗粒物污染等领域的重要学术期刊上的研究成果,就大气微纳米颗粒物的物理化学特征及检测、源解析、大气化学行为及影响、健康影响等方面进行总结,以期推动未来大气微纳米颗粒物研究的发展,助力持续深入打好蓝天保卫战。

1 大气微纳米颗粒物的物理化学特征及检测

大气微纳米颗粒物的物理化学特征分为物理特征和化学组分特征，其中，物理特征包括质量浓度、数量浓度、粒径大小、形貌、混合状态、吸湿性等，化学组分分为有机和无机组分。

1.1 大气微纳米颗粒物的物理特征

大气微纳米颗粒物的质量浓度是指单位体积空气中含有的颗粒物质量。监测方法包括手工监测和自动监测，手工监测以滤膜采样法（重量法）为代表，通过对采样前后滤膜质量变化称量而获得颗粒物的质量浓度，采集的颗粒物样品可以用来进行成分分析。自动监测方法主要为微量振荡天平法和 β 射线吸收法，微量振荡天平法原理是采用末端装有滤膜的空心锥形管，空气通过锥形管时，锥形管会以一个固有频率保持振荡，当颗粒物落在滤膜上时，这个装置质量的变化会引起锥形管振荡频率的变化，根据振荡频率的变化可确定质量变化，进而实时计算颗粒物的质量浓度^[5]。 β 射线吸收法原理是 β 粒子通过滤膜后会随着滤膜上收集的颗粒物质量的增加而减少，通过评估 β 粒子通过过滤器前后的辐射强度的相对变化可以计算过滤器上聚集的颗粒物质量^[6]。大气微纳米颗粒物的质量浓度是分析大气污染的时空变化规律及影响效应的必要因素^[7, 8]。

大气微纳米颗粒物粒径分布对于了解颗粒物生长、雾霾形成、气候影响机制以及健康效应具有重要意义，颗粒物粒径谱是决定这些影响的关键。宽范围颗粒物粒径谱仪、空气动力学粒径谱仪和扫描电迁移率颗粒物粒径谱仪等仪器可以观测大气微纳米颗粒物的数浓度和粒径谱^[9]。大气微纳米颗粒物的粒径大小会随环境相对湿度而变化，随着相对湿度的增加，颗粒物吸收水分而增大，随着相对湿度的降低，颗粒物因水分蒸发而缩小^[10]。

大气微纳米颗粒物的形貌、混合状态等性质可以通过单颗粒分析得到，其研究进展在下文专门介绍。

1.2 大气微纳米颗粒物的化学组成及全样分析

从化学成分上看，大气微纳米颗粒物可以分为无机组分和有机组分，包括水溶性离子成分、微量金属、水不溶组分、有机碳和元素碳等^[11]。

水溶性无机离子(WSIIs)是大气微纳米颗粒物的主要无机组分，是二次颗粒物的主要贡献者^[12, 13]，在全球地球化学循环中起着重要作用。WSIIs 主要包括

SO_4^{2-} 、 NO_3^- 、 NH_4^+ 、 Cl^- 、 Na^+ 、 Mg^{2+} 、 Ca^{2+} 、 K^+ 等,其中,以 SO_4^{2-} 、 NO_3^- 、 NH_4^+ 为主。离子色谱法(IC)基于离子交换原理,能够连续分离、定性及定量多种共存阴、阳离子。与传统的分析方法相比,IC的突出优点是分析速度快、灵敏度高、选择性好,且能同时分离多组分,样品前处理简单,该方法已广泛应用于环境监测领域^[14]。有学者在日本 Wajima 的观测站点开展长期监测,发现 WSIs 总浓度为 $7.93 \pm 3.93 \mu\text{g}/\text{m}^3$,占 TSP 质量的 11.4%~93.9%。 SO_4^{2-} 是 WSIs 中含量最高的离子,占 WSIs 总质量的 18.0%~79.8%, NO_3^- 和 NH_4^+ 分别占总 WSIs 的 6.3%和 7.4%, Na^+ 和 Cl^- 因受频繁的强风影响而呈逐年增加趋势, K^+ 主要来源于生物质燃烧,季节变化稳定, Ca^{2+} 作为粉尘的特征离子,春季浓度最高, Mg^{2+} 在春季和夏季分别来自矿物和海洋^[15]。

尽管金属元素在大气微纳米颗粒物中占比有限,却属于危害性极强的污染物。它们不仅干扰生态系统的生物地球化学过程,还会在人体内富集,引发各类疾病^[15]。其中,镉(Cd)、铯(Cs)、铷(Rb)等重金属尤为值得关注。研究表明,这些物质是威胁人类健康的重要因素,与多种急性和慢性呼吸道疾病、肺癌、心脏病甚至致死风险相关^[9,16]。金属元素是鉴别大气颗粒物来源的良好示踪剂。例如,地壳元素(如 Al、Ca、Si、K 和 Fe)主要来自土壤粉尘,微量元素(如 Cr 和 Ni)主要来自工业源^[17]。

大气微纳米颗粒物中金属元素的分析,可分为全样和单颗粒分析两种方式,其中单颗粒分析方法作为一种重要的分析手段将在后文中重点介绍。金属元素的全样分析方法(表1)主要包括电感耦合等离子体质谱法(ICP-MS)、电感耦合等离子体发射光谱仪(ICP-OES)、电感耦合等离子体原子发射光谱仪(ICP-AES)以及气溶胶质谱仪(AMS)等。这些方法能对大气微纳米颗粒物全样中的金属元素浓度进行量化分析^[18]。ICP-MS 利用电感耦合等离子体作为离子源,结合质谱检测技术,是高效的无机多元素分析手段^[16]。该技术优点是分析精度高、速度快、动态线性范围广、检测限低、支持在大气压下进样,便于与其他技术连用,可进行同位素分析、单元素和多元素分析,以及有机物中金属元素的形态分析等。ICP-OES 基于等离子体焰炬激发离子,通过分析其发射的电磁辐射波长,快速准确、线性范围宽、稳定性好,亦常用于金属常量分析^[19]。ICP-AES 灵敏度高、准确度

高、动态线性范围宽、分析速度快、检出限低，可同时测定多种元素，且操作简便，具有较好的实用性，主要用于无机元素的定性及定量分析^[19]。

矿物颗粒是大气微纳米颗粒物的重要组成部分，包括氧化物类、硅酸盐类、碳酸盐类、硫酸盐类等。其来源主要为沙尘、道路扬尘、建筑施工和大气二次化学反应等^[20]。从微观视角看，不规则形貌多源于自然过程，规则晶形颗粒则可能是二次反应产物^[21]。X 射线衍射法（XRD）常用于全样矿物组成分析。黏土矿物和石英是中国城市大气矿物颗粒的主要组分，其中以铝硅酸盐颗粒最为常见^[21, 22]。Wang 等人^[23]研究了北京两次特大沙尘暴时大气颗粒物的组成，发现矿物颗粒的含量分别为 85.3%和 95.4%，其中粘土矿物含量最高，超过 50%，其次是石英、长石和碳酸盐颗粒。有研究发现北京雾霾中硫酸盐形成起关键作用，其主要原因是过渡金属离子会协同催化 SO₂ 氧化，形成硫酸盐^[23]。

碳质气溶胶是大气微纳米颗粒物中的一个主要组分，可以分为三大类，包括有机碳（OC）、元素碳（EC）和碳酸盐（CC，含量低，通常不做考虑）^[24]。EC 和 OC 没有严格的科学区分，基本上是根据分析方法定义的，EC 来源于化石燃料等含碳物质的不完全燃烧，是黑色的复杂混合物，包含纯的石墨，还包括有高聚合的、难挥发的有机物，在结构、光学及热学性质上和纯的元素碳非常相似；OC 由多种有机化合物组成，来源相对复杂^[25]。OC 既可能来源于燃烧源直接排放的一次有机碳（primary organic carbon, POC），也可能来源于大气氧化作用形成的二次有机碳（secondary organic carbon, SOC）^[26]。对 OC、EC 检测，主要采用热氧化法和热光法，热氧化法是利用颗粒物中挥发性不同的组分来测定；热光法是依据光学测定中的热—光透射法和热—光反射法来进行 OC/EC 的分析^[8]。

有机气溶胶(OA)是全球亚微米级大气气溶胶种普遍存在的主要组分，按照其来源通常被分为一次有机气溶胶（primary organic aerosol, POA）和二次有机气溶胶（secondary organic aerosol, SOA）。POA 主要来自生物质燃烧、煤炭燃烧、汽车尾气的直接排放。SOA 是挥发性有机物（VOCs）大气氧化的产物，由气态前体物的二次转化形成^[27]。目前，二次有机气溶胶受到了科学家们的广泛关注。大气中 SOA 的形成路径主要有两类：其一，VOCs 通过光化学反应生成半/低挥发性有机物，然后经凝结成核或包裹在原有颗粒物表面，形成气相 SOA；其二，VOCs、SO₂、NO_x 等污染物溶解到液相（云/雾滴、气溶胶）中发生均相或非均相

反应，水分蒸发后形成水相 SOA^[28,29]。有研究表明，芳香烃因高化学反应活性，对 SOA 生成贡献显著^[30]，芳香烃形成 SOA 的潜力在所有 VOCs 形成的 SOA 中的贡献占比达 94%，但是芳香烃形成 SOA 的潜力随季节变化。秋季贡献最高，夏季最低^[31]。此外，氧化剂浓度、无机气态前体物（NO_x、SO₂、NH₃）、前体颗粒物特性、环境湿度等^[29]对 SOA 生成均有显著影响。有学者采用室内烟雾箱模拟系统发现，醛酮向颗粒相转化及含氮有机物生成都会提升 SOA 浓度，NH₃与醛类的美拉德反应能够生成杂环类物质从而促进邻二甲苯 SOA 的吸光度^[32]。此外，与化石燃料生成的 SOA 不同，生物源 SOA 以粗颗粒存在，粗颗粒具有丰富的土壤粉尘和低酸性水环境，可能引发铁催化氧化反应而形成 SOA^[33]。

有机气溶胶的化学组成十分复杂，由上百种有机化合物组成，其分析主要采用气相色谱 - 质谱联用法（GC - MS）、高效液相色谱 - 质谱联用仪（HPLC - MS）及质子转移反应质谱法（PTR - MS）等技术。GC - MS 与 HPLC - MS 通过分离与质谱联用，可实现多组分精准分析，广泛应用于环境监测，PTR - MS 作为在线检测手段，凭借高灵敏度和快速响应特性，常用于痕量 VOCs 的定量分析^[34]。

表 1 各类全样分析方法对比

Table 1 Comparison of atmospheric particulate bulk sample analysis methods

方法	离 线 / 在线	分析组分	优势和局限性
ICP-MS	离线	适用于痕量元素测定，特别是重金属元素分析	分析精密度高并且速度快；检测限低；在大气压上进样，便于与其他进样技术连用；可进行同位素分析、单元素和多元素分析，以及有机物中金属元素的形态分析；但对常量元素测定有一定局限性
ICP-OES	离线	通常用于金属常量分析	快速准确、线性范围宽、稳定性好；但设备 and 操作费用较高，硬件体积较大
IC	离线	测定微量无机离子和微量有机酸	分析速度快、灵敏度高、选择性好，可同时分离多组分，样品前处理简单
ICP-AES	离线	无机元素的定性及定量分析	可同时测定多种元素，操作简便，试剂耗材少，环境污染少，分析速度快
AMS	离线	在线测量大气颗粒物中挥发、半挥发性成分质量浓度及其粒径分布特点	灵敏度高，响应时间短，可同时测量大气颗粒物的化学组成及粒径分布，并提供组分质谱和元素组成信息

GC-MS	离线	判断化合物的分子结构，测定未知组分的分子量	检出限低、灵敏度高、定性和定量更准确；但日常维护成本较高，对维护人员的经验技术要求较高
HPLC-MS	离线	能对几乎所有的化合物进行定性、定量分析，同时得到每一个组分的分子量和其丰富的结构信息	分析范围广，定性、定量检测结果准确，检测效率高
PTR-MS	在线	对痕量挥发性有机化合物在线定量检测	具有 PPT(V)级检测限、MS 级响应时间和自定量测量；但只能通过核质比来区分子离子，对于同分异构体有机分子较难区分

1.3 大气新粒子生成

新粒子生成（New particle formation, NPF）是气态污染物向颗粒相转化的关键过程，也是大气超细颗粒物的重要来源^[35,36]。该过程可在数小时内产生大量二次 UFP，贡献了全球大气颗粒物总数浓度的一半以上^[37]。

NPF 可以分为成核和增长两个阶段，成核阶段通过气-液-固转化形成的 1 nm 大小的稳定分子簇，增长阶段则包括从 1 nm ~ 3 nm 的初始增长（依赖蒸汽冷凝、非均相过程），以及通过碰并和持续冷凝形成更大颗粒的后续增长^[35,38,39]。气态硫酸是成核的核心前体物，其浓度达到阈值即可触发成核，但在高浓度背景下颗粒物会因凝结和碰并作用抑制 NPF 过程^[35, 38, 39]，富含臭氧的平流层空气与更潮湿的自由对流层混合会导致羟基自由基（OH）浓度升高，SO₂ 和 OH 浓度的同时升高会导致硫酸浓度升高，促进颗粒形成^[36]。新粒子粒径增大到 50 nm 以上时，可在水汽超饱和度>0.6%的条件下转化为云凝结核，达到 70~80 nm 时则能在常规湿度环境下活化^[40]。粒径超过 100 nm 的新粒子可通过光散射和吸收，直接影响地气系统辐射平衡^[36]。研究显示，NPF 发生时往往温度较高，风速较大，总辐照强度较高，而且当时的 PM_{2.5}、PM₁₀、CO 和 NO₂ 浓度较低，O₃ 和 SO₂ 浓度较高^[36]。大气 NPF 产生的新粒子具有很强的季节变化特征，例如，在北京城区观测到的 1.5 nm 粒子的形成速率以及伴随的 NPF 过程均有明显的季节变化，冬季出现频率最多，夏季最少，这说明环境温度是主导其季节变化的关键因素^[41]。

1.4 大气微纳米颗粒物的单颗粒特征

1.4.1 单颗粒分析技术

单颗粒分析技术为获取单个颗粒物的形貌、粒径、成分等理化特征提供了有效手段。在早期研究中,光学显微镜被广泛用于分析大气颗粒物中粗粒子。微电子技术的发展显著提高了颗粒物分析的精度,现已广泛应用于微米及纳米级颗粒物的形貌、粒径及化学成分的精准表征^[8]。单颗粒分析技术有离线和在线两类。单颗粒分析的离线方法包括扫描电子显微镜(Scanning Electron Microscopy, SEM)、透射电子显微镜(Transmission Electron Microscopy, TEM)、表面增强拉曼散射(Surface-Enhanced Raman Scattering, SERS)、原子力显微镜(Atomic Force Microscope, AFM)、飞行时间二次离子质谱仪(Time of Flight Secondary Ion Mass Spectrometry, TOF-SIMS)等。此外,扫描透射 X 射线显微镜(Scanning Transmission X-ray Microscopy, STXM)结合近边 X 射线吸收精细结构光谱(Near-edge X-ray Absorption Fine Structure, NEXAFS)可实现颗粒物表面化学特征的定性分析。在线单颗粒分析方法主要包括单颗粒气溶胶质谱仪(Single Particle Aerosol Mass Spectrometry, SPAMS)、气溶胶飞行时间质谱仪(Aerosol Time-Of-Flight Mass Spectrometry, ATOFMS)。SPAMS 可在实时监测中提供颗粒物粒径和化学成分信息,ATOFMS 则通过空气动力学透镜聚焦进样并结合双激光测径系统,实现颗粒物粒径和成分的同时检测(表 2)。

SEM 具有高分辨率(20 nm),适用于大于 100 nm 的颗粒。SEM/EDX(SEM coupled with Energy Dispersive X-ray spectrometry)可以获得颗粒的二维形态特征和颗粒表面的元素组成,能获得颗粒表面的信息^[42]。近年来,计算机控制扫描电子显微镜(Computer-Controlled SEM, CCSEM)技术逐渐发展,CCSEM 结合 SEM、EDX 及计算机控制系统,通过计算机辅助,实现样品分析的全过程自动化,相较于传统人工操作,CCSEM 避免了人为干预带来的主观性,提高了颗粒分析效率^[43]。TEM 具有比扫描电镜更高的分辨率(0.1 nm),能适用分析于小于 2 μm 的颗粒。TEM-EDX 可以获得有关颗粒的内部信息^[18, 44]。低温 TEM 可有效地避免挥发性成分损失,能够保留颗粒的真实形貌结构,避免电子束照射对颗粒形态和成分的影响^[45]。采用 TEM 的自动扫描模式可节省大量人工操作和时间^[46]。

显微拉曼光谱仪(Micro-RS)在正常环境条件下收集与分子和官能团相对应的光谱数据,可以监测单个颗粒在与痕量气体反应过程中的形态和化学成分变化^[47]。SERS 是对传统显微镜方法的良好补充,通过分析散射光谱获取样品的分子

振动和转动信息，能够有效检测硫酸盐和硝酸盐，但无法提供图像和粒径数据^[48]。非接触式红外拉曼同步测量系统（O-PTIR + Raman）可在环境条件下同步采集空气动力学直径小于 400 nm 的单颗粒的红外吸收光谱和拉曼光谱，既可缩短分析时间，又可获得互补的化学信息^[49]。同步辐射扫描透射显微术/近边 X 射线精细结构谱 STXM-NEXAFS 是扫描透射 X 射线显微术与 X 射线近边吸收精细结构谱的结合技术，该技术将化学分辨率和空间分辨率有效结合，能够研究物质在纳米尺度下的结构与化学形态^[50]。STXM 空间分辨率为 30 nm，适用于表征大于 100 nm 的颗粒的形态和官能团^[51]。AFM 是一种表面高分辨成像技术，其原理是借助纳米级检测探针针对样品进行扫描，耦合样品表面物理学信号来实现表征。AFM 具有亚纳米级别空间分辨率，可以获得颗粒的三维形貌，适用于小于 2 μm 的颗粒。此外，AFM 可以研究颗粒的表面纹理、粘度、变形和弹性等物理性质，但不能提供有关这些颗粒化学组成的信息^[52]。Nano-SIMS 适用于大于 50 nm 的颗粒，可用于研究单个颗粒的同位素特征，但更常用于表征气溶胶的混合状态，尤其是有机物、硫酸盐和硝酸盐的混合特征^[1]。此外，由于 Nano-SIMS 需要手动操作和统计，而且成本较高，所以它并不适用于统计分析^[1]。TOF-SIMS 适用于大于 100 nm 的颗粒，可以获得气溶胶颗粒的表面化学成分、化学成分的深度分布、表面和三维图像，但空间分辨率较低^[53]。SPAMS 使用高能脉冲激光作为电离源，可以电离几乎所有种类的粒子。SPAMS 适用于大于 100 nm 的颗粒，主要粒径范围为 0.2-2.5 μm。SPAMS 可以获得颗粒的化学成分和粒径信息，但无法提供这些颗粒的图像^[54]。ATOFMS /UF-ATOFMS（Aerosol-Time-Of-Flight Mass Spectrometry 和 Ultrafine Aerosol Time-Of-Flight Mass Spectrometry）通过双激光系统及两级飞行时间质谱仪实现颗粒的实时化学成分与粒径分析^[55]。ATOFMS 可以检测到 0.1nm-3nm 的粒度范围气溶胶颗粒的成分，如有机物、硫酸盐、硝酸盐、金属和矿物。UF-ATOFMS 仪器包含一个空气动力学透镜，用于改善较小聚集模式和超细颗粒的传输。UF-ATOFMS 可以提供 50-300 nm 的颗粒粒径范围，但不能提供单个颗粒的微观形貌特征^[56]。

表 2 各类单颗粒分析方法对比

Table 2 Comparison of individual particle analysis methods

方法	离线/在线	分析粒径范围	微观结构	优势和局限
----	-------	--------	------	-------

SEM	离线	具有高分辨率（20 nm），适用于大于 100 nm 的颗粒	可获得颗粒的二维形态特征以及颗粒表面的信息	空间和成分特异性低，只有表面信息的图像
TEM	离线	具有更高的分辨率（0.1 nm），适用于小于 2 μm 的颗粒	可获得颗粒的二维形态特征和有关粒子的内部信息	形状的空间特异性高，但需要复杂且高强度的人工操作，导致统计效果不佳
SERS	离线	适用于小于 10 nm 的颗粒		在监测硫酸盐和硝酸盐的质量浓度方面非常有效
STXM-NEXAFS	离线	适用于大于 100 nm 的颗粒	可获得颗粒的二维形态特征	可以研究碳质气溶胶中特定的键类型，但需要同步辐射，且空间分辨率较低
AFM	离线	具有高分辨率（2 nm），适用于小于 2 μm 的颗粒	可获得高分辨率的颗粒的三维形态特征	可以研究颗粒物的物理性质，但不能提供化学组成
Nano-SIMS	离线	适用于大于 50 nm 的颗粒	可获得颗粒的二维形态特征	可以研究气溶胶中特定的键类型，但需要复杂且高强度的人工操作，导致统计效果不佳
TOF-SIMS	离线	分辨率 50 nm，适用于大于 100 nm 的颗粒	可获得颗粒的二维形态特征	可以研究气溶胶中特定的键类型，但空间分辨率较低
SPAMS	在线	分辨率 100 nm，适用于大于 100 nm 的颗粒		可以获得颗粒物的化学成分和粒径，但无形貌特征
ATOFMS UF-ATOFMS	在线	ATOFMS 适用于大于 100 nm 的颗粒，UF-ATOFMS 适用于大于 50 nm 的颗粒		可以研究无机和有机颗粒中特定的键类型，在线仪器统计良好，但无形貌特征
Micro-RS	在线	适用于大于 2 μm 的颗粒	可获得颗粒的二维形态特征	可以直接识别单个粒子中的分子和官能团

1.4.2 单颗粒类型

目前常规使用的单颗粒分析方法以配备能谱仪的电子显微镜为主，包括 TEM-EDX 和 SEM-EDX。根据 TEM-EDX 和 SEM-EDX 的分析结果，可对大气颗粒物进行系统的类型划分，不同类型颗粒物包含的主要元素、形态及来源特征见表 3，具体包括矿物颗粒、富硫颗粒、有机颗粒、金属颗粒、烟尘颗粒、飞灰颗粒、NaCl 颗粒、生物质颗粒以及塑料微粒等^[1,8]，以及塑料微粒（图 1）。

表 3 大气气溶胶微纳米单颗粒分类			
Table 3 Classification of individual micro- and nano- aerosol particulates			
单颗粒物类型	主要元素	形貌特征	主要来源
矿物颗粒	Si、Al、Ca、Mg、K 和 Fe	不规则形貌	道路尘、建筑尘、地壳尘
富硫颗粒	S, 少量 Na、K、Ca	不规则形貌, 具有核-壳结构	煤或机动车排放的 SO ₂ 转化产生
一次有机颗粒	C 和 O	球形或近球形	化石燃料燃烧和生物质燃烧
二次有机颗粒	C、O 和 S	不规则形貌	一次有机颗粒的二次转化
塑料微粒	C 和 O	纤维状、球状和不规则状	塑料制品的风化和磨损
金属颗粒	Zn、Fe、Pb、Mn, 少量 Cr	球形和不规则形貌	煤电厂、重工业、金属磨损
烟尘颗粒	C、O, 及少量 Si、K	链状、团簇状、致密状	化石燃料燃烧的机动车排放
飞灰颗粒	Si、Al、Fe, 少量 Na、K	球形	煤燃烧
NaCl 颗粒	Na、Cl 和 S	立方晶体形貌	海洋或湖泊蒸发等自然过程
生物颗粒	C、O、P 和 K	不规则形貌	花粉与孢子等生物颗粒

矿物颗粒包括规则和不规则形状，并且在电子束下非常稳定。矿物颗粒可以是人为源的，也可以是天然源的，主要来自建筑灰尘、道路灰尘和地壳灰尘。大多数矿物颗粒通常大于 2 μm，来源于沙尘暴物质或道路悬浮尘埃的长距离输送。矿物颗粒主要由地壳元素组成，如 Si、Al、Ca 和 Fe，常见矿物类型包括长石矿物、粘土矿物、碳酸盐矿物、硫酸盐矿物、石英等^[1, 24, 57]。

富硫颗粒的形状往往不规则，在电子束照射下会挥发，通常形成“泡沫状”结构。富硫颗粒老化后，会形成核壳结构，壳的成分常见为有机物、硫酸盐、硝酸盐和其他无机盐，硫酸盐颗粒是大气中最常见的富硫颗粒^[1, 24]。碳质颗粒对硫酸盐的形成具有催化作用。

有机颗粒包括一次有机颗粒和二次有机颗粒。一次有机颗粒呈球形或近球形，在电子束下非常稳定，并且在电子显微镜下容易识别，直径从 30 nm 到 500 nm；二次有机颗粒往往形状不规则，并且经常与二次硫酸盐颗粒混合，在电子束下可能迅速分解。老化后，有机颗粒在形状上也可能形成核壳结构。有机颗粒物主要来源于化石燃料和生物质燃烧，主要由 C 和 O 组成，通常含有少量的 S、Na、Mg、K 和其他微量元素^[58-60]。

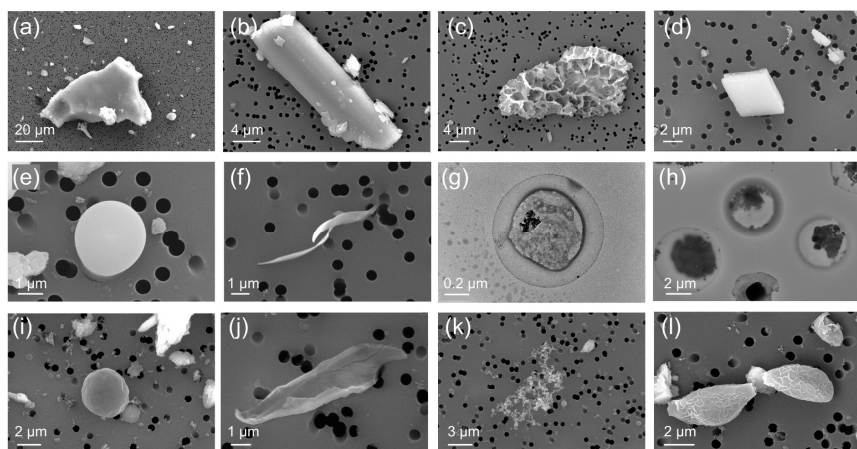


图 1 (灰度) 北京大气颗粒物中不同类型单颗粒的微观形貌特征 (a-d: 矿物颗粒; e: 飞灰; f: 金属颗粒; g-h: 硫酸盐颗粒; i: 有机颗粒; j: 塑料微粒; k: 烟尘; l: 生物颗粒)。a-f 和 i-l 图像采用场发射扫描电子显微镜 (FE-SEM) 在聚碳酸酯滤膜上拍摄, 样品采集于 2020 年冬季沙尘天气期间; g-h 图像采用透射电子显微镜 (TEM) 在铜网膜上拍摄, 样品采集于 2023 年冬季雾霾天气期间。

Figure 1 (Grayscale) Microscopic morphological characteristics of different types of single atmospheric particles (a-d: Mineral particles; e: Fly ash; f: Metal particles; g-h: Sulfate particles; i: Organic particles; j: Plastic micro-particles; k: Soot; l: Biological particles) Images a-f and i-l were captured using field emission scanning electron microscopy (FE-SEM) on polycarbonate filters, with samples collected during a dust storm event in the winter of 2020. Images g-h were obtained using transmission electron microscopy (TEM) on copper grids, with samples collected during a haze episode in the winter of 2023.

金属颗粒来源于重工业、燃料燃烧和车辆磨损, 主要元素是 Fe、Zn 和 Pb。它们通常以单金属或金属氧化物的形式存在, 在电子束照射下不挥发。燃烧过程产生的金属颗粒往往呈球形, 而磨损产生的金属颗粒往往更具棱角^[1]。

烟尘颗粒, 主要由 C 组成, 含少量的 O、Si 和 K, 它包含粒径为 10-100nm 的球形碳质颗粒, 在高分辨率下呈现洋葱状结构。烟尘颗粒在电子束照射下极其稳定, 在老化过程中, 烟尘颗粒可以从链状变成簇状, 并最终变成致密状。另外, 也有一些烟尘颗粒形成了核壳结构。烟尘颗粒主要来源于化石燃料燃烧和生物质燃烧^[18, 62]。

飞灰颗粒通常为球形, 主要由铝硅酸盐组成, 偶尔含有少量的钙、钛、锰、铁。粒径较小的飞灰颗粒容易与硫酸盐混合形成复合颗粒, 很少单独存在。煤燃

烧是飞灰颗粒的常见来源，煤燃烧会产生非结晶（玻璃状）颗粒，这些颗粒随后会部分结晶^[1, 63]。

NaCl 颗粒主要来源于海洋或湖泊的蒸发，主要元素是 Na、Cl 和 S。NaCl 颗粒在电子束照射下是稳定的，通常以立方 NaCl 晶体形态出现。在某些颗粒收集装置中，NaCl 可能溶解，然后在收集基底上重结晶。在一些潮湿的沿海环境中，立方 NaCl 晶体在老化后倾向于形成无定形 NaCl 颗粒^[64, 65]。

生物颗粒，也称生物碎屑，通常具有特定的形态和组成，包括孢子、细菌和植物碎片；生物颗粒主要由碳、氧、磷、钾和硅组成，大小主要在 1.8-10 μm 之间^[1]。

塑料微粒通常是指直径小于 5 mm 的塑料颗粒，但是电子显微镜下也看到纳米级的塑料微粒（图 1（j））。微塑料作为新兴污染物，其研究焦点大多集中在海洋和陆地生态系统，但近期的研究也揭示了大气中微塑料的存在^[66]。微纳米塑料微粒通常呈颗粒状、碎片状（图 1（j））和纤维状^[50]。塑料微粒成分主要是聚丙烯、聚酰胺、聚氨酯和聚乙烯颗粒等^[67, 68]。

2 大气颗粒物源解析

大气颗粒物源解析旨在通过定性或定量手段，明确微纳米级大气颗粒物的来源及其占比。大气微纳米颗粒物的形成涉及多种复杂途径，为全面掌握城市大气污染的关键源头特性，源解析技术成为不可或缺的研究工具^[8]。依据分析原理的差异，当前主流的大气微纳米颗粒物源解析技术可划分为源清单法、源模型法和受体模型法三大类。随着大数据与人工智能技术的快速发展，这些源解析技术也在持续革新与优化^[64]。

2.1 源清单法

排放源清单法，通过构建排放因子与成分谱数据集，依据各排放源的排放量，识别对大气微纳米颗粒物产生显著贡献的排放源^[65]。然而，受排放源类型多样、检测方法差异等因素影响，不同地区及来源的排放源清单存在显著差异。并且，该方法往往缺乏精细度，加之排放源排放量与受体贡献间并非简单线性关联，因此在大气颗粒物源解析研究中，更多是为其他两类方法提供理论依据，构成源解析研究的重要基础。

2.2 源模型法

源模型法，主要依据污染源排放强度数据和气象监测资料，通过构建数学模型，模拟污染物在大气中的传输扩散、化学转化及沉降全过程，进而评估污染源对受体的影响程度，并量化不同区域污染源的贡献值。该方法能够有效区分区域和本地污染源，同时具备对颗粒物浓度进行预报预测的功能。但在实际应用中，由于精细化清单的缺失、气象条件的复杂性以及化学机制的不明确，其对源强不确定的源类解析准确性有待提高^[69]。

2.3 受体模型法

受体模型源解析技术基于污染源数据和污染物特性，运用受体模型分析，反向推断污染源排放强度，从而精确确定各类污染源对受体的贡献率。此方法无需详尽的污染源排放强度数据，不受排放源环境条件制约，操作简便^[69]。受体模型法进一步细分为化学质量平衡模型（CMB）和因子分析类模型（FA、PMF、PCA、EF、Unmix 等），各类方法具体特性见表 4。

化学质量平衡模型（CMB）是美国环保署推荐的源解析方法之一。该方法原理简单易懂，无需大量样品采集，便能求解出特定源对受体贡献的绝对值与相对比例，为制定污染减排策略提供直观依据。但该方法存在明显局限，需要不断更新排放源成分谱，对污染源的判定存在一定主观性，且需攻克不同时间、天气条件下排放源成分差异的难题^[8]。

因子分析法（FA）通过提取变量群中的共性因子，实现数据分析简化。该方法的优势在于能够从众多变量中提炼关键、具有代表性的因子，将性质相近的变量归类，减少分析变量数量，同时可检验变量间关系，降低复杂数据分析的难度。但因子分析法对数据量要求严苛，数据量越大则分析结果越准确^[70]。

正定矩阵因子分析法（PMF）是 Paatero 和 Tapper 在传统的因子分析(FA)的基础上发展的用于颗粒源分析的方法^[71]。目前被广泛用于空气、水和土壤等不同介质中人为污染物的来源识别^[72]。PMF 具有不需要测量源成分谱、分解矩阵中元素分担率为非负值、可以利用数据标准偏差来进行优化、并且可处理遗漏数据和不精确数据等优点。但该方法对受体数据的需求量大，计算过程复杂繁琐，无法有效区分具有共线性特征的污染源类别，同时还缺乏确定合理因子个数的统一方法，因子数量的选择会对解析结果产生显著影响^[8]。

主成分分析法（PCA）是由 Hotelling 提出的一种常用的多元统计方法。在处理海量观测数据时，该方法采用数学降维技术，在确保不丢失数据主要信息的前提下，基于观测数据的相关系数矩阵，提取对所有数据起主导作用的综合因子^[73]。

富集因子法（EF）通过计算样品中污染元素与参考元素浓度的比值，以及该比值与背景区对应比值的比率，定量评估元素的富集程度，进而判断污染程度与污染来源。该方法的关键是参考元素的选择^[8]。有研究人员将富集因子法与主成分分析法相结合，成功确定了 2017、2018 年郑州市大气 PM_{2.5} 中重金属元素的主要来源，包括地壳源、混合燃烧源、工业冶金源和机动车源^[74]。

多变量受体模型（Unmix）是由 Henry 提出的一种基于 PCA 的新型受体模型^[75]。主要步骤包括收集颗粒物样本并分析其化学成分，利用最大方差因子分析确定 4-8 个污染源的特征，进一步修正模型并增加污染物数量，计算污染源贡献及每种污染物的不确定性，最后在输出最终结果前，对分析结果进行验证，结合本地源信息进行补充完善。Unmix 模型优势在于其操作简单，不需要对参数进行复杂的调整，也无需知道源成分谱^[76]。

表 4 受体模型中各类方法对比

Table 4 Comparison of various methods in receptor models

方法	优点	局限
CMB)	无需大量采样即可量化特定源对受体的贡献值，便于针对性制定减排策略。	需动态更新排放源成分谱，难以区分不同条件下的排放差异
因子分析法（FA）	可提炼复杂变量中的核心因子，简化数据维度并揭示变量关联	依赖大规模数据，且实际应用中常出现负载均衡等与现实矛盾的结果
正定矩阵因子分析法（PMF）	客观性强，对源成分信息依赖低，解析结果更贴合实际	受体数据需求大，计算复杂，无法分离共线性污染源，因子数选择缺乏标准
主成分分析法（PCA）	不损失原有数据中的主要信息，客观性强	结果依赖于原始变量的结构，但对如何选择原始变量没有统一的方法
富集因子法（EF）	能消除采样过程中各种不确定因素的影响	参考元素选择依赖性强，背景值准确性要求高，难以区分复杂污染源
多变量受体模型 (Unmix)	操作简单，不需要过多调整参数，也无需源成分谱	对输入数据质量依赖性强，难以区分复杂污染源，结果的不确定性高

3 大气微纳米颗粒物气候及环境效应

3.1 大气微纳米颗粒物的吸湿性及云凝结核活性

吸湿性是大气微纳米颗粒物在不同温度及不同相对湿度条件下吸收水分的能力,是大气微纳米颗粒物的重要物理化学特性之一,研究吸湿性对于进一步了解大气微纳米颗粒物对非均相反应、大气环境和人体健康的影响具有重要意义^[9]。大气微纳米颗粒物吸湿性受多种因素影响,如粒径大小、化学组分和混合状态等。不同化学组分的颗粒物吸湿性差异较大,如强吸湿性的海盐、弱吸湿性的邻苯二甲酸等有机物以及不吸湿的黑碳^[77]。已有大量的研究通过借助显微技术和光谱技术来分析单个颗粒物的吸湿性。用显微技术可以直观观察不同相对湿度下粒径的变化,AFM提供高空间分辨率的包含面积和高度信息的三维成像^[78],配备EDX的环境扫描电子显微镜(ESEM)和环境透射电子显微镜(ETEM)可以提供吸湿行为、元素组成、混合状态和单个颗粒形貌等信息^[79]。光谱技术,如拉曼光谱和红外光谱,在吸湿测量过程中获得的振动光谱可以提供关于化学官能团、分子相互作用和颗粒相的详细信息,以便更好地理解复杂大气微纳米颗粒物的吸湿性^[80]。

吸湿串联差分迁移率分析仪是测量不同模式下颗粒吸湿生长的最常用方法^[81]。大气微纳米颗粒物的吸湿行为通过多种途径产生影响,包括改变自身含水量、光学散射特性,影响颗粒表面的非均相化学反应、云凝结核活性,甚至对人体健康产生潜在作用。颗粒的吸湿性会增大颗粒的粒径,导致消光效率因子的增大,这弥补了颗粒表面积浓度不足对能见度贡献率下降的影响^[82]。Peters 和 Kreidenwes 基于 Kohler 理论,提出无量纲参数 κ 用于量化颗粒吸湿性^[83]。研究发现,不同粒径范围内吸湿性的变化直接受水溶性组分分布变化的影响。由于夏季 SO_2 浓度较高,夏季硫酸盐对 κ 的贡献远大于冬季;在夏季,硝酸盐对大于 0.56 微米颗粒 κ 的贡献显著高于小于 0.56 微米的颗粒;而在冬季,由于燃煤排放的影响,氯化物对 κ 的贡献显著增加^[84]。此外,若大气中有机物覆盖在无机盐表面,通常会抑制无机气溶胶的溶解和吸湿生长^[1]。而有机颗粒老化氧化后,亲水性官能团增加,进而提升云凝结核活性^[85]。Dusek 等人发现云凝结核(CCN)浓度主要由大气颗粒物粒径分布决定,大气颗粒物通过影响云的性质对气候产生间接影响^[86]。受开尔文效应制约,颗粒粒径越小,吸湿增长因子越低^[9]。烟雾箱实

验显示，SO₂可促进有机气溶胶生成并增强云凝结核活性^[87]。沿海城市大气环境中的海盐颗粒主要通过增加 CCN 的含量，从而增加降水量^[88]。矿物颗粒通过参与大气水循环、提供化学反应界面影响气候，例如矿物表面可溶性阳离子与酸性气体发生非均相反应，同时为 SO₂氧化提供场所，提升吸水率并转化为 CCN，但是大粒径矿物颗粒形成 CCN 时，会与小颗粒竞争水汽，抑制云滴生成^[89,90]。有些矿物颗粒的吸湿能力较低，但当它们在空气中发生相关的老化反应、形成二次颗粒后，它们的吸湿能力会增加，CCN 的活性会增加^[91]，因此，研究颗粒吸湿特性是解析全球及区域气候变化的关键切入点^[86]。

3.2 大气颗粒物的光学效应及对能见度的影响

大气微纳米颗粒物引发的环境问题中，能见度降低最为直观。其核心机制是颗粒物对光的吸收与散射，会产生“消光效应”^[87]。颗粒物的光吸收效应主要是由黑碳或含黑碳的物质引起的。有研究发现，厦门市气溶胶在波长为 370 nm 和 880 nm 处的平均吸收系数分别为 $56.6 \pm 34.3 \text{ mm}^{-1}$ 和 $16.5 \pm 11.2 \text{ mm}^{-1}$ ，而棕色碳在 370 nm 波长处的吸收系数为 $24.0 \pm 5.7 \text{ mm}^{-1}$ ，占该波长处总吸收的 42%，在紫外光、可见光、红外光波段，黑碳都是主要的吸光碳质成分^[92]。尽管已知大多数有机气溶胶成分对全球气候有冷却作用，但有机气溶胶中的棕色碳可以吸收较短波长的太阳辐射，并导致气候变暖^[93]。此外，硫酸盐颗粒物会导致中国东部冬季云短波辐射强迫为负，引起大气降温^[94]。因此，深入研究大气微纳米颗粒物的单颗粒特征及光学特性，特别是吸光碳质组分（如黑碳和棕色碳）的来源、分布与演化，对于评估颗粒物对气候系统的影响以及制定碳中和战略具有重要意义，同时也有助于揭示区域与全球气候变化的物理机制^[95]。

4 大气颗粒物的全球地球化学循环

城市与工业区排放的大气微纳米颗粒物可经长距离传输，覆盖农村、偏远地区、海洋乃至北极区域。强风作用下，矿物颗粒进入大气环流，其长距离迁移显著影响陆地与海洋的生物地球化学过程^[96]。研究发现，在人类活动较少的地区也发现了大量的人为颗粒物。例如，在喜马拉雅冰川的雪盖中观察到了南亚吸光的碳质气溶胶的长距离输送^[97]。在远距离传输过程中，大气中的酸性气体，如 SO₂

和 NO_2 ，与尘埃颗粒发生非均相反应，被颗粒表面吸附，部分颗粒形成壳层结构后沉降至地表^[98]（图 2）。

长距离运输的颗粒物的溶解对水、土壤、植物、生物群落和气候有重大影响。烟尘和生物质燃烧气溶胶通过远距离传输对气候变暖起到了重要作用^[99]。化石燃料产生的铁颗粒排放可能会被输送到海洋的偏远地区，并影响海洋表面浮游植物的初级生产力和碳循环^[100]。大气中排放的大量 SO_2 等污染物，提升了可溶性铁含量，经长距离输送至海洋，影响海洋表层生产力^[101]。大气微纳米颗粒物上的微量金属在远距离传输之后，会发生干沉降或湿沉降，从而影响植物对金属元素的根系吸收、叶片沉积和叶片吸收^[102]。单个颗粒的全球地球化学循环可以为区域雾霾控制、气候效应评估提供重要信息。



图 2（彩色）大气微纳米颗粒物的地球化学循环过程

Figure 2 (Color) The geochemical cycling process of atmospheric micro-nanoparticles

5 大气微纳米颗粒物的健康效应

快速工业化带来了经济的繁荣和生活水平的提高，但这种演变还伴随着环境恶化和空气质量的急剧下降^[103]。大气颗粒物中包含多种有毒有害物质，包括多环芳烃及其衍生物、重金属（锌、铜、镉、铬、铅、锰、铈等）、黑碳颗粒、石棉纤维和放射性物质^[104]。2013 年，国际癌症研究机构(IARC)将室外空气污染，尤其是颗粒物列为 1 类致癌物。研究证实 $\text{PM}_{2.5}$ 、 PM_{10} 浓度与死亡率显著相关，特别是心血管与呼吸系统疾病风险大幅增加^[105]。短期暴露可导致肺部炎症或肺损伤，长期暴露可导致慢性阻塞性肺病，甚至肺癌^[106]（图 3）。有研究表明其

致癌潜力不仅限于呼吸系统，还会影响各种器官^[107]，其可穿过血脑屏障，可能引发全身性炎症反应，甚至对中枢神经系统产生不良影响，增加相关疾病的发生风险^[108]。

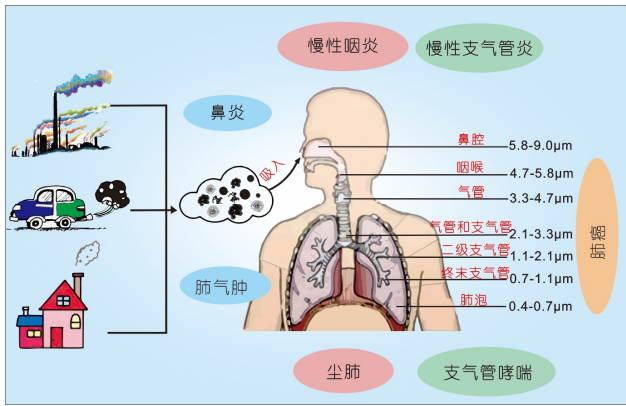


图 3（彩色）暴露于大气中的颗粒物对健康的风险。不同大小的空气颗粒物可到体内不同组织，并引起相应的疾病^[1]

Figure 3 (Color) Health risks from exposure to particles in the atmosphere. Airborne particles with different sizes can reach different tissues in the body and cause corresponding diseases^[1]

除了大气微纳米颗粒物健康效应的流行病学调查外，人们对大气微纳米颗粒物的毒理学也进行了深入研究。人们注意到，大气微纳米颗粒物对人类健康的危害程度主要取决于颗粒物的大小、数量和组成。颗粒物粒径越小，可吸附有害物质、病毒和细菌的比表面积越大^[109]。Seaton 等人的实验证实，纳米级颗粒物（直径 <100 nm）相较于较大颗粒，能够更深入地穿透人体呼吸系统并进入血液循环，其生物毒性显著增强^[110]。化学成分是颗粒物致病的关键驱动因素，不同组分可引发各异的健康效应^[109]。例如，Shao 等通过对比实验发现，纳米级烟尘颗粒对 DNA 的损伤率显著高于矿物颗粒和飞灰颗粒^[111]。研究表明，酸性硫酸盐可以将 PM_{2.5} 中的金属氧化物转化成肺液中可溶的金属离子，产生氧化应激，最终扰乱免疫系统，大气颗粒物中的重金属（铬、镉和铅）有潜在的致癌风险^[112]。铜和锌能吸附在颗粒物表面，并可能导致与颗粒物暴露有关的神经毒性^[113]。黑碳作为颗粒物中的典型组分，不仅与心血管疾病、呼吸系统疾病的发病及肺功能衰退密切相关，还会通过诱导氧化应激和炎症反应，对神经系统和生殖系统产生不良影响^[114]。这些发现表明，大气颗粒物的毒性是多种因素协同作用的结果。深入

探究其毒理学机制，不仅有助于阐明颗粒物暴露与疾病发生的因果关系，更为制定精准的污染防控策略、降低人群健康风险提供了科学依据。

目前，大气微/纳米颗粒物的毒理机制研究主要采用体外细胞实验、体内动物实验及数学建模三种方法。体外实验是最常用的毒性筛查手段，具有周期短、成本低、重复性强等优点。常用细胞模型包括人肺泡上皮细胞（A549）、支气管上皮细胞（BEAS-2B）及巨噬细胞（RAW264.7），用于评估颗粒物暴露后的细胞活力、氧化应激、炎症反应及基因表达变化^[115]。常见检测方法包括 CCK-8 细胞活性测定、流式细胞术检测凋亡、RT-qPCR 分析炎症因子表达，此外，质粒 DNA 损伤实验和转录组测序可进一步揭示其分子毒性机制^[116, 117]。体内实验多采用小鼠或大鼠模型，通过吸入、气管滴注等方式暴露，评估颗粒物对呼吸、免疫及神经系统的影响^[118]。数学建模为毒性研究提供量化工具。近年来，基于暴露-剂量-反应关系的模型被用于颗粒物暴露评估与健康风险预测，如根据空气质量模型估算暴露浓度^[119]，呼吸道沉积模型和剂量-反应模型用于风险定量评估^[120]。

7 展望

我国的能源结构是碳密集型，高度依赖化石燃料，并且我国目前正处于经济高速发展阶段，能源消费需要持续增长，实现碳中和对中国来说既是挑战也是机遇，碳中和目标必将引发深刻的技术变革，一系列技术变革将会改变社会经济产业结构，人类活动造成的污染物排放将会快速减少，能源版图、产业布局 and 人类排放的变化将进一步对生态环境产生重大影响。在此背景下，大气微纳米颗粒物研究虽已取得丰硕成果，但仍存在诸多亟待解决的关键问题，未来研究可聚焦以下方向：

（1）优化大气微纳米颗粒物的研究方法和仪器是一项紧迫的任务，特别是对大气中纳米级的超细颗粒物的研究还不够深入，分析技术和方法还需进一步提高。此外，手动和自动方法的标准化将有助于获取更快捷和更准确的结果，进而有助于精确研究大气微纳米颗粒物的物理和化学性质、光学性质、毒理学效应和环境影响。

(2) 大气微纳米颗粒物研究涉及数学、物理、化学、地球科学、生命科学及信息科学等多学科交叉。随着“大数据”技术的广泛应用，构建科学完备的大气微纳米颗粒物分析数据库成为关键。当前，颗粒物统计分析与图像处理流程繁琐、耗时较长，未来需依托计算机软件优化与自动化数据处理技术，充分挖掘大数据潜力，产出更具可靠性的统计结果与可视化成果，全面解析颗粒物环境、气候、健康效应及全球地球化学循环机制。

(3) 受区域排放特征差异及污染物跨区域传输影响，现有源解析模型难以精准识别复杂环境下的颗粒物来源。亟需研发适应性更强的源解析技术，结合区域排放清单与传输模拟，建立动态、多场景的解析模型，为不同地区污染防治提供科学依据。

(4) 我国大气复合污染现状严峻，PM_{2.5}与O₃是目前影响我国环境空气质量的重要空气污染物。未来需加强多污染物协同控制、区域联防联控及跨行业综合治理研究，聚焦挥发性有机物(VOCs)与氮氧化物(NO_x)等共同前体物减排，推动空气质量持续改善，助力碳中和目标与环境质量协同提升。

致谢

本研究由国家自然科学基金面上项目(42475113)以及国家自然科学基金创新研究群体项目(42321002)提供资金支持。

参考文献

- [1] Shao L, Liu P, Jones T, et al. A review of atmospheric individual particle analyses: Methodologies and applications in environmental research. *Gondwana Res*, 2022, 110: 347–369.
- [2] Li X X, Cai R L, Hao J M, et al. Online detection of airborne nanoparticle composition with mass spectrometry: recent advances, challenges, and opportunities. *TrAC Trends Anal Chem*, 2023, 166: 117195
- [3] Oberdörster G, Utell M J. Ultrafine particles in the urban air: to the respiratory tract--and beyond? *Environ Health Persp*, 2002, 110: A440-A1
- [4] Silver B, Reddington CL, Chen Y, et al. A decade of China's air quality monitoring data suggests health impacts are no longer declining. *Environ Int*, 2025, 197: 109318
- [5] Patashnick H, Rupprecht E G. Continuous PM-10 measurements using the tapered element oscillating microbalance. *J Air Waste Manag*, 1991, 41: 1079-1083

Formatted: Spanish (Spain)

Formatted: English (United States)

- [6] Shukla K, Aggarwal S G. A technical overview on beta-attenuation method for the monitoring of particulate matter in ambient air. *Aerosol Air Qual Res*, 2022, 22: 220195
- [7] Zhao C, Lin Z, Yang L, et al. A study on the impact of meteorological and emission factors on PM_{2.5} concentrations based on machine learning. *J Environ Manage*, 2025, 376: 124347
- [8] Qu L, Chai F, Liu S, et al. Comprehensive evaluation method of urban air quality statistics based on environmental monitoring data and its application. *J Environ Sci*, 2023, 123: 500–509
- [9] Shao L, Wang W, Xing J, et al. Physicochemical characteristics and effects of airborne particles: research progress and prospects (in Chinese). *Earth Sci*, 2018, 43: 1691–1708 [邵龙义, 王文华, 幸娇萍, 等. 大气颗粒物理化特征和影响效应的研究进展及展望. *地球科学*, 2018, 43: 1691-1708]
- [10] Wu L, Ro C-U. Aerosol Hygroscopicity on A Single Particle Level Using Microscopic and Spectroscopic Techniques: A Review. *Asian Journal of Atmospheric Environment (AJAE)*, 2020, 14: 177–209
- [11] Yang L, Zhang H, Zhang X, et al. Exposure to atmospheric particulate matter-bound polycyclic aromatic hydrocarbons and their health effects: A review. *Int J Env Res Pub He*, 2021, 18: 2177
- [12] Liu H, Feng Q, Huang Y, et al. Composition and size distribution of wintertime inorganic aerosols at ground and alpine regions of Northwest China. *Chin Chem Lett*, 2024, 35: 109636
- [13] Huang RJ, Zhang Y, Bozzetti C, et al. High secondary aerosol contribution to particulate pollution during haze events in China. *Nature*, 2014, 514: 218-222
- [14] Hu P, Xie Y, Ren Y. IC Determination of Nitrite and Nitrate in Soil with Solid Phase Extraction (in Chinese). *Physical Testing and Chemical Analysis Part B: Chemical Analysis*, 2012, 48: 4 [胡平, 解彦平, 任永红. 固相萃取-离子色谱法测定土壤中亚硝酸盐和硝酸盐. *理化检验: 化学分册*, 2012, 48: 4]
- [15] Zhou Q, Zhang L, Yang L, et al. Long-term variability of inorganic ions in TSP at a remote background site in Japan (Wajima) from 2005 to 2015. *Chemosphere*, 2021, 264: 128427
- [16] Souza I D C, Morozesk M, Siqueira P, et al. Metallic nanoparticle contamination from environmental atmospheric particulate matter in the last slab of the trophic chain: Nanocrystallography, subcellular localization and toxicity effects. *Sci Total Environ*, 2022, 814: 152685
- [17] Zhao S, Tian H, Luo L, et al. Temporal variation characteristics and source apportionment of metal elements in PM_{2.5} in urban Beijing during 2018–2019. *Environ Pollut*, 2021, 268: 115856

Formatted: German (Germany)

Formatted: Spanish (Spain)

- [18] Li W, Shao L, Zhang D, et al. A review of single aerosol particle studies in the atmosphere of East Asia: morphology, mixing state, source, and heterogeneous reactions. *J Clean Prod*, 2016, 112: 1330-49
- [19] Wiecek D, Żyska-Haberecht B, Kafka A, et al. Determination of phosphorus compounds in plant tissues: From colourimetry to advanced instrumental analytical chemistry. *Plant Methods*, 2022, 18: 22
- [20] Zheng F, Dong F, Zhou L, et al. Research Progress on Heterogeneous Reactions of Pollutant Gases on the Surface of Atmospheric Mineral Particulate Matter in China. *Atmosphere*, 2022, 13: 1283
- [21] Yan L, Li S, Zhang J, et al. A Review on Studies of Mineral Composition and Mineral Micromorphology of the Atmospheric Particulate Matter (in Chinese). *Acta Mineralogica Sinica*, 2020, 40: 213–22 [闫丽娜, 李胜荣, 张聚全, 等. 大气颗粒物矿物相组成与微观形貌研究进展. *矿物学报*, 2020, 40: 213-222]
- [22] Shao L, Li W, Yang S, et al. Mineralogical characteristics of airborne particles collected in Beijing during a severe Asian dust storm period in spring 2002. *Science in China Series D: Earth Sciences*, 2007, 50: 953-959
- [23] Wang W, Shao L, Zhang D, et al. Mineralogical similarities and differences of dust storm particles at Beijing from deserts in the north and northwest. *Sci Total Environ*, 2022, 803: 149980
- [24] Xue R, Zeng L, Wu Y, et al. Development and Application of an On-line Carbonaceous Aerosol Analyzer (in Chinese). *Acta Scientiae Circumstantiae*, 2017, 37: 95–103 [薛瑞, 曾立民, 吴宇声, 等. 大气气溶胶碳质组分在线分析仪的研制和应用. *环境科学学报*, 2017, 37: 95-103]
- [25] 唐孝炎, 张远航, 邵敏. 大气环境化学 (第二版). 北京: 高等教育出版社, 2017.7
- [26] Duan L, Yu H, Wang Q, et al. A comprehensive exploration of characteristics and source attribution of carbonaceous aerosols in PM_{2.5} in an East China megacity. *Environ Pollut*, 2024, 343: 123239
- [27] Shrivastava M, Cappa C D, Fan J, et al. Recent advances in understanding secondary organic aerosol: Implications for global climate forcing. *Reviews of Geophysics*, 2017, 55: 509-559
- [28] Ye Z, Qu Z, Ma S, et al. Secondary Organic Aerosols from Aqueous Reaction of Aerosol Water (in Chinese). *Environmental Science*, 2018, 39: 11 [叶招莲, 瞿珍秀, 马帅帅, 等. 气溶胶水相反应生成二次有机气溶胶研究进展. *环境科学*, 2018, 39: 11]
- [29] Chen Z, Liu J, Tao W, et al. Spatiotemporal Distribution and Source Attribution of SOA in China (in Chinese). *Environmental Science*, 2016, 37: 2815–2822 [陈卓, 刘峻峰, 陶玮, 等. 中国地区二次有机气溶胶的时空分布特征和来源分析. *环境科学*, 2016, 37: 2815-2822]

- [30] Liu Y, Yu Y, Song K, et al. Winter VOCs and Their Contribution to Ozone Formation Potential and Secondary Organic Aerosol Yields in Dezhou (in Chinese). *Journal of Nanjing University of Information Science & Technology*, 2020, 12: 11 [刘毅, 俞颖, 宋锴, 等. 德州市冬季大气挥发性有机物污染特征及其对臭氧和二次有机气溶胶生成的贡献. *南京信息工程大学学报: 自然科学版*, 2020, 12: 11]
- [31] Liu N, Li X, Ren W, et al. Concentration Characteristics and Photochemical Reactivities of VOCs in Shenyang, China. *Atmosphere*, 2021, 12: 1240
- [32] Wang Y, Liu S, Wang G. Effects of NH_3 on the Formation of SOA Derived from Xylene Photochemical Oxidation (in Chinese). *Journal of Atmospheric and Environmental Optics*, 2022, 17: 185–194 [王益倩, 刘仕杰, 王格慧. NH_3 对二甲苯光氧化形成二次有机气溶胶的影响. *大气与环境光学学报*, 2022, 17: 185-194]
- [33] He DY, Huang XF, Wei J, et al. Soil dust as a potential bridge from biogenic volatile organic compounds to secondary organic aerosol in a rural environment. *Environ Pollut*, 2022, 298: 118840
- [34] Yuan B, Koss A R, Warneke C, et al. Proton-transfer-reaction mass spectrometry: applications in atmospheric sciences. *Chem Rev*, 2017, 117: 13187-13229
- [35] Hu M, Shang D, Guo S, et al. Mechanism of New Particle Formation and Growth as well as Environmental Effects under Complex Air Pollution in China (in Chinese). *Acta Chimica Sinica*, 2016, 74: 385–391 [胡敏, 尚冬杰, 郭松, 等. 大气复合污染条件下新粒子生成和增长机制及其环境影响. *化学学报*, 2016, 74: 385-391]
- [36] Sun Y, Zhu Y, Meng H, et al. New Particle Formation Events in Summer and Winter in the Coastal Atmosphere in Qingdao, China (in Chinese). *Environmental Science*, 2021, 42: 2133–2142 [孙悦, 朱玉姣, 孟赫, 等. 青岛沿海地区夏季和冬季新粒子生成特征对比. *环境科学*, 2021, 42: 2133-2142]
- [37] Li X, Jiang J, Wang D, et al. Research Progress on the Sources and the Chemical Composition of Ambient Ultrafine Particles (in Chinese). *Environmental Chemistry*, 2021, 40: 2947–2959 [李晓晓, 蒋靖坤, 王东滨, 等. 大气超细颗粒物来源及其化学组分研究进展. *环境化学*, 2021, 40: 2947-2959]
- [38] Li H, Zhong J, Vehkamäki H, et al. Self-Catalytic Reaction of SO_3 and NH_3 To Produce Sulfamic Acid and Its Implication to Atmospheric Particle Formation. *J Am Chem Soc*, 2018, 140: 11020–11028.
- [39] Patoulias D, Florou K, Pandis SN, et al. New particle formation events can reduce cloud droplets in boundary layer clouds at the continental scale. *Geophys Res Lett*, 2024, 51: e2023GL106182
- [40] Ma L, Yao X. Changes of Particle Number Concentration and Characteristics of Particle Growth During the New Particle Formation Event in Beijing (in Chinese). *Periodical of*

Ocean University of China, 2020, 50: 22–32 [马立亚, 姚小红. 北京新粒子生成事件期间颗粒物数浓度变化及颗粒增长特征. 中国海洋大学学报(自然科学版), 2020, 50: 22-32]

[41] Deng C, Fu Y, Dada L, et al. Seasonal characteristics of new particle formation and growth in urban Beijing. *Environ Sci Technol*, 2020, 54: 8547–8557

[42] Li W, Shao L. Characterization of mineral particles in winter fog of Beijing analyzed by TEM and SEM. *Environ Monit Assess*, 2010, 161: 565–573

[43] Zhao P, Zhao P, Zhan Z, et al. Advancing source apportionment of atmospheric particles: integrating morphology, size, and chemistry using electron microscopy technology and machine learning. *Environ Sci Technol*, 2025, 59: 3645–3655

[44] Xing J, Shao L, Zhang W, et al. Morphology and size of the particles emitted from a gasoline-direct-injection-engine vehicle and their ageing in an environmental chamber. *Atmos Chem Phys*, 2020, 20: 2781–2794

[45] Li W, Liu L, Zhang J, et al. Microscopic evidence for phase separation of organic species and inorganic salts in fine ambient aerosol particles. *Environ Sci Technol*, 2021, 55: 2234–2242

[46] Yuan Q, Xu J, Liu L, et al. Evidence for large amounts of brown carbonaceous tarballs in the Himalayan atmosphere. *Environ Sci Technol Lett*, 2020, 8: 16–23.

[47] Wang M, Zheng N, Zhao D, et al. Using micro-Raman spectroscopy to investigate chemical composition, mixing states, and heterogeneous reactions of individual atmospheric particles. *Environ Sci Technol*, 2021, 55: 10243–10254

[48] Sun ZL, Duan FK, He KB, et al. Sulfate–nitrate–ammonium as double salts in PM_{2.5}: Direct observations and implications for haze events. *Sci Total Environ*, 2019, 647: 204–209

[49] Olson NE, Xiao Y, Lei Z, et al. Simultaneous optical photothermal infrared (O-PTIR) and Raman spectroscopy of submicrometer atmospheric particles. *Anal Chem*, 2020, 92: 9932–9939

[50] Yang T, Luo J, Nowack B. Characterization of Nanoplastics, Fibrils, and Microplastics Released during Washing and Abrasion of Polyester Textiles. *Environ Sci Technol*, 2021, 55, 15873–15881

[51] Fraund M, Park T, Yao L, et al. Quantitative capabilities of STXM to measure spatially resolved organic volume fractions of mixed organic/inorganic particles. *Atmos Meas Tech*, 2019, 12: 1619–1633

[52] Zhang J, Liu L, Xu L, et al. Exploring wintertime regional haze in northeast China: role of coal and biomass burning. *Atmos Chem Phys*, 2020, 20: 5355–5372

[53] Lazzeri P, Clauser G, Iacob E, et al. ToF-SIMS and XPS characterisation of urban aerosols for pollution studies. *Appl Surf Sci*, 2003, 203: 767–771

[54] Peng L, Li L, Lin Q, et al. Does atmospheric processing produce toxic Pb-containing compounds? A case study in suburban Beijing by single particle mass spectrometry. *J Hazard Mater*, 2020, 382: 121014

Formatted: Spanish (Spain)

- [55] Toner S M, Sodeman D A, Prather K A. Single particle characterization of ultrafine and accumulation mode particles from heavy duty diesel vehicles using aerosol time-of-flight mass spectrometry. *Environ Sci Technol*, 2006, 40: 3912-3921
- [56] Toner S M, Shields L G, Sodeman D A, et al. Using mass spectral source signatures to apportion exhaust particles from gasoline and diesel powered vehicles in a freeway study using UF-ATOFMS. *Atmos Environ*, 2008, 42: 568-581
- [57] Xing J, Shao L, Chen F, et al. Characteristics and Aging of Traffic-Emitted Particles with Sulfate and Organic Compound Formation in Urban Air. *Atmosphere* 2022, 13, 6085
- [58] Xing J, Shao L, Zhang W, et al. Morphology and composition of particles emitted from a port fuel injection gasoline vehicle under real-world driving test cycles. *J Environ Sci*, 2019, 76: 339-348
- [59] Wang W, Gao Y, Shao L, et al. Chemical Compositions and Possible Transportation of PM_{2.5} during Two Haze Periods in a Coastal City of the North China Plain. *Geol J*, 2023, 58, 4417–4427
- [60] Li Y, Shao L, Wang X, Wang W, et al. Fresh Organic and Soot Particles from Crop Straw Burning: Morphology, Composition and Size Distribution. *Geol J*, 2023, 58, 4441–4452
- [61] Liati A, Schreiber D, Dimopoulos Eggenschwiler P, et al. Metal particle emissions in the exhaust stream of diesel engines: an electron microscope study. *Environ Sci Technol*, 2013, 47: 14495-14501
- [62] Xing J, Shao L, Zheng R, et al. Individual particles emitted from gasoline engines: Impact of engine types, engine loads and fuel components. *J Clean Prod*, 2017, 149: 461-471
- [63] Wang W, Shao L, Li J, et al. Characteristics of individual particles emitted from an experimental burning chamber with coal from the lung cancer area of Xuanwei, China. *Aerosol Air Qual Res*, 2019, 19: 355-363
- [64] Frey M M, Norris S J, Brooks I M, et al. First direct observation of sea salt aerosol production from blowing snow above sea ice. *Atmos Chem Phys*, 2020, 20: 2549-2578
- [65] Li W, Shao L, Wang Z, et al. Size, composition, and mixing state of individual aerosol particles in a South China coastal city. *J Environ Sci*, 2010, 22: 561-569
- [66] Shao L, Li Y, Jones T, et al. Airborne Microplastics: A Review of Current Perspectives and Environmental Implications. *J Clean Prod*, 2022, 347: 131048
- [67] Liu P, Shao L, Li Y, et al. Microplastic Atmospheric Dustfall Pollution in Urban Environment: Evidence from the Types, Distribution, and Probable Sources in Beijing, China. *Sci Total Environ*, 2022, 838: 155989
- [68] Liu P, Shao L, Zhang Y, et al. Atmospheric Microplastic Deposition Associated with GDP and Population Growth: Insights from Megacities in Northern China. *J Hazard Mater*, 2024, 469: 134024

Formatted: Spanish (Spain)

Formatted: Spanish (Spain)

Formatted: Spanish (Spain)

- [69] Feng Y. Research Progress of Source Apportionment of Atmospheric Particulates in China (in Chinese). *Environmental Protection*, 2017, 45: 4 [冯银厂. 我国大气颗粒物来源解析研究工作的进展. *环境保护*, 2017, 45: 4]
- [70] Jin S. Application of Factor Analysis in Environ Pollut Detection and Assessment (in Chinese). *Low Carbon World*, 2021, 11: 2 [金淑聪. 因子分析法在环境污染检测与评价中的应用研究. *低碳世界*, 2021, 11: 2]
- [71] Paatero P, Tapper U. Analysis of different modes of factor analysis as least squares fit problems. *Chemometr Intell Lab*, 1993, 18: 183-194
- [72] Liu N, Oshan R, Blanco M, Sheppard L, Seto E, Larson T, Austin E. Mapping source-specific air pollution exposures using positive matrix factorization applied to multipollutant mobile monitoring in Seattle, WA. *Environ Sci Technol*, 2025, 59: 3443–3458
- [73] Song Y, Xie S D, Zhang Y H, et al. Source apportionment of PM_{2.5} in Beijing using principal component analysis/absolute principal component scores and UNMIX. *Sci Total Environ*, 2006, 372: 278-286
- [74] Qu G, Sun J, Wang S, et al. Pollution Characterization, Source Identification, and Health Risks of Atmospheric Particle-Bound Heavy Metals in PM_{2.5} in Zhengzhou City: Based on High-resolution Data (in Chinese). *Environmental Science*, 2022, 43: 1706-1715 [曲光辉, 孙俊苹, 王申博, 等. 郑州市大气 PM_{2.5} 中重金属的污染特征, 来源及健康风险评估: 基于高分辨数据. *环境科学*, 2022, 43: 1706-1715]
- [75] Henry R C. History and fundamentals of multivariate air quality receptor models. *Chemometr Intell Lab*, 1997, 1: 37-42
- [76] Gong C, Tan J, Yang W, Tan C, Wen L, Liu J, Gan L. Source apportionment and driving factor identification for typical watersheds soil heavy metals of Tibetan Plateau based on receptor models and geodetector. *Sci Rep*, 2024, 14: 29108
- [77] Hatch C D, Greenaway A L, Christie M J, et al. Water adsorption constrained Frenkel–Halsey–Hill adsorption activation theory: Montmorillonite and illite. *Atmos Environ*, 2014, 87: 26-33
- [78] Tang M, Chan C K, Li Y J, et al. A review of experimental techniques for aerosol hygroscopicity studies. *Atmos Chem Phys*, 2019, 19: 12631-12686
- [79] Adachi K, Freney E J, Buseck P R. Shapes of internally mixed hygroscopic aerosol particles after deliquescence, and their effect on light scattering. *Geophys Res Lett*, 2011, 38: L13804
- [80] Li X, Gupta D, Lee J, et al. Real-time investigation of chemical compositions and hygroscopic properties of aerosols generated from NaCl and malonic acid mixture solutions using in situ Raman microspectrometry. *Environ Sci Technol*, 2017, 51: 263-270

- [81] Cai M, Tan H, Chan C K, et al. The size-resolved cloud condensation nuclei (CCN) activity and its prediction based on aerosol hygroscopicity and composition in the Pearl Delta River (PRD) region during wintertime 2014. *Atmos Chem Phys*, 2018, 18: 16419-37
- [82] Wang X, Ye X, Chen J, et al. Direct links between hygroscopicity and mixing state of ambient aerosols: estimating particle hygroscopicity from their single-particle mass spectra. *Atmos Chem Phys*, 2020, 20: 6273-6290
- [83] Petters M, Kreidenweis S. A single parameter representation of hygroscopic growth and cloud condensation nucleus activity—Part 3: Including surfactant partitioning. *Atmos Chem Phys*, 2013, 13: 1081-1091
- [84] Zhao P, Du X, Su J, et al. Aerosol hygroscopicity based on size-resolved chemical compositions in Beijing. *Sci Total Environ*, 2020, 716: 137074
- [85] Han S, Hong J, Luo Q, et al. Hygroscopicity of organic compounds as a function of organic functionality, water solubility, molecular weight, and oxidation level. *Atmos Chem Phys*, 2022, 22: 3985-4004
- [86] Dusek U, Frank G, Hildebrandt L, et al. Size matters more than chemistry for cloud-nucleating ability of aerosol particles. *Science*, 2006, 312: 1375-1378
- [87] Ma Y, Chen C, Wang J, et al. Evolution in physiochemical and cloud condensation nuclei activation properties of crop residue burning particles during photochemical aging. *J Environ Sci*, 2019, 77: 43-53
- [88] Li J, Liu W, Li L, et al. Hygroscopicity of fresh and aged salt mixtures from saline lakes. *Atmosphere*, 2021, 12: 1203
- [89] Zhang H, Gu W, Li Y J, et al. Hygroscopic properties of sodium and potassium salts as related to saline mineral dusts and sea salt aerosols. *J Environ Sci*, 2020, 95: 65-72
- [90] Roesch C, Roesch M, Wolf M J, et al. CCN and INP activity of middle eastern soil dust. *Aeolian Res*, 2021, 52: 100729
- [91] Li K, Ye X, Pang H, et al. Temporal variations in the hygroscopicity and mixing state of black carbon aerosols in a polluted megacity area. *Atmos Chem Phys*, 2018, 18: 15201-15218
- [92] Singh S, Gokhale S. Source apportionment and light absorption properties of black and brown carbon aerosols in the Brahmaputra River valley region. *Urban Climate*, 2021, 39: 100963
- [93] Peng C, Chen Y, Yang F, et al. Light Absorption Properties and implications of particulate brown carbon in Chongqing (in Chinese). *Journal of Atmospheric and Environmental Optics*, 2022, 17: 135–147 [彭超, 陈阳, 杨复沫, 等. 重庆市棕碳气溶胶吸光特性及其影响因素研究. *大气与环境光学学报*, 2022, 17: 135-147]
- [94] Wang D, Zhu B, Wan X. Impact of indirect effects of sulfate aerosol on winter climate in East China (in Chinese). *Journal of Meteorology and Environment*, 2020, 36: 52–61 [王东

东, 朱彬, 万绪江. 硫酸盐气溶胶间接效应对中国东部冬季气候的影响. 气象与环境学报, 2020, 36: 52-61]

[95] Kong L, Tang X, Zhu J, et al. High-resolution simulation dataset of hourly PM_{2.5} chemical composition in China (CAQRA-Aerosol) from 2013 to 2020. *Adv Atmos Sci*, 2025, 42: 697–712

[96] Chkhetiani O G, Vazaeva N V, Chernokulsky A V, et al. Analysis of mineral aerosol in the surface layer over the Caspian lowland desert by the data of 12 summer field campaigns in 2002–2020. *Atmosphere*, 2021, 12: 985

[97] Dong Z, Kang S, Qin D, et al. Variability in individual particle structure and mixing states between the glacier–snowpack and atmosphere in the northeastern Tibetan Plateau. *The Cryosphere*, 2018, 12: 3877-3890

[98] Li W, Shao L. Observation of nitrate coatings on atmospheric mineral dust particles. *Atmos Chem Phys*, 2009, 9: 1863-1871

[99] Huang K, Fu J S, Lin N H, et al. Superposition of Gobi dust and Southeast Asian biomass burning: The effect of multisource long - range transport on aerosol optical properties and regional meteorology modification. *J Geophys Res-atmos*, 2019, 124: 9464-9483

[100] Pinedo-González P, Hawco N J, Bundy R M, et al. Anthropogenic Asian aerosols provide Fe to the north Pacific Ocean. *P Natl Acad Sci*, 2020, 117: 27862-27868

[101] Li W, Xu L, Liu X, et al. Air pollution–aerosol interactions produce more bioavailable iron for ocean ecosystems. *Sci Adv*, 2017, 3, e1601749

[102] Fowler D, Brimblecombe P, Burrows J, et al. A chronology of global air quality. *Philos T R Soc A*, 2020, 378: 20190314

[103] Fadel M, Courcot D, Afif C, et al. Methods for the assessment of health risk induced by contaminants in atmospheric particulate matter: a review. *Environ Chem Lett*, 2022, 20: 3289-3311

[104] Yang Y, Ruan Z, Wang X, et al. Short-term and long-term exposures to fine particulate matter constituents and health: a systematic review and meta-analysis. *Environ Pollut*, 2019, 247: 874-882

[105] Loomis D, Grosse Y, Lauby-Secretan B, et al. The carcinogenicity of outdoor air pollution. *Lancet Oncol*, 2013, 14: 1262-1263

[106] Zhang M, Shao L, Jones T P, et al. Concentration, Source, and Health Risk Assessment of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons: A Pilot Study in the Xuanwei Lung Cancer Epidemic Area, Yunnan Province, China. *Atmosphere* 2022, 13, 1732

[107] Mokbel, K. Breath of Danger: Unveiling PM_{2.5}'s stealthy impact on cancer risks. *Anticancer Res*. 2024, 44, 1365–1368

Formatted: German (Germany)

- [108] Shou Y, Huang Y, Zhu X, et al. A Review of the Possible Associations between Ambient PM2.5 exposures and the development of Alzheimer's disease. *Ecotoxicol Environ Saf*, 2019, 174, 344–352
- [109] Zhang L, Ou C, Magana-Arachchi D, et al. Indoor particulate matter in urban households: Sources, pathways, characteristics, health effects, and exposure mitigation. *International Int J Env Res Pub He*, 2021, 18: 11055
- [110] Seaton A, Godden D, Macnee W, et al. Particulate air pollution and acute health effects. *Lancet*, 1995, 345: 176-178
- [111] Shao L, Li J, Zhao H, et al. Associations between particle physicochemical characteristics and oxidative capacity: an indoor PM10 study in Beijing, China. *Atmos Environ*, 2007, 41: 5316-5326
- [112] Feng Y, Castro E, Wei Y, et al. Long-term exposure to ambient PM2.5, particulate constituents and hospital admissions from non-respiratory infection. *Nat Commun*, 2024, 15: 1518
- [113] Potter N A, Meltzer G Y, Avenbuan O N, et al. Particulate matter and associated metals: A link with neurotoxicity and mental health. *Atmosphere*, 2021, 12: 425
- [114] Wang H, Wei W, Wang K, et al. A global multidimensional analysis of air pollution in land, sea, and air transport cabins reveals substantial health risks. *One Earth*, 2025, 8: 101156
- [115] Thompson J E. Airborne Particulate Matter: Human Exposure and Health Effects. *J Occup Environ Med*, 2018, 60: 392-423
- [116] Nguyen U T N, Hsie H Y, Chin T Y, et al. Evaluation of PM2.5 Influence on Human Lung Cancer Cells Using a Microfluidic Platform. *Int J Med, Sci*. 2024, 21: 1117–1128
- [117] Bai J, Zhang M, Shao L, et al. Hemolytic Properties of Fine Particulate Matter (PM2.5) in In Vitro Systems. *Toxics* 2024, 12, 246
- [118] Li X, Ma X, Zhang L, et al. PM2.5 Regulates TGF-B1/Smads-Mediated Pulmonary Fibrosis via ROS/SnoN in Vitro and in Vivo. *Int Immunopharmacol*, 2025, 153, 114477
- [119] Zhao X, Zhou Y, Li X, et al. Improving Assessment of Population Exposure and Health Impacts to PM2.5 with High Spatial and Temporal Data. *GIScience Remote Sens*, 2024, 61, 2388921
- [120] Hua C, Ma W, Zheng F, et al. Health Risks and Sources of Trace Elements and Black Carbon in PM2.5 from 2019 to 2021 in Beijing. *J Environ Sci*, 2024, 142: 69–82

Formatted: Spanish (Spain)

Formatted: German (Germany)