

米家媛,邓也,李昕翼,等.霾过程气溶胶吸湿参数变化的多因素影响分析[J].中国环境科学,2025,45(3):1210-1217.

Mi J Y, Deng Y, Li X Y, et al. Multifactorial impact analysis of aerosol hygroscopic parameters during haze process [J]. China Environmental Science, 2025,45(3):1210-1217.

## 霾过程气溶胶吸湿参数变化的多因素影响分析

米家媛<sup>1,2</sup>,邓也<sup>3\*</sup>,李昕翼<sup>4</sup>,佟景哲<sup>5</sup>,李娜<sup>1</sup>,倪长健<sup>1</sup> (1.成都信息工程大学大气科学学院,四川成都610225; 2.吉林省气象信息中心,吉林长春130062; 3.成都市环境保护科学研究院,四川成都610072; 4.成都市气象局,四川成都611130; 5.辽宁省气象装备保障中心,辽宁沈阳110166)

**摘要:** 基于成都市2017年10~12月的逐时观测数据,以及该时段同时次大气能见度( $V$ )、相对湿度(RH)和二氧化氮( $\text{NO}_2$ )监测资料,通过耦合免疫进化算法和Mie散射理论反演气溶胶粒径吸湿增长因子( $Gf$ ),利用 $\kappa$ -köhler理论计算气溶胶吸湿参数 $\kappa$ ,分析了霾过程气溶胶吸湿参数 $\kappa$ 的变化特征及其影响因素.结果表明:轻微、轻度、中度和重度霾强度条件下,气溶胶吸湿参数 $\kappa$ 分别为 $(0.142 \pm 0.092)$ 、 $(0.149 \pm 0.088)$ 、 $(0.191 \pm 0.061)$ 和 $(0.200 \pm 0.041)$ .气溶胶吸湿参数 $\kappa$ 的解释变量集包括 $C_{BC}$ 、 $C_{BC}/C_{PM_{2.5}}$ 、 $C_{PM_1}/C_{PM_{2.5}}$ 和 $C_{PM_{2.5}}/C_{PM_{10}}$  ( $C_{BC}$ 、 $C_{PM_1}$ 、 $C_{PM_{2.5}}$ 、 $C_{PM_{10}}$ 分别为BC、 $PM_1$ 、 $PM_{2.5}$ 、 $PM_{10}$ 的质量浓度),各变量对气溶胶吸湿参数 $\kappa$ 的解释能力随霾强度的变化存在显著的差异.多因素GAM模型可以很好地表征气溶胶吸湿参数 $\kappa$ 的变化特征(通过了 $\alpha=0.01$ 的显著性检验),在轻微、轻度、中度和重度霾条件下,对应的调整判定系数( $R^2$ )分别为0.303、0.488、0.504、0.631,压轴回归决定系数( $R^2$ )分别为0.327、0.517、0.558、0.739,残差平方和(RSS)分别为1.448、0.721、0.209、0.025.上述成果揭示了气溶胶吸湿参数 $\kappa$ 多因素影响的复杂性及其与灰霾演化的内在联系.

**关键词:** 气溶胶; 吸湿参数; 霾强度; GAM模型; 成都

中图分类号: X513 文献标识码: A 文章编号: 1000-6923(2025)03-1210-08

**Multifactorial impact analysis of aerosol hygroscopic parameters during haze process.** MI Jia-yuan<sup>1,2</sup>, DENG Ye<sup>3\*</sup>, LI Xin-yi<sup>4</sup>, TONG Jing-zhe<sup>5</sup>, LI Na<sup>1</sup>, NI Chang-jian<sup>1</sup> (1.College of Atmospheric Science, Chengdu University of Information Technology, Chengdu 610225, China; 2.Jilin Meteorological Information Network Center, Changchun 130062, China; 3.Chengdu Academy of Environmental Sciences, Chengdu 610072, China; 4.Chengdu Meteorological Service, Chengdu 611130, China; 5.Liaoning Provincial Meteorological Equipment Support Center, Shenyang 110166, China). *China Environmental Science*, 2025,45(3): 1210~1217

**Abstract:** Based on the hourly observational data from October to December 2017 in Chengdu, as well as the simultaneous data of atmospheric visibility ( $V$ ), relative humidity (RH) and nitrogen dioxide ( $\text{NO}_2$ ), aerosol hygroscopic growth factor ( $Gf$ ) was retrieved by Mie scattering theory coupled with immune evolutionary algorithm, and then aerosol hygroscopic parameter  $\kappa$  was calculated by  $\kappa$ -köhler theory, the variation characteristics of aerosol hygroscopic parameter  $\kappa$  and its influencing factors were analyzed during the haze process. The results showed that: The aerosol hygroscopic parameters  $\kappa$  were  $0.142 \pm 0.092$ ,  $0.149 \pm 0.088$ ,  $0.191 \pm 0.061$  and  $0.200 \pm 0.041$  under mild, light, moderate and heavy haze intensity conditions respectively. The set of explanatory variables of aerosol hygroscopicity parameter  $\kappa$  was determined, including  $C_{BC}$ ,  $C_{BC}/C_{PM_{2.5}}$ ,  $C_{PM_1}/C_{PM_{2.5}}$  and  $C_{PM_{2.5}}/C_{PM_{10}}$  ( $C_{BC}$ ,  $C_{PM_1}$ ,  $C_{PM_{2.5}}$  and  $C_{PM_{10}}$  represented mass concentrations of BC,  $PM_1$ ,  $PM_{2.5}$  and  $PM_{10}$  respectively). There were significant differences in the explanatory power for aerosol hygroscopic parameter  $\kappa$  of each variable as the haze intensities changed. The multifactor GAM model could be well characterized aerosol hygroscopic parameter  $\kappa$  variation (passed the significance test of  $\alpha=0.001$ ). As to the above four haze conditions, the corresponding adjusted coefficients of determination ( $R^2$ ) were 0.303, 0.488, 0.504 and 0.631, the coefficients of determination ( $R^2$ ) for the regression of the pressure axis were 0.327, 0.517, 0.558 and 0.739, and the residual sum of squares (RSS) were 1.448, 0.721, 0.209, and 0.025, respectively. The above study revealed the complexity of the multifactorial influence on aerosol hygroscopic parameter  $\kappa$ , and further clarified the intrinsic connection between aerosol hygroscopicity and haze evolution.

**Key words:** aerosol; hygroscopicity parameter; haze intensities; GAM model; Chengdu

由于气溶胶中的硫酸盐、硝酸盐、铵盐和海盐等无机成分及部分有机物具有吸湿性,其吸水能力随周围环境相对湿度的增加而增强<sup>[1]</sup>.气溶胶吸湿不仅通过直接或间接辐射效应作用于全球气候,还

收稿日期: 2024-08-06

基金项目: 国家重点研发计划(2023YFC3709301);四川省科技教育联合基金项目(2024NSFSC1983)

\* 责任作者,高级工程师,7161653@qq.com

会对环境空气质量和人体健康造成影响<sup>[2-3]</sup>.气溶胶吸湿性是大气气溶胶的重要热动力学性质,是联系气溶胶理化参数的纽带,在整个大气气溶胶科学研究中处于基础地位<sup>[4]</sup>.

描述气溶胶吸湿增长的指标通常包括气溶胶粒径吸湿增长因子(GF)和气溶胶散射吸湿增长因子(F),二者分别从粒径谱和散射能力两个角度反映气溶胶吸湿的影响.张智察基于 Mie 散射理论和免疫进化算法的耦合,提出了气溶胶等效粒径吸湿增长因子(EGF)的反演算法<sup>[5]</sup>,为粒径吸湿增长因子这一参数的获取提供了新途径.Köhler理论<sup>[6]</sup>用于描述气溶胶和水汽的相互作用,是研究气溶胶单一化学组分吸湿性的基础.Petters等<sup>[7]</sup>基于Köhler理论提出了一个能够反映气溶胶吸湿能力的新方案( $\kappa$ -Köhler理论).其中,引入的气溶胶吸湿参数 $\kappa$ 与颗粒物初始粒径以及湿度条件无关,其变化只取决于颗粒物化学组分<sup>[8]</sup>.气溶胶吸湿参数 $\kappa$ 与气溶胶粒径吸湿增长因子以及气溶胶散射吸湿增长因子从不同侧面表征气溶胶的吸湿性.

近年来,国内外围绕气溶胶吸湿参数 $\kappa$ 开展了大量的观测试验及应用研究.Kim等<sup>[9]</sup>在韩国首尔地区开展了观测实验,揭示了不同污染源主导下的气溶胶吸湿参数 $\kappa$ 存在显著差异.Thalman等<sup>[10]</sup>指出,巴西玛瑙斯市雨季背景下气溶胶吸湿参数 $\kappa$ 的均值约为0.19,旱季背景下 $\kappa$ 的均值约为0.15.Philips等<sup>[11]</sup>在美国东海岸观测时发现,海洋气溶胶具有较强的吸湿性,气溶胶吸湿参数 $\kappa$ 值为0.37~0.54,比大陆气溶胶偏高.Lange等<sup>[12]</sup>研究表明,格陵兰岛东北海岸人为源为主的气溶胶吸湿参数 $\kappa$ 值为0.10~0.46,自然源为主的气溶胶吸湿参数 $\kappa$ 值为0.35~0.51,明显偏高.Wu等<sup>[13]</sup>研究了北京地区两次颗粒物污染事件, $\kappa$ 值的计算结果介于0.09~0.10,且基本不随粒径改变.另外,高颖等<sup>[14]</sup>发现邢台地区云凝结核(CCN)活化能力明显强于北京地区.上述分析表明,受排放源和气象条件的共同作用,实际气溶胶化学组分差异很大,由此导致吸湿参数 $\kappa$ 随时空存在显著的变化,进而强化气溶胶的直接和间接效应.

霾的形成和演化涉及大气多尺度物理化学过程<sup>[15]</sup>,气溶胶吸湿无疑是其中的一个关键环节.大气颗粒物吸湿后所含凝结水可作为异相成核和非均相化学反应床,进而影响大气光化学反应<sup>[16]</sup>.迄今为

止,尚未厘清气溶胶吸湿参数 $\kappa$ 与灰霾演化之间的内在联系.本文利用成都市2017年10~12月气溶胶粒径吸湿增长因子的反演数据,基于 $\kappa$ -Köhler理论计算的气溶胶吸湿参数 $\kappa$ ,分析了该参数对霾强度变化的响应特征,探究了 $\kappa$ 的影响因子及其模型表征.

## 1 资料及方法

### 1.1 资料处理

利用的资料包括成都市2017年10~12月浊度计(AURORA-3000)、黑碳仪(AE-31)和环境颗粒物监测仪(GRIMM180)的逐时观测数据,以及该时段同时次大气能见度( $V$ )、相对湿度(RH)和二氧化氮( $\text{NO}_2$ )监测资料,监测设备的型号、布设点位以及数据的质量控制见文献<sup>[5]</sup>.

首先,剔除了出现降水、沙尘以及大风现象所在日的全部数据;其次,剔除仪器烘干后RH仍大于40%的异常数据,超出界限值数据,连续无变化数据及缺测数据;最后,根据《霾的观测和预报等级》(QX/T113—2010)<sup>[17]</sup>,在小时能见度数值低于10km且RH低于80%,或当RH在80%~95%且 $\text{PM}_{2.5}$ 质量浓度高于 $75\mu\text{g}/\text{m}^3$ ,均判断为霾.其中,当能见度在5~10km时定义其为轻微霾,筛选获得匹配样本254个;当能见度在3~5km时定义其为轻度霾,筛选获得匹配样本193个;当能见度在2~3km时定义其为中度霾,筛选获得匹配样本128个;当能见度<2km时定义其为重度霾,筛选获得匹配样本58个.

### 1.2 广义可加模型 GAM

GAM模型具有解释响应变量与影响因子之间非线性关系的能力,已广泛用于复杂非线性问题研究<sup>[18]</sup>,见式(1).

$$g(x) = f_1(x_1) + f_2(x_2) + \dots + f_i(x_i) + \omega \quad (1)$$

式中: $g(x)$ 是连接函数; $f_1, f_2, \dots, f_i$ 是连接解释变量的样条平滑函数; $x_i$ 为解释变量; $\omega$ 为残差.

### 1.3 气溶胶吸湿参数 $\kappa$ 的计算

气溶胶粒径吸湿增长因子 $Gf$ 的表达式见式(2).

$$Gf = \frac{r(\text{RH})}{r(\text{dry})} \quad (2)$$

式中: $r(\text{RH})$ 和 $r(\text{dry})$ 分别为环境条件和干燥条件下的气溶胶粒子半径.

基于Mie散射理论,构建了目标函数 $F$ 反演气溶胶粒径吸湿增长因子 $Gf$ ,见式(3).

$$F = \frac{\min F}{\left| \frac{\sigma_{\text{ext}} - \sigma_{\text{ag}} - \sigma_{\text{sg}} - \int \pi r^2 Q_{\text{sp}} [a(\text{RH}), m(\text{RH})] n[r(\text{RH})] dr(\text{RH}) - \int \pi r^2 Q_{\text{ap}} [a(\text{RH}), m(\text{RH})] n[r(\text{RH})] dr(\text{RH})}{\sigma_{\text{ext}} - \sigma_{\text{ag}} - \sigma_{\text{sg}}} \right|} \quad (3)$$

式中： $n[r(\text{RH})]$ 为环境条件下气溶胶的粒子谱分布； $a(\text{RH})$ 为环境条件下气溶胶粒子的尺度参数； $m(\text{RH})$ 为气溶胶等效复折射率； $Q_{\text{ap}}[a(\text{RH}), m(\text{RH})]$ 和  $Q_{\text{sp}}[a(\text{RH}), m(\text{RH})]$ 分别为环境条件下气溶胶散射效率因子和吸收效率因子； $\sigma_{\text{ext}}$ 为波长550nm的大气消光系数； $\sigma_{\text{sg}}$ 和  $\sigma_{\text{ag}}$ 分别为波长550nm环境条件下大气气体的散射系数和吸收系数； $\sigma_{\text{ext}}$ 、 $\sigma_{\text{ag}}$ 和  $\sigma_{\text{sg}}$ 的具体计算和订正过程详见文献[29].利用免疫进化算法求解  $Gf$ ,具体反演过程详见文献[5].

Köhler 理论<sup>[19]</sup>用于描述气溶胶和水汽的相互作用,是研究气溶胶单一化学组分吸湿性的基础,Köhler 方程的表达式见式(4).

$$S = a_w e^{\left( \frac{4\sigma_{s/a} M_w}{RT\rho_w D} \right)} \quad (4)$$

式中： $S$ 为饱和度； $a_w$ 为水活度； $D$ 为液滴直径； $\sigma_{s/a}$ 为表面张力； $M_w$ 为水的摩尔质量； $\rho_w$ 为水的密度； $T$ 为温度； $R$ 为理想气体常数.

Petters 等<sup>[7]</sup>基于 Köhler 理论引入气溶胶单吸湿参数  $\kappa$ ,并提出能够反映气溶胶吸湿能力的新方案  $\kappa$ -Köhler 理论.气溶胶吸湿参数  $\kappa$ 与颗粒物初始粒径以及湿度条件无关,其变化只取决于颗粒物化学组分,见式(5).

$$\frac{1}{a_w} = 1 + \kappa \frac{V_s}{V_w} \quad (5)$$

式中： $V_s$ 为干气溶胶粒子的体积； $V_w$ 为水的体积.

ZSR 混合定律<sup>[20]</sup>假设气溶胶体积含水量可加,基于式(4)和式(5)得到粒径吸湿增长因子  $Gf$ 与  $\text{RH}$ 的关系式,见式(6).

$$\frac{\text{RH}}{\exp\left(\frac{A}{r(\text{dry})Gf}\right)} = \frac{Gf^3 - 1}{Gf^3 - (1 - \kappa)} \quad (6)$$

大粒径气溶胶的开尔文效应可忽略不计,参考钟佳利等<sup>[8]</sup>的研究成果,将式(6)简化为式(7),气溶胶吸湿参数  $\kappa$ 的计算,见式(8).

$$Gf = \sqrt[3]{1 + \kappa \frac{\text{RH}}{1 - \text{RH}}} \quad (7)$$

$$\kappa = \frac{(Gf^3 - 1)(1 - \text{RH})}{\text{RH}} \quad (8)$$

## 2 结果与讨论

### 2.1 气溶胶吸湿参数 $\kappa$ 对霾强度变化的响应特征

利用式(7)计算观测时段内所有样本的气溶胶吸湿参数  $\kappa$ ,基于拉依达准则<sup>[21]</sup>剔除异常数据,得到气溶胶吸湿参数  $\kappa$ 时间序列,如图1所示(序号  $N=1,2,\dots,1215$ ).由图1可见,霾过程气溶胶吸湿参数  $\kappa$ 存在较为显著的变化.分析结果表明,成都地区秋冬季气溶胶吸湿参数  $\kappa$ 为  $0.197 \pm 0.113$ ,这一结果与 Kim 在韩国首尔和刘玥晨在北京地区  $\kappa$ 的测量结果相当,共同反映了城市气溶胶的吸湿性特征.

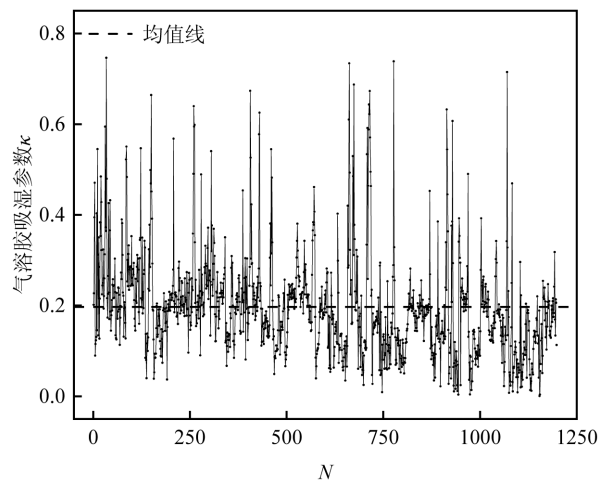


图1 气溶胶吸湿参数  $\kappa$  的时间序列

Fig.1 Time-series plot of aerosol hygroscopicity parameter  $\kappa$

进一步计算了霾过程气溶胶吸湿参数的主要统计量,将霾分为轻微、轻度、中度和重度霾4种类型,对应气溶胶吸湿参数  $\kappa$ 分别为  $(0.142 \pm 0.092)$ 、 $(0.149 \pm 0.088)$ 、 $(0.191 \pm 0.061)$ 和  $(0.200 \pm 0.041)$ .另外,绘制了4种霾强度条件下吸湿参数  $\kappa$ 的变化特征(图2).由图2可见,气溶胶吸湿参数  $\kappa$ 的中位数亦随霾强度的增加而增大,离散程度则随霾强度的增加而减小,这可能与研究区黑碳老化以及高湿气象条件下二次气溶胶占比升高有关<sup>[22-25]</sup>.

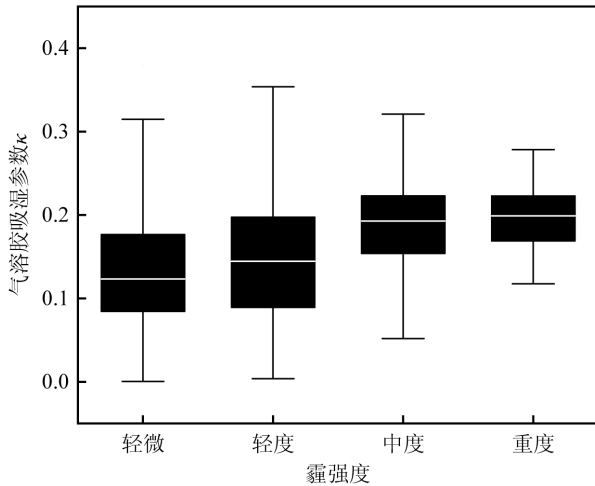


图2 不同霾强度条件下气溶胶吸湿参数  $\kappa$  的变化

Fig.2 Variations of aerosol hygroscopic parameter  $\kappa$  under different haze intensities

## 2.2 气溶胶吸湿参数 $\kappa$ 解释变量集的确定

根据 Zieger 等<sup>[26]</sup>的研究,气溶胶吸湿参数  $\kappa$  与其化学成分密切相关,并在不同相对湿度条件下,诱发气溶胶吸湿增长因子的变化.张智察等<sup>[27]</sup>以  $C_{BC}/C_{PM_1}$ ,  $C_{BC}/C_{PM_{2.5}}$ ,  $C_{BC}/C_{PM_{10}}$ ,  $C_{PM_1}/C_{PM_{2.5}}$ ,  $C_{PM_1}/C_{PM_{10}}$  和  $C_{PM_{2.5}}/C_{PM_{10}}$  ( $C_{PM_1}$ 、 $C_{PM_{2.5}}$ 、 $C_{PM_{10}}$  分别为  $PM_1$ 、 $PM_{2.5}$ 、 $PM_{10}$  的质量浓度)作为解释变量,提出了气溶胶等效复折射率的参数化方案,为气溶胶化学组分光学效应的表征奠定了基础.考虑到黑碳老化对气溶胶吸湿性的复杂影响,佟景哲等<sup>[28]</sup>和米家媛等<sup>[29]</sup>以  $RH$ 、 $C_{BC}$ 、 $C_{PM_1}/C_{PM_{2.5}}$ 、 $C_{PM_{2.5}}/C_{PM_{10}}$ 、 $C_{BC}/C_{PM_{2.5}}$  和  $C_{BC}/C_{PM_1}$  为自变量构建了适用于气溶胶吸湿增长因子的多因素解释变量集,显著提升了气溶胶吸湿增长因子在高湿气象条件下的模拟精度.基于上述研究并结合式(7),将  $C_{BC}$ 、 $C_{BC}/C_{PM_1}$ 、 $C_{BC}/C_{PM_{2.5}}$ 、 $C_{PM_1}/C_{PM_{2.5}}$  和  $C_{PM_{2.5}}/C_{PM_{10}}$  这 5 个因子作为气溶胶吸湿参数  $\kappa$  的初始解释变量集.

GAM 模型作为加性模型的衍生,能够有效地揭示响应变量与影响因素之间的非线性联系.以  $C_{BC}$ 、 $C_{BC}/C_{PM_1}$ 、 $C_{BC}/C_{PM_{2.5}}$ 、 $C_{PM_1}/C_{PM_{2.5}}$  和  $C_{PM_{2.5}}/C_{PM_{10}}$  作为气溶胶吸湿参数  $\kappa$  的解释变量集,分别构建了气溶胶吸湿参数  $\kappa$  的单变量 GAM 模型,拟合结果如表 1 所示.表 1 中解释变量的自由度大于 1 时为非线性关系; $F$  统计值越大的变量相对越重要; $P$  值是判断假设检验结果的参数, $P$  值越小,表明结果越显著;调整判定系数( $R^2$ )为回归平方和与总离差平

方和的比值,用于判定回归方程的拟合效果,值越大拟合效果越好.由表 1 可见,除  $RH$  外, $C_{BC}$ 、 $C_{BC}/C_{PM_1}$ 、 $C_{BC}/C_{PM_{2.5}}$ 、 $C_{PM_1}/C_{PM_{2.5}}$  以及  $C_{PM_{2.5}}/C_{PM_{10}}$  均通过了  $\alpha=0.01$  的显著性检验,其中, $C_{BC}$ 、 $C_{BC}/C_{PM_{2.5}}$  以及  $C_{PM_1}/C_{PM_{2.5}}$  通过了  $\alpha=0.001$  的显著性检验,据此初步确定了气溶胶吸湿参数  $\kappa$  的解释变量集,包括  $C_{BC}$ 、 $C_{BC}/C_{PM_1}$ 、 $C_{BC}/C_{PM_{2.5}}$ 、 $C_{PM_1}/C_{PM_{2.5}}$  以及  $C_{PM_{2.5}}/C_{PM_{10}}$ .气溶胶吸湿参数  $\kappa$  与各解释变量之间呈现出显著的非线性关系,其中, $C_{BC}/C_{PM_{2.5}}$  和  $C_{PM_1}/C_{PM_{2.5}}$  的影响尤为显著.与文献[28-29]对比发现,气溶胶散射吸湿增长因子和气溶胶粒径吸湿增长因子的变化具有高度的同源性,除  $RH$  之外,二者与气溶胶吸湿参数  $\kappa$  也有共同的解释变量.综上分析可知,气溶胶吸湿性参数  $\kappa$  是气溶胶吸化学组分吸湿性的表征,其变化与环境湿度无关<sup>[30]</sup>.

表 1 气溶胶吸湿参数单变量 GAM 模型拟合结果

Table 1 The univariate GAM model fitting results of aerosol hygroscopic parameter

平滑效应项	估计自由度	参考自由度	$F$	$P$	$R^2$
$RH$	7.650	8.542	5.42	$8.65 \times 10^{-7}$	0.074
$C_{BC}$	3.609	4.499	8.04	$1.42 \times 10^{-6}$ ***	0.052
$C_{BC}/C_{PM_1}$	2.466	3.159	4.22	0.00476**	0.022
$C_{BC}/C_{PM_{2.5}}$	1.002	1.003	89.25	$< 2 \times 10^{-16}$ ***	0.124
$C_{PM_1}/C_{PM_{2.5}}$	6.125	7.380	16.27	$< 2 \times 10^{-16}$ ***	0.215
$C_{PM_{2.5}}/C_{PM_{10}}$	2.888	3.721	14.95	$< 2 \times 10^{-16}$ ***	0.091

注: \*、\*\*和\*\*\*分别表示通过了 0.05、0.01 和 0.001 水平的显著性检验,下同.

上述解释变量集并未考虑解释变量之间可能存在的多重共线性问题,而多重共线性问题的出现会使构建的模型估计失真或难以准确估算.因此,通常在建模之前应对解释变量的独立性进行检验<sup>[31]</sup>.利用多元递归法和方差膨胀因子(VIF)相结合,诊断各解释变量之间的多重共线性问题.结果表明,(1)当解释变量为  $C_{BC}$ 、 $C_{BC}/C_{PM_1}$ 、 $C_{BC}/C_{PM_{2.5}}$ 、 $C_{PM_1}/C_{PM_{2.5}}$  以及  $C_{PM_{2.5}}/C_{PM_{10}}$ ,对应方差膨胀因子(VIF)为 1.425, 29.199, 25.338, 14.089, 11.241,后 4 个解释变量的 VIF 大于 3(未通过 VIF 检验);(2)当选取  $C_{BC}$ 、 $C_{BC}/C_{PM_{2.5}}$ 、 $C_{PM_1}/C_{PM_{2.5}}$ 、 $C_{PM_{2.5}}/C_{PM_{10}}$  作为解释变量,模型的拟合效果不仅最优,且对应的方差膨胀因子(VIF)为 1.419, 1.270, 1.219, 1.240,该值小于 3(通过 VIF 检验).据此,最终确定了气溶胶吸湿参数  $\kappa$  的解释变量集,包括  $C_{BC}$ 、 $C_{BC}/C_{PM_{2.5}}$ 、 $C_{PM_1}/$

$C_{PM_{2.5}}, C_{PM_{2.5}}/C_{PM_{10}}$ .

2.3 气溶胶吸湿参数  $\kappa$  多因素影响的 GAM 模型

以  $C_{BC}$ 、 $C_{BC}/C_{PM_{2.5}}$ 、 $C_{PM_{10}}/C_{PM_{2.5}}$  以及  $C_{PM_{2.5}}/C_{PM_{10}}$  为解释变量集构建了  $\kappa$  多因素影响的 GAM 模型, 拟合结果如表 2 所示. 由表 2 可知,  $C_{BC}$ 、 $C_{BC}/C_{PM_{2.5}}$ 、 $C_{PM_{10}}/C_{PM_{2.5}}$  以及  $C_{PM_{2.5}}/C_{PM_{10}}$  均通过  $\alpha=0.001$  的显著性检验, 即以上 4 个解释变量均具有显著的统计学意义; 由于参考自由度的值均大于 1, 表明  $\kappa$  与  $C_{BC}$ 、 $C_{BC}/C_{PM_{2.5}}$ 、 $C_{PM_{10}}/C_{PM_{2.5}}$ 、 $C_{PM_{2.5}}/C_{PM_{10}}$  之间的关系均是非线性的; 根据  $F$  统计值的计算结果, 以上 4 个解释变量对  $\kappa$  影响程度由高到低的顺序依次为  $C_{PM_{2.5}}/C_{PM_{10}} > C_{BC} > C_{PM_{10}}/C_{PM_{2.5}} > C_{BC}/C_{PM_{2.5}}$ , 其中以  $C_{PM_{2.5}}/C_{PM_{10}}$  的影响尤为显著; 根据  $R^2$  结果显示,  $\kappa$  多因素影响的 GAM 模型调整判定系数 ( $R^2$ ) 为 0.494, 模型拟合效果良好.

表 2 气溶胶吸湿参数多变量 GAM 模型拟合结果

Table 2 The multivariate GAM model fitting results of aerosol hygroscopic parameter

平滑效应项	估计自由度	参考自由度	$F$	$P$	$R^2$
$C_{BC}$	5.534	6.698	37.67	$<2 \times 10^{-16}***$	0.494
$C_{BC}/C_{PM_{2.5}}$	5.347	6.539	12.84	$<2 \times 10^{-16}***$	
$C_{PM_{10}}/C_{PM_{2.5}}$	5.202	6.408	22.87	$<2 \times 10^{-16}***$	
$C_{PM_{2.5}}/C_{PM_{10}}$	3.193	4.085	55.88	$<2 \times 10^{-16}***$	

利用 R 语言中的 gam.check 函数获取 QQ 图、残差直方图和线性预测值与残差散点图, 据此验证气溶胶吸湿参数多变量 GAM 模型的适用性, 结果如图 3 所示. 由图 3 可见, 在 QQ 图中, 散点主要集中在  $y=x$  直线周围, 且残差多数集中在 0 附近, 这表明残差分布趋向于正态分布, 残差的随机无序分布进一步说明多变量 GAM 具有较高的可靠性.

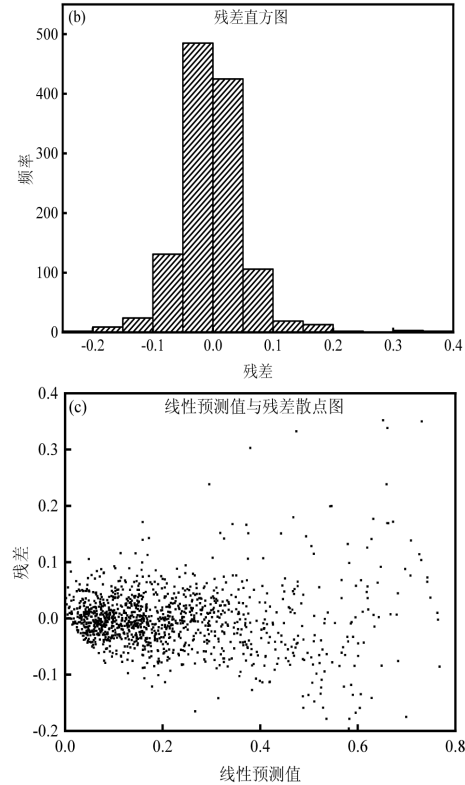
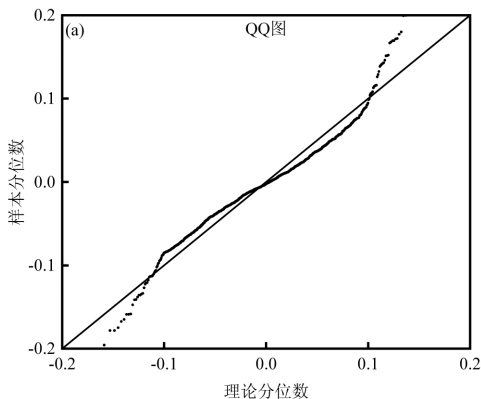


图 3 模型残差检验结果

Fig.3 The residual test results of model

通过构建 GAM 模型可以分析  $\kappa$  与多个解释变量之间的关系, 并得到每个解释变量对  $\kappa$  影响的平滑回归函数(图 4). 其中, 实线表示的是解释变量与  $\kappa$  之间的平滑拟合关系, 而虚线则展示了这种拟合关系的不确定性范围, 即置信区间的上下限; 图中的纵轴显示的是解释变量对  $\kappa$  影响的估计值, 横轴则对应于解释变量的实际观测值; 在纵轴的括号内, 提供的是估计自由度的数值, 这是一个衡量模型中变量解释能力的指标. 根据图 4(a)~(d) 的结果显示,  $\kappa$  和  $C_{BC}$ 、 $C_{BC}/C_{PM_{2.5}}$ 、 $C_{PM_{10}}/C_{PM_{2.5}}$  和  $C_{PM_{2.5}}/C_{PM_{10}}$  间均存在显著的非线性关系. 由图 4(a) 可见, 当  $C_{BC} < 3.8 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ,  $\kappa$  随  $C_{BC}$  增加呈现出显著的下陷趋势; 当  $C_{BC} > 3.8 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ,  $\kappa$  随  $C_{BC}$  增加总体降幅较为平缓. 图 4(b) 中, 当  $C_{BC}/C_{PM_{2.5}} < 0.15$ ,  $\kappa$  随  $C_{BC}/C_{PM_{2.5}}$  增加同样呈现出显著的下陷趋势; 当  $C_{BC} > 0.15$ ,  $\kappa$  随  $C_{BC}/C_{PM_{2.5}}$  增加呈现出弱上升的形态特征.  $\kappa$  随  $C_{BC}$  以及  $C_{BC}/C_{PM_{2.5}}$  的初始演化形态主要体现了黑碳本身非吸湿性特征, 其后期演化形态可能与黑碳老化以及黑碳在细颗粒物中的混合态有关<sup>[32-33]</sup>. 由图 4(c) 可见,  $\kappa$  随  $C_{PM_{10}}/C_{PM_{2.5}}$  的升高呈现出先增后减再增的形态特征, 对应的临界点分别在 0.6 和 0.8 附近. 由图 4(d) 可见,  $\kappa$  随

$C_{PM_{2.5}}/C_{PM_{10}}$  的升高呈现出先减后平缓变化的形态特征,对应的临界点位于 0.6 附近.超细颗粒物在细颗粒物中占比( $C_{PM_1}/C_{PM_{2.5}}$ )和细颗粒物在粗颗粒物中占比( $C_{PM_{2.5}}/C_{PM_{10}}$ )的变化对气溶胶吸湿增长有着复

杂的影响<sup>[34]</sup>,由于成都地区  $C_{PM_1}/C_{PM_{2.5}}$  和  $C_{PM_{2.5}}/C_{PM_{10}}$  的统计结果分别为  $0.69 \pm 0.10$  和  $0.51 \pm 0.09$ ,故实际  $C_{PM_1}/C_{PM_{2.5}}$  和  $C_{PM_{2.5}}/C_{PM_{10}}$  的升高总体有利于  $\kappa$  的增加,从而致使气溶胶吸湿性的增强.

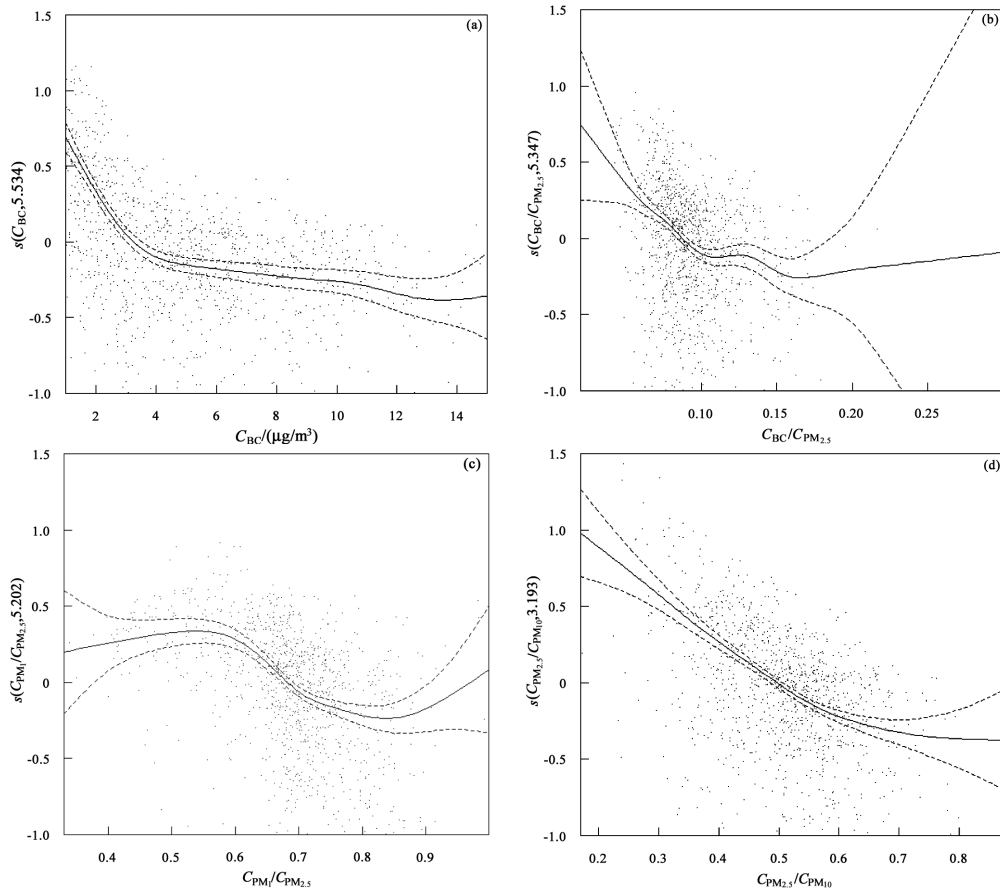


图 4 4 个解释变量对气溶胶吸湿参数变化的影响效应

Fig.4 Effect of 4 explanatory variables on the variation of aerosol hygroscopicity parameter

表 3 4 种霾强度下气溶胶吸湿参数与 4 个解释变量的 GAM 模型拟合结果

Table 3 The GAM model fitting results of aerosol hygroscopic parameter with four explanatory variables under four haze intensities

霾强度	平滑效应项	F	P	R <sup>2</sup>	方差解释率(IRV)
轻微	C <sub>BC</sub>	35.93	<2×10 <sup>-16</sup> ***	0.315	31.8%
	C <sub>BC</sub> /C <sub>PM<sub>2.5</sub></sub>	116.8	<2×10 <sup>-16</sup> ***		
	C <sub>PM<sub>1</sub>}/C<sub>PM<sub>2.5</sub></sub></sub>	3.187	0.00828**		
	C <sub>PM<sub>2.5</sub>}/C<sub>PM<sub>10</sub></sub></sub>	2.56	<2×10 <sup>-16</sup> ***		
轻度	C <sub>BC</sub>	3.715	0.0183**	0.498	37.8%
	C <sub>BC</sub> /C <sub>PM<sub>2.5</sub></sub>	37.88	<2×10 <sup>-16</sup> ***		
	C <sub>PM<sub>1</sub>}/C<sub>PM<sub>2.5</sub></sub></sub>	6.711	<2×10 <sup>-6</sup> ***		
	C <sub>PM<sub>2.5</sub>}/C<sub>PM<sub>10</sub></sub></sub>	7.637	0.000421***		
中度	C <sub>BC</sub>	2.976	0.109*	0.524	51.4%
	C <sub>BC</sub> /C <sub>PM<sub>2.5</sub></sub>	31.16	<2×10 <sup>-16</sup> ***		
	C <sub>PM<sub>1</sub>}/C<sub>PM<sub>2.5</sub></sub></sub>	17.53	<2×10 <sup>-6</sup> ***		
	C <sub>PM<sub>2.5</sub>}/C<sub>PM<sub>10</sub></sub></sub>	15.64	0.000166***		

续表 3

霾强度	平滑效应项	F	P	R <sup>2</sup>	方差解释率(IRV)
重度	C <sub>BC</sub>	2.024	0.319*	0.645	75.9%
	C <sub>BC</sub> /C <sub>PM<sub>2.5</sub></sub>	22.19	1.72×10 <sup>-5</sup> ***		
	C <sub>PM<sub>1</sub>}/C<sub>PM<sub>2.5</sub></sub></sub>	19.52	0.0198**		
	C <sub>PM<sub>2.5</sub>}/C<sub>PM<sub>10</sub></sub></sub>	21.38	0.211**		

进一步分析了气溶胶吸湿参数  $\kappa$  多变量 GAM 模型在 4 种霾强度条件下的适用性,拟合结果如表 3 所示. 由表 3 可见,4 种霾强度条件下,4 个解释变量对气溶胶吸湿参数  $\kappa$  均存在显著的影响(通过  $\alpha=0.05$  的显著性检验);根据 F 统计值可知,4 个解释变量对  $\kappa$  的解释能力随霾强度的变化存在显著的差异,C<sub>BC</sub> 和 C<sub>BC</sub>/C<sub>PM<sub>2.5</sub></sub> 对  $\kappa$  的解释能力随霾强度的增加而减小,C<sub>PM<sub>1</sub>}/C<sub>PM<sub>2.5</sub></sub> 和 C<sub>PM<sub>2.5</sub>}/C<sub>PM<sub>10</sub></sub> 对  $\kappa$  的解释能</sub></sub>

力则随霾强度的增加而增大,这揭示了霾过程  $\kappa$  多因素影响的复杂性;根据  $R^2$  结果显示,轻微、轻度、中度和重度霾强度条件下,多变量 GAM 模型调整判定系数( $R^2$ )分别为 0.315、0.498、0.524 和 0.645,这一结果表明多变量 GAM 模型在不同霾强度条件下的拟合效果均较好,且模型的拟合精度随霾强度的增加逐渐提升。

利用压轴回归法(RMA)评估不同霾强度下气溶胶吸湿参数  $\kappa$  多变量 GAM 模型的拟合效果,

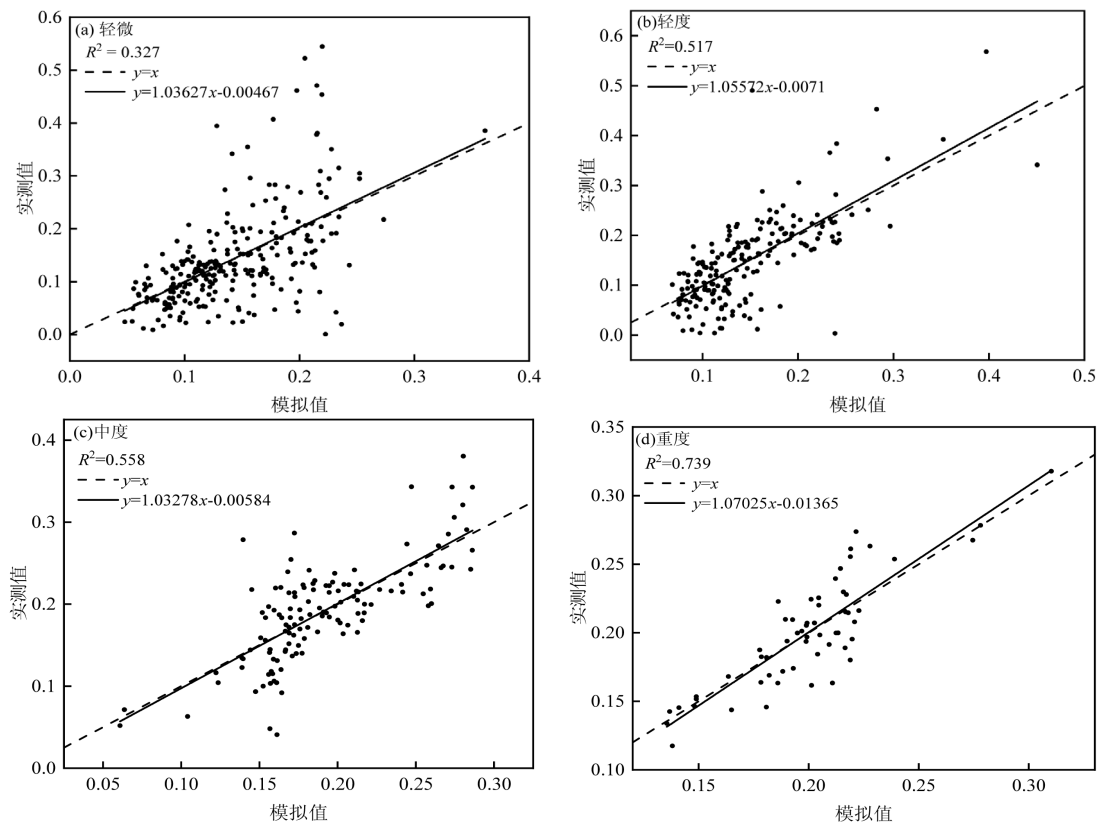


图5 4种霾强度条件下压轴回归(RMA)检验结果

Fig.5 The test result of the reduced major axis regression (RMA) under four haze intensities

### 3 结论

3.1 成都地区霾过程气溶胶吸湿参数  $\kappa$  的统计值为  $0.197 \pm 0.113$ ;其均值随霾强度的增加而增大,变差系数则随霾强度的增加而减小。

3.2 气溶胶吸湿参数  $\kappa$  表征的是颗粒物组分的综合吸湿能力,其解释变量集包括  $C_{BC}$ 、 $C_{BC}/C_{PM_{2.5}}$ 、 $C_{PM_{10}}/C_{PM_{2.5}}$ 、 $C_{PM_{2.5}}/C_{PM_{10}}$ ,并以  $C_{PM_{2.5}}/C_{PM_{10}}$  的影响尤为显著,这反映了二次气溶胶占比变化对气溶胶吸湿参数  $\kappa$  影响的重要性。

3.3 气溶胶吸湿参数  $\kappa$  与各解释变量之间呈现出

拟合结果如图5所示.由图5可见,轻微、轻度、中度和重度霾强度条件下,气溶胶吸湿参数  $\kappa$  的压轴回归决定系数  $R^2$  分别为 0.327、0.517、0.558 和 0.739,残差平方和 RSS 分别为 1.448、0.721、0.209、和 0.025,多变量 GAM 模型的拟合精度随霾强度的增强而增加.上述研究结果系统地揭示了气溶胶组分结构变化对气溶胶吸湿参数  $\kappa$  影响的复杂性,并为气溶胶吸湿参数  $\kappa$  的科学表征提供了新途径。

显著的非线性关系。 $C_{BC}$  和  $C_{BC}/C_{PM_{2.5}}$  对  $\kappa$  的解释能力随霾强度的增加而减小,  $C_{PM_{10}}/C_{PM_{2.5}}$  和  $C_{PM_{2.5}}/C_{PM_{10}}$  对  $\kappa$  的解释能力则随霾强度的增加而增大。

3.4 GAM 模型具有解释响应变量与影响因子之间非线性关系的能力,它为气溶胶吸湿参数  $\kappa$  多因素影响复杂性的科学表征提供了新途径,模型模拟精度随霾强度的增加而提升。

#### 参考文献:

- [1] Kotchenruther R A, Hobbs P V, Hegg D A. Humidification factors for atmospheric aerosols off the mid-Atlantic coast of the United States [J]. Journal of Geophysical Research Atmospheres, 1999,104(D2): 2239-2251.

- [2] Pope C A, Dockery D W. Heath effects of fine particulate air pollution: Lines that connect [J]. *Air&Waste Management Association*, 2006, 56:709-742.
- [3] Hand J L, Kreidenweis S M, Sherman D E, et al. Aerosol size distributions and visibility estimates during the Big Bend regional aerosol and visibility observational (BRAVO) study [J]. *Atmospheric Environment*, 2002,36:5043-5055.
- [4] Wang K, Zhang Y, Yahya K, et al. Implementation and initial application of new chemistry-aerosol options in WRF/Chem for simulating secondary organic aerosols and aerosol indirect effects for regional air quality [J]. *Atmospheric Environment*, 2015,115:716-732.
- [5] 张智察,倪长健,邓也,等.免疫进化算法反演均匀混合气溶胶吸湿增长因子 [J]. *中国环境科学*, 2020,40(3):1008-1015.  
Zhang Z C, Ni C J, Deng Y, et al. Retrieval of hygroscopic growth factor of uniformly mixed aerosol particles based on immune evolution algorithm [J]. *China Environmental Science*, 2020,40(3): 1008-1015.
- [6] Köhler H. The nucleus in and the growth of hygroscopic droplets [J]. *Transactions of the Faraday Society*, 1936,32:1152-1161.
- [7] Petters M D, Kreidenweis S M. A single parameter representation of hygroscopic growth and cloud condensation nucleus activity [J]. *Atmos Chem Phys*, 2007,7:1961-1971.
- [8] 钟佳利,王炜罡,彭超,等.大气气溶胶吸湿性及其对环境的影响 [J]. *化学进展*, 2022,34(4):801-814.  
Zhong J L, Wang W G, Peng C, et al. Atmospheric aerosol hygroscopicity and their influence on environment [J]. *Progress in Chemistry*, 2022,34(4):801-814.
- [9] Kim N, Park M, Yum S S, et al. Impact of urban aerosol properties on cloud condensation nuclei (CCN) activity during the KORUS-AQ field campaign [J]. *Atmospheric Environment*, 2018:185221-236.
- [10] Thalman R, Sa D S S, Palm B B, et al. CCN activity and organic hygroscopicity of aerosols downwind of an urban region in central Amazonia: Seasonal and diel variations and impact of anthropogenic emissions [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2017,17(19): 11779-11801.
- [11] Phillips B N, Royalty T M, Dawson K W, et al. Hygroscopicity-and size-resolved measurements of submicron aerosol on the east coast of the United States [J]. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 2018,123(3):1826-39.
- [12] Lange R, Dall'Osto M, Wex H, et al. Large summer contribution of organic biogenic aerosols to Arctic cloud condensation nuclei [J]. *Geophysical Research Letters*, 2019,46(20):11500-11509.
- [13] Wu Z, Zheng J, Wang Y, et al. Chemical and physical properties of biomass burning aerosols and their CCN activity: A case study in Beijing, China [J]. *Science of the Total Environment*, 2017,579:1260-1268.
- [14] 高颖,王玉莹,李占清,等.北京和邢台新粒子生成的差别及其对 CCN 活性的影响 [J]. *大气科学*, 2022,46(5):1087-1097.  
Gao Y, Wang Y Y, Li Z Q, et al. Differences in the effects of new particle formation on cloud condensation nuclei activity in Beijing and Xingtai [J]. *Chinese Journal of Atmospheric Sciences*, 2022,46(5): 1087-1097.
- [15] 权建农,徐祥德,贾星灿,等.影响我国霾天气的多尺度过程 [J]. *科学通报*, 2020,65(9):810-824.  
Quan J N, Xu X D, Jia X C, et al. Multi-scale processes in severe haze events in China and their interactions with aerosols: Mechanisms and progresses [J]. *Chinese Science Bulletin*, 2020,65(9):810-824.
- [16] McMurry PH, Wilson JC. Droplet phase (heterogeneous) and gas phase (homogeneous) contributions to secondary ambient aerosol formation as functions of relative humidity [J]. *Journal of Geophysical Research: Oceans*, 1983,88(C9):5101-5108.
- [17] QX/T 113-2010 霾的观测和预报等级 [S].  
QX/T 113-2010 Observation and forecasting levels of haze [S].
- [18] 贺祥,林振山.基于 GAM 模型分析影响因素交互作用对 PM<sub>2.5</sub> 浓度变化的影响 [J]. *环境科学*, 2017,38(1):22-32.  
He X, Lin Z S. Interactive effects of the influencing factors on the changes of PM<sub>2.5</sub> concentration based on GAM Model [J]. *Environmental Science*, 2017,38(1):22-32.
- [19] Köhler H. The nucleus in and the growth of hygroscopic droplets [J]. *Transactions of the Faraday Society, The Royal Society of Chemistry*, 1936,32(0):1152-1161.
- [20] Gysel M, Crosier J, Topping D O, et al. Closure study between chemical composition and hygroscopic growth of aerosol particles during TORCH2 [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2007,7(112): 6131-6144.
- [21] 石磊,徐明伟.计量检定中的异常值及其剔除方法 [J]. *黑龙江气象*, 2006,(4):25-26.  
Shi L, Xu M W. Anomaly data measured and rejected in quality check-up [J]. *Heilongjiang Meteorology*, 2006,(4):25-26.
- [22] Kim J, Yoon S, Jefferson A, et al. Aerosol hygroscopic properties during Asian dust, pollution, and biomass burning episodes at Gosan, Korea in April 2001 [J]. *Atmospheric Environment*, 2006,40(8): 1550-1560.
- [23] 刘玥晨,吴志军,谭天怡,等.基于实测 PM<sub>2.5</sub> 化学组分估算其有效吸湿参数和含水量:理论模型与实例分析 [J]. *中国科学:地球科学*, 2016,46(7):976-985.  
Liu Y C, Wu Z J, Tan T Y, et al. Estimation of the PM<sub>2.5</sub> effective hygroscopic parameter and water content based on particle chemical composition: Methodology and case study [J]. *Science China Earth Sciences*, 2016,46(7):976-985.
- [24] 刘凡,谭钦文,江霞,等.成都市冬季相对湿度对颗粒物浓度和大气能见度的影响 [J]. *环境科学*, 2018,39(4):1466-1472.  
Liu F, Tan Q W, Jiang X, et al. Effect of relative humidity on particulate matter concentration and visibility during winter in Chengdu [J]. *Environmental Science*, 2018,39(4):1466-1472.
- [25] 谭天怡,郭松,吴志军,等.老化过程对大气黑碳颗粒物性质及其气候效应的影响 [J]. *科学通报*, 2020,65(36):4235-4250.  
Tan T Y, Guo S, Wu Z J, et al. Impact of aging process on atmospheric black carbon aerosol properties and climate effects. *Chin Sci Bull*, 2020,65:4235-4250.
- [26] Zieger P, Fierz-Schmidhauser R, Gysel M, et al. Effects of relative humidity on aerosol light scattering in the Arctic [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2010,10(8):3875-3890.
- [27] 张智察,倪长健,刘新春,等.干气溶胶复折射率的参数化方案 [J]. *中国环境科学*, 2021,41(2):580-587.  
Zhang Z C, Ni C J, Liu X C, et al. Parameterization scheme for dry aerosols complex refractive index [J]. *China Environmental Science*, 2021,41(2):580-587.
- [28] 佟景哲,倪长健,杜云松,等.成都气溶胶散射吸湿增长因子多变量影响分析 [J]. *生态与农村环境学报*, 2022,38(5):636-644.  
Tong J Z, Ni C J, Du Y S, et al. Impact analysis of multivariable of aerosol scattering hygroscopic growth factor in Chengdu [J]. *Journal of Ecology and Rural Environment*, 2022,38(5):636-644.
- [29] 米家媛,佟景哲,倪长健,等.气溶胶粒径吸湿增长多因素影响的 GAM 模型 [J]. *环境科学与技术*, 2023,46(6):128-135.  
Mi J Y, Tong J Z, Ni C J, et al. GAM model for multifactorial effects on aerosol particle size hygroscopic growth [J]. *Environmental Science & Technology*, 2023,46(6):128-135.
- [30] Chen J, Zhao C S, Ma N, et al. A parameterization of low visibilities for hazy days in the North China Plain [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2012,12(271):4935-4950.
- [31] Tu J, Xia Z G, Wang H, et al. Temporal variations in surface ozone and its precursors and meteorological effects at an urban site in China [J]. *Atmospheric Research*, 2007,85(3):310-337.
- [32] Weingartner E, Burtscher H, Baltensperger U. Hygroscopic properties of carbon and diesel soot particles [J]. *Atmospheric Environment*, 1997,31(15):2311-2327.
- [33] Jacobson M. Z. Strong radiative heating due to the mixing state of black carbon in atmospheric aerosols [J]. *Nature*, 6821,409(6821): 695-697.
- [34] 张智胜,陶俊,谢绍东,等.成都城区 PM<sub>2.5</sub> 季节污染特征及来源解析 [J]. *环境科学学报*, 2013,33(11):2947-2952.  
Zhang Z S, Tao J, Xie S D, et al. Seasonal variations and source apportionment of PM<sub>2.5</sub> at urban area of Chengdu [J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 2013,33(11):2947-2952.35.

作者简介: 米家媛(1999-),女,辽宁锦州人,助理工程师,主要从事大气物理学与大气环境方面研究.发表论文 3 篇.mijayuan1999@163.com.