

北京市春夏季降水及其对大气环境的影响研究

韩力慧*,张海亮,张 鹏,向 欣,程水源,魏 巍 (北京工业大学,环境与能源工程学院,区域大气复合污染防治北京市重点实验室,北京 100124)

摘要: 通过采集北京市 2015 年春夏季大气降水和大气颗粒物样品,分析研究了大气降水的理化特性,时空变化特征,来源以及对大气颗粒物的影响。结果表明,北京市春夏季降水量主要集中于夏季,降水 pH 值在南城和北城分别为 6.26 和 6.08,呈偏中性,均表现为春季大于夏季。降水中地壳元素 Al 和 Fe 含量较高,Ti、V 和 Ce 含量较低。污染元素 Ca 和 S 含量最高,Na 和 Mg 含量较高,Zn、Mn、Cu、Sr、Pb 和 Ni 含量较低,其中 Na、Mg、Sr 和 Ni 呈现轻度富集,Ca、Mn 和 Pb 呈现中度富集,Cu、Zn 和 S 呈现严重富集。此外,降水中元素浓度具有显著的季节变化,二次污染元素 S 表现为夏季高于春季,而其它元素均表现为春季高于夏季;同时也具有较大的空间变化,除 Pb 元素外,均为南城高于北城。降水中化学组分主要来源于地面扬尘、建筑活动、燃煤、机动车尾气和工业排放。大气降水对大气颗粒物的去除率受降水强度以及前一天空气质量的影响较大,且对细颗粒物 PM_{2.5} 中污染元素 Cu、Zn、Mn 和 Na 清除效果显著,对粗颗粒物 PM₁₀ 中地壳元素 Al 和建筑尘相关元素 Mg 和 Ca 去除效果明显。

关键词: 大气降水; 大气颗粒物; 化学组分; 来源解析; 去除率

中图分类号: X517 文献标识码: A 文章编号: 1000-6923(2017)06-2047-08

Studies on precipitation and its effects on atmospheric environment in Beijing in spring and summer. HAN Li-hui*, ZHANG Hai-liang, ZHANG Peng, XIANG Xin, CHENG Shui-yuan, WEI Wei (Key Laboratory of Beijing on Regional Air Pollution Control, College of Environmental and Energy Engineering, Beijing University of Technology, Beijing 100124, China). *China Environmental Science*, 2017,37(6): 2047~2054

Abstract: A campaign of sampling atmospheric precipitation and particulate matter samples in Beijing in both spring and summer of 2015 was carried out to investigate the physical and chemical characteristics, temporal and spatial variations and sources of precipitation and its impacts on atmospheric particulate matter. A large amount of rainfall in spring and summer mostly occurred in summer. The volume-weighted mean (VWM) pH value of rainwater in the south of Beijing in spring and summer was 6.26, a little higher than that of 6.08 in the north, indicating that the rainwater in Beijing was largely non-acidic. At the same time, the VWM pH in spring was higher than that in summer in Beijing. The concentrations of major crustal elements in rainfall such as Al and Fe, were relatively high, while Ti, V and Ce were relatively low. The concentrations of major pollution elements in rainwater such as Ca and S, were much high, Na and Mg were relatively high, but Zn, Mn, Cu, Sr, Pb and Ni were relatively low, of which Na, Mg, Sr and Ni were lightly enriched in rainwater, Ca, Mn and Pb were enriched, and Cu, Zn and S were heavily enriched in rainwater. Furthermore, the concentrations of major elements in rainwater displayed the significant seasonal variations, of which the concentration of secondary pollution element S in summer was higher than that in spring, while the concentrations of the others in spring were higher than those in summer. The important spatial variations of major elements in rainwater have been shown, of which the concentrations of major elements in the south of Beijing, except for Pb, were higher than those in the north. The chemical compositions of precipitation were mainly from crustal dust, construction activities, coal combustion, vehicle emission and industrial emission. The scavenging effect of precipitation to aerosol particles and their components from the air was generally impacted by the rainfall intensity and the concentrations of pollutants before precipitation events. The

收稿日期: 2016-11-20

基金项目: 国家环保公益性行业科研专项(201409003);国家留学基金委资助项目(201406545022);北京市教委项目(PXM2016_014204_001029_00205967_FCG)

* 责任作者, 副教授, hlh@bjut.edu.cn

precipitation could effectively scavenge pollution elements in fine particle $PM_{2.5}$, such as Cu, Zn, Mn and Na, and crustal element Al, and Mg and Ca from construction dust in coarse particle PM_{10} .

Key words: precipitation; atmospheric particulate matter; chemical composition; source identification; scavenging rate

大气降水是大气颗粒物的汇,其化学组分能间接反映大气污染的性质、程度和来源而受到国内外科学家的广泛关注。作为能反映大气污染的环境因子,北京市大气降水无疑已成为大气污染与控制的重要内容之一。早在 10 年前,就有学者对北京市大气降水进行了研究。唐傲寒等^[1]和胡敏等^[2]研究了 2003 年北京市降水的离子化学组分及其对大气颗粒物浓度的影响。金蕾等^[3]研究了北京市 1987~2004 年的湿沉降特征及其变化趋势。Yang 等^[4]研究了北京地区 2001~2005 年连续 5 年降水化学组分的变化规律。这些研究成果从侧面反映了 10 年前北京市大气污染的状况。

近 10 年来,随着北京市人口数量和机动车保有量的快速增长,以及一系列大气污染与控制措施的实施,污染源发生了较大的变化,大气污染类型也发生了实质性的变化,由此产生的大气降水也不例外。如 2010 年北京市出现了罕见的沙尘天气,此期间大气降水中 Ca^{2+} 和 NO_3^- 显著增加^[5]。北京市近年来机动车尾气排放的 NO_x 与造成降水酸化的 NO_3^- 的增长具有显著相关性^[6]。北京城乡大气降水化学组分的变化进一步表明北京市大气污染以二次污染和机动车污染为主要特征^[7]。这些研究均以降水中离子组分为主要研究对象。由于降水中元素组分能较全面地反映大气污染状况,而目前相关研究报道甚少。因此,本文将对北京市 2015 年春夏季大气降水元素化学组分、来源、以及对大气颗粒物的影响进行深入研究,以期为北京市大气污染治理提供重要的科学理论依据。

1 材料与方法

1.1 样品采集

1.1.1 大气降水样品 选取位于北京市西北二环和三环之间能代表北城区特点的北京师范大学(BNU)科技楼楼顶(距地面约 35m)作为北城采

样点,位于东南三环和四环之间能代表南城区特点的北京工业大学(BJUT)环化楼(距地面约 15m)作为南城采样点。按照国家相关标准^[8]中的要求用自制采样仪(将聚乙烯采样袋内衬于直径为 25cm 的塑料桶中)于 2015 年 3~8 月,采取逢雨必采的原则,采集降水样品,并同时采用雨量计,记录降雨量。样品采集完后立即取适量样品进行 pH 值的测定。另外取适量样品采用孔径为 0.45μm 的针筒式过滤头进行过滤,过滤液放置在冰箱中(4℃)保存,待测。

1.1.2 大气颗粒物样品 采用美国 URG-3000ABC 8 通道中流量颗粒物采样器以及直径为 47mm 的 Whatman41#纤维素滤膜(英国 Whatman 公司生产)在北师大采样点于 2015 年 4、7 月采集 PM_{10} 和 $PM_{2.5}$ 样品,每个样品连续采集 23h30min(每日 8:00 至次日 7:30)。采样膜在采样前后均放置于恒温恒湿箱中($T=(20 \pm 2)^\circ C$, $RH=(40 \pm 5)\%$)恒温恒湿 48h,采用十万分之一天平(DENVER-TB-215D)进行称量。

1.2 化学组分分析

1.2.1 pH 值 采用 METTLER TOLEDO 梅特勒 pH 计及时测定降水样品的 pH 值,测量精度为 0.01,每次测定前均进行标定,严格规范操作。

1.2.2 元素组分

(1) 大气降水 采用电感耦合等离子体质谱仪(ICP-MS,Agilent7500a)分析上述降水过滤待测溶液中 24 种元素浓度^[9~10]:Na、Mg、Al、S、Ca、Sc、Ti、V、Cr、Mn、Fe、Co、Ni、Cu、Zn、As、Se、Sr、Mo、Cd、Sb、Ce、Eu 和 Pb。

(2) 大气颗粒物 将采样膜放入聚四氟乙烯消解罐中,分别加入 3mL 浓硝酸、1mL 浓高氯酸和 1mL 浓氢氟酸,然后将消解罐放入微波消解仪中消解 1.5h。随后进行赶酸处理,赶酸至消解罐内剩余一小滴溶液后加入 1mL 浓硝酸,使用高纯水定容到 10mL 试管中,放置冰箱中保存,待测。整个过程严格进行质量控制,保证样品不受人为污染。

同理,采用电感耦合等离子体质谱仪分析上述待测溶液中 24 种元素.

2 结果与讨论

2.1 大气降水量的时空变化

全年降水量统计数据(www.wunderground.com)显示,北京市 2015 年全年降水量为 346mm,其中春夏季 3~8 月累计降水量为 255mm,占全年降水量的 74%,由此可见,北京市全年降水主要集中于春夏季.采样期间,南城 BJUT 采样点共采集到 35 场降水事件,累计降水量 236.6mm,低于北京地区春夏季平均降水量,约占 93%.北城 BNU 采样点共采集到 18 场降水事件,累计降水量 220.7mm,约占北京地区春夏季平均降水量的 86%,可见本研究所采集的降水样品对研究北京市春夏季降水具有较好的代表性.两个采样点采集降水量的时空变化如图 1 所示,南城和北城春夏季降水主要集中于夏季,分别占北京市春夏季总降水量的 80% 和 77%,且南城降水量普遍大于北城,这可能与北城降水采集有几场缺失有关.

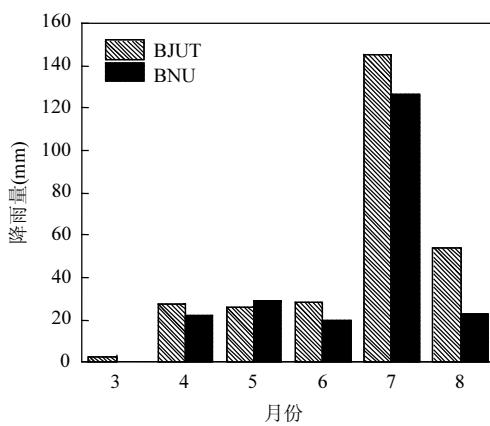


图 1 北京市 2015 年春夏季降雨量

Fig.1 The rainfall in spring and summer of 2015 in Beijing

2.2 大气降水化学组分变化特征

2.2.1 pH 值的时空变化 南城 BJUT 降水样品 pH 值的雨量加权平均值为 6.26,其中春季为 6.48,夏季为 6.21.北城 BNU 降水样品 pH 值的雨量加

权平均值为 6.08,其中春、夏季分别为 6.34 和 6.01.可见两个采样点 pH 值均表现为春季高于夏季.有气象数据显示,2015 年北京市春季 3~5 月,风速较大,日均值为 11km/h,相对湿度较低,为 41%,而夏季 6~8 月,风速较低,日均值为 9km/h,相对湿度较高,为 58%.干燥少雨且大风天气容易造成空气中大气颗粒物浓度的升高,致使北京市春季空气中 PM_{10} 平均浓度为 $120.6\mu g/m^3$,约为夏季 $69.0\mu g/m^3$ 的 1.7 倍.较高浓度的碱性颗粒物对降水的酸度具有重要的中和作用,因此造成春季降水 pH 值较高.此外,造成夏季降水 pH 值较低的原因可能与夏季降雨量较大,以及高温高湿条件下有利于二次粒子的生成有关.一方面,夏季降雨量较大,对大气环境中碱性物质稀释作用明显,削弱了降水中的中和反应,造成降水 pH 值较低.另一方面,据监测数据显示,北京市夏季 O_3 浓度较高,约为春季的 1.3 倍,在高温、高湿、高氧化性条件下,有利于二次硫酸盐和硝酸盐的生成^[11],而降水中硫酸盐和硝酸盐是主要的致酸因子^[2],因此会造成夏季降水 pH 较低.

此外,降水 pH 值在南城 BJUT 和北城 BNU 相近,没有表现出明显的差异,说明北京城区降水 pH 值没有显著的空间变化.

2.2.2 元素组分时空变化 富集因子法是用来判别大气降水中地壳元素和人为污染元素的有效方法,其计算公式如下:

$$EF_{(X)} = \frac{(C_X / C_R)_{\text{雨水}}}{(C_X / C_R)_{\text{地壳}}} \quad (1)$$

式中: $EF_{(X)}$ 为元素 X 的富集因子; $(C_X / C_R)_{\text{雨水}}$ 为降水中元素 X 与参考元素 R 的浓度比值; $(C_X / C_R)_{\text{地壳}}$ 为地壳中元素 X 与参考元素 R 的丰度比值, C_R 为参考元素 R 的含量.地壳中参考元素选用中国大陆华夏壳体^[12]的元素丰度.参比元素的选择必须满足 3 个条件,即稳定性、单一自然源、与其他元素密切相关^[13],目前使用最广泛的为 Al 元素,因此本文选用 Al 作为参比元素.目前,富集因子的判断标准尚不统一^[13],本文参考应用比较广泛的划分标准,将 $EF < 5$, 表示此元素主要来自地壳源, $5 < EF \leq 10$, 表示此元素呈现轻度富集特征, 受到轻微人为影响; $10 < EF \leq 100$, 表示此元素呈现中度富集特征,

受到人为影响较大;EF>100,表示此元素呈现严重富集特征,明显受到人为因素的影响。

本研究中,Sc、Co 和 Eu 在 2 个采样点降水中均未检出,As、Cd、Se、Mo、Cr 和 Sb 在 2 个采样点中检出率很低,因此不做考虑。主要元素富集因子结果如图 2 所示,Ti、Al、V、Fe、Ce 元素的富集因子均小于 5,表示主要来自地壳源;Sr、Mg、Ni 和 Na 元素富集因子介于 5~10 之间,呈现轻度富集,表明受到轻微人为源影响。Ca、Mn、和 Pb 元素富集因子介于 10~100 之间,呈现中度富集,表示受到人为源影响较大;Cu、Zn 和 S 元素富集因子均大于 100,甚至超过 1000,呈现高度富集,表明严重受到人为因素的影响。

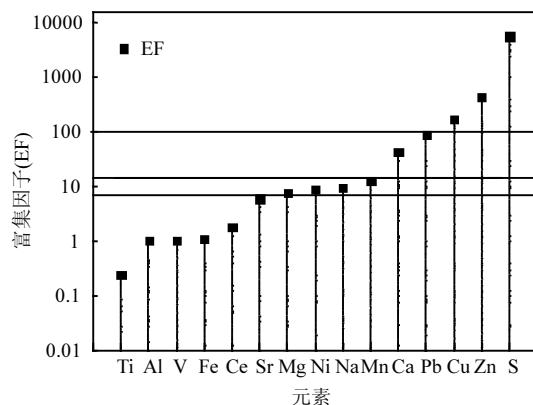


图 2 降水中元素富集因子

Fig.2 Enrichment factors of major elements in precipitation

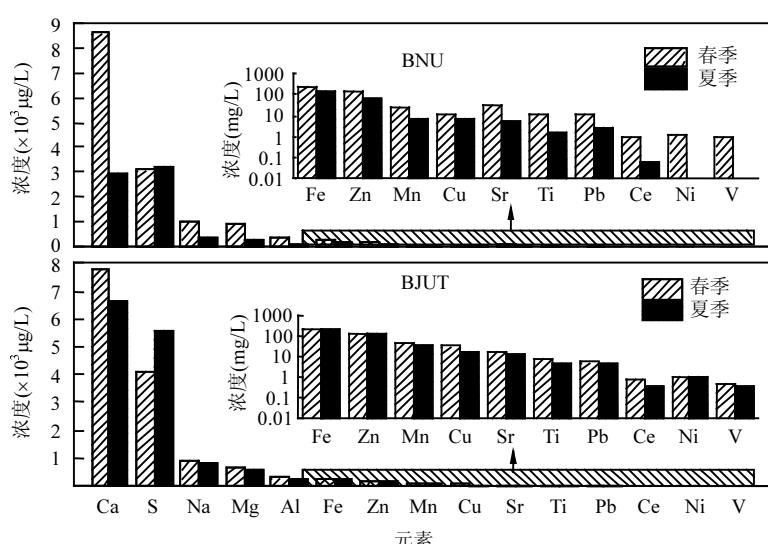


图 3 降水中元素季节变化特征

Fig.3 Seasonal variations of major elements in precipitation

降水中主要元素浓度季节变化如图 3 所示。在 2 个采样点,地壳元素 Al 和 Fe 含量较高,Ti、V、Ni 和 Ce 含量较低;污染元素 Ca 和 S 含量最高,Na 和 Mg 含量较高,Zn、Mn、Cu、Sr 和 Pb 含量较低。这些元素除 S 外,均表现为春季大于夏季。这可能一方面春季多风且风速较夏季大,易造成大气颗粒物中地壳元素浓度偏高而直接影响降水组分,另一方面夏季雨量较大,对大气颗粒物冲刷程度增大的同时也对降水中元素浓度起到了稀释作用^[14],进而使降水中地壳元素和污染元

素浓度偏低。值的注意的是,由于降水中 Ca^{2+} 是主要的碱性物质之一,能够有效中和降水中的酸性物质^[15],因此,春季降水中较高浓度的 Ca 元素是使 pH 值较夏季偏高的重要因素。污染元素 S 则表现为夏季大于春季,夏季高温、高湿易于二次硫酸盐的生成是导致颗粒物中 S 元素偏高的主要原因,大气颗粒物中 S 元素浓度变化会直接影响到降水中浓度水平。

为了比较两个不同采样点大气降水化学组分的空间差异,使用自动归一化指数-发散系数

(CD)对相同场次降水中化学组分进行分析.CD计算公式如下^[16]:

$$CD_{jk} = \sqrt{\frac{1}{p} \sum_{i=1}^p \left(\frac{x_{ij} - x_{ik}}{x_{ij} + x_{ik}} \right)^2} \quad (2)$$

式中: j,k 表示不同的采样点; i 表示化学成分的种类; x_{ij}, x_{ik} 表示不同采样点化学成分 i 在某个时段内的平均浓度值 $\mu\text{g/L}$.CD 值越接近于 0,表明发散系数越小,两个不同采样点化学组分的空间变化越小;越接近于 1,则空间差异越明显.本文中 $p=15$, 分别为 Na、Mg、Al、S、Ca、Ti、Mn、Fe、V、Ni、Cu、Zn、Sr、Ce 和 Pb.

表 1 降水中元素空间变化特征

Table 1 Spatial variations of major elements in precipitation

| 元素 | 南城($\mu\text{g/L}$) | 北城($\mu\text{g/L}$) | 南城/北城 |
|----|-----------------------|-----------------------|-------|
| Ni | 2.47 | 0.25 | 9.88 |
| Cu | 21.65 | 7.86 | 2.75 |
| Al | 277.53 | 153.67 | 1.81 |
| S | 5893.00 | 3320.15 | 1.77 |
| Zn | 138.41 | 79.86 | 1.73 |
| Na | 821.93 | 522.88 | 1.57 |
| V | 0.37 | 0.24 | 1.53 |
| Ca | 6965.28 | 4626.87 | 1.51 |
| Mn | 36.43 | 24.28 | 1.50 |
| Mg | 588.79 | 423.80 | 1.39 |
| Ti | 5.50 | 4.23 | 1.30 |
| Fe | 210.44 | 164.29 | 1.28 |
| Sr | 14.92 | 12.74 | 1.17 |
| Ce | 0.55 | 0.49 | 1.12 |
| Pb | 4.96 | 7.26 | 0.68 |

结果显示,两个采样点春、夏季降水化学组分离散系数分别为 0.32 和 0.46,表明两个城区采样点降水化学组分存在一定的差异,且南城普遍高于北城,如表 1 所示,除 Pb 元素外,其他元素在南城降水中的浓度均高于北城,说明南城大气污染略高于北城.这与赵晴等^[17]、刘杰等^[18]的研究结果相一致.这可能与北京市南、北城区功能定位以及周边区域的影响有很大关系.在北京,北城区主要集中了各类学校、科研机构以及高新技术园区,对大气污染影响相对较小,而南城区实体工业企业分布较多,如制药厂、污水处理厂、焦化

厂、经济开发区等,对大气环境影响较大.此外,位于北京周边东南、南、西南部较发达城市,如天津、唐山、保定、石家庄等,其污染物的输入对北京市大气污染影响较大^[19],容易加剧北京市南部城区的大气污染,造成南城大气污染高于北城的特点.

2.3 来源解析

本研究去除降水中检出率较低的元素,选择 15 种主要无机元素,采用因子分析法,对其进行来源解析,解析结果见表 2.

表 2 2015 年春夏季北京市降水中化学组分因子分析结果

Table 2 Factor loading matrix for chemical species of precipitation in Beijing in spring and summer of 2015

| 项目 | 因子 | | | |
|------------|--------------|--------------|--------------|--------------|
| | 1 | 2 | 3 | 4 |
| Na | 0.250 | 0.630 | 0.636 | -0.100 |
| Mg | 0.407 | 0.827 | 0.154 | 0.181 |
| Al | 0.785 | 0.282 | 0.183 | 0.384 |
| S | -0.051 | 0.866 | -0.055 | -0.253 |
| Ca | 0.543 | 0.760 | 0.214 | 0.207 |
| Ti | 0.921 | 0.259 | 0.118 | 0.085 |
| V | 0.926 | 0.246 | -0.060 | 0.140 |
| Mn | 0.419 | 0.214 | 0.200 | -0.185 |
| Fe | 0.932 | 0.158 | 0.170 | -0.109 |
| Ni | 0.032 | -0.100 | 0.827 | 0.052 |
| Cu | 0.127 | 0.098 | 0.018 | 0.937 |
| Zn | 0.654 | 0.136 | 0.396 | 0.152 |
| Sr | 0.487 | 0.804 | 0.187 | 0.148 |
| Ce | 0.826 | 0.439 | 0.222 | 0.040 |
| Pb | 0.088 | 0.889 | 0.064 | 0.169 |
| 方差贡献率(%) | 35.854 | 26.337 | 13.010 | 7.847 |
| 累积方差贡献率(%) | 36.954 | 62.191 | 75.201 | 83.084 |

注:黑体为因子荷载大于 0.75 的因子.

共提取出 4 个因子,累积解释了总变量的 83.08%.因子 1 中 Al、Ti、Fe、V 和 Ce 元素荷载值较高,解释了总变量的 35.85%,由于 Al、Ti 和 Fe 元素均是地面扬尘的特征标示元素^[20],且均未发生富集现象,因此因子 1 与地面扬尘有关.因子 2 中 Mg、S、Ca、Sr 和 Pb 元素荷载值较高,共解释总变量的 26.34%,其中 S、Sr 和 Pb 元素是燃煤源的特征标示元素^[10,21],Ca 和 Mg 元素是建筑尘的标示元素^[22-23],因此因子 2 与燃煤源和建筑

尘的混合源有关。因子3共解释总变量的13.01%，其中Ni元素表现为较高的荷载值，且为机动车排放源的标示元素^[22]，因此该因子可能与机动车排放源有关^[22-24]。因子4中Cu元素的荷载值较高，解释总变量的12.84%，由于Cu主要来自工业排放的废气^[23-24]，因此因子4可能与工业排放源有关。综上所述，北京市春、夏季降水中元素主要来源于地面扬尘、建筑尘、燃煤、机动车排放和工业排放，这与王琴等^[25]对北京市大气污染物来源解析的研究结果相一致。

2.4 降水对大气颗粒物的影响

降水作为大气污染物重要的汇，对大气颗粒物具有较好的去除效果^[2,26-28]。如图4所示，北京市南城大气降水对离采样点最近的国控点天坛大气颗粒物PM_{2.5}和PM₁₀的清除效果显示，降水对大气细颗粒物PM_{2.5}的去除率为-361.1%~91.6%，对大气粗颗粒物PM₁₀的去除率为-270.0%~83.6%。其中降水强度以及降水前大气颗粒物浓度是影响去除效果的重要因素。例如5月28日降水量较小为2.3mm，降水历时较长，约

6h，降水强度较低，降水前一天PM_{2.5}平均浓度为81.0μg/m³，降水后PM_{2.5}平均浓度为61.3μg/m³，去除率为24.3%；6月10日降水量为5mm，历时1h40min，降水强度较高，降水前一天PM_{2.5}平均浓度为60.0μg/m³，降水后PM_{2.5}平均浓度为27.0μg/m³，去除率为55.0%；6月29日降水量较大为5.7mm，历时约2h，降水强度略高于6月10日的降水，降水前一天PM_{2.5}平均浓度为124.0μg/m³，降水后PM_{2.5}平均浓度为13.0μg/m³，去除率达89.5%。同样，大气降水对PM₁₀去除效果的影响因素也是如此。可见降水对大气颗粒物的去除率不仅受降水强度的影响，还受降水前空气质量的影响。这是因为降水期间，大气边界层较低，降水强度较小时，大气降水对污染物的冲刷作用较弱，容易造成污染物的累积，当降水的持续时间较长，且降水的冲刷作用小于污染物的累积过程时，极易出现污染物浓度反而升高的趋势。降水强度较大时，大气降水对大气污染物的冲刷作用较强，能够有效地去除大气污染物，且降水前污染物浓度越高，去除效率也越高。

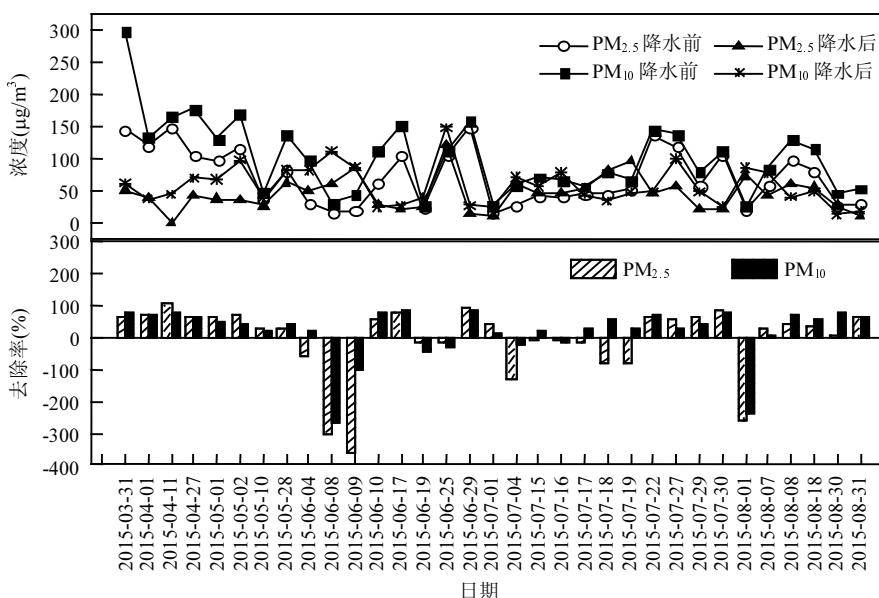


图4 大气降水对PM_{2.5}/PM₁₀的影响

Fig.4 The influence of precipitation on PM_{2.5}/PM₁₀

同理，大气降水对大气颗粒物化学组分也具有同样的影响。通过北城大气降水中化学组分分

别与降水前一天大气颗粒物PM_{2.5}和PM₁₀中相应化学组分的相关性分析（如图5所示），大气降

水中化学组分与 $PM_{2.5}$ 中相应组分的相关性表现为: $Cu > Zn/Mn > Na > Ti > Mg > Fe > Al > Pb > Ca$, 其中相关系数大于 0.6 的为 Cu、Zn、Mn 和 Na 元素; 而与 PM_{10} 相应组分的相关性表现为: $Al/Ca > Mg > Fe > Ti > Mn > Na > Cu > Zn > Pb$, 其中相关系数大于 0.6 的为 Ca、Al 和 Mg 元素, 说明大气降水对细颗粒物 $PM_{2.5}$ 中污染元素 Cu、Zn、Mn 和 Na 清除效果显著, 对粗颗粒物 PM_{10} 中地壳元素 Al 和建筑尘相关元素 Mg 和 Ca 去除效果明显, 这可能与 Cu、Zn、Mn 和 Na 等污染元素主要富集于细颗粒物中, 而 Al、Mg 和 Ca 等地壳尘和建筑尘相关元素主要富集于粗颗粒物中有关^[29-30].

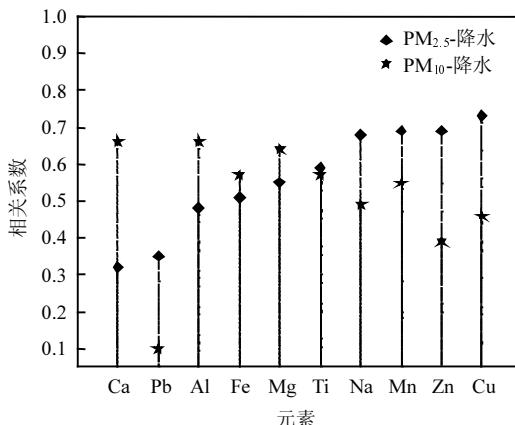


图 5 大气降水中化学组分与 $PM_{2.5}/PM_{10}$ 中相应组分的相关性

Fig.5 The correlation of the chemical components in precipitation with those in $PM_{2.5}/PM_{10}$

3 结论

3.1 北京市全年降水主要集中于春夏季, 而春夏季降水又主要集中于夏季, 且南、北城夏季降水分别占春夏季总降水量的 80% 和 77%.

3.2 春夏季大气降水 pH 在南、北城雨量加权平均值分别为 6.26 和 6.08, 均表现为春季高于夏季.

3.3 春夏季大气降水中地壳元素 Al 和 Fe 含量较高, Ti、V 和 Ce 含量较低. 污染元素 Ca 和 S 含量最高, Na 和 Mg 含量较高, Zn、Mn、Cu、Sr、Pb 和 Ni 含量较低, 其中 Na、Mg、Sr 和 Ni 元素

呈现轻度富集, Ca、Mn 和 Pb 元素呈现中度富集; Cu、Zn 和 S 元素呈现严重富集特征.

3.4 春夏季大气降水中化学组分具有明显的时空变化特征, 二次污染元素 S 表现为夏季高于春季, 而其它元素均表现为春季大于夏季. 南北城降水中主要元素组分存在明显的差异, 除 Pb 元素外, 均表现为南城高于北城.

3.5 春夏季降水中化学组分主要来源于地面扬尘、建筑扬尘、燃煤、机动车排放和工业排放等.

3.6 大气降水对大气颗粒物的去除率受降水强度以及降水前一天空气质量的影响较大, 且对细颗粒物 $PM_{2.5}$ 中污染元素 Cu、Zn、Mn 和 Na 清除效果显著, 对粗颗粒物 PM_{10} 中地壳元素 Al 和建筑尘相关元素 Mg 和 Ca 去除效果明显.

参考文献:

- [1] Tang A, Zhuang G, Wang Y, et al. The chemistry of precipitation and its relation to aerosol in Beijing [J]. Atmospheric Environment, 2005, 39(19):3397-3406.
- [2] 胡敏, 张静, 吴志军. 北京降水化学组成特征及其对大气颗粒物的去除作用 [J]. 中国科学(B 辑化学), 2005, 35(2):169-176.
- [3] 金蕾, 徐谦, 林安国, 等. 北京市近二十年(1987~2004)湿沉降特征变化趋势分析 [J]. 环境科学学报, 2006, 26(7):1195-1202.
- [4] Yang F, Tan J, Shi Z B, et al. Five-year record of atmospheric precipitation chemistry in urban Beijing, China [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2012, 12(4):2025-2035.
- [5] 李金香, 李峰. 北京市一次沙尘过程中降水化学组分的监测分析 [J]. 中国环境科学, 2012, 32(12):2149-2154.
- [6] 陈圆圆, 田贺忠, 杨懂艳, 等. 1997~2011 年北京市空气中酸性物质与降水组分变化趋势的相关性分析 [J]. 环境科学, 2013, 34(5):1958-1963.
- [7] 高晓栋, 陈锡云, 丁肇慰, 等. 基于降水化学的北京城乡大气污染物差异探析 [J]. 环境科学学报, 2015, 35(12):4033-4042.
- [8] GB/T 13580.2-1992 大气降水样品的采集与保存 [S].
- [9] 张霖琳, 王超, 刀谞, 等. 京津冀地区城市环境空气颗粒物及其元素特征分析 [J]. 中国环境科学, 2014, 34(12):2993-3000.
- [10] 洪也, 马雁军, 刘宁微. 沈阳冬季大气颗粒物化学成分及其来源的分析 [J]. 环境科学与技术, 2010, 33(6E):292-296.
- [11] 张晓玲, 赵秀娟, 蒲维维, 等. 北京城区和远郊区大气细颗粒 $PM_{2.5}$ 元素特征对比分析 [J]. 中国粉体技术, 2010, 16(1):28-34.
- [12] 黎彤, 袁怀雨, 吴胜昔, 等. 中国大陆壳体的区域元素丰度 [J]. 大地构造与成矿学, 1999, 23(2):2-8.
- [13] 张秀芝, 鲍征宇, 唐俊红. 富集因子在环境地球化学重金属污染评价中的应用 [J]. 地质科技情报, 2006, 25(1):65-72.

- [14] 彭玉龙,王永敏,覃蔡清,等.重庆主城区降水中重金属的分布特征及其沉降量 [J]. 环境科学, 2014,35(7):2492–2496.
- [15] Kyoung Lee B, Hee Hong S, Soo Lee D. Chemical composition of precipitation and wet deposition of major ions on the Korean peninsula [J]. Atmospheric Environment, 2000,34(4):563–575.
- [16] Zhang Z, Friedlander S K. A Comparative Study of Chemical Databases for Fine Particle Chinese Aerosols [J]. Environmental Science & Technology, 2000,34(22):4687–4694.
- [17] 赵 晴,贺克斌,马永亮,等.北京及周边地区夏季大气颗粒物区域污染特征 [J]. 环境科学, 2009,30(7):1873–1880.
- [18] 刘 杰,杨 鹏,吕文生.北京大气颗粒物污染特征及空间分布插值分析 [J]. 北京科技大学学报, 2014,36(9):1269–1279.
- [19] 丁国安,陈尊裕,高志球,等.北京城区低层大气 PM₁₀ 和 PM_{2.5} 垂直结构及其动力特征 [J]. 中国科学(D 辑:地球科学), 2005, 35(增刊 I):31–44.
- [20] 房春生,陈分定,陈克华,等.龙岩市大气颗粒物来源统计分析 [J]. 中国环境科学, 2011,31(2):214–219.
- [21] 仇 帅,张爱滨,刘 明.青岛大气总悬浮颗粒物中微量元素的含量特征及其来源解析 [J]. 环境科学学报, 2015,35(6):1667–1675.
- [22] 宋 宇,唐孝炎,方 晨,等.北京市大气细粒子的来源分析 [J]. 环境科学, 2002,23(6):11–16.
- [23] 邹本东,徐子优,华 蕾,等.因子分析法解析北京市大气颗粒物 PM₁₀ 的来源 [J]. 中国环境监测, 2007,23(2):79–85.
- [24] 杨卫芬,银 燕,魏玉香,等.霾天气下南京 PM_{2.5} 中金属元素污染特征及来源分析 [J]. 中国环境科学, 2010,30(1):12–17.
- [25] 王 琴,张大伟,刘保献,等.基于 PMF 模型的北京市 PM_{2.5} 来源的时空分布特征 [J]. 中国环境科学, 2015,35(10):2917–2924.
- [26] 韩 燕,徐 虹,毕晓辉,等.降水对颗粒物的冲刷作用及其对雨水化学的影响 [J]. 中国环境科学, 2013,33(2):193–200.
- [27] 杨 雪,张 群.南京市大气降水对空气质量影响研究 [J]. 科技视界, 2014(30):278–279.
- [28] 王 瑛,朱 彬,康汉青,等.气溶胶云下清除理论及观测研究 [J]. 中国科学院大学学报, 2014,31(3):306–313.
- [29] 谢华林,张 萍,贺 惠,等.大气颗粒物中重金属元素在不同粒径上的形态分布 [J]. 环境工程, 2002,20(6):55–57.
- [30] 方凤满.中国大气颗粒物中金属元素环境地球化学行为研究 [J]. 生态环境学报, 2010,19(4):979–984.

作者简介: 韩力慧(1964-),女,山西太原人,副教授,博士,主要研究方向为大气污染与防治.发表论文 20 余篇.

《中国环境科学》喜获 中国科协精品科技期刊 TOP50 项目资助

《中国环境科学》2015 年 6 月获得中国科协精品科技期刊 TOP50 项目资助.中国科协精品科技期刊 TOP50 项目按照“以奖促建”的原则,通过以奖代补方式,遴选支持一批高端精品科技期刊,形成学科导航期刊集群.推动其加快成长为促进科技知识生产传播的重要渠道、促进学术交流的重要平台和促进学术生态建设的苗圃花坛,为我国科技期刊的发展发挥示范引领作用.经过专家评审和公示,最终确定入选的期刊均为学术影响力强、引证指标好、在学术交流与学科建设中起到重要作用、服务科技工作者成效显著、学术出版道德规范的优秀中文科技期刊.