

栾天, 郭学良, 张天航, 等. 不同降水强度对  $\text{PM}_{2.5}$  的清除作用及影响因素. 应用气象学报, 2019, 30(3): 279-291.

DOI: 10.11898/1001-7313.20190303

## 不同降水强度对 $\text{PM}_{2.5}$ 的清除作用及影响因素

栾天<sup>1)2)</sup> 郭学良<sup>1)2)3)\*</sup> 张天航<sup>4)</sup> 郭丽君<sup>1)2)</sup>

<sup>1)</sup> (中国气象科学研究院灾害天气国家重点实验室, 北京 100081)

<sup>2)</sup> (中国气象科学研究院云雾物理环境重点实验室, 北京 100081)

<sup>3)</sup> (南京信息工程大学气象灾害预报预警评估协同创新中心, 南京 210044)

<sup>4)</sup> (国家气象中心, 北京 100081)

### 摘 要

云和降水过程是大气污染物的重要清除途径,但由于降水过程和大气污染颗粒物本身的复杂性,目前降水过程对大气污染物的清除机制及影响因素有待深入研究。该文利用2014年3月—2016年7月在北京地区连续观测的  $\text{PM}_{2.5}$  和降水数据,研究了不同降水强度对  $\text{PM}_{2.5}$  的清除率,以及雨滴谱、风速和降水持续时间对  $\text{PM}_{2.5}$  清除率的影响。研究表明:降水强度越大,对  $\text{PM}_{2.5}$  清除效率越高。小雨、中雨和大雨对  $\text{PM}_{2.5}$  清除率平均值分别为5.1%, 38.5%和50.6%。小雨不但对  $\text{PM}_{2.5}$  的清除率最低,而且对  $\text{PM}_{2.5}$  的清除效果也存在很大差异,约50%的小雨个例中  $\text{PM}_{2.5}$  质量浓度出现减小情况,而另外50%的小雨个例中,  $\text{PM}_{2.5}$  质量浓度出现增加情况。在持续时间长或地面风速增大的情况下,小雨也表现出较高的清除率。在中雨和大雨情况下,  $\text{PM}_{2.5}$  质量浓度均出现明显减小情况。但降水持续时间和风速对中雨和大雨的清除率影响较小,这是由于中雨和大雨一般在较短时间内即可清除大部分  $\text{PM}_{2.5}$ , 因此,对降水的持续时间和风速大小不敏感。

**关键词:**  $\text{PM}_{2.5}$ ; 降水清除; 降水强度; 影响因素

### 引 言

大气中的气体和气溶胶粒子被大气水成物(云滴、雾滴、雨、雪)清除而最终沉降到地面的过程统称为大气湿清除过程,可分为云内清除过程和云下清除过程<sup>[1]</sup>。云内清除过程是气溶胶粒子作为云凝结核、冰核或者被云雨滴粒子捕获在云内清除的过程<sup>[2-4]</sup>;而云下清除过程是指气溶胶粒子在云下被降落的各种降水粒子捕获而清除的过程<sup>[5-8]</sup>。从空气质量和人们健康角度考虑,云下清除过程受到社会更广泛的关注,因为云下清除过程能够将污染大气中的有害成分移除至地面<sup>[9]</sup>,同时也是酸雨产生的主要过程<sup>[10]</sup>。

通常用清除系数描述降水对云下气溶胶的清除

率。降水清除系数定义为单位时间内雨滴捕获的气溶胶粒子浓度占初始浓度的比例,该系数既可通过理论计算得出,也可以通过观测降水发生前后大气中气溶胶粒子浓度的变化计算得出<sup>[11-17]</sup>。影响清除系数的因子很多,包括雨滴尺度、浓度和末速度,还包括雨滴-气溶胶粒子碰并系数。雨滴-气溶胶粒子碰并系数除受雨滴和气溶胶粒子谱分布影响外,还与气溶胶粒子在大气中所处的运动状态(布朗运动、湍流运动和惯性运动等)有关,因此,是一个理论上计算比较复杂的物理量<sup>[2]</sup>。对处于爱根核模态(直径小于  $0.1\ \mu\text{m}$ )、基本满足布朗运动的气溶胶粒子,以及处于粗模态(直径大于  $2\ \mu\text{m}$ )、基本满足惯性碰并的气溶胶粒子,可以获得较好的近似碰并系数,但对处于积聚模态(粒子直径范围  $0.1\sim 2\ \mu\text{m}$ )的气溶胶粒子的碰并系数目前还没有一个较好的计算公式。

2018-11-27 收到, 2019-03-18 收到再改稿。

资助项目: 公益性行业(气象)科研专项(GYHY200806001, GYHY201406001), 国家自然科学基金项目(41605111), 中国气象科学研究院基本科研业务费专项(2016Z004)

\* 通信作者, 邮箱: guoxl@mail.iap.ac.cn

当气溶胶粒子直径范围为  $0.01 \sim 3 \mu\text{m}$  时,理论与观测方法获得的清除系数存在 1~2 个数量级上的差别。当气溶胶粒子直径大于  $3 \mu\text{m}$  时,二者吻合较好<sup>[18-19]</sup>。

尽管很多学者通过理论研究和室内实验计算雨滴-气溶胶粒子碰并系数,但仍然与外场观测值有差别,主要是对一些实际影响机制尚不清楚,没有在理论计算中考虑<sup>[11,20-22]</sup>。目前已发现的影响水滴碰并气溶胶粒子的主要机制有惯性碰撞、布朗扩散、拦截作用、带电清除、热泳和扩散电泳<sup>[20]</sup>。这些机制对碰并系数的影响与被碰并气溶胶粒子的粒径有关。对于粗模态气溶胶粒子(直径大于  $2 \mu\text{m}$ ),惯性碰撞起主导作用。对于爱根核模态气溶胶粒子(直径小于  $0.1 \mu\text{m}$ ),布朗扩散起主导作用。对于积聚模态的气溶胶粒子(粒子直径范围  $0.1 \sim 2 \mu\text{m}$ ),热泳和扩散电泳起主要作用,但碰并效率较低,存在一个所谓的 Greenfield 低值区<sup>[23]</sup>。积聚模态的气溶胶粒子,对于布朗运动粒径太大,而对于惯性碰撞和拦截碰撞粒径又太小,从而导致碰并效率较低。当水滴和被碰撞的气溶胶粒子带相反的电荷时,电清除会发挥重要作用<sup>[24-25]</sup>。Andronache<sup>[5]</sup> 研究发现,对于细粒子,小雨滴比大雨滴碰并效率更高;对于粗粒子,由于惯性碰撞作用,大小雨滴碰并效率差别不大。

外场观测试验是研究降水对气溶胶粒子清除过程的重要手段,是不断完善理论研究的基础。外场观测试验很难排除平流输送和湍流扩散等过程对气溶胶粒子浓度的影响<sup>[15]</sup>。Wang 等<sup>[19]</sup> 认为垂直方向的湍流扩散对气溶胶粒子的云下清除有重要贡献,考虑垂直湍流扩散后,理论计算更接近观测试验结果。一些外场观测试验研究结果表明:即使在较小的降水强度下(如  $1 \text{ mm} \cdot \text{h}^{-1}$ ),云下降水清除过程对爱根核模态和粗模态气溶胶粒子有很好的清除效果<sup>[2,11-12,26-27]</sup>。在大气气溶胶粒子浓度较高的情况下,降水清除效率更高<sup>[11]</sup>。Andronache<sup>[5]</sup> 指出降水清除系数与降水强度有关,降水强度越大,清除系数越大,在  $0.01 \sim 100 \text{ mm} \cdot \text{h}^{-1}$  降水强度范围内,清除系数大小存在 2 个数量级的差别。

近 20 年来,我国以高浓度细颗粒物为主要特征的雾、霾事件频发<sup>[28-30]</sup>,引起大气能见度降低<sup>[31]</sup>,并对气候变化产生影响<sup>[32]</sup>,还对人们健康造成威胁<sup>[33]</sup>。一些观测研究表明:降水可以明显清除大气中的颗粒物<sup>[7,34-35]</sup>,但对不同降水强度的清除效率

及其涉及的物理机制尚不清楚。姚克亚等<sup>[36]</sup> 曾理论计算了气溶胶粒子的降雨清除问题,认为粒子半径在  $0.1 \sim 1.0 \mu\text{m}$  范围内,碰并系数、雨滴谱分布均对清除系数影响很大。为了从外场试验定量研究这些关系,利用中国气象科学研究院 2014 年 3 月—2016 年 7 月在北京城区观测的降水和  $\text{PM}_{2.5}$  质量浓度观测数据,定量分析了不同降水强度对大气中细颗粒物的清除作用,并探讨了雨滴谱分布、降水持续时间和风速对云下清除作用的影响,以进一步揭示降水对大气污染物的清除机制。

## 1 观测试验与数据处理

### 1.1 观测试验

观测试验站点设在中国气象局(CMA,  $39^{\circ}57' \text{N}$ ,  $116^{\circ}20' \text{E}$ ) 院内一座 20 m 高的楼顶之上,该站毗邻北京西三环路,周围没有大的污染源,主要为居民区,详情见文献<sup>[37]</sup>。

观测试验仪器为美国产 TEOM 1405-DF 颗粒物仪(Tapered Element Oscillating Microbalance, Thermo Fisher Scientific),是用于测量颗粒物质量浓度的实时测量仪器。该仪器由两部分组成:带有虚拟冲击器的采样组件和带有滤膜动态测量系统(FDMS)的探测单元。配置 FDMS 系统后仪器能准确测量在测量过程中挥发掉的颗粒物质量,使最终报告数据得到有效补偿,更接近真实值。仪器计算 1 h 基础和参考质量浓度的滑动平均值,且 6 min 更新 1 次。仪器通过基础质量浓度减去参考质量浓度计算颗粒物质量浓度。仪器量程为  $0 \sim 1 \times 10^6 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ ,分辨率为  $0.1 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ ,精度为  $\pm 2.0 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$  (1 h 平均),质量测量准确度为  $\pm 0.75\%$ 。当仪器上显示滤膜加载率为 100% 时,更换滤膜。该仪器只能测量气溶胶粒子的质量浓度,无法测量气溶胶粒子各尺度的数浓度,所以本文研究的是降水对气溶胶粒子质量浓度的影响。

激光雨滴谱仪(德国)是利用降水粒子对激光的衰减测量粒子尺度和下落末速度,已应用到很多研究中<sup>[38-39]</sup>。激光源发射波长为 780 nm 的平行光束,探测面积为  $45.6 \text{ cm}^2$ ,探测厚度为  $0.75 \text{ mm}$ 。当降水粒子通过平行光束区时接收信号被衰减,由信号衰减的幅度和持续时间分别计算降水粒子的直径和下落末速度。降水强度分辨率为  $0.001 \text{ mm} \cdot \text{h}^{-1}$ 。降水粒子直径测量范围为  $0.125 \sim 8 \text{ mm}$ ,共

分为22档。降水粒子下落末速度测量范围为0~10 m·s<sup>-1</sup>,共分为20档。仪器1 min记录1次数据。利用降水强度(分钟)可求得小时降水量,本文中小时降水量小于0.1 mm的忽略不计。地面气象要素观测数据来自于海淀自动气象站(39°58'N, 116°17'E)。

## 1.2 数据处理

根据 Olszowski<sup>[16]</sup> 以及 Feng 等<sup>[34]</sup> 的研究,在某一降水时段,降水对PM<sub>2.5</sub>质量浓度的清除率计算如式(1)所示:

$$\Delta C = \frac{C_b - C_p}{C_b} \times 100\% \quad (1)$$

式(1)中, $\Delta C$ 为降水对PM<sub>2.5</sub>质量浓度的清除率, $C_b$ (单位: $\mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ )为降水前3 h的平均PM<sub>2.5</sub>质量浓度, $C_p$ (单位: $\mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ )为降水期间的平均PM<sub>2.5</sub>质量浓度。 $\Delta C$ 为正,代表降水后PM<sub>2.5</sub>质量浓度降低; $\Delta C$ 为负,代表降水后PM<sub>2.5</sub>质量浓度升高。

根据 Chen 等<sup>[40]</sup> 的研究,当降水停歇间隔超过1 h,即视为2次降水过程。根据美国气象学会的规定<sup>[41]</sup>,按照小时降水量将降水划分为3个等级:小雨(不大于2.5 mm),中雨(2.6~7.6 mm)和大雨(大于7.6 mm)。为了研究不同降水强度对污染气

溶胶的清除作用,选取降水前PM<sub>2.5</sub>质量浓度大于 $35 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ 的降水个例进行研究。为了避免气象因素的强烈影响,剔除降水过程中风速大于4 m·s<sup>-1</sup>的降水个例。同时剔除降水前和降水过程中任何相邻时刻温度降低6℃以上的降水过程,避免强冷锋系统过境对PM<sub>2.5</sub>质量浓度的影响。2014年3月—2016年7月共选取94次小雨过程、14次中雨过程和9次大雨过程,其中小雨占总降水个例的80%。

## 2 结果与讨论

### 2.1 不同降水强度对PM<sub>2.5</sub>的清除作用

将整点时刻的PM<sub>2.5</sub>质量浓度数据与求得小时降水量数据一一对应。图1为观测期间北京降水过程中的小时降水量与PM<sub>2.5</sub>质量浓度之间的对应关系。由图1可见,小时降水量在0.1~80 mm范围内,大多数降水小时降水量小于10 mm,很少有小时降水量大于40 mm的情况发生。总的来说,随着降水强度的增大,PM<sub>2.5</sub>质量浓度呈减小趋势。小时降水量较低时(小于1 mm),往往对应着较高的PM<sub>2.5</sub>质量浓度。

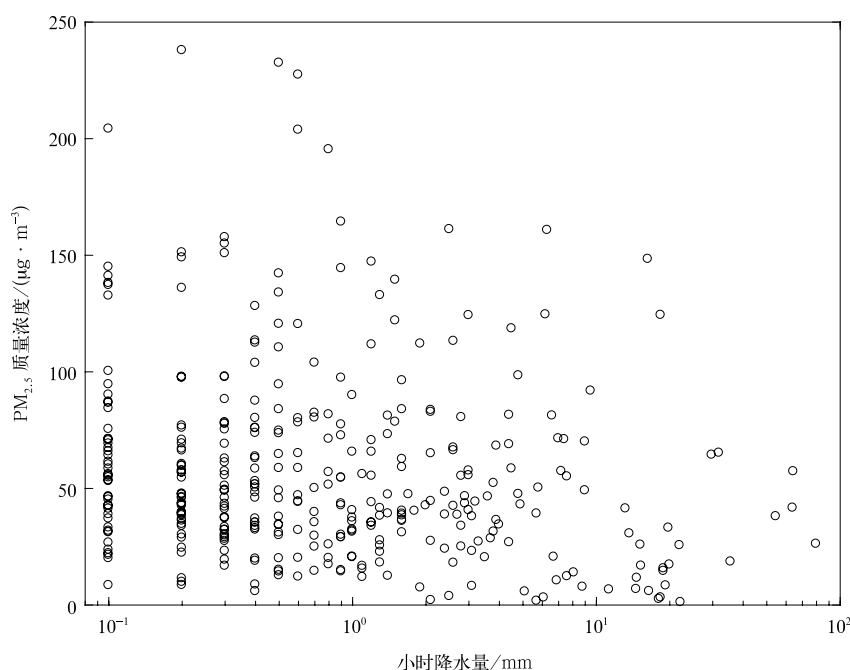


图1 2014年3月—2016年7月北京降水过程中小时降水量与PM<sub>2.5</sub>质量浓度之间的对应关系

Fig. 1 Relationship between PM<sub>2.5</sub> mass concentration and hourly rainfall amount in Beijing from Mar 2014 to Jul 2016

观测期间北京不同降水强度发生频次与  $\text{PM}_{2.5}$  清除率的关系如图2所示。清除率( $\Delta C$ )为正,代表降水后  $\text{PM}_{2.5}$  质量浓度减小;而  $\Delta C$  为负,代表降水后  $\text{PM}_{2.5}$  质量浓度增加。在所有小雨个例中, $\text{PM}_{2.5}$  清除率有正值也有负值,正值和负值各占50%,并且清除率集中在 $\pm 20\%$ 内,说明小雨对  $\text{PM}_{2.5}$  的清除效率不高。在降水后  $\text{PM}_{2.5}$  增加的小雨个例中,降水后  $\text{PM}_{2.5}$  质量浓度的增加值均在  $25 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$  以内,除了1个个例降水后  $\text{PM}_{2.5}$  质量浓度增加了

$48 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ ,说明其他因素导致了地面  $\text{PM}_{2.5}$  质量浓度的累积,其作用抵消了小雨弱的清除作用;对于一些清除率绝对值较大的个例,主要是由于降水前  $\text{PM}_{2.5}$  质量浓度相对较低。对于中雨和大雨来讲,尽管中雨和大雨降水个例不多,可以看到,大部分个例降水后  $\text{PM}_{2.5}$  质量浓度减小,且清除率也较大。清除率大于40%的降水个例在小雨、中雨和大雨中分别占10%,50%和78%。

表1统计了2014—2016年观测期间北京不同

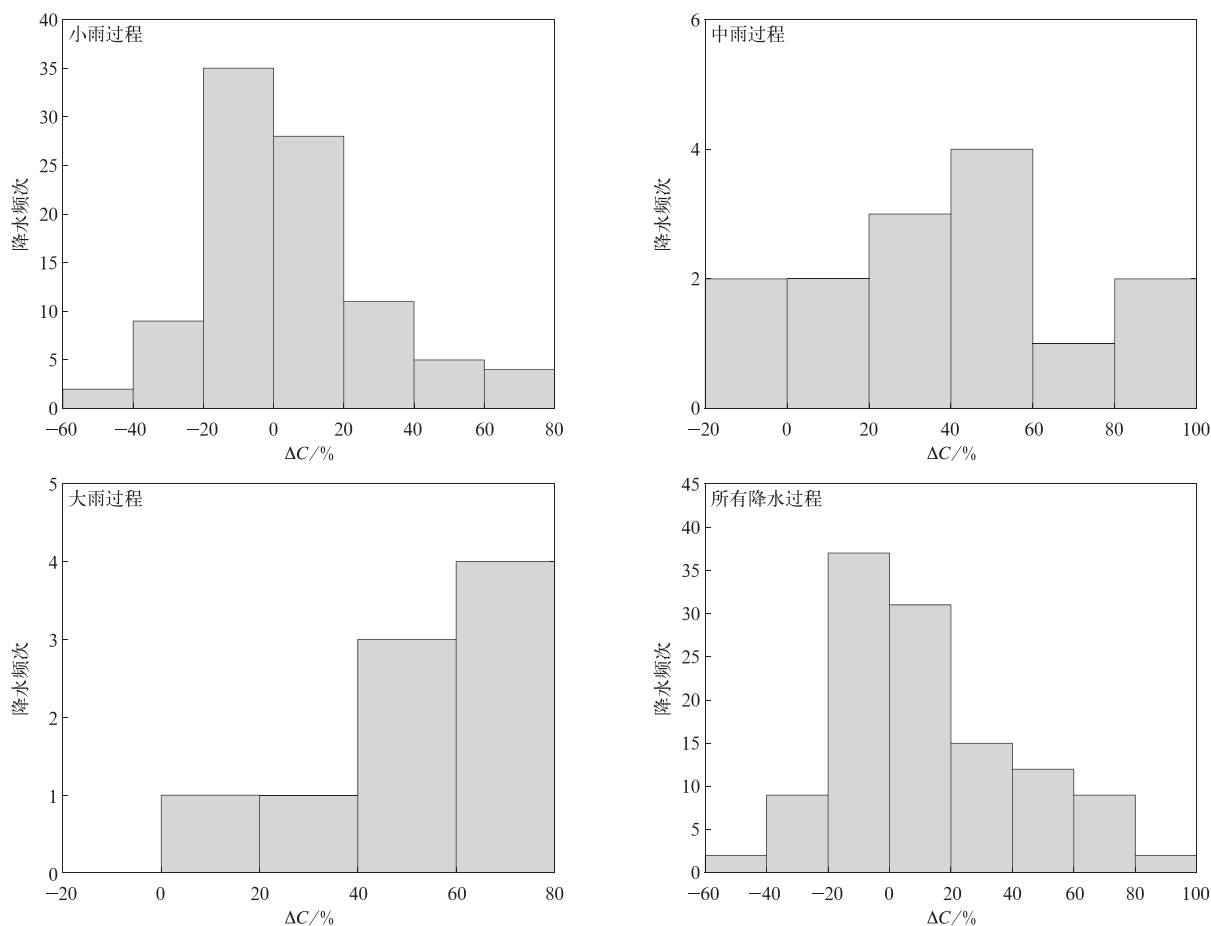


图2 2014年3月—2016年7月北京降水频次与  $\text{PM}_{2.5}$  清除率的关系

Fig. 2 Relationship between rain case numbers and  $\text{PM}_{2.5}$  scavenging rate for different rain intensities in Beijing from Mar 2014 to Jul 2016

强度降水对  $\text{PM}_{2.5}$  的清除率。小雨、中雨和大雨的平均  $\text{PM}_{2.5}$  清除率分别为5.1%,38.5%和50.6%,说明降水强度越大,对大气中  $\text{PM}_{2.5}$  质量浓度的清除效率越高。理论计算表明:由于对  $\text{PM}_{2.5}$  质量浓度贡献大的气溶胶粒子基本处于积聚模态,而水滴对处于积聚模态的气溶胶粒子的碰并效率出现所谓

的 Greenfield 低值区。但本研究表明:中雨以上强度的降水对这个区域的气溶胶粒子有明显的清除作用,降水强度越大,平均清除效率越大,最大清除效率可以达到80%以上,这与一些理论计算结果比较一致<sup>[5,18]</sup>,但也与一些理论结果不一致<sup>[12]</sup>。

将降水后  $\text{PM}_{2.5}$  质量浓度减小的降水个例按照

表 1 2014 年 3 月—2016 年 7 月北京不同降水强度的 PM<sub>2.5</sub> 清除率  
Table 1 PM<sub>2.5</sub> scavenging rates for different rain intensities in Beijing  
from Mar 2014 to Jul 2016

| 类别                         | 降水强度 | 个例数量 | PM <sub>2.5</sub> 清除率/% |      |       |
|----------------------------|------|------|-------------------------|------|-------|
|                            |      |      | 平均值                     | 最大值  | 最小值   |
| PM <sub>2.5</sub> 质量浓度减小个例 | 小雨   | 48   | 23.4                    | 78.8 | 0.4   |
|                            | 中雨   | 12   | 46.0                    | 83.9 | 5.6   |
|                            | 大雨   | 9    | 50.6                    | 70.9 | 10.5  |
| PM <sub>2.5</sub> 质量浓度增加个例 | 小雨   | 46   | -14.0                   | -0.2 | -50.9 |
|                            | 中雨   | 2    | -6.7                    | -2.9 | -10.4 |
| 总个例                        | 小雨   | 94   | 5.1                     | 78.8 | -50.9 |
|                            | 中雨   | 14   | 38.5                    | 83.9 | -10.4 |
|                            | 大雨   | 9    | 50.6                    | 70.9 | 10.5  |

小时降水量进行更精细的划分,不同小时降水量对应的 PM<sub>2.5</sub> 清除率如图 3 所示。由图 3 可以看到,总体上随着降水强度的增大,PM<sub>2.5</sub> 清除率呈上升趋势。当小时降水量大于 2.5 mm,即在中雨和大雨

情况下,PM<sub>2.5</sub> 清除率在 40% 以上。在中雨和大雨情况下,随着降水强度的增大,PM<sub>2.5</sub> 清除率呈缓慢增加趋势。

通过以上分析可知,中雨和大雨对大气中的

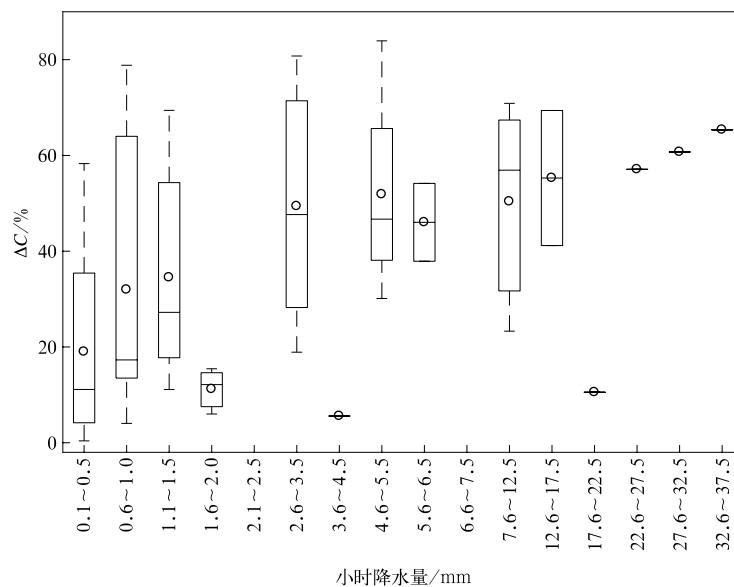


图 3 2014 年 3 月—2016 年 7 月北京降水后 PM<sub>2.5</sub> 质量浓度减小  
个例中不同小时降水量对应的 PM<sub>2.5</sub> 清除率  
(黑线代表中值,圆圈代表平均值,矩形框的上下边分别代表  
上下四分位数,上下触须线分别代表最大值和最小值)

Fig. 3 Relationship between PM<sub>2.5</sub> scavenging rate and hourly rainfall amount  
in rain events with PM<sub>2.5</sub> mass concentration decreased after  
the rain in Beijing from Mar 2014 to Jul 2016  
(black lines in the box indicate median values, circles indicate  
average values, box boundaries indicate the first and third quartiles,  
lines above and under the box indicate the maximum and minimum values)

PM<sub>2.5</sub> 清除效率较高,降水后大约可清除 30%~50% 的 PM<sub>2.5</sub> 质量浓度。对于小雨,降水对 PM<sub>2.5</sub> 的

清除效果存在很大差异,50% 的个例对 PM<sub>2.5</sub> 有清除作用,另外 50% 的个例出现 PM<sub>2.5</sub> 质量浓度升高

情况,清除率最大值有时可高达79%。在中雨和大雨两个例中, $PM_{2.5}$ 清除率的最大值分别为84%和71%,也出现少量的清除率为负值的情况。为了分析这种现象出现的原因,进一步研究了雨滴谱、降水持续时间和风速对 $PM_{2.5}$ 清除率的影响。

## 2.2 雨滴谱分布对 $PM_{2.5}$ 清除率的影响

研究表明:雨滴大小对气溶胶粒子的清除系数具有重要影响,对于细粒子,小雨滴比大雨滴碰并效率更高<sup>[5,17]</sup>。姚克亚等<sup>[36]</sup>采用不同雨滴谱分布的计算结果表明:不同雨滴谱分布对气溶胶粒子总质量的清除系数影响很大。图4为小雨、中雨和大雨的平均雨滴谱分布。小雨、中雨和大雨三个例平均小时降水量分别为0.6 mm,4.4 mm和18.6 mm。由图4可以看到,随降水强度增大,大小雨滴的数浓度均出现增加。本研究小雨中有50%个例出现 $PM_{2.5}$ 质量浓度减小现象,而另50%出现 $PM_{2.5}$ 质量浓度增加现象,在中雨中也出现了2个 $PM_{2.5}$ 质量浓度增加的现象,为检查两种情况下的雨滴谱分布,图5分别给出了小雨和中雨过程中 $PM_{2.5}$ 质量浓度减小个例和 $PM_{2.5}$ 质量浓度增加个例的平均雨滴谱分布

$N(D)$ 。可以看到,两种情况的平均雨滴谱并没有明显差别,说明在相同降水强度下降水雨滴谱分布不是造成 $PM_{2.5}$ 清除率差异的关键因素。小雨通常是较稳定的降水,降水粒子谱的变化也较小。

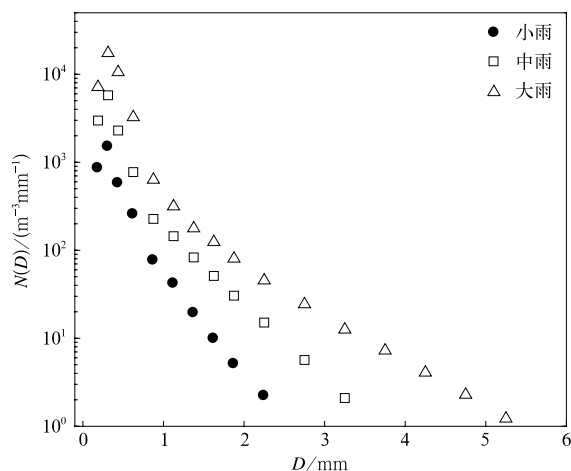


图4 北京小雨、中雨和大雨的平均雨滴谱分布

Fig. 4 Mean raindrop size distributions of light, moderate and heavy rain events in Beijing

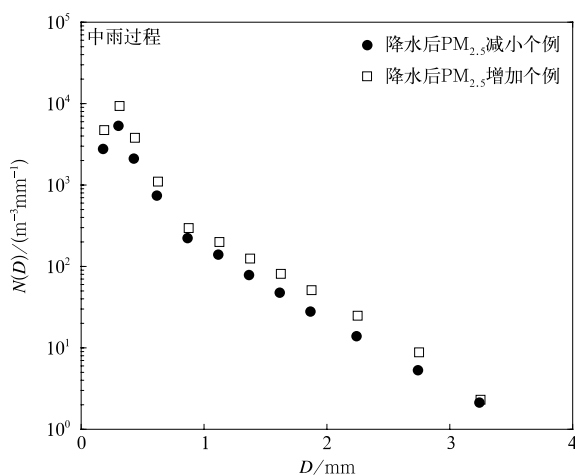
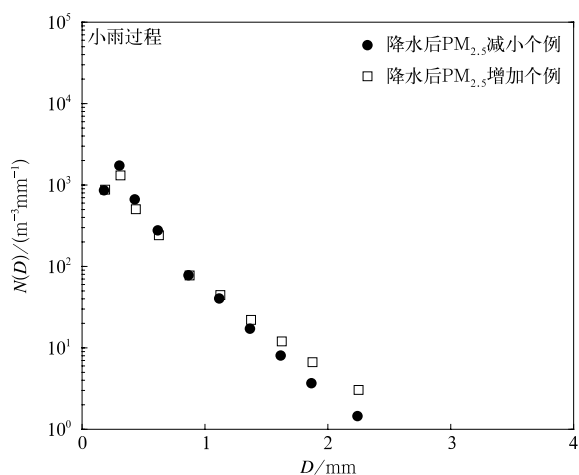


图5 北京小雨和中雨降水后 $PM_{2.5}$ 质量浓度减小个例和降水后 $PM_{2.5}$ 质量浓度增加个例的平均雨滴谱分布

Fig. 5 Mean raindrop size distributions for both cases with  $PM_{2.5}$  mass concentration decreased and increased of light and moderate rain events in Beijing

## 2.3 降水持续时间对 $PM_{2.5}$ 清除率的影响

观测到的降水个例中降水的持续时间各不相同,约80%的降水个例降水持续时间小于5 h,降水持续时间大于10 h的个例只占总体的3%。为了研

究降水持续时间对 $PM_{2.5}$ 清除率的影响,图6给出了降水后 $PM_{2.5}$ 质量浓度减小的降水个例中降水持续时间与 $PM_{2.5}$ 清除率的箱形图。由图6可以看到,降水持续时间对 $PM_{2.5}$ 清除率的贡献在小雨情

况下大于中雨和大雨。在小雨情况下,降水持续时间小于等于 3 h,  $\text{PM}_{2.5}$  清除率在 20% 左右,当降水持续时间大于 3 h 时,  $\text{PM}_{2.5}$  清除率可增加到 40%,持续时间更长时,基本也保持在 40% 左右。在中雨情况下,当降水持续时间在 6 h 之内,  $\text{PM}_{2.5}$  清除率保持在 45% 左右;6 h 之后,  $\text{PM}_{2.5}$  清除率出现降低。在大雨情况下,持续 3 h 之内的降水,  $\text{PM}_{2.5}$  的清除率在 50% 左右。由以上结果可以看到,降水持续时间是影响  $\text{PM}_{2.5}$  清除率大小的重要因素,特别是在

持续时间大于 3 h 的小雨过程中。Zhang 等<sup>[3]</sup>利用一维模式也得出类似结果,认为持续时间在 4 h 左右的弱降水,能够清除 50% 左右的大气气溶胶粒子。图 7 为降水后  $\text{PM}_{2.5}$  质量浓度增加的降水个例。由图 7 可以看到,降水持续时间对降水后  $\text{PM}_{2.5}$  质量浓度的增加影响很小。降水过程中的其他因素,如蒸发作用,可能是近地面  $\text{PM}_{2.5}$  质量浓度升高的原因之一。

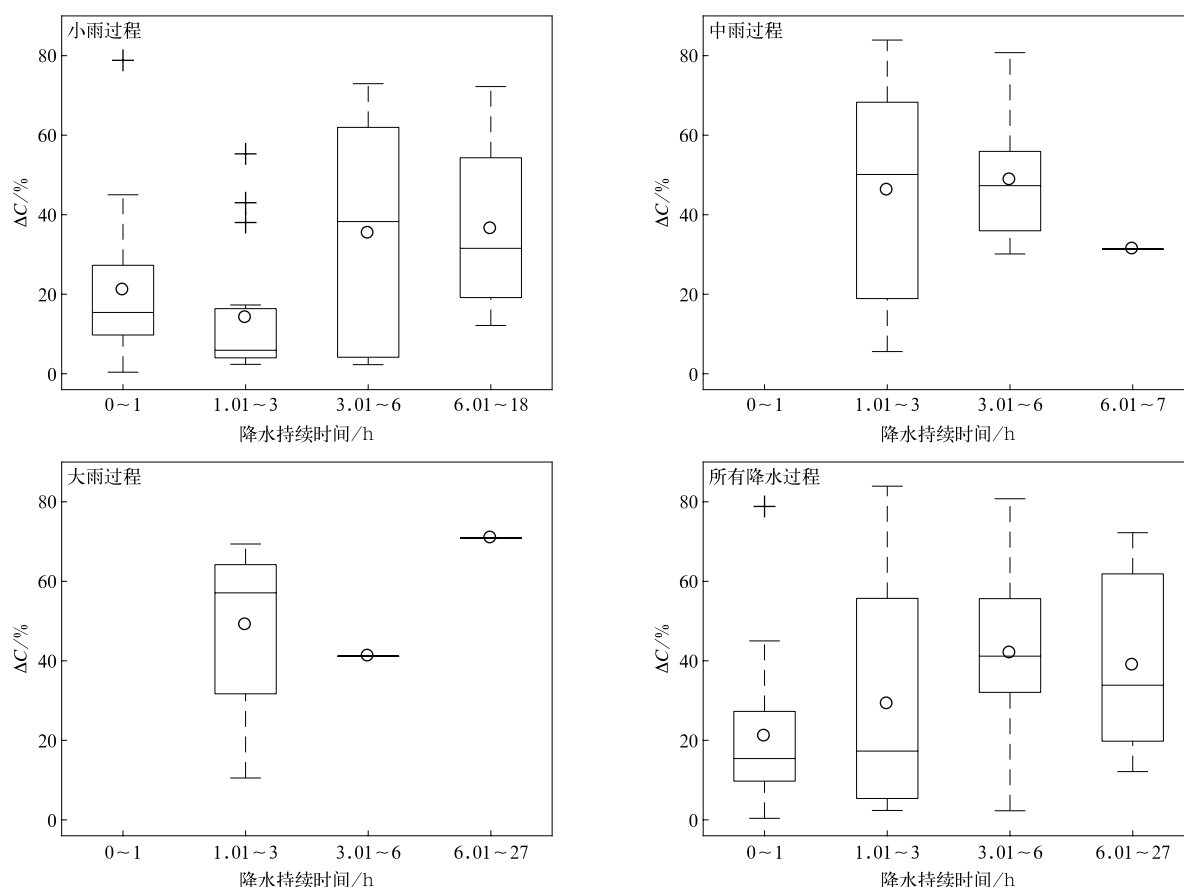


图 6 2014 年 3 月—2016 年 7 月北京降水后  $\text{PM}_{2.5}$  质量浓度减小个例中

降水持续时间与  $\text{PM}_{2.5}$  清除率的箱形图

(黑线代表中值,圆圈代表平均值,矩形框的上下边分别代表上下四分位数,

上下触须线分别代表最大和最小值,加号代表异常值)

Fig. 6 Variations of  $\text{PM}_{2.5}$  scavenging rate with rain duration in rain events with  $\text{PM}_{2.5}$  concentration decreased after the rain in Beijing from Mar 2014 to Jul 2016

(black lines in the box indicate median values, circles indicate average values,

box boundaries indicate the first and third quartiles, lines above and under

the box indicate the maximum and minimum values, plus signs indicate the outlier)

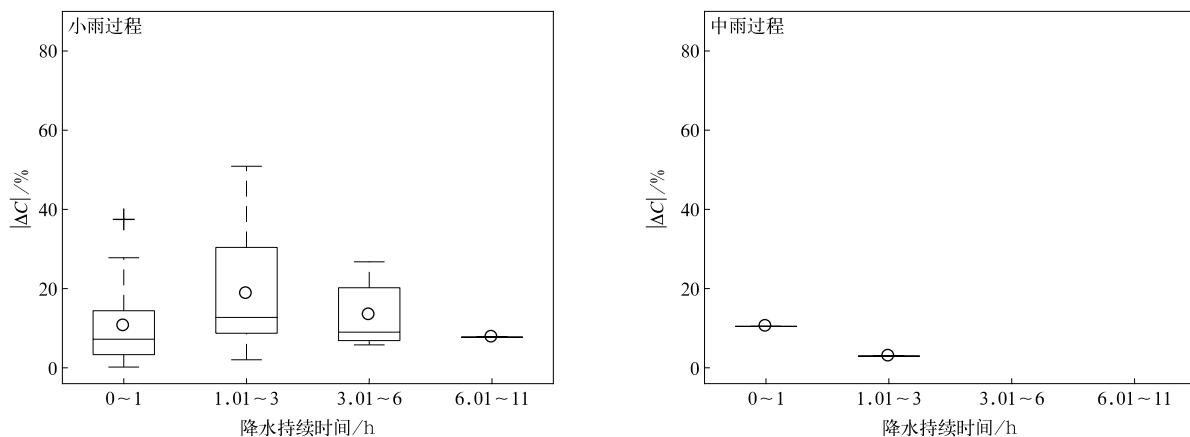


图7 2014年3月—2016年7月北京降水后  $PM_{2.5}$  质量浓度增加

个例中降水持续时间与  $PM_{2.5}$  清除率的箱形图

(黑线代表中值, 圆圈代表平均值, 矩形框的上下边分别代表上下四分位数,

上下触须线分别代表最大和最小值, 加号代表异常值,  $|\Delta C|$  为  $PM_{2.5}$  清除率的绝对值)

Fig. 7 Variations of  $PM_{2.5}$  scavenging rate with rain duration in rain events with  $PM_{2.5}$

mass concentration increased after the rain in Beijing from Mar 2014 to Jul 2016

(black lines in the box indicate median values, circles indicate average values,

box boundaries indicate the first and third quartiles, lines above and

under the box indicate the maximum and minimum values, plus signs indicate

the outlier,  $|\Delta C|$  is the absolute value of  $PM_{2.5}$  scavenging rate)

## 2.4 地面风速对 $PM_{2.5}$ 清除率的影响

风速是一个能够影响大气中气溶胶粒子浓度的重要气象要素, 特别是观测站测量的地面气溶胶粒子浓度<sup>[42-43]</sup>。所有降水过程平均风速为  $0 \sim 3.4 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ , 84%降水个例平均风速小于  $2 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ 。图8为  $PM_{2.5}$  清除率和降水前后风速差之间的对应关系。风速差为降水过程中的平均风速减去降水前的平均风速, 正值代表降水过程中风速增加, 负值代表降水过程中风速减小。风速差最大和最小值分别为  $2.0 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$  和  $-2.2 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ 。在小雨中, 较高的  $PM_{2.5}$  清除率对应着较大的风速差, 说明降水后风速的增加对  $PM_{2.5}$  的清除起一定作用, 降水过程中的水平扩散作用大于降水前。风速差负值的绝对值越大对应着  $PM_{2.5}$  清除率负值的绝对值越大, 说明降水后  $PM_{2.5}$  质量浓度的增加是由于风速减小引起的。因此, 在小雨中, 除了降水持续时间, 风速的变化对  $PM_{2.5}$  清除率的影响不可忽视。在中雨和大雨中, 降水过程中风速变大对  $PM_{2.5}$  清除率的增大有一定贡献, 但是作用效果没有在小雨中明显。这是因为在中雨和大雨中的风速差低于小雨。在中雨和大雨中, 没有出现在降水过程中风速降低, 降水后  $PM_{2.5}$  质量浓度增加的情况。

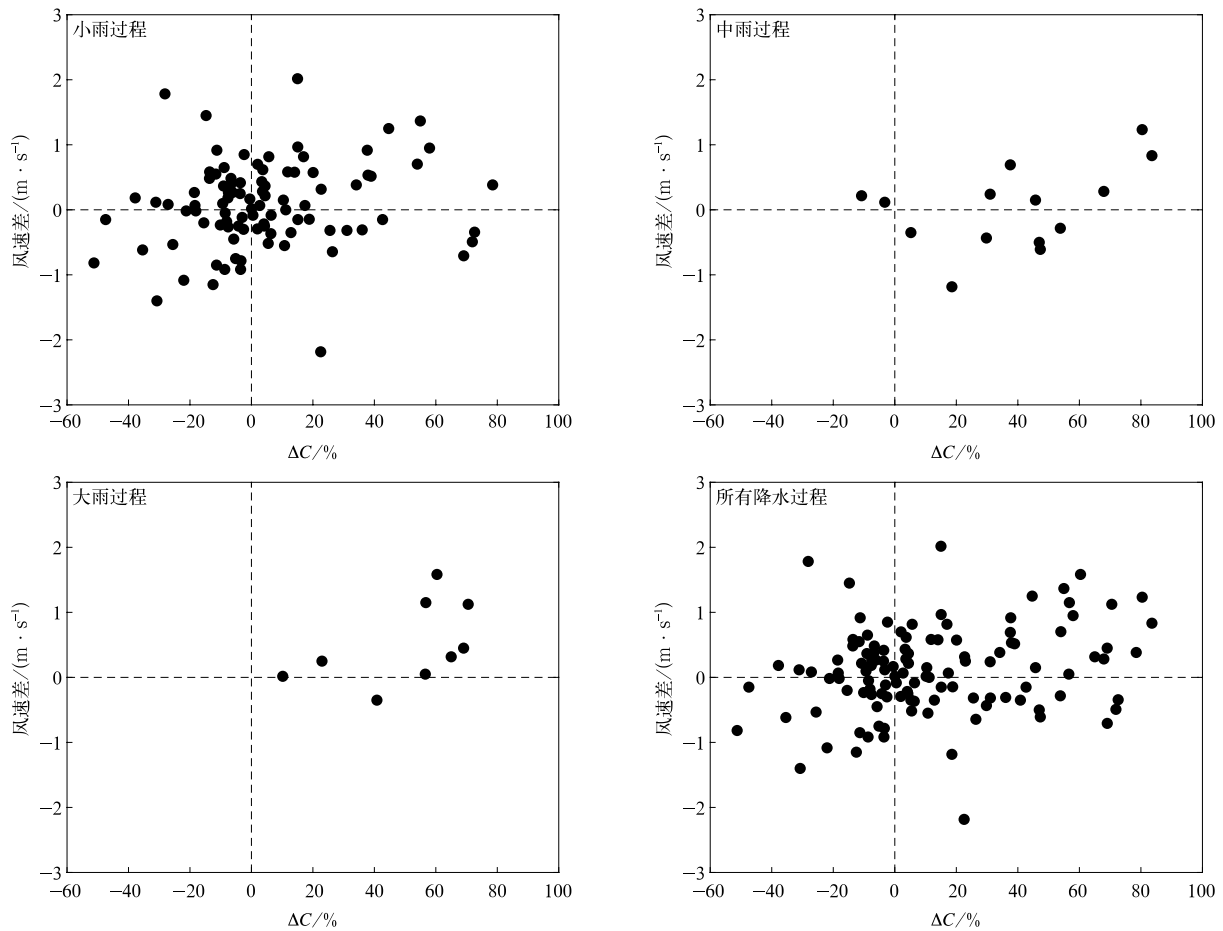
在小雨中, 降水后  $PM_{2.5}$  质量浓度减小个例和降水后  $PM_{2.5}$  质量浓度增加个例的平均风速差分别为  $0.15 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$  和  $-0.04 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ , 这进一步说明小雨后  $PM_{2.5}$  质量浓度的增加应该与风速的减小有关。在严重污染的情况下, 风速对  $PM_{2.5}$  的快速清除有重要贡献, 特别是冷锋过境时。

## 2.5 个例分析

为研究在小雨过程中风速和降水持续时间对降水后  $PM_{2.5}$  质量浓度降低的贡献, 选取两个小雨个例进行分析。图9为2014年4月25—26日小雨降水个例, 25日20:35(北京时, 下同)开始降水, 26日03:23降水结束, 共持续约7h, 小时平均降水量为1.2mm。降水前和降水过程中平均  $PM_{2.5}$  质量浓度分别为  $93.9 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$  和  $28.7 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ , 降水后  $PM_{2.5}$  质量浓度减小了  $65.2 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ ,  $PM_{2.5}$  清除率为69%。整个过程中, 降水持续时间较长, 风速较大, 风向偏北,  $PM_{2.5}$  质量浓度快速减小, 导致  $PM_{2.5}$  清除率较高。

图10为2014年9月12日小雨降水个例, 9月12日01:00降水开始, 06:18降水结束, 共持续约5h, 小时平均降水量为0.2mm。降水开始后  $PM_{2.5}$  质量浓度开始减小, 风速也由降水前的静风增大到

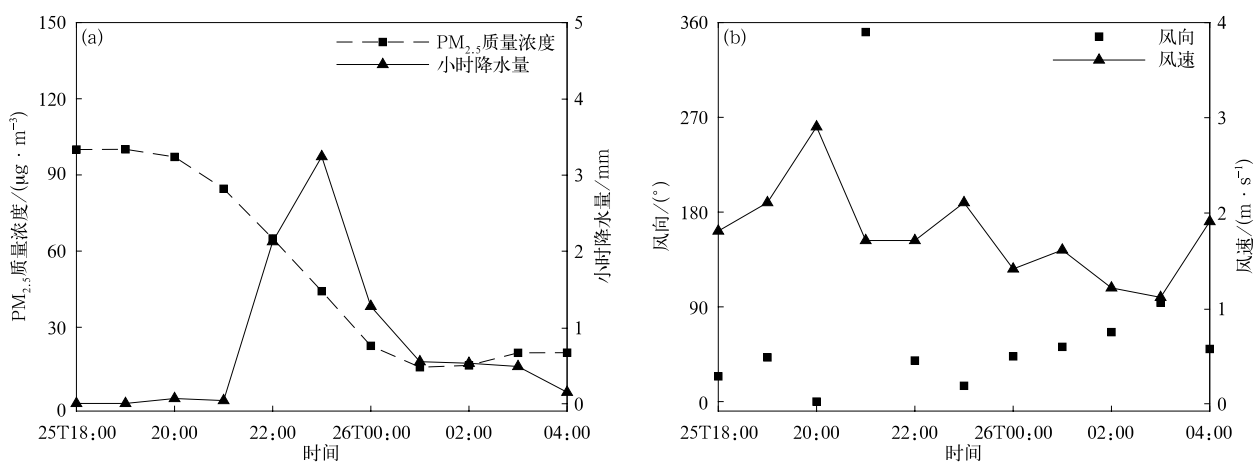


图8 2014年3月—2016年7月北京  $\text{PM}_{2.5}$  清除率和降水前后风速差的对应关系

(降水前后风速差为降水过程中的平均风速减去降水前的平均风速)

Fig. 8 Relationship between  $\text{PM}_{2.5}$  scavenging rate and the difference of wind speed in Beijing from Mar 2014 to Jul 2016

(the wind speed during the rain minus that before the rain)

图9 2014年4月25—26日北京小雨过程  $\text{PM}_{2.5}$  质量浓度和

小时降水量(a)以及风速和风向(b)随时间变化

Fig. 9 Temporal variations of  $\text{PM}_{2.5}$  mass concentration and hourly rainfall amount(a), wind speed and wind direction(b) of light rain event in Beijing during 25—26 Apr 2014

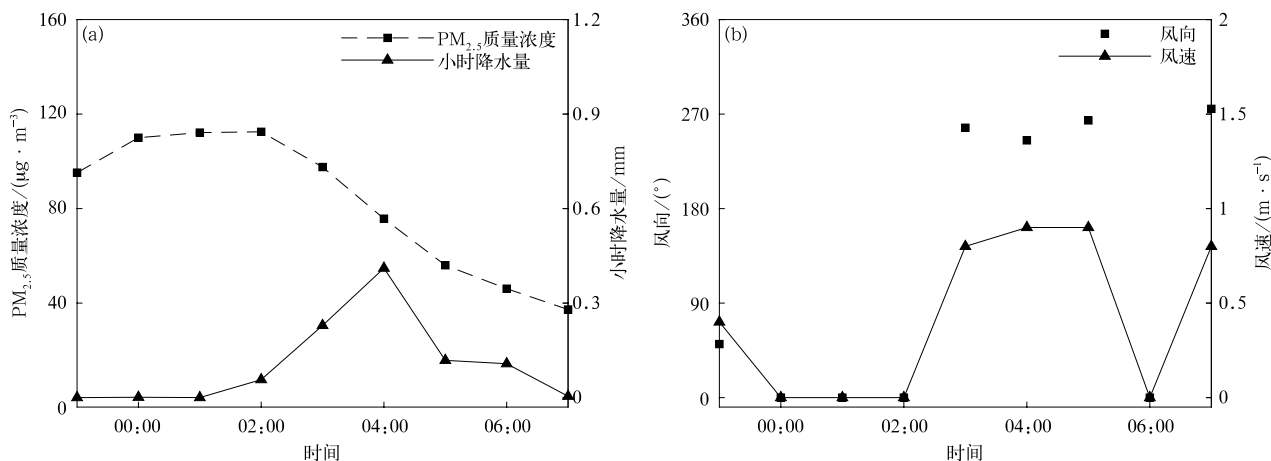


图10 2014年9月12日北京小雨过程  $\text{PM}_{2.5}$  质量浓度和小时降水量(a)以及风速和风向(b)随时间变化

Fig. 10 Temporal variations of  $\text{PM}_{2.5}$  mass concentration and hourly rainfall amount(a), wind speed and wind direction(b) of light rain event in Beijing on 12 Sep 2014

$1 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ 。降水后  $\text{PM}_{2.5}$  质量浓度减小了  $42.7 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ ,  $\text{PM}_{2.5}$  清除率为 38%。这两个个例降水持续时间均较长,通过个例分析和以上的统计分析得出在小雨过程中,风速对  $\text{PM}_{2.5}$  质量浓度的减小贡献很大,较长时间的降水清除和风速贡献导致出现较高的清除率。

图11为小雨中  $\text{PM}_{2.5}$  质量浓度增加个例的  $\text{PM}_{2.5}$  质量浓度、小时降水量、风速和风向随时间变化。此次降水过程开始于2015年9月17日23:56,9月18日01:57降水结束,持续时间2 h,降水持续

时间较短,小时平均降水量为 0.4 mm。由图11可以看到,在降水过程中,并没有观测到  $\text{PM}_{2.5}$  质量浓度出现减小趋势,  $\text{PM}_{2.5}$  质量浓度反而增加。降水前  $\text{PM}_{2.5}$  平均质量浓度为  $155.9 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ ,降水过程中  $\text{PM}_{2.5}$  质量浓度为  $204.0 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ 。降水过程中风速均较小,且在降水过程中风速呈下降趋势。这可能与夜间大气边界层变稳定有关,大气边界层高度降低有利于  $\text{PM}_{2.5}$  质量浓度的累积<sup>[44]</sup>,也可能与雨滴蒸发形成新粒子有关<sup>[3]</sup>。

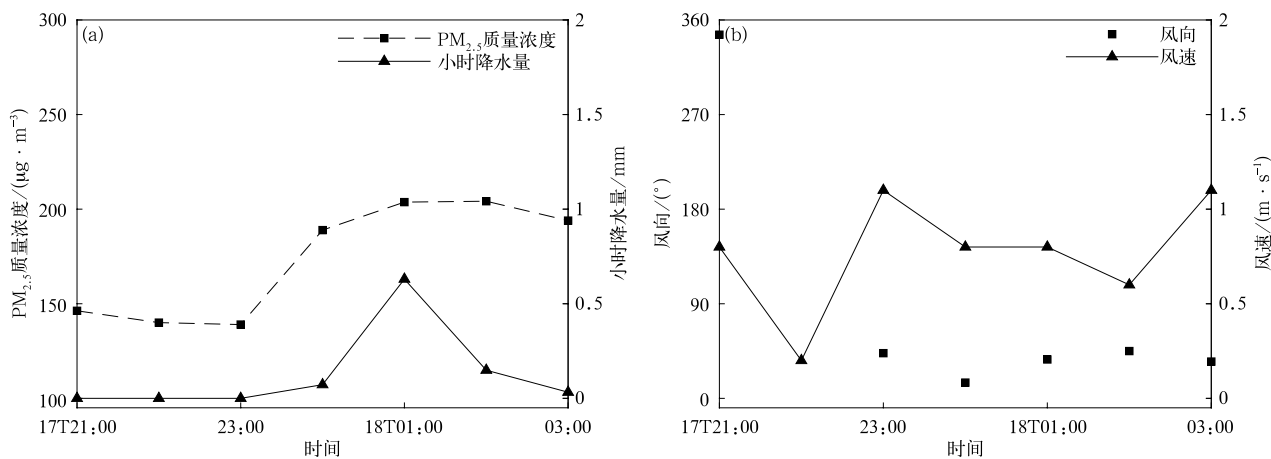


图11 2015年9月17—18日北京小雨过程  $\text{PM}_{2.5}$  质量浓度和小时降水量(a)以及风速和风向(b)随时间变化

Fig. 11 Temporal variations of  $\text{PM}_{2.5}$  mass concentration and hourly rainfall amount(a), wind speed and wind direction(b) of light rain event in Beijing during 17–18 Sep 2015

### 3 结论与讨论

本文利用 2014 年 3 月—2016 年 7 月在北京获取的 PM<sub>2.5</sub> 质量浓度和降水数据,开展了不同降水强度下降水对 PM<sub>2.5</sub> 清除作用的定量研究,并探讨了雨滴谱分布、降水持续时间和风速对 PM<sub>2.5</sub> 清除率的影响。得到以下主要结论:

1) 在小雨、中雨和大雨中,平均 PM<sub>2.5</sub> 清除率分别为 5.1%,38.5%和 50.6%,说明降水强度越大对大气中污染气溶胶粒子的清除效率越高。在中雨和大雨中,91%的降水个例能明显清除大气中 PM<sub>2.5</sub>,PM<sub>2.5</sub> 清除率最大值为 83%。这是因为降水强度越大,意味着降水粒子越多,降水粒子与气溶胶粒子碰撞效率越大。

2) 在小雨中,有 50%的降水个例降水后 PM<sub>2.5</sub> 质量浓度没有减小,反而出现降水后 PM<sub>2.5</sub> 质量浓度增加现象。为了解释这一现象,进一步研究了雨滴谱、降水持续时间和风速对 PM<sub>2.5</sub> 清除率的影响。研究发现在降水后 PM<sub>2.5</sub> 质量浓度减小的个例和降水后 PM<sub>2.5</sub> 质量浓度增加的个例中,雨滴谱相似,说明在相同的降水强度下雨滴谱分布对 PM<sub>2.5</sub> 清除率的影响不大。小雨事件中,降水持续时间和风速对 PM<sub>2.5</sub> 清除率影响较大;而在中雨和大雨中,降水持续时间和风速对 PM<sub>2.5</sub> 清除率的影响较小。

3) 在小雨中,PM<sub>2.5</sub> 清除率较大的个例是由于降水时间持续较长以及降水过程中风速较大引起的;一些降水后 PM<sub>2.5</sub> 质量浓度增加的原因是降水过程中风速变小造成的。

本文的研究结果对揭示不同降水强度对大气污染气溶胶粒子清除作用及其机制具有重要意义,特别是在小雨过程中气溶胶粒子质量浓度变化方面。本文可为在污染地区开展人工增雨作业清除 PM<sub>2.5</sub> 效果评估提供一定参考。由于观测数据的限制,本文没有分析降水对不同尺度气溶胶和气溶胶数浓度的影响,也无法比较不同降水强度对不同尺度气溶胶粒子质量浓度清除影响的差异。另外,本文针对小雨事件中出现的 PM<sub>2.5</sub> 质量浓度增加现象,仅从降水持续时间和风速两个方面进行了定性分析,有关定量分析和其他因子的影响仍需加强。

### 参考文献

[1] Seinfeld J H, Pandis S N. Atmospheric Chemistry And Phys-

ics: From Air Pollution To Climate Change. Hoboken, NJ: Wiley & Sons, 2006.

- [2] Andronache C, Gronholm T, Laakso L, et al. Scavenging of ultrafine particles by rainfall at a boreal site: Observations and model estimations. *Atmos Chem Phys*, 2006, 6: 4739-4754.
- [3] Zhang L M, Michelangeli D V, Taylor P A. Numerical studies of aerosol scavenging by low-level, warm stratiform clouds and precipitation. *Atmos Environ*, 2004, 38(28): 4653-4665.
- [4] Zhang L M, Michelangeli D V, Taylor P A. Influence of aerosol concentration on precipitation formation in low-level, warm stratiform clouds. *J Aerosol Sci*, 2006, 37(2): 203-217.
- [5] Andronache C. Estimated variability of below-cloud aerosol removal by rainfall for observed aerosol size distributions. *Atmos Chem Phys*, 2003, 3: 131-143.
- [6] Zhang L M, Wang X, Moran M D, et al. Review and uncertainty assessment of size-resolved scavenging coefficient formulations for below-cloud snow scavenging of atmospheric aerosols. *Atmos Chem Phys*, 2013, 13: 10005-10025.
- [7] Zhao S P, Yu Y, He J J, et al. Below-cloud scavenging of aerosol particles by precipitation in a typical valley city, north-western China. *Atmos Environ*, 2015, 102: 70-78.
- [8] Chate D M, Murugavel P, Ali K, et al. Below-cloud rain scavenging of atmospheric aerosols for aerosol deposition models. *Atmos Res*, 2011, 99(3-4): 528-536.
- [9] Bae S Y, Jung C H, Kim Y P. Development and evaluation of an expression for polydisperse particle scavenging coefficient for the below-cloud scavenging as a function of rain intensity using the moment method. *J Aerosol Sci*, 2006, 37(11): 1507-1519.
- [10] 蒲维维, 张小玲, 徐敬, 等. 北京地区酸雨特征及影响因素. *应用气象学报*, 2010, 21(4): 464-472.
- [11] Andronache C. Precipitation removal of ultrafine aerosol particles from the atmospheric boundary layer. *J Geophys Res*, 2004, 109: D16.
- [12] Chate D M, Pranesha T S. Field studies of scavenging of aerosols by rain events. *J Aerosol Sci*, 2004, 35(6): 695-706.
- [13] Davenport H M, Peters L K. Field studies of atmospheric particulate concentration changes during precipitation. *Atmos Environ*, 1978, 12(5): 997-1008.
- [14] Croft B, Lohmann U, Martin R V, et al. Aerosol size-dependent below-cloud scavenging by rain and snow in the ECHAM5-HAM. *Atmos Chem Phys*, 2009, 9: 4653-4675.
- [15] Laakso L, Grönholm T, Rannik Ü, et al. Ultrafine particle scavenging coefficients calculated from 6 years field measurements. *Atmos Environ*, 2003, 37(25): 3605-3613.
- [16] Olszowski T. Changes in PM<sub>10</sub> concentration due to large-scale rainfall. *Arab J Geosci*, 2016, 9(2): 160.
- [17] Lai K-Y, Dayan N, Kerker M. Scavenging of aerosol particles by a falling water drop. *J Atmos Sci*, 1978, 35(4): 674-682.
- [18] Wang X, Zhang L, Moran M D. Uncertainty assessment of current size-resolved parameterizations for below-cloud particle

- scavenging by rain. *Atmos Chem Phys*, 2010, 10: 5685-5705.
- [19] Wang X, Zhang L, Moran M D. On the discrepancies between theoretical and measured below-cloud particle scavenging coefficients for rain—a numerical investigation using a detailed one-dimensional cloud microphysics model. *Atmos Chem Phys*, 2011, 11: 11859-11866.
- [20] Ardon-Dryer K, Huang Y W, Cziczo D J. Laboratory studies of collection efficiency of sub-micrometer aerosol particles by cloud droplets on a single-droplet basis. *Atmos Chem Phys*, 2015, 15: 9159-9171.
- [21] Ladino L, Stetzer O, Hattendorf B, et al. Experimental study of collection efficiencies between submicron aerosols and cloud droplets. *J Atmos Sci*, 2011, 68(9): 1853-1864.
- [22] Lemaître P, Querel A, Monier M, et al. Experimental evidence of the rear capture of aerosol particles by raindrops. *Atmos Chem Phys*, 2017, 17: 4159-4176.
- [23] Greenfield S M. Rain scavenging of radioactive particulate matter from the atmosphere. *J Meteorol*, 1957, 14(2): 115-125.
- [24] Tinsley B A. Electric charge modulation of aerosol scavenging in clouds; Rate coefficients with Monte Carlo simulation of diffusion. *J Geophys Res*, 2010, 115: D23211.
- [25] Tinsley B A, Zhou L M, Plemmons A. Changes in scavenging of particles by droplets due to weak electrification in clouds. *Atmos Res*, 2006, 79(3-4): 266-295.
- [26] Maria S F, Russell L M. Organic and inorganic aerosol below-cloud scavenging by suburban New Jersey precipitation. *Environ Sci Technol*, 2005, 39(13): 4793-4800.
- [27] Zikova N, Zdimal V. Precipitation scavenging of aerosol particles at a rural site in the Czech Republic. *Tellus B*, 2016, 68(1): 27343.
- [28] 徐小斌. 我国霾和光化学污染观测研究进展. *应用气象学报*, 2016, 27(5): 604-619.
- [29] 靳军莉, 颜鹏, 马志强, 等. 北京及周边地区 2013 年 1—3 月  $PM_{2.5}$  变化特征. *应用气象学报*, 2014, 25(6): 690-700.
- [30] 颜鹏, 刘桂清, 周秀骥, 等. 上甸子秋冬季雾霾期间气溶胶光学特性. *应用气象学报*, 2010, 21(3): 257-265.
- [31] 姜江, 张国平, 高金兵. 北京大气能见度主要影响因子. *应用气象学报*, 2018, 29(2): 188-199.
- [32] 马肖琳, 高西宁, 刘煜, 等. 气溶胶对东亚冬季风影响的数值模拟. *应用气象学报*, 2018, 29(3): 333-343.
- [33] Chen R J, Zhao Z H, Kan H D. Heavy Smog and Hospital Visits in Beijing, China. *Am J Resp Crit Care*, 2013, 188(9): 1170-1171.
- [34] Feng X, Wang S. Influence of different weather events on concentrations of particulate matter with different sizes in Lanzhou, China. *J Environ Sci-China*, 2012, 24(4): 665-674.
- [35] Guo L C, Zhang Y, Lin H, et al. The washout effects of rain-fall on atmospheric particulate pollution in two Chinese cities. *Environ Pollut*, 2016, 215: 195-202.
- [36] 姚克亚, 郭俊, 傅云飞, 等. 气溶胶粒子的降雨清除. *气候与环境研究*, 1999, 4(3): 297-302.
- [37] Luan T, Guo X, Guo L, et al. Quantifying the relationship between  $PM_{2.5}$  concentration, visibility and planetary boundary layer height for long-lasting haze and fog-haze mixed events in Beijing. *Atmos Chem Phys*, 2018, 18(1): 203-225.
- [38] Brawn D, Upton G. On the measurement of atmospheric gamma drop-size distributions. *Atmos Sci Lett*, 2008, 9(4): 245-247.
- [39] Chen B J, Wang J, Gong D L. Raindrop size distribution in a midlatitude continental squall line measured by thies optical disdrometers over East China. *J Appl Meteorol Climatol*, 2016, 55(3): 621-634.
- [40] Chen B J, Yang J, Pu J P. Statistical characteristics of raindrop size distribution in the Meiyu season observed in Eastern China. *J Meteorol Soc Jpn*, 2013, 91(2): 215-227.
- [41] American Meteorological Society, cited 2019: "Rain". Glossary of Meteorology. Available online at <http://glossary.amet-soc.org/wiki/Rain>.
- [42] 蒲维维, 赵秀娟, 张小玲. 北京地区夏末秋初气象要素对  $PM_{2.5}$  污染的影响. *应用气象学报*, 2011, 22(6): 716-723.
- [43] 潘玮, 左志燕, 肖栋, 等. 近 50 年中国霾年代际特征及气象成因. *应用气象学报*, 2017, 28(3): 257-269.
- [44] Wang Y, Wan Q, Meng W, et al. Long-term impacts of aerosols on precipitation and lightning over the Pearl River Delta megacity area in China. *Atmos Chem Phys*, 2011, 11(23): 12421-12436.

## The Scavenging Process and Physical Removing Mechanism of Pollutant Aerosols by Different Precipitation Intensities

Luan Tian<sup>1)2)</sup> Guo Xueliang<sup>1)2)3)</sup> Zhang Tianhang<sup>4)</sup> Guo Lijun<sup>1)2)</sup>

<sup>1)</sup> (State Key Laboratory of Severe Weather, Chinese Academy of Meteorological Sciences, Beijing 100081)

<sup>2)</sup> (Key Laboratory of Cloud Physics, Chinese Academy of Meteorological Sciences, Beijing 100081)

<sup>3)</sup> (Collaborative Innovation Center for Meteorological Disasters Forecast, Early Warning and Assessment, Nanjing University of Information Science & Technology, Nanjing 210044)

<sup>4)</sup> (National Meteorological Center of China Meteorological Administration, Beijing 100081)

### Abstract

The aerosol scavenging process of precipitation is an important mechanism for cleaning polluted aerosols in atmosphere. But there are many uncertainties due to complexities of precipitation processes and atmospheric pollutant particulate matter.  $\text{PM}_{2.5}$  scavenging rates by different intensities of precipitation are investigated based on aerosol and precipitation measurements in Beijing from March 2014 to July 2016. Effects of raindrop size distribution, wind speed and rain duration on  $\text{PM}_{2.5}$  scavenging rate are studied. Results show that stronger precipitation is more efficient in removing polluted aerosols in atmosphere. The mean  $\text{PM}_{2.5}$  scavenging rate is 5.1%, 38.5% and 50.6% for light, moderate and heavy rain, respectively. However,  $\text{PM}_{2.5}$  scavenging rate by light rain has large difference. In about 50% light rain cases,  $\text{PM}_{2.5}$  mass concentration decreases, while in the other 50% light rain cases,  $\text{PM}_{2.5}$  mass concentration increases. In all moderate and heavy rain cases,  $\text{PM}_{2.5}$  concentration apparently decreases. Scavenging rates exceed 40% for 10% of light rain cases, 50% of moderate rain cases, and 78% of heavy rain cases. Since light precipitation has generally narrower size distribution and more smaller drops,  $\text{PM}_{2.5}$  scavenging rate by light rain is much lower, while moderate and heavy rain usually have wider size distribution and more larger drops, so that  $\text{PM}_{2.5}$  scavenging rates by these precipitation are much higher. In addition, further investigations indicate that  $\text{PM}_{2.5}$  scavenging rate for light rain is strongly influenced by precipitation duration and wind speed. The longer precipitation duration and higher the wind speed is, the higher the scavenging rate for light rain becomes. In some light rain cases, these factors enhance scavenging rates, but influences of precipitation duration and wind speed on  $\text{PM}_{2.5}$  scavenging rates are relatively smaller for moderate and heavy rain. This is because that the moderate and heavy rain can scavenge most of  $\text{PM}_{2.5}$  in a short time. The size distribution of raindrops is not an important factor to cause the different  $\text{PM}_{2.5}$  scavenging rate for the same rain intensity.

**Key words:**  $\text{PM}_{2.5}$ ; precipitation scavenging; precipitation intensity; impact factors