

重庆中心城区不同类型降雨对 PM_{2.5} 清除作用分析

陈小敏¹ 邹倩² 杨乐¹ 付驹¹ 廖晓荔¹¹

(1. 重庆市人工影响天气办公室, 重庆 401147;

2. 重庆市气象台, 重庆 401147)

【摘要】: 重庆中心城区下垫面复杂, 地面风速小, 湿度大, 易造成 PM_{2.5} 在本地累积增长, 降雨的冲刷和清除对降低 PM_{2.5} 质量浓度起着重要作用。利用 2015~2020 年沙坪坝站雨量、雨滴谱观测资料和重庆主城区小时 PM_{2.5} 质量浓度观测数据, 分析了不同类型降雨过程对 PM_{2.5} 质量浓度的影响。结果表明: 不同类型降雨过程对 PM_{2.5} 质量浓度影响的阈值分析中, 初始质量浓度都是的主要影响因素。显著冷空气降雨过程和无(弱)冷空气较强降雨过程都能有效降低 PM_{2.5} 质量浓度, 无(弱)冷空气弱降雨过程中, 降雨冲刷和 PM_{2.5} 的吸湿性增长共同作用使得 PM_{2.5} 质量浓度变化幅度较小。显著冷空气降雨过程平均清除率比无(弱)冷空气降雨过程高 1~2 个等级, 无(弱)冷空气降雨过程平均清除率随小时最大雨量、降雨时长和累积雨量的增加而增大, 3h 及以上的对流性降雨过程可使 PM_{2.5} 质量浓度降低约 1/4。重庆中心城区降雨雨滴谱符合 Gamma 分布, 稳定性降雨不同谱型雨滴对各粒径气溶胶粒子清除系数差别较小, 小时最大雨量≥20mm 的对流性降雨中雨滴对各粒径气溶胶粒子的清除系数明显高于其它等级对流性降雨。

【关键词】: 湿清除 PM_{2.5} 降雨类型 清除系数 重庆

【中图分类号】: X51 **【文献标识码】:** A **【文章编号】:** 1004-8227 (2022) 05-1169-17

PM_{2.5} 对生态系统以及人体健康的危害^[1]引起社会各界的关注, 是目前大气环境质量研究的热点议题之一。除了受排放源和二次气溶胶过程影响外, 大气物理过程是影响 PM_{2.5} 累积和消散的重要因素^[2], 其中湿清除作为大气中气溶胶粒子的主要清除机制, 维持着大气中气溶胶粒子源、汇之间的平衡, 是大气自净的最重要过程之一^[3]。

湿清除包括云中清除和云下清除, 其中云下清除是通过雨滴(或其它降水粒子)的布朗运动、惯性碰并等清除悬浮在云底至地表之间的大气气溶胶粒子的过程, 雨滴与气溶胶粒子的清除过程与气溶胶粒子的数浓度分布、雨滴谱、下落末端速度及是否有雷电过程等均有着密切的联系。对于不同粒径大小的气溶胶粒子来说, 降雨的清除作用明显不同, 存在“Greenfield gap”缺口^[4], 这主要与气溶胶粒子在大气中的运动状态有关, 核模态(0.01~0.1 μm)和粗模态(2~10 μm)的气溶胶粒子基本满足布朗运动和惯性碰并, 碰并系数较容易描述, 而对粒径为 0.2~2.0 μm 的气溶胶粒子碰并系数较难描述, 理论和实际观测存在较大差距。降雨本身的宏观特征如降雨类型、降雨量、雨强、降雨时长和雨滴谱特性等都会影响降雨的清除能力。对流性、冷空气型稳定性降雨过程会降低气溶胶浓度, 传输型稳定性降雨过程会进一步增加气溶胶浓度^[5,6]。随着降雨量增加, 降雨对气溶胶清除作用增强, 微量降雨会造成气溶胶细粒子吸湿性增长^[7]; 雨强较大的降雨对气溶胶粗粒子的清除作用大于雨强较小的降雨^[8,9]; 10~15h 的降雨对气溶胶粒子的清除率达到峰值^[10,11,12]; 雨滴谱的改变对气溶胶粒子的清除率影响很大^[13]。

目前不同类型降雨过程对气溶胶颗粒物的清除作用大小, 至今还没有统一论。有研究表明, 降雨过程对粗粒子和细粒子均

作者简介: 陈小敏(1983~), 男, 高级工程师, 主要研究方向为云降水物理及大气环境. E-mail: civillegend@163.com

基金项目: 重庆市气象科技攻关项目(ZHCXTD-201928); 中国气象局预报员专项(CMAYBY2020-107)

有去除作用, 且对细粒子的去除作用尤为明显^[14]。但也有研究表明, 降雨对清除气溶胶粗粒子和改善大气能见度作用明显, 但降雨前后细粒子数浓度变化不大, 甚至不降反升^[9, 15]。同时, 部分对降雨的湿沉降作用量化研究中, 降雨对 0.1~2.5 μm 粒径的气溶胶粒子的影响效果有明显分歧, 如董群等^[8]分析北京海淀的观测数据发现降雨对 0.1~1.0 μm 粒径短的气溶胶清除能力很弱; 而康汉青等^[16]在南京观测则发现小雨对 0.2~2.0 μm 段气溶胶粒子清除效率相对较差; 许建明等^[17]分析上海徐家汇的 PM_{2.5} 观测数据发现, 降雨主要清除 1 μm 以下的气溶胶, 对 1.0~2.5 μm 的气溶胶粒子清除作用较弱。相同的降雨量的不同类型的降雨过程, 由于有不同的垂直和水平动力条件, 对气溶胶粒子可以产生完全迥异的清除效果, 因此有必要从不同降雨的性质(稳定性、对流性)、降雨量级和雨滴谱等多角度出发, 全面阐释湿沉降对 PM_{2.5} 质量浓度变化的影响机制。

重庆地区由于其独特的下垫面和特殊的气象条件(湿度大、逆温多、风速小等), 进行 PM_{2.5} 扩散和防治的气象因素研究较多^[18, 19, 20], 根据降雨类型定量进行降雨对 PM_{2.5} 质量浓度影响的研究较少, 为了解不同类型降雨和不同等级降雨对 PM_{2.5} 质量浓度的清除能力, 降雨过程前后 PM_{2.5} 质量浓度变化的主要特征等。有必要基于长时间序列的降雨和 PM_{2.5} 协同观测数据, 分析不同季节、不同类型、不同等级降雨清除 PM_{2.5} 的规律, 这对“蓝天行动”改善空气质量的人工增雨作业具有重要意义。

1 资料和方法

1.1 资料来源和处理

雨量和地面气象数据采用重庆沙坪坝气象站提供的常规气象观测数据, 雨量数据时间序列为 2015~2020 年, 时间分辨率为 1h, 精度为 0.1mm, 研究时段内均无缺测。雨滴谱观测仪器采用德国 OTT 公司生产的 PARSIVEL 激光雨滴谱仪, 风廓线观测仪器采用敏视达公司生产的 TWP8-L 型风廓线雷达, 观测地点都在沙坪坝气象站。逐时 PM_{2.5} 质量浓度数据来自重庆市空气质量发布系统网站(<http://113.204.96.36:3362/template/home.html>)。重庆市空气质量发布系统实时发布重庆市中心城区 17 个监测点的空气质量监测数据, 部分时段和部分监测点数据出现缺省, 缺省数据占总时段数据 2.1%。小时雨量及地面气象要素与 PM_{2.5} 观测数据时间相对应, 是指后 1h 内降雨总量及要素平均值。雨滴谱数据进行了轴比订正^[21]和 3δ 准则^[22]的质量控制。由于自 2017 年开始, 中心城区 17 个监测点中有 3 个站点监测地址变化, 其中离沙坪坝站最近的高家花园监测点撤销, 因此采用 17 个监测点 PM_{2.5} 数据小时平均值代表中心城区小时 PM_{2.5} 数据, 选取沙坪坝站小时降雨数据代表中心城区小时降雨数据, 并进行对比分析。

1.2 技术方法

1.2.1 降雨过程的清除率

在某一降雨时段, 降雨对 PM_{2.5} 质量浓度的清除率计算如式(1)所示:

$$RF = (C_b - C_a) / C_b \times 100\% \quad (1)$$

式中: RF(单位: %)为降雨对 PM_{2.5} 的质量浓度的清除率; C_b(单位: μg/m³)为降雨开始前 3h 的平均 PM_{2.5} 质量浓度, C_a(单位: μg/m³)为降雨结束后 3h 的 PM_{2.5} 质量浓度。RF>0 为正清除过程, 表示降雨后 PM_{2.5} 质量浓度降低。RF<0 为负清除过程, 表示降雨后 PM_{2.5} 质量浓度升高。

n 次过程的平均清除率计算公式如式(2)所示:

$$\overline{RF} = \left[\sum_{i=1}^n (C_{b,i} - C_{a,i}) \right] / \sum_{i=1}^n C_{b,i} \times 100\% \quad (2)$$

式中：RF⁻(单位：%)为 PM_{2.5}质量浓度的平均清除率。

1.2.2 雨滴清除系数

雨滴谱的拟合采用 Gamma 函数拟合，其表达式为：

$$N(D) = N_0 D^\mu \exp(-\lambda D) \quad (3)$$

式中：D(单位：mm)为雨滴直径，N₀(单位：mm^{-1-μ}m⁻³)为截距参数；μ 为形状因子；λ (单位：mm⁻¹)为斜率参数。

PM_{2.5} 粒子谱采用对数分布，其表达式为：

$$N(D_p) = \frac{N_{p0}}{\sqrt{2\pi \ln \sigma_{pg}}} \exp\left(-\frac{\ln^2(D_p/D_{pg})}{2 \ln^2 \sigma_{pg}}\right) \frac{1}{D_p} \quad (4)$$

式中：N_{p0}、D_{pg} 和 σ_{pg} 分别为气溶胶浓度、几何平均直径和几何标准方差，本文选取朱彬等^[23]在沙坪坝的观测结果，分别取 6.74×10²cm⁻³、0.5 μm 和 1.3 μm。

外场观测和实验研究发现^[24,25]，雨滴碰并气溶胶粒子的主要机制有惯性碰并、布朗扩散、扩散拦截、带电清除、热泳和扩散电泳，这些机制都与气溶胶粒径有关，不同粒径气溶胶粒子主要由一个或几个碰并机制为主导。现阶段，Slinn 公式^[26]被广泛应用于湿清除过程气溶胶碰并系数的估计，其表示式如下：

$$E(D_i, D_p) = \frac{4}{R_e S_c} (1 + 0.4 R_e^{1/2} S_c^{1/3} + 0.16 R_e^{1/2} S_c^{1/2}) + 4 \frac{D_p}{D_i} \left[\frac{S_i - S^*}{S_i - S^* + \frac{2}{3}} \right]^{3/2} R_e^{-1/2} \frac{D_p}{D_i} \quad (5)$$

式中分别为布朗扩散、扩散拦截和惯性碰撞机制对碰并系数的贡献，具体参数可参见文献^[27]。

根据气溶胶动力学理论，直径为 D_i 的雨滴对粒径为 D_p 的气溶胶粒子的清除系数Λ(D_p)和降雨对气溶胶总质量清除系数Λ可

以表示为:

$$\Lambda(D_p) = \frac{\int_{D_{min}}^{D_{max}} \frac{1}{4} \pi D_i^2 V(D_i) E(D_i, D_p) N(D_i) d(D_i)}{D_p} \quad (6)$$

$$\Lambda = \frac{\int_{D_{pmin}}^{D_{pmax}} \Lambda(D_p) m(D_p) d(D_p)}{\int_{D_{pmin}}^{D_{pmax}} m(D_p) d(D_p)} \quad (7)$$

式中：E(Di, Dp)为碰并系数；m(Dp)为对应粒径为 Dp 的气溶胶粒子的质量密度。

2 结果和分析

2.1 稳定性降雨过程对 PM2.5 的影响

2.1.1 稳定性降雨降低 PM2.5 质量浓度的阈值

连续性降雨分为稳定性降雨和对流性降雨。其中稳定性降雨过程的分类标准^[7,8]为降雨时长≥3h, 降雨时无强对流天气, 过程中地面平均风速≤3m/s, 2015~2020 年稳定性降雨过程共有 619 次。

考虑到重庆地区复杂的地形和气候特征造成降雨的季节性差异, 分季节统计稳定性降雨对 PM2.5 质量浓度的影响, 由表 1 可见, 降雨后 PM2.5 质量浓度下降的占比在 57.7%~65.7%, 浓度下降幅度在 20.7%~24.6%。降雨后 PM2.5 质量浓度反弹上升平均占比在 37.0%, 与许建明等^[17]在上海的观测(37.5%)相近, 高于董群等^[8]在北京海淀观测(33.3%)。由于降雨前后 PM2.5 质量浓度变化与 PM2.5 初始质量浓度、小时雨强和降雨时长等密切相关, 图 1 给出了不同季节降雨前后 PM2.5 质量浓度变化随初始质量浓度、平均小时雨强和降雨时长的箱线图, 可以看出, 降雨后 PM2.5 质量浓度下降过程(ΔPM2.5<0)中初始质量浓度、小时雨强和降雨时长的平均值都高于 PM2.5 质量浓度上升过程(ΔPM2.5>0)。其中, 初始质量浓度的平均值分别偏高了 40.3%、33.8%、30.7%和 39.0%; 小时雨强的平均值分别偏高 34.9%、14.0%、40.9%和 26.8%; 降雨时长的平均值分别偏高 1.5%、36.6%、27.5%和 39.7%。

表 1 不同季节稳定性降雨过程 PM2.5 质量浓度变化

季节	样本数(个)		比例(%)		浓度变化(%)	
	升	降	升	降	升	降
春季	66	90	42.3	57.7	23.2	-20.7
夏季	36	69	34.3	65.7	20.8	-24.0
秋季	85	146	36.8	63.2	19.6	-24.6
冬季	44	83	34.6	65.4	16.7	-22.8

降雨结束后 $\text{PM}_{2.5}$ 质量浓度是否降低, 是进行城市 $\text{PM}_{2.5}$ 预报的重要研判因素, 利用阈值法进行判断是一种有效的手段。大多数研究^[10, 11, 17]都采用箱线图和散点图结合的方式, 根据不同时段和研究目的进行阈值的选取。如许建明等^[17]采用 $\Delta \text{PM}_{2.5} > 0$ 的初始质量浓度 95 分位作为阈值, 于彩霞等^[11]采用空气质量轻度污染 $115 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 和雨强 $4\text{mm}/\text{h}$ 作为阈值。本文综合上述两种方法, 将平均值变化幅度最大的两个因素作为影响 $\text{PM}_{2.5}$ 质量浓度的主要因素, 考虑平均小时雨强或降雨时长 $\Delta \text{PM}_{2.5} > 0$ 的 95 分位, 并对比初始质量浓度 $\Delta \text{PM}_{2.5} > 0$ 的 75 分位与 $\Delta \text{PM}_{2.5} < 0$ 平均值中的较大值, 同时结合散点图分布, 选取不同季节稳定性降雨降低 $\text{PM}_{2.5}$ 质量浓度的阈值。结果表明, 春季(3~5月)的阈值为初始质量浓度 $\geq 34.5 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 且平均小时雨强 $\geq 1.7\text{mm}/\text{h}$, 夏季(6~8月)的阈值为降雨时长 $\geq 8.0\text{h}$ 且初始质量浓度 $\geq 28.2 \mu\text{g}/\text{m}^3$, 秋季(9~11月)的阈值为初始质量浓度 $\geq 27.8 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 或平均小时雨强 $\geq 1.7\text{mm}/\text{h}$, 冬季(12~2月)的阈值为初始质量浓度 $\geq 42.8 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 或降雨时长 $\geq 9.6\text{h}$ 。

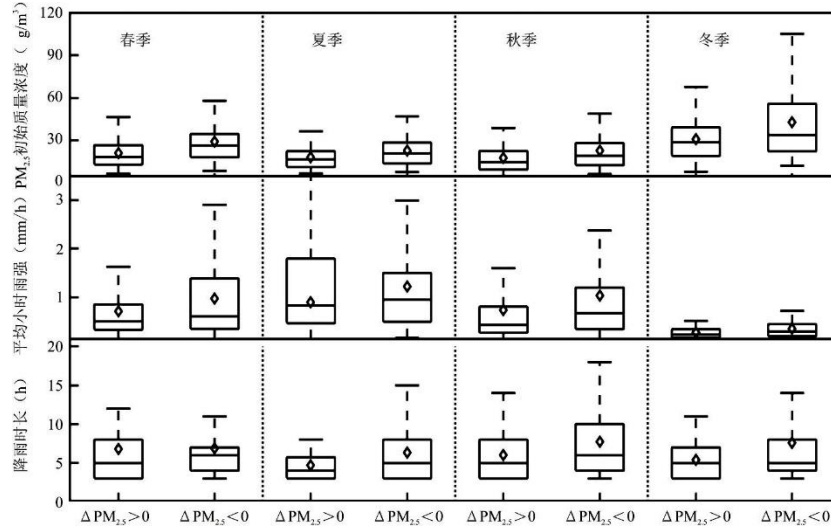


图 1 不同季节稳定性降雨过程中 $\text{PM}_{2.5}$ 质量浓度随初始质量浓度、平均小时雨强和降雨时长的变化

按照上述阈值标准, 图 2 给出了不同季节稳定性降雨 $\text{PM}_{2.5}$ 质量浓度变化随主要因素的散点分布, 其中冷色方块表示降雨过程结束后 $\text{PM}_{2.5}$ 质量浓度下降, 暖色圆圈表示上升, 方块和圆圈面积越大, 则 $\text{PM}_{2.5}$ 质量浓度下降和上升越多, 其中, 降雨过程 $\text{PM}_{2.5}$ 质量浓度变化为降雨结束时次 $\text{PM}_{2.5}$ 质量浓度与初始质量浓度之差(下同)。当降雨过程条件满足阈值标准时, $\text{PM}_{2.5}$ 质量浓度较降雨前都有下降, 其中秋冬季下降尤为明显, 在 $40 \sim 80 \mu\text{g}/\text{m}^3$, 这主要和秋冬季 $\text{PM}_{2.5}$ 质量浓度较高有关。对于两种主要因素都不满足的降雨过程, 其 $\text{PM}_{2.5}$ 质量浓度下降的次数比例在 50%左右, 即只有一半的降雨过程结束后 $\text{PM}_{2.5}$ 质量浓度下降。按照目前我国环境空气质量标准, $\text{PM}_{2.5}$ 超标的日平均浓度为 $75 \mu\text{g}/\text{m}^3$, 从散点图的分布来看, 当出现 $\text{PM}_{2.5}$ 污染时, 春、夏、秋季只要出现稳定性降雨, 空气质量就能明显改善, 冬季平均小时雨强 $\geq 0.23\text{mm}/\text{h}$ 且降雨时长 $\geq 6.1\text{h}$ 的稳定性降雨能明显改善空气质量。需要指出的是, 虽然稳定性降雨过程选取的都是小风降雨个例, 但是对 $\text{PM}_{2.5}$ 的影响除了降雨的湿清除外, 冷空气的强度、 $\text{PM}_{2.5}$ 的区域传输及细粒子的吸湿增长等都会对 $\text{PM}_{2.5}$ 质量浓度变化产生影响, 因此, 有必要针对不同降雨类型分析降雨对 $\text{PM}_{2.5}$ 的清除效果及差异。

2.1.2 不同类型稳定性降雨影响 $\text{PM}_{2.5}$ 质量浓度的主要因素

吴进等^[6]根据细颗粒物变化情况, 将稳定性降雨分为显著冷空气型、无冷空气有传输型、无冷空气无传输型 3 类。重庆中心城区由于本地气团对 $\text{PM}_{2.5}$ 质量浓度的影响较大, 大部分的 $\text{PM}_{2.5}$ 污染事件都是由于扩散条件不理想, 导致本地颗粒物聚集造成的^[28]。因此分析重庆地区稳定性降雨对 $\text{PM}_{2.5}$ 质量浓度的影响主要考虑有无显著冷空气, 同时, 重庆中心城区秋冬季^[29]和夏季^[30]日降雨对大气污染物浓度影响的统计发现, 降雨量在 5mm 以上对大气污染物浓度影响较为明显, 而 5mm 以下降雨对大气污染物浓度影响明显减弱。根据以上分析, 可以将稳定性降雨分为显著冷空气型、无(弱)冷空气较强降雨型和无(弱)冷空气弱降雨型 3 类。

其中，显著冷空气降雨过程的标准为降雨过程前重庆以北地区 850hPa 上 24h 负变温在 4℃以上，且包含降雨时段的沙坪坝站 850hPa 上 24h 负变温在 4℃左右，同时，降雨过程中地面有持续降温，过程最大降温幅度在 2℃以上。无(弱)冷空气降雨过程为除显著冷空气外的其它稳定性降雨过程，其中无(弱)冷空气较强降雨的标准为过程累积雨量在 5mm 以上，无(弱)冷空气弱降雨为过程累积雨量在 5mm 以下。

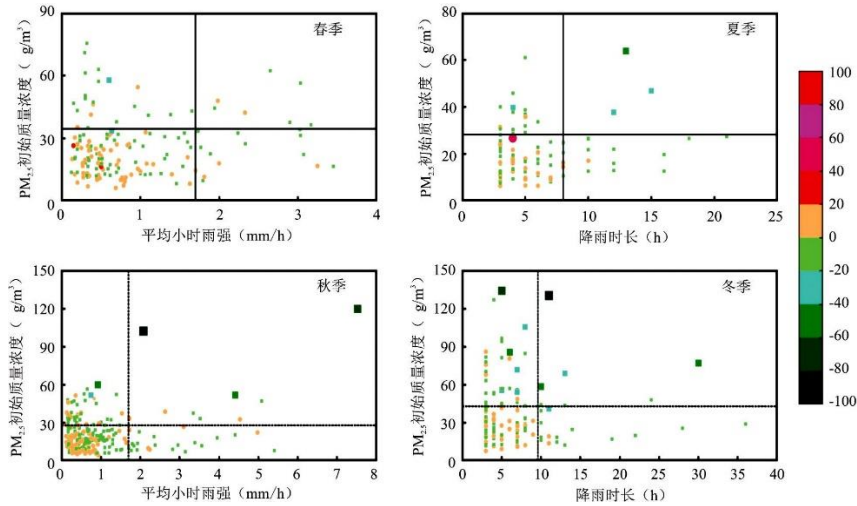


图 2 不同季节稳定性降雨过程 PM_{2.5} 质量浓度变化随主要因素的散点分布

注：黑色实线和虚线为阈值。

统计 2015~2020 年不同类型稳定性降雨次数(表 2), 可以看出, 重庆中心城区春季显著冷空气过程最多, 秋季无(弱)冷空气过程最多, 冬季无(弱)冷空气弱降雨过程较多而无(弱)冷空气较强降雨过程极少。不同类型降雨过程中, 显著冷空气降雨过程一般具有较好的天气系统配置, 如高层有明显高空槽, 中层有较强辐合形成切变线, 低层有明显冷平流。此类型天气降雨持续时间较长, 湿度条件极好, 降雨过程可以有效的降低 PM_{2.5} 质量浓度。无(弱)冷空气较强降雨型过程中大气运动不剧烈, 天气系统主要是高空波动槽配合中低层切变线, 降雨过程的平均雨强较大, 地面降温不明显, 此类降雨过程也可以有效降低 PM_{2.5} 质量浓度。无(弱)冷空气弱降雨过程的天气系统配置主要是短波槽和中低层弱的辐合辐散, 降雨过程中温度、风速变化较小, 此类降雨过程 PM_{2.5} 质量浓度变化幅度较小, 主要原因是降雨的冲刷作用和细粒子的吸湿增长共存, 使得降雨过程中 PM_{2.5} 质量浓度变化的不确定性增大。图 3 给出了 3 种不同类型降雨过程对 PM_{2.5} 影响的典型个例, 显著冷空气降雨个例(图 3a 和图 3b)中, 低层以偏东北风为主, 有明显冷平流和弱的冷空气下沉运动, 且与 PM_{2.5} 质量浓度明显下降的时间基本一致, 因此本次 PM_{2.5} 质量浓度的下降主要由冷平流的稀释效果和冷空气的垂直下沉运动及降雨冲刷等共同作用。无(弱)冷空气较强降雨个例(图 3c 和图 3d)中, 低层以西南风为主, 有暖平流影响, 降雨过程中, 垂直风向风速变化较小, 无明显冷空气下沉运动, PM_{2.5} 质量浓度的下降主要是降雨冲刷作用。无(弱)冷空气弱降雨个例(图 3e)中, PM_{2.5} 质量浓度不降反升, 其主要原因是降雨的冲刷效果较弱, 且降雨后期温度出现明显上升, 同时, 环境湿度极高, 使得大气氧化性增强, 有利于细粒子的吸湿性增长和颗粒物的二次转化^[31]。

表 2 不同类型稳定性降雨过程的天气形势及影响 PM_{2.5} 质量浓度的主要因素

稳定性降雨类型	样本数(个)				主要天气形势	主要影响因素
	春	夏	秋	冬		
显著冷空气型	28	16	17	16	高空槽; 切变线; 冷平流	冷空气下沉运动及稀释效果和降雨冲刷

无(弱)冷空气较强降雨型	47	43	81	7	波动槽；切变线	降雨冲刷
无(弱)冷空气弱降雨型	81	48	133	103	短波槽；弱辐合辐散	降雨冲刷和 $PM_{2.5}$ 的吸湿增长

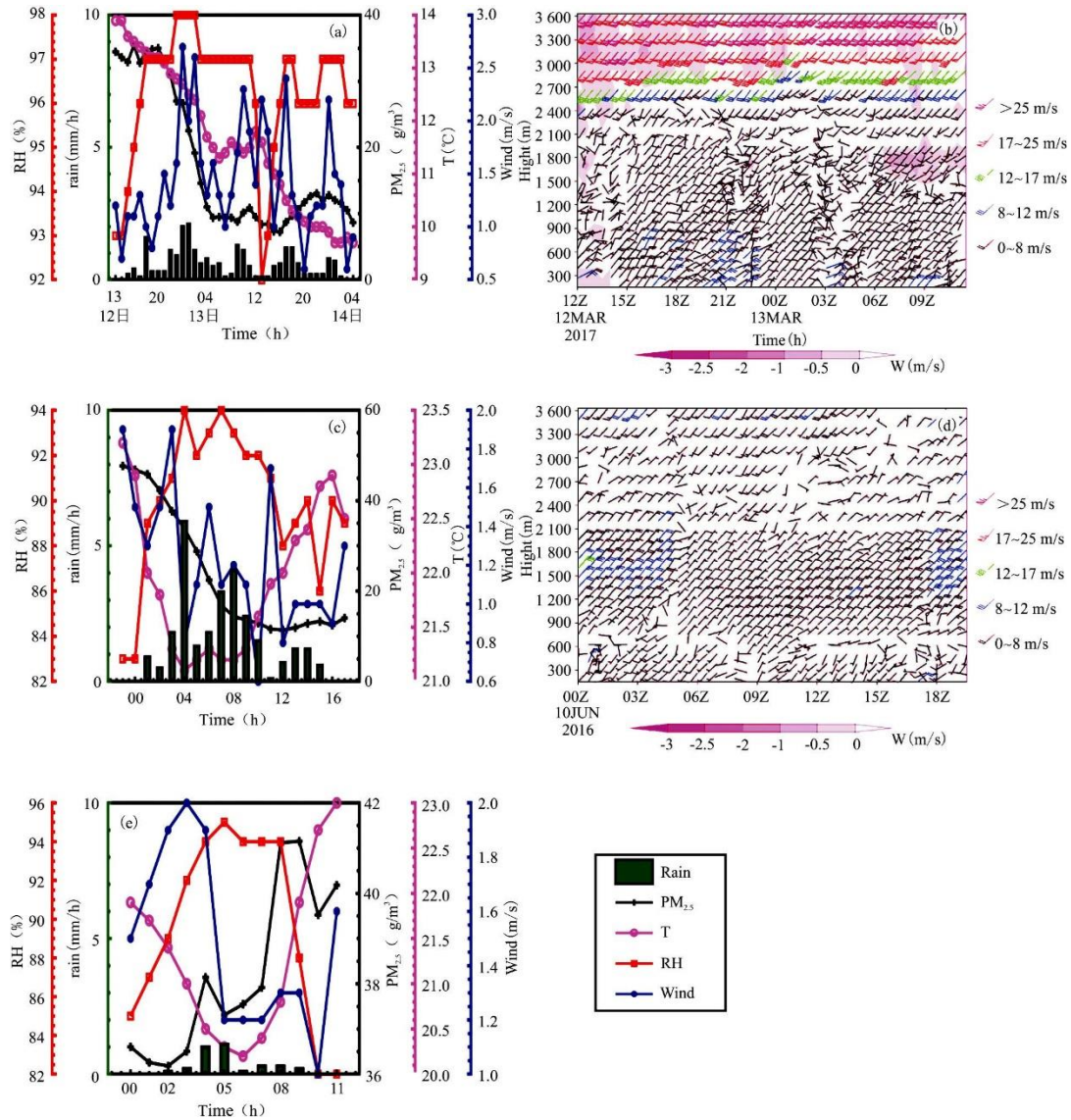


图 3 不同类型稳定性降雨过程地面气象要素、 $PM_{2.5}$ 质量浓度、垂直风廓线及下沉速度分布

注：a, b 显著冷空气型 (2017 年 3 月 12-14 日), c, d 无(弱)冷空气较强降雨型 (2016 年 6 月 10 日), e 无(弱)冷空气弱降雨型 (2016 年 9 月 20 日)。

2.1.3 稳定性降雨对 $PM_{2.5}$ 质量浓度的清除率

降雨除了对大气颗粒物的冲刷作用外，其另一个直接效果就是大气湿度的增加。湿度对与颗粒物尤其是细颗粒物 ($PM_{2.5}$) 的影响呈现两个特征，即吸湿增长和重力沉降。当空气湿度超过吸湿增长阈值时，颗粒物质量浓度随湿度上升而明显增加，一旦湿度

超过重力沉降阈值, 颗粒物质量浓度会明显降低。大量观测统计发现^[32,33], 当 RH>80%时, 超细粒子通过吸湿增长和粒子间的碰并导致细粒子质量浓度明显增加^[34], 而由于不同地区和不同时段颗粒物中水溶性无机盐的含量不同, 湿度的重力沉降阈值差别较大, 但基本都是接近饱和状态(RH 在 95%以上)。因此, 降雨对 PM_{2.5} 的清除是冷空气、降雨冲刷、吸湿增长、重力沉降及 PM_{2.5} 自身性质等综合因素的影响, 本文采用(1)式和(2)式计算的清除率定量分析稳定性降雨过程对 PM_{2.5} 质量浓度的清除效果。

从清除率与降雨前 PM_{2.5} 质量浓度的关系来看(图 4a), 降雨前 PM_{2.5} 质量浓度较低时, 降雨对 PM_{2.5} 以负清除为主, 随着质量浓度的增加, 正清除过程明显增加。因此为避免降雨前 PM_{2.5} 质量浓度极低时, 降雨过程的负清除对总清除率的影响, 需要设定降雨前 PM_{2.5} 质量浓度的下限值。

由于稳定性降雨前后 PM_{2.5} 质量浓度具有明显的正相关^[10,12], 可利用线性方程拟合降雨前后 PM_{2.5} 质量浓度关系, 拟合方程如(8)所示:

$$C_a = a \times C_b + b \quad (8)$$

式中: a、b 为拟合方程的系数, 重庆中心城区稳定性降雨过程中, a、b 取值分别为 0.56 和 6.7。

将(8)式代入到(1)式可得:

$$RF = [(1 - a) \times C_b - b] / C_b \times 100\% \quad (9)$$

将(9)式, 图 4a 蓝色实线)计算稳定性降雨过程中 RF=0 时的 C_b⁻值(C_b 平均值), 并作为降雨前 PM_{2.5} 质量浓度的下限值, 即只选取降雨前 PM_{2.5} 质量浓度大于 C_b⁻值(11.0 μg/m³)的稳定性降雨过程进行分析, 共计 520 个样本, 其中无(弱)冷空气降雨过程样本 450 个(图 4a 中黑色点), 显著冷空气降雨过程样本 70 个(图 4a 中绿色点)。

参考栾天等^[35]对小时雨量在小雨(不大于 2.5mm)、中雨(2.6~7.6mm)和大雨(大于 7.6mm)的等级划分, 将最大小时降雨量划分为 6 个等级(图 4b 和表 3), 分别为 0.1~0.9、1.0~2.5、2.6~4.9、5~7.6、7.7~9.9 和 ≥10mm。稳定性降雨过程的平均清除率随最大小时降雨量增加而增加, 其中显著冷空气过程平均清除率比无(弱)冷空气过程大 1~2 个等级。当小时最大降雨量 ≥5mm 时, 降雨的清除作用明显增强, 这与曹杨等^[36]在成都的统计结果一致。根据降雨持续时间, 将降雨时长分为 6 个等级(图 4c 和表 3), 分别为 3、4~5、6~9、10~14、15~19 和 ≥20h, 稳定性降雨过程中, 随降雨时间增加, 平均清除率先增后减。无(弱)冷空气降雨过程中, 当降雨时长在 15~19h, 平均清除率达到最大; 显著冷空气降雨过程中, 当降雨时长在 10~14h, 平均清除率达到最大。降雨过程中, 10~14h 平均清除率出现明显跃增, 说明 10h 以上稳定性降雨都能大幅降低 PM_{2.5} 质量浓度, 这与周彬等^[10]在无锡和李凯飞等^[12]在京津冀地区的统计结果一致。韩力慧等^[9]认为长时间降雨清除作用减弱可能是因为降雨期间大气边界层较低, 污染物易累积, 长时间降雨后, 气溶胶粒子浓度和粒径减小, 冲刷作用减弱。参考中国气象局对降雨等级的规定, 将累积降雨量分为 6 个等级(图 4d 和表 3), 分别是 0.3~0.9、1~4.9、5~9.9、10~24.9、25~49.9 和 ≥50mm。降雨过程中, 无(弱)冷空气降雨过程的平均清除率随累积雨量的增加而增加, 即使累积雨量在 0.3~0.9mm, 平均清除率也在 5.11%, 这进一步说明了重庆中心城区无(弱)冷空气降雨对 PM_{2.5} 起到了较好的清除作用。显著冷空气降雨过程的平均清除率随累积雨量的增加呈先减后增趋势, 累积雨量在 0.3~0.9mm 时, 平均清除率达到 20.77%, 这表明冷空气作用在降雨初期 PM_{2.5} 质量浓度变化中占主导作用。随着累积雨量增加, 平均清除率减少, 其主要原因可能是冷空气降雨过程前期显著降低了 PM_{2.5} 质量浓度, 而降雨后期细粒子出现明显吸湿性增长^[31]。

综上所述, 不同影响因素中, 显著冷空气降雨过程的平均清除率明显高于无(弱)冷空气降雨过程。显著冷空气降雨过程在不

同因素的第一个等级就表现出较好的清除效率,且高于第二个等级的平均清除率,这表明,只要出现显著冷空气降雨,就能有效降低 $\text{PM}_{2.5}$ 质量浓度,且小时最大雨量 $\geq 5\text{mm}$ 、降雨时长在 $10\sim 14\text{h}$ 、累积雨量 $\geq 10\text{mm}$ 时,对 $\text{PM}_{2.5}$ 质量浓度清除效果最好。无(弱)冷空气降雨过程的平均清除率随着影响因素等级增加而明显增加,这说明无(弱)冷空气降雨过程受降雨自身条件影响较大,在小时最大雨量 $\geq 5\text{mm}$ 、降雨时长在 $15\sim 19\text{h}$ 、累积雨量 $\geq 25\text{mm}$ 时,对 $\text{PM}_{2.5}$ 质量浓度清除效果最好。

2.1.4 稳定性降雨雨滴谱分布及雨滴清除系数

研究表明,雨滴对气溶胶粒子的清除取决于降雨的强度以及雨滴谱分布、气溶胶谱分布和雨滴与气溶胶粒子的碰并系数。对于细粒子,小雨滴比大雨滴的碰并效率更高^[37,38,39],同时,数值模拟结果显示^[40],越小的雨滴直径和统一的尺度,越有利于雨滴对气溶胶粒子的湿清除。表 4 统计了 2015~2020 年不同等级小时最大雨量稳定性降雨过程($C_b>11.0\mu\text{g}/\text{m}^3$)中雨滴谱微物理特征,总计 351 个有效降雨过程,91315 个雨滴谱观测样本,表中, R^- 为平均雨强, N_t 为数浓度, D^- 和 D_{max} 分别为平均直径和最大直径(谱宽), N_t/N_t^- 和 R^-/R^- 分别为直径 $<1\text{mm}$ 的雨滴对雨滴总数浓度和总降雨强度的贡献(下同)。由表可见,重庆中心城区稳定性降雨过程中,随着降雨强度的增加,雨滴数浓度逐渐减少,而雨滴平均直径和谱宽逐渐增加,但增量较小,主要原因是降雨过程中小雨滴数量极多,直径 $<1\text{mm}$ 的雨滴对总数浓度的贡献在 $82.77\%\sim 99.53\%$,最大小时雨量在 5mm 以下降雨过程中小雨滴对降雨强度的贡献都在 50% 以上。

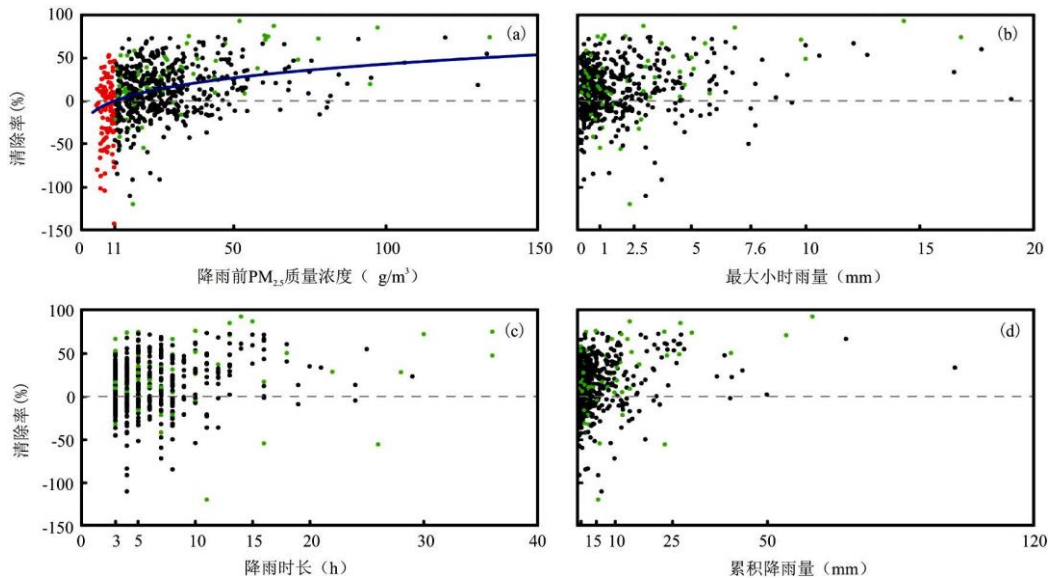


图 4 清除率与降雨前 $\text{PM}_{2.5}$ 质量浓度(a)、最大小时雨量(b)、降雨时长(c)和累积降雨量(d)的关系

注: 红色点为 $C_b\leq 11.0\mu\text{g}/\text{m}^3$ 的过程; 黑色点为 $C_b>11.0\mu\text{g}/\text{m}^3$ 的无(弱)冷空气过程; 绿色点为 $C_b>11.0\mu\text{g}/\text{m}^3$ 的显著冷空气过程。

表 3 平均清除率与不同等级最大小时雨量、降雨时长和累积降雨量的关系

影响因素	分级	无(弱)冷空气过程		显著冷空气过程	
		样本数(个)	平均清除率(%)	样本数(个)	平均清除率(%)
小时最大雨量(mm)	0.1~0.9	203	8.97	27	14.26

	1.0~2.5	141	12.13	21	10.34
	2.6~4.9	69	15.08	13	25.96
	5.0~7.6	23	26.17	5	49.62
	7.7~9.9	7	8.90	1	70.97
	≥10	7	47.50	3	71.78
	平均值	—	19.79	—	40.49
降雨时长(h)	3	116	7.33	7	19.73
	4~5	134	8.06	24	12.03
	6~9	133	12.60	20	21.78
	10~14	46	26.56	9	35.09
	15~19	15	39.01	4	24.95
	≥20	6	25.80	6	32.60
	平均值	—	19.89	—	24.36
累积降雨量(mm)	0.3~0.9	88	5.11	8	20.77
	1.0~4.9	218	9.73	31	11.94
	5.0~9.9	76	16.29	10	2.23
	10.0~24.9	53	21.32	15	32.90
	25~49.9	13	40.62	4	64.52
	≥50	2	50.04	2	81.81
	平均值	—	23.85	—	35.70

图 5 给出了稳定性降雨过程中雨滴数浓度和平均直径与清除率的散点分布, 由图可见, 显著冷空气降雨过程雨滴数浓度多集中在 $N_t < 600\text{m}^{-3}$ 和 $1000 < N_t < 1500\text{m}^{-3}$, 随雨滴数浓度增加清除率变化较小; 无(弱)冷空气降雨过程清除率随雨滴数浓度增加略有上升。显著冷空气和无(弱)冷空气降雨过程雨滴平均直径分布较为均匀, 主要在 0.4~0.8mm 之间, 清除率随平均直径增加变化较小, 这可能与稳定性降雨过程中小雨滴占比较大, 且雨滴谱的变化较小有关^[35]。

表 4 不同小时最大雨量稳定性降雨过程 ($C_b > 11.0 \mu\text{g}/\text{m}^3$) 的雨滴谱微物理特征值

	分级	R^- (mm/h)	N_t (m^{-3})	D^- (mm)	D_{\max} (mm)	N_i/N_t (%)	$R1^-/R^-$ (%)
小时最大雨量(mm)	0.1~0.9	0.44	1158.97	0.42	1.75	99.53	86.07

	1.0~2.5	0.77	1053.88	0.47	1.95	98.54	73.03
	2.6~4.9	1.24	962.35	0.52	2.13	96.34	59.40
	5.0~7.6	1.67	982.29	0.55	2.13	94.40	48.09
	7.7~9.9	2.54	544.32	0.70	2.39	82.77	25.94
	≥ 10	3.10	773.89	0.64	2.70	86.81	22.32

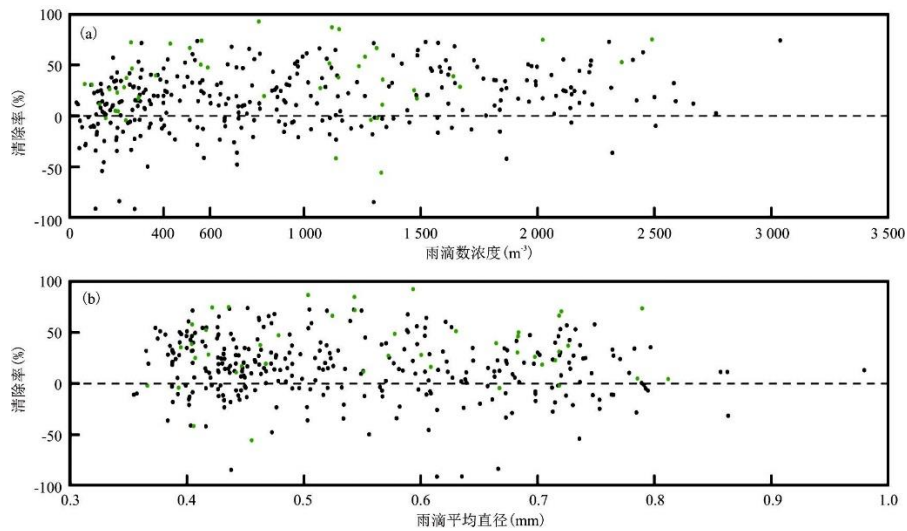


图 5 清除率与雨滴数浓度(a)和平均直径(b)的散点分布

注：黑色点为无(弱)冷空气过程；绿色点显著冷空气过程。

图 6a 是不同降雨等级下雨滴谱分布的对比图，散点代表观测平均值，虚线是 Gamma 函数拟合的结果。可以看出，不同等级降雨的雨滴谱谱型相似， N_0 的取值范围在 $4.35 \times 10^4 \sim 3.40 \times 10^5$ ， μ 的取值范围在 4.84~8.90， σ 的取值范围在 1.09~3.46。从拟合效果来看，平均相关系数为 0.92，这表明重庆中心城区稳定性降雨的雨滴谱都符合 Gamma 分布。按照 (7) 式计算结果显示，雨滴与 $PM_{2.5}$ 气溶胶粒子碰并系数数量级为 10^{-4} ，碰并效率极低，碰并机制以布朗运动为主，惯性碰并极小，这与董群^[8]利用斯托克数计算雨滴对粒径较小气溶胶粒子的碰并结果一致。雨滴对 $0.001 \sim 2.5 \mu m$ 的气溶胶粒子理论清除率在 $10^{-6} \sim 10^{-3} s^{-1}$ 之间(图 6b)，其中对 $0.1 \sim 1 \mu m$ 的气溶胶粒子清除效果最差。由于雨滴谱分布差别较小，不同等级最大小时雨量的雨滴对各粒径气溶胶粒子清除系数差别也较小。

2.2 对流性降雨过程对 $PM_{2.5}$ 的影响

2.2.1 对流性降雨降低 $PM_{2.5}$ 质量浓度的阈值

对流性降雨过程的分类标准^[6]为有雷暴、冰雹、大风、短时强降雨等强对流性天气的降雨，且降雨时长 $\leq 8h$ ，平均雨强 $> 1mm/h$ 。由于对流性降雨主要发生在春夏季，其中夏季发生最多，因此本文主要讨论春季和夏季对流性降雨对 $PM_{2.5}$ 质量浓度的影响。2015~2020 年春夏季对流性降雨过程共有 135 次(表 5)，春夏季对流性降雨后 $PM_{2.5}$ 质量浓度反弹上升的平均占比分别为 44.4%，高于春夏季稳定性降雨后 $PM_{2.5}$ 质量浓度反弹上升的平均占比(39.1%)，分析其主要原因是夏季 $PM_{2.5}$ 质量浓度低及夏季阵性对流

(降雨时间在 1~2h) 较多有关。

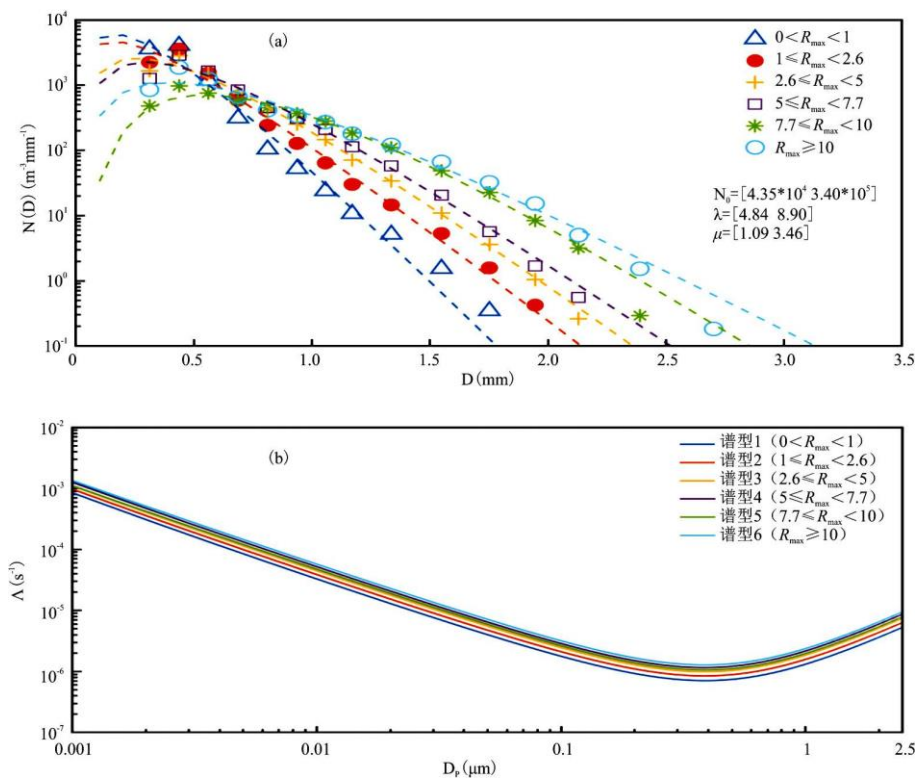


图 6 不同小时最大雨量稳定性降雨的雨滴谱 (a) 和雨滴清除系数 (b) 分布

表 5 对流性降雨条件下不同季节 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度变化

季节	样本数(个)		比例(%)		浓度变化(%)	
	升	降	升	降	升	降
春季	15	24	38.5	61.5	15.4	-18.7
夏季	45	51	46.7	53.3	14.7	-21.2

从春夏季对流性降雨过程中 $\text{PM}_{2.5}$ 质量浓度变化与初始质量浓度、平均小时雨强和降雨时长的箱线图(图 7a)可以看出, 春季影响 $\text{PM}_{2.5}$ 质量浓度的主要因素是初始质量浓度和小时雨强; 夏季, 影响 $\text{PM}_{2.5}$ 质量浓度的主要因素是初始质量浓度和降雨时长。参照上文稳定性降雨过程阈值的选取方法, 春季对流性降雨过程降低 $\text{PM}_{2.5}$ 质量浓度的阈值为初始质量浓度 $\geq 21.2 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 或平均小时雨强 $\geq 6.0 \text{mm}/\text{h}$; 夏季对流性降雨过程降低 $\text{PM}_{2.5}$ 质量浓度的阈值为初始质量浓度 $\geq 27.20 \text{g}/\text{m}^3$ 或降雨时长 $> 3 \text{h}$ 。一般而言, 当出现强对流天气时, 大气垂直上升运动剧烈, 而强的上升运动极有利于气溶胶粒子的扩散和稀释^[49], 故能在很短时间内对不同粒径的颗粒物都有快速而显著的清除作用^[10]。但重庆中心城区仍有 1/3 以上对流性降雨过程 $\text{PM}_{2.5}$ 质量浓度出现反弹上升, 结合散点图(图 7b)来看, 春季, 质量浓度上升(暖色的圆圈)的降雨过程主要集中在初始浓度较低, 平均雨强较小的区域; 夏季, 质量浓度上升的过程主要集中在初始浓度较低和降雨时长较短的区域, 特别是降雨时间在 1~2h。

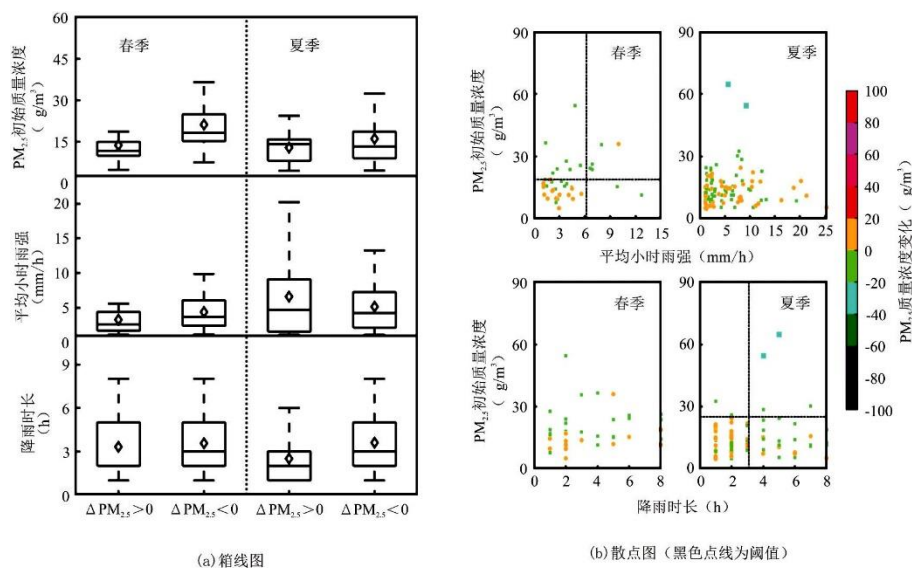


图 7 春夏季对流性降雨 $\text{PM}_{2.5}$ 质量浓度变化与初始质量浓度、平均小时雨强和降雨时长的关系

2.2.2 对流性降雨对 $\text{PM}_{2.5}$ 质量浓度的清除率

参考上文稳定性降雨前 $\text{PM}_{2.5}$ 质量浓度的下限值计算方法, 选取 $C_0 > 13.9 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 的对流性降雨过程统计降雨对 $\text{PM}_{2.5}$ 质量浓度的清除率(图 8), 总计 100 个过程。由于夏季是重庆中心城区 $\text{PM}_{2.5}$ 质量浓度的清洁季, 大部分降雨过程中降雨前 $\text{PM}_{2.5}$ 质量浓度都 $< 30 \mu\text{g}/\text{m}^3$; 最大小时雨量 $< 7.7\text{mm}$ 、降雨时长在 $1\sim 2\text{h}$ 、累计降雨量 $< 10\text{mm}$ 的降雨过程占总降雨过程 50% 以上。由表 6 可见, 对平均清除率影响最为明显的是降雨时长, 当降雨时长在 $1\sim 2\text{h}$ 时, 平均清除率为 -0.10% , 当降雨时长 $\geq 3\text{h}$ 后, 平均清除率在 $24.36\%\sim 28.87\%$, 即只要出现 3h 及以上对流性降雨过程, $\text{PM}_{2.5}$ 质量浓度都能降低约 $1/4$ 。随着最大小时雨量和累积降雨量的增加, 平均清除率也逐渐增加, 这与稳定性降雨相似, 但 $1.0\sim 2.5\text{mm}$ 最大小时雨量和 $1.0\sim 4.9\text{mm}$ 累积降雨量的对流性降雨过程清除率远小于同等级的稳定性降雨, 且平均清除率为负, 查看这两种等级的对流性降雨过程, 绝大部分的降雨时长都在 $1\sim 2\text{h}$, 这说明阵性弱对流性降雨过程对重庆中心城区 $\text{PM}_{2.5}$ 质量浓度影响极小, 这可能是阵性弱对流性降雨持续时间较短, 影响范围较小, 同时, 降雨发生前, $\text{PM}_{2.5}$ 浓度极低, 大气温度较高, 湿度较低, 阵性弱对流性降雨发生后, 气温骤降, 空气湿度陡增, 地面可能出现明显的气流辐合, 不利于 $\text{PM}_{2.5}$ 的水平和垂直扩散^[17]。

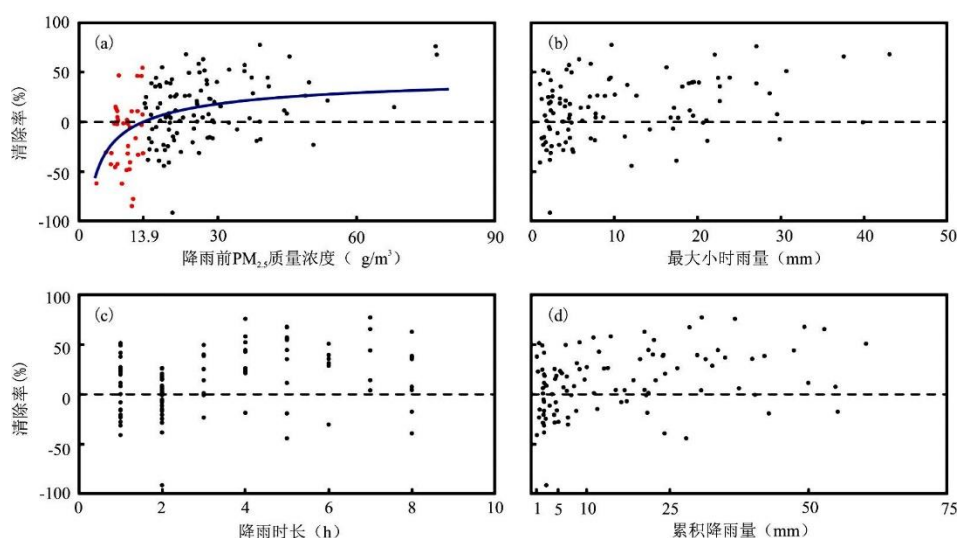


图 8 清除率与降雨前 $\text{PM}_{2.5}$ 质量浓度(a)、最大小时雨量(b)、降雨时长(c)和累积降雨量(d)的散点图

注：a 中红色点为 $C_b \leq 13.9 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 的过程；黑色点为 $C_b > 13.9 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 的无(弱)冷空气过程。

表 6 平均清除率与不同等级最大小时雨量、降雨时长和累积降雨量的关系

	分级	样本数(个)	平均清除率(%)
小时最大雨量(mm)	1.0~2.5	23	-2.42
	2.6~7.6	32	11.41
	7.7~20	27	16.48
	≥ 20	18	30.74
降雨时长(h)	1~2	52	-0.10
	3~4	19	28.36
	5~6	15	28.87
	7~8	14	24.36
累积降雨量(mm)	1.0~4.9	23	-2.07
	5.0~9.9	34	9.88
	10.0~24.9	16	19.78
	24.9~49.9	27	31.51
	≥ 50	18	23.74

2.2.3 对流性降雨雨滴谱分布及雨滴清除系数

表 7 给出了 2015~2020 年不同等级小时最大雨量对流性降雨过程($C_b > 13.9 \mu\text{g}/\text{m}^3$)中雨滴谱微物理特征, 总计 57 个有效降雨过程, 6054 个雨滴谱观测样本, 由表可见, 对流性降雨过程的雨滴平均直径和最大直径远大于稳定性降雨过程, 直径 $<1\text{mm}$ 的雨滴对总数浓度的贡献在 77.23%~95.07%, 但对降雨强度的贡献都在 50%以下, 这表明虽然重庆中心城区对流性降雨过程中小雨滴数量占比较大, 但雨量主要由大雨滴贡献, 同时, 随着小时最大雨量的增加, 大雨滴数量占比和平均直径变化较小。降雨过程中雨滴数浓度多集中在 $N_t < 600\text{m}^{-3}$ (图 9a)区间, 降雨过程清除率随雨滴数浓度增加略有增加。雨滴平均直径主要集中在 0.6~0.9mm(图 9b), 其中, 平均直径在 0.55~0.70mm 的降雨过程清除率基本都为正值, 说明此类降雨过程能有效降低 $\text{PM}_{2.5}$ 质量浓度。

对流性降雨过程雨滴谱拟合中(图 10a), 小时最大降雨量 $\geq 2.6\text{mm}$ 等级的降雨过程雨滴谱分布基本相似, 小时最大降雨量在 1~2.5mm 等级降雨过程拟合雨滴谱与其它等级降雨过程拟合雨滴谱不同, 其主要原因是小时最大降雨量在 1~2.5mm 等级降雨过程中雨滴谱中形变因子 μ 的取值仅为 0.29, 而其它等级降雨过程雨滴谱 μ 的取值在 1.90~2.30 之间。由于雨滴谱中 μ 和 λ 与雨滴谱的宽度呈反比关系, 因此, 对流性降雨过程雨滴谱谱宽大于稳定性降雨过程, 其中, 小时最大降雨量在 1~2.5mm 等级降雨过程谱宽最大。对流性降雨过程雨滴谱 Gamma 拟合的平均相关系数为 0.90, 这说明重庆中心城区对流性降雨的雨滴谱也是符

合 Gamma 分布的。按照 (7) 式计算对流性降雨雨滴清除系数，其分布与稳定性降雨过程相似，雨滴对 $0.001\sim 2.5\mu\text{m}$ 的气溶胶粒子的碰并系数也极小，理论清除率也在 $10^{-6}\sim 10^{-3}\text{s}^{-1}$ 之间 (图 10b)。不同谱型降雨过程雨滴清除系数相差较大，小时最大雨量 $\geq 20\text{mm}$ 的谱型降雨雨滴对各粒径气溶胶粒子的清除系数明显高于其它谱型，而小时最大雨量在 $2.5\sim 7.6\text{mm}$ 的谱型降雨雨滴对各粒径气溶胶粒子的清除系数最小。

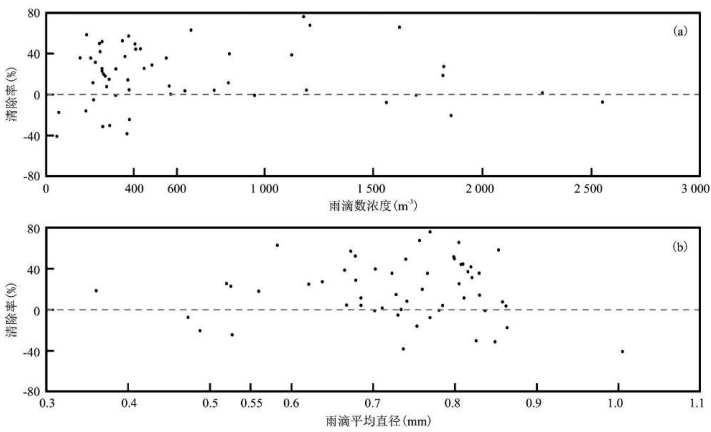


图 9 清除率与雨滴数浓度(a)和平均直径(b)的散点图

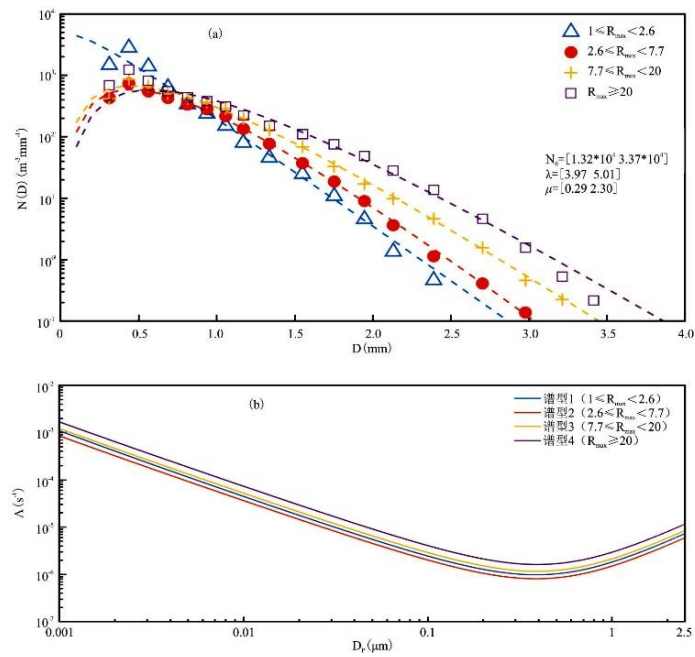


图 10 不同小时最大雨量对流性降雨的雨滴谱(a)和雨滴清除系数(b)分布

表 7 不同小时最大雨量对流性降雨过程 ($C_b > 13.9\mu\text{g}/\text{m}^3$) 的雨滴谱微物理特征值

	分级	R^- (mm/h)	N_t (m^{-3})	D^- (mm)	D_{max} (mm)	N_t/N_i (%)	$R1^-/R^-$ (%)
小时最大雨量(mm)	1.0~2.4	1.53	905.71	0.53	2.39	95.07	40.57

	2.5~7.6	2.09	414.60	0.70	2.98	82.87	23.21
	7.7~20	3.62	513.71	0.75	3.21	78.52	16.65
	≥20	6.52	665.12	0.76	3.41	77.23	10.09

3 结论

(1) 重庆中心城区大部分降雨过程都能有效降低 $PM_{2.5}$ 质量浓度。不同类型降雨过程 $PM_{2.5}$ 质量浓度阈值分析中, 初始质量浓度都是的主要影响因素, 平均小时雨强作为阈值因素主要在春季和秋季, 降雨时长作为阈值因素主要在冬季和夏季。

(2) 显著冷空气稳定性降雨过程中, 冷空气下沉运动及稀释效果与降雨冲刷的共同作用能有效降低 $PM_{2.5}$ 质量浓度; 无(弱)冷空气较强降雨过程主要靠降雨冲刷作用降低 $PM_{2.5}$ 质量浓度; 无(弱)冷空气弱降雨过程中, $PM_{2.5}$ 质量浓度变化的幅度较小, 主要原因是降雨冲刷和 $PM_{2.5}$ 的吸湿性增长共同作用。

(3) 显著冷空气稳定性降雨能快速有效降低 $PM_{2.5}$ 质量浓度, 平均清除率比无(弱)冷空气稳定性降雨过程高 1~2 个等级。无(弱)冷空气稳定性降雨过程受降雨自身条件影响较大, 平均清除率随小时最大雨强、降雨时长和累积雨量的增加而增大。1~2h 阵性弱对流性降雨过程对 $PM_{2.5}$ 质量浓度影响极小, 3h 及以上的对流性降雨过程中 $PM_{2.5}$ 质量浓度能降低约 1/4。

(4) 重庆中心城区降雨雨滴谱符合 Gamma 分布, 稳定性降雨过程中, 不同谱型降雨雨滴对各粒径气溶胶粒子清除系数差别较小。对流性降雨过程中, 小时最大雨量 ≥20mm 的谱型降雨雨滴对各粒径气溶胶粒子的清除系数明显高于其它谱型。

参考文献:

- [1] CARMICHAEL G R, ADHIKARY B, KULKARNI S, et al. Asian aerosols: Current and year 2030 distributions and implications to human health and regional climate change[J]. Environmental Science & Technology, 2009, 43(15): 5811-5817.
- [2] TIE X, ZHANG Q, HE H, et al. A budget analysis of the formation of haze in Beijing[J]. Atmospheric Environment, 2015, 100(jan.): 25-36.
- [3] 秦瑜, 赵春生. 大气化学基础[M]. 北京: 气象出版社, 2003.
- [4] GREENFIELD S M. Rain scavenging of radioactive particulate matter from the atmosphere[J]. Journal of Meteorology, 1957, 14(2): 115-125.
- [5] 李德俊, 熊守权, 柳草, 等. 降水对武汉 2 次空气污染过程的湿清除特征[J]. 中国农学通报, 2017, 33(29): 95-102.
- [6] 吴进, 孙兆彬, 翟亮, 等. 北京地区不同类型降水对气溶胶粒子的影响[J]. 中国环境科学, 2018, 38(3): 812-821.
- [7] 邹长伟, 黄虹, 杨帆, 等. 大气颗粒物和气态污染物的降雨清除效率及影响因素[J]. 环境科学与技术, 2017, 40(1): 133-140.

-
- [8]董群, 赵普生, 陈一娜. 降雨对不同粒径气溶胶粒子碰撞清除能力[J]. 环境科学, 2016, 37(10):3686-3692.
- [9]韩力慧, 张海亮, 张鹏, 等. 北京市春夏季降水及其对大气环境的影响研究[J]. 中国环境科学, 2017, 37(6):2047-2054.
- [10]周彬, 刘端阳, 魏建苏, 等. 降水对气溶胶颗粒物清除作用的初步分析[J]. 长江流域资源与环境, 2015, 24(S1):160-170.
- [11]于彩霞, 邓学良, 石春娥, 等. 降水和风对大气 $PM_{2.5}$, PM_{10} 的清除作用分析[J]. 环境科学学报, 2018, 38(12):59-68.
- [12]李凯飞, 张恒德, 谢永华. 降水对京津冀中南部 PM_{10} 和 $PM_{2.5}$ 清除作用的分析[J]. 干旱区资源与环境, 2019, 33(3):69-74.
- [13]彭红, 秦瑜. 降水对气溶胶粒子清除的参数化[J]. 大气科学, 1992(5):112-120.
- [14]王莉莉, 王跃思, 王迎红, 等. 北京夏末秋初不同天气形势对大气污染物浓度的影响[J]. 中国环境科学, 2010(7):924-930.
- [15]朱乾根, 林锦瑞, 寿绍文, 等. 天气学原理和方法[M]. 气象出版社, 2000:458.
- [16]康汉青, 朱彬, 樊曙先. 南京北郊冬季大气气溶胶及其湿清除特征研究[J]. 气候与环境研究, 2009(5):71-78.
- [17]许建明, 高伟, 瞿元昊. 上海地区降雨清除 $PM_{2.5}$ 的观测研究[J]. 环境科学学报, 2017, 37(9):3271-3279.
- [18]蒲茜, 李振亮, 张悦, 等. 重庆市 O_3 污染日的大气环流分型与传输特征[J]. 中国环境科学, 2021, 41(1):18-27.
- [19]刘永林, 孙启民, 钟明洋, 等. 重庆市主城区 $PM_{2.5}$ 时空分布特征[J]. 环境科学, 2016, 37(4):1219-1229.
- [20]周国兵. 重庆市主城区气象条件对空气污染影响分析及数值模拟研究[D]. 兰州大学, 2014.
- [21]BATTAGLIA A, RUSTEMEIER E, TOKAY A, et al. Parsivel snow observations: A critical assessment[J]. Journal of Atmospheric & Oceanic Technology, 2010, 27(2):333-344.
- [22]王可法, 张卉慧, 张伟, 等. Parsivel 激光雨滴谱仪观测降水中异常数据的判别及处理[J]. 气象科学, 2011, 31(6):732-736.
- [23]朱彬, 马力, 杨军, 等. 重庆冬季大气气溶胶的物理、化学特征[J]. 南京气象学院学报, 2006, 29(5):662-668.
- [24]ARDON D 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[J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2015, 15(16):9159-9171.
- [25]LEMAITRE P, QUEREL A, MONIER M, et al. Experimental evidence of the rear capture of aerosol particles by raindrops[J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2017, 17(6):4159-4176.
- [26]SLINN, W G N, Precipitation scavenging, in: Randerson, D. (Ed.), Atmospheric Science and Power Production[M].

Washington, D. C. :U. S. Department of Energy, 1984, 466-532.

- [27]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, 321.
- [28]沈学勇, 翟崇治, 许丽萍, 等. 利用轨迹模式研究重庆主城区冬季 $PM_{2.5}$ 污染特征[J]. 环境污染与防治, 2016, 38(3):72-76.
- [29]陈小敏, 邹倩, 周国兵. 重庆主城区冬春季降水强度对大气污染物影响[J]. 西南师范大学学报(自然科学版), 2013, 38(7):113-121.
- [30]王妮, 何太蓉, 刘金萍. 重庆城区夏季降水对大气污染物的清除效果分析[J]. 环境工程, 2017, 35(4):69-73.
- [31]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.
- [32]李军, 王京丽, 屈坤. 相对湿度和 $PM_{2.5}$ 浓度对乌鲁木齐市冬季能见度的影响[J]. 中国环境科学, 2020, 40(8):3322-3331.
- [33]白永清, 祁海霞, 刘琳, 等. 武汉大气能见度与 $PM_{2.5}$ 浓度及相对湿度关系的非线性分析及能见度预报[J]. 气象学报, 2016, 74(2):189-199.
- [34]王宗爽, 付晓, 王占山, 等. 大气颗粒物吸湿性研究[J]. 环境科学研究, 2013, 26(4):341-349.
- [35]栾天, 郭学良, 张天航, 等. 不同降水强度对 $PM_{2.5}$ 的清除作用及影响因素[J]. 应用气象学报, 2019, 30(3):25-37.
- [36]曹杨, 刘炜桦, 王晨曦, 等. 成都市降水对大气污染物的清除效果分析[J]. 环境科学研究, 2020, v. 33;No. 265(2):69-75.
- [37]WANG P K, GROVER S N, PRUPPACHER H R. On the effect of electric charges on the scavenging of aerosol particles by clouds and small raindrops[J]. Journal of the Atmospheric Sciences, 1978, 35(9):1735-1743.
- [38]NIETO P, BA GARCIA, JMF DIAZ, et al. Parametric study of selective removal of atmospheric aerosol by below-cloud scavenging[J]. Atmospheric Environment, 1994, 28(14):2335-2342.
- [39]ANDRONACHE C. Estimated variability of below-cloud aerosol removal by rainfall for observed aerosol size distribution[J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2003, 3(6):131-143.
- [40]赵海波, 郑楚光. 水滴清除气溶胶过程的随机算法和数值模拟[J]. 应用数学和力学, 2006, 27(10):1159-1168.
- [41]孙兆彬, 廖晓农, 王占山, 等. 北京地区空气重污染下雾凇和偏东风对 $PM_{2.5}$ 清除作用[J]. 环境科学, 2016, 37(10):3679-3685.