北京市湿沉降特征分析

杨懂艳[1,2], 李秀金[2], 陈圆圆[1], 邹本东[1], 林安国[1]
(1. 北京市环境保护监测中心, 北京 100048; 2. 北京化工大学环境工程系, 北京 100029)

摘要: 通过分析北京市降水中水溶性离子组分的浓度, 研究了 2005 ~ 2009 北京市降水酸化程度及水质变化特征. 北京市 5 a 年均 pH 为 5.19, 总体变化趋势平稳. 5 a 间, 降水中各离子组分含量均有下降趋势, 北京市的环境质量逐步改善; NH_4^+ 和 NO_3^- 在降水中所占比例明显增加, 北京市降水受含 N 污染物排放的影响较大. 季节变化显示, 冬季降雪离子组分含量较高, Ca^{2+} 对降水的中和作用高于 NH_4^+, SO_4^{2-} 是引起降雪酸化的主要原因; 夏季降雨 NH_4^+ 的中和作用大于 Ca^{2+}, NO_3^- 和 SO_4^{2-} 对降水酸化的贡献率相当. 相关分析和因子分析显示, 北京市降水主要受当地污染源排放的 SO_2、NO_x 及 NH_3 的影响; 地质条件及远距离传输对降水酸度起到一定的中和作用.

关键词: 湿沉降; 酸雨; 离子组分; 酸雨频率
中图分类号: X513 **文献标识码**: A **文章编号**: 0250-3301(2011)07-1867-07

Characteristics of Chemical Compositions of Precipitation in Beijing

YANG Dong-yan[1,2], LI Xiu-jin[2], CHEN Yuan-yuan[1], ZOU Ben-dong[1], LIN An-guo[1]
(1. Beijing Municipal Environmental Monitoring Center, Beijing 100048, China; 2. Department of Environmental Engineering, Beijing University of Chemical Technology, Beijing 100029, China)

Abstract: Characteristics of chemical compositions of precipitation in Beijing were analyzed. The average value of pH was 5.19 from 2005 to 2009, showing stable characteristics of acidification with precipitation. The lowest annual average pH was 4.87 in 2008 with the highest acidification frequency of 42% and 23% in Chegongzhuang and Daxing districts respectively. The inorganic ion concentrations declined in 5a, indicating an increasing improvement of air quality in Beijing. The concentrations of NH_4^+ and NO_3^- were found to increase and contributed to the high nitrogen amount in precipitation. Different seasons have influence on composition concentrations. Generally speaking, the ion concentrations in winter were higher that that in summer. SO_4^{2-} was the main factor responsible for the acidification of snow in winter, SO_4^{2-} and NO_3^- had similar contributions to the acidification of precipitation in summer. It was also found that the local pollutants of SO_2, NO_x and NH_3 were major contributors to the acidification of precipitation in Beijing area, local geological conditions and long-distance transfers have important effects on the neutralization of the precipitation.

Key words: precipitation; acid rain; ion components; acidification frequency

降水(雪)能够有效地清除环境空气中的气态或颗粒物样品中的污染物, 从而达到净化空气的目的, 通过研究降水中离子组分浓度的变化可以反映大气污染的水平[1]. 北京市自 1974 年就已开展了湿沉降方面的研究, 虽然北京是传统的非酸雨区, 然而近年的研究结果表明, 北京市酸雨频率有逐年增加的趋势, 且夏季的酸雨频率较高[2,3].

本研究通过分析 2005 ~ 2009 年间降水(雪)中水溶性离子组分的含量, 探讨了北京市湿沉降酸性特征及离子组分月变化规律, 以评价近些年北京市大气环境质量改善状况.

1 监测点位及分析概况

本研究选取 3 个代表性点位对北京市降水进行监测. 其中市区监测点位于北京市海淀区二环与三环之间, 车公庄地区一个 6 层楼顶上. 郊区代表点位于城区南部大兴区一个 4 层楼顶上. 背景监测点位于北京市东北部密云县密云水库库边 1 层楼顶处, 周边绿色植被覆盖、无污染.

2005 ~ 2009 年间市区、南郊和背景点 3 个点位分别用降水自动采样器采集雨(雪)样品、记录降水(雪)量后对 pH、电导率分别进行检测, 收集约 30 mL 降水在聚乙烯塑料瓶中, 0 ~ 4℃ 下贮存、备用. 每月末收集 3 个采样点样品统一进行离子分析, 预留样品经 0.45μm 石英微孔滤膜过滤后进行阴、阳离子测定. 其中阳离子(Na^+、NH_4^+、K^+、Mg^{2+}、Ca^{2+})采用 Dionex IC2000 (CS12), 阴离子(F^-、Cl^-、NO_3^-、SO_4^{2-})采用 Dionex IC3000 (AS18) 分别进行检测, 降水离子年均浓度采用 3 个采样点位体积加权进行计算, 酸雨频率为 pH < 5.6 的降水次数占全年(月)降水次数的百分比. 样品采集和分析的质量保证和质

收稿日期: 2010-03-12; 修订日期: 2010-05-25
作者简介: 杨懂艳(1979 ~), 女, 博士研究生, 工程师, 主要研究方向为固废处理与资源化, E-mail: ydongyan@163.com

量控制措施按照《酸沉降监测技术规范》(HJ/T 165-2004)执行.

2 结果与讨论

2005 ~ 2009 年间,3 个采样点共收集有效雨(雪)水样品 435 个(其中 2005 年 56 个,2006 年 79 个,2007 年 93 个,2008 年 114 个,2009 年 93 个). 统计结果显示,北京市降水主要集中分布在 6 ~ 9 月. 前 4 a,北京市降水量逐年增加,2008 年降水达到 825 mm,2009 年略有下降,5a 内年均降水量为 610 mm.

2.1 降水 pH 及年度变化

表 1 为北京市降水(雪)3 个采样点 pH 范围及雨量加权 pH 年变化情况. 2005 ~ 2009 年间,pH 监测范围变化不明显,5 a 间,年均 pH 交替变化,5 a 内均值为 5.19,pH 总体变化趋势平稳.

表 1 2005 ~ 2009 年间北京市降水 pH 值统计[1)]

Table 1 Range of pH from 2005 to 2009 in Beijing

项目	2005 年	2006 年	2007 年	2008 年	2009 年
pH 范围	4.32 ~ 7.20	4.26 ~ 7.42	4.15 ~ 7.54	4.18 ~ 7.56	4.69 ~ 7.29
pH 均值	5.17	6.18	5.11	4.87	5.64
降水量/mm	388	611	751	825	478

1) pH 为 3 个采样点雨量加权年均值

表 2 为 3 个采样点湿沉降量、降水(雪)次数及酸雨频率统计结果. 空间分布结果表明 3 个采样点的酸雨频率差异较大,城区降水酸性频率较高,背景和郊区酸雨频率普遍偏低. 城区降水酸雨频率高发的原因与北京市城区人口较多、机动车污染严重有直接关系.

表 2 采样点酸雨发生频率统计

Table 2 Distribution of acidification frequency in Beijing

地点	项目	2005 年	2006 年	2007 年	2008 年	2009 年
城区	降水量/mm	428	433	480	770	518
	降水次数/次	20	28	33	43	35
	酸雨频率/%	20	7.1	30	42	31
南郊	降水量/mm	436	618	755	874	538
	降水次数/次	23	25	35	43	36
	酸雨频率/%	0.0	0.0	14	23	0.0
背景点	降水量/mm	250	777	949	831	471
	降水次数/次	13	26	27	28	22
	酸雨频率/%	0.0	7.7	11	11	17

2.2 湿沉降量、电导率、pH 值及酸雨频率相关性及月变化趋势分析

对 3 个采样点位的月均降水量、电导率、pH 及酸雨频率进行相关性检验及月变化趋势分析. 表 3 和图 1(a)显示,降水量与电导率呈负相关性,电导率随降水量的升高而下降;冬季(11 月 ~ 次年 2 月)降水量较低、电导率值较高;夏季(6 ~ 9 月)相反.

表 3 降水量、电导率、pH 值和酸雨频率的月均值相关性检验[1)]

Table 3 Correlations of precipitation, pH, conductivity, acidification frequency in Beijing (monthly volume-weighted average)

	降水量	pH	电导率	酸雨频率
降水量	1.000			
pH	-0.154	1.000		
电导率	-0.595**	-0.070	1.000	
酸雨频率	0.128	-0.863**	-0.042	1.000

1) ** 表示相关性显著($p < 0.01$)

图 1(b)和表 3 所示,月均 pH 和酸雨频率呈明显的负相关性,3 ~ 6 月间月均 pH 有逐渐下降趋势,到 9 月月均 pH 又有所回升;夏季酸雨频率随月均 pH 值下降而上升. 与以往研究结果相同,夏季酸雨频率高发,这主要是因为连续多次降水造成空气中的碱性组分在空气中的停留时间减短,雨水冲刷后,碱性组分浓度降低造成的[4]. 冬季,降雪次数较少,个别月份 pH 较低、酸雨频率较高. 对于城区监测点,2005 年 2 月共计 3 次降雪,1 次为酸性,月均 pH 值为 4.86,酸化频率为 33%. 2006 年 1 月和 2 月降雪的 pH 值也低于月均水平,分别为 4.47 和 5.76,酸雨频率分别为 50% 和 20%;2007 年 12 月降雪 pH 为 4.66,而酸化频率为 67%. 冬季降雪酸化现象

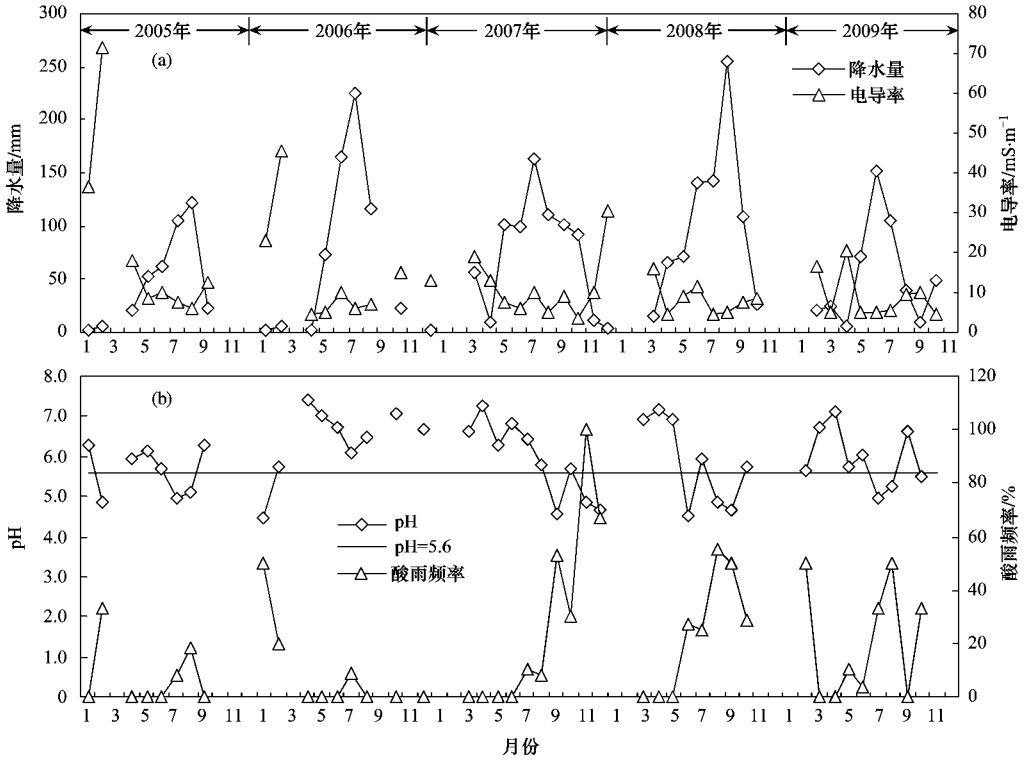


图 1　2005 ~ 2009 年间北京市降水量、电导率、pH、酸雨频率月变化趋势

Fig. 1　Monthly trends of precipitation, conductivity, pH, acidification frequency from 2005 to 2009 in Beijing

严重主要是由于冬季降雪次数较少、采暖期 SO_2 和 NO_x 的排放量增加、空气中 SO_4^{2-} 和 NO_3^- 酸性组分含量增大,致使冬季降雪酸性频率增加[5].

2.3　离子组分浓度水平及年变化趋势分析

表 4 比较了近些年北京与其它一些国家或地区的离子浓度水平. 从表 4 可以看出,北京市年均 pH 高于邻国及东部沿海地区,但 NO_3^- 和 NH_4^+ 平均浓度远远高于中国东部海岸、蒙古、韩国、日本及墨西哥,表明北京地区降水明显受当地含 N 污染物排放的影响. 降水中 SO_4^{2-} 和 Ca^{2+} 浓度水平也处于较高水平,且远远高于邻国韩国和日本等发达国家.

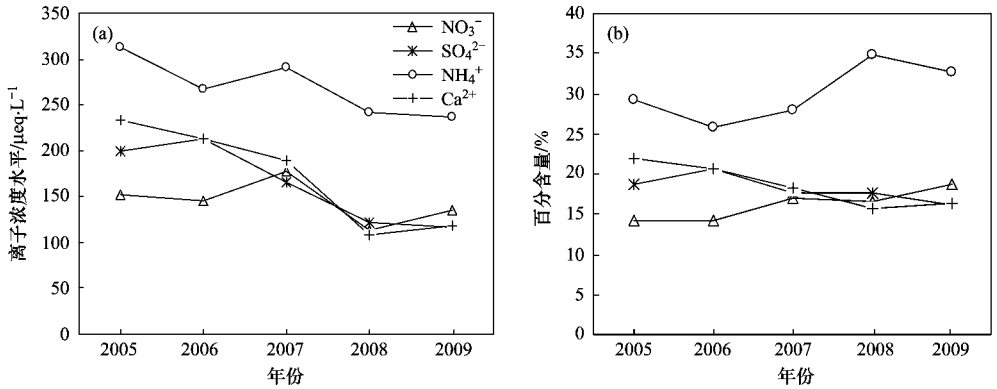
表 4　各国主要城市降水离子组分浓度统计/μeq·L^{-1}

Table 4　Comparison of average ionic composition of precipitation in other countries and districts/μeq·L^{-1}

地点	年份	pH	F^-	Cl^-	NO_3^-	SO_4^{2-}	NH_4^+	Na^+	K^+	Mg^{2+}	Ca^{2+}
伊斯坦布尔[6]	2001 ~ 2002	4. 81	—	125	33. 4	115	12. 8	75. 2	57. 4	99. 6	285
约旦[7]	2006 ~ 2007	6. 91		142	67. 3	112	75. 4	131	85. 2	93. 1	165
韩国[8]	1996 ~ 1998	4. 7		37. 8	46. 7	19. 3	32. 6	19. 3	3. 8	10. 9	26. 2
墨西哥[9]	1987 ~ 1993				41. 5	131	93. 5			9. 6	70. 5
日本[10]	1989 ~ 1993	4. 8		63. 5	44. 4	17. 3	18. 3	14. 1	3. 1	13. 6	16. 0
崾泗(中国东海岸)[11]	2000 ~ 2002	4. 81	6. 92	148	21. 0	41. 6	34. 3	121	6. 81	33. 1	
千里眼(中国东海岸)[11]	2000 ~ 2001	4. 50	7. 68	329	41. 1	126	63. 6	301	16. 6	74. 0	25. 3
北京	2005 ~ 2009	5. 19	15. 6	50. 0	144	160	267	40. 1	22. 4	32. 7	167

5 a 内,水溶性离子平均浓度含量按高低顺序依次为:$NH_4^+ > Ca^{2+} > SO_4^{2-} > NO_3^- > Cl^- > Na^+ > Mg^{2+} > K^+ > F^-$,北京市降水酸度主要受 NH_4^+、Ca^{2+}、SO_4^{2-}、NO_3^- 的影响[12]. NH_4^+ 离子组分所占比例最大,成为对降水起主要中和作用的阳离子,其 5 a 内均值为 267 μeq/L,含量为 29. 7%. 对于其年变化趋势,图 2 可以看出,NH_4^+ 离子浓度水平逐年降低,但其百分含量明显增加. 2005 ~ 2009 年间,Ca^{2+} 浓度水平及所占比例均有明显下降趋势;2008 年所占比例仅为 15. 6%;SO_4^{2-} 和 NO_3^- 浓度含量虽整体呈

下降趋势,但 NO_3^- 所占比例略有上升. 自 1998 年至今,北京已采取了 15 个阶段的大气污染控制措施,在防治烟煤型污染、机动车污染、工业污染、扬尘污染、生态保护和建设等方面取得良好成效,空气质量连续改善. 空气质量的改善,降尘和 TSP 的下降,使大气降水 Ca^{2+} 浓度降低;人为污染源产生含 N 化合物排放到空气中的总量虽然降低,但仍处在较高水平,且受到光化学反应等多重因素的影响,导致降水中的 NO_3^- 和 NH_4^+ 含量仍处在较高水平[13,14].



各组分浓度为 3 个采样点雨量加权平均浓度;百分含量为测定离子占总组分含量的百分比

图 2 降水中主要离子浓度和百分含量年变化趋势

Fig. 2 Trends of Volume-weighted ionic concentration and Percentage from 2005 to 2009

NH_4^+ 离子浓度较高与北京市 NH_3 排放量较大有直接关系. NH_3 排放是农业施肥或人类生活产生粪便的处理效果较差造成的,机动车污染排放的含 N 化合物也是 N 污染的主要来源. Ca^{2+} 浓度下降与北京市空气质量的改善及风沙扬尘天气的明显减少有直接关系. 自 2001 年申奥成功以来,北京履行举办绿色奥运的承诺,在城市建设、环境保护等方面做了大量工作,取得了明显的进展,空气质量也明显好转. 空气质量的改善,大气气溶胶中组分含量下降直接影响了降水中可溶性组分的含量水平. 与 2008 年相比,虽然 2009 年的北京市空气质量二级及好于二级天数达到 285 d,占全年总数的 78.1%,但降水中 Ca^{2+} 和 NO_3^- 的浓度含量仍处在较高水平,如果要实现北京建设"世界城市"的承诺,还需要进一步巩固和加强奥运期间所采取的环境空气质量改善措施,采取更加科学、有效的方法来改善北京的环境空气质量[15].

2.4 离子组分月变化趋势分析

图 3 为测定水溶性离子累积浓度曲线图,由图 3 可以看出,离子累积浓度与降水量呈明显负相关性. 5 a 内离子累积浓度有明显下降趋势,2008 年冬季最高点离子累积浓度含量为 1 951 μeq/L,仅为 2006 年 2 月最高月组分(8 000 μeq/L)的四分之一,这也直接表明北京市空气质量改善的效果是非常显著的. 5a 间,离子累积浓度季节变化特征明显,冬季离子累积浓度较高,夏季较低. 从图 4 主要离子比率分析,Ca^{2+} 与 NH_4^+ 的比值受气候条件影响较大,有明显的季节变化规律;北京冬季多风,受当地地质条件及远距离传输的影响,两者比值在冬季会明显的升高;春季由于风沙的作用,个别月份 Ca^{2+} 与 NH_4^+ 的比值也会较高;夏季由于降水次数较多,降水量大,Ca^{2+} 比例下降,NH_4^+ 比例会明显上升.

SO_4^{2-}/NO_3^- 比值在 2005 ~ 2006 年间变化较大(图 4),2006 年后逐步趋于平稳. 5 a 间,SO_4^{2-} 浓度比例降低而 NO_3^- 浓度比例增加,北京市降水酸度不再以 SO_4^{2-} 为主导,NO_3^- 和 SO_4^{2-} 对降水酸度的贡献相当,北京市大气环境质量已由"二氧化硫控制区"向"复合型污染控制"转变. 冬季,SO_4^{2-} 和 NO_3^- 月均值比率高于同年其它月份;燃煤污染造成冬季二氧化硫排放量较高,直接导致 SO_4^{2-} 对冬季降水酸度的贡献加大. NO_3^- 浓度水平不仅与机动车 NO_x 排放量有直接关系,也是大气环境化学综合作用的产物. $(SO_4^{2-} + NO_3^-)/(NH_4^+ + Ca^{2+})$ 比率基本维持在 0.7 ±0.1 的水平,表明北京市降水酸度同样受到碳酸、甲酸、乙酸等其它酸类物质的影响. $(SO_4^{2-} + NO_3^-)/(NH_4^+ + Ca^{2+})$ 比率在冬季略高,且个别月份比值高于 1;这也说明了北京冬季虽然少雪,但酸性降水(雪)频率高发的原因[16,17];从 2007 年起,两者比率逐步趋于平稳,这与北京市空气质量的逐步改善和维持有直接关系.

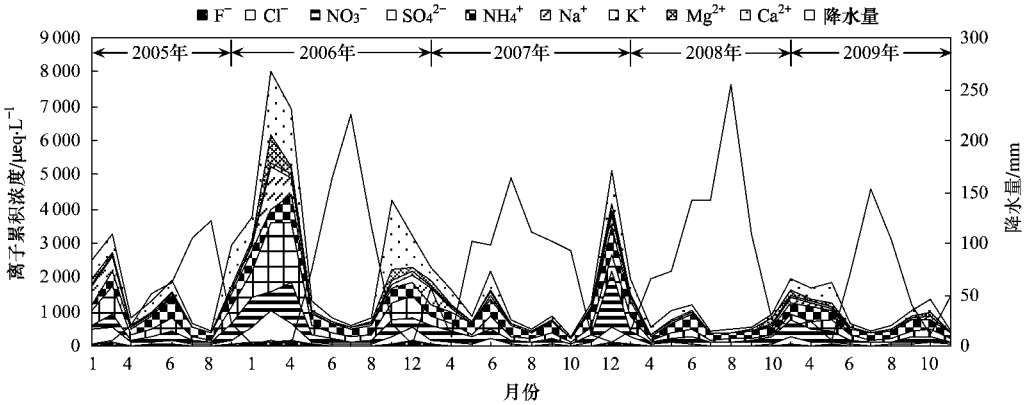


图 3　各主要离子累积浓度月变化趋势

Fig. 3　Trends of accumulative concentrations of total ions

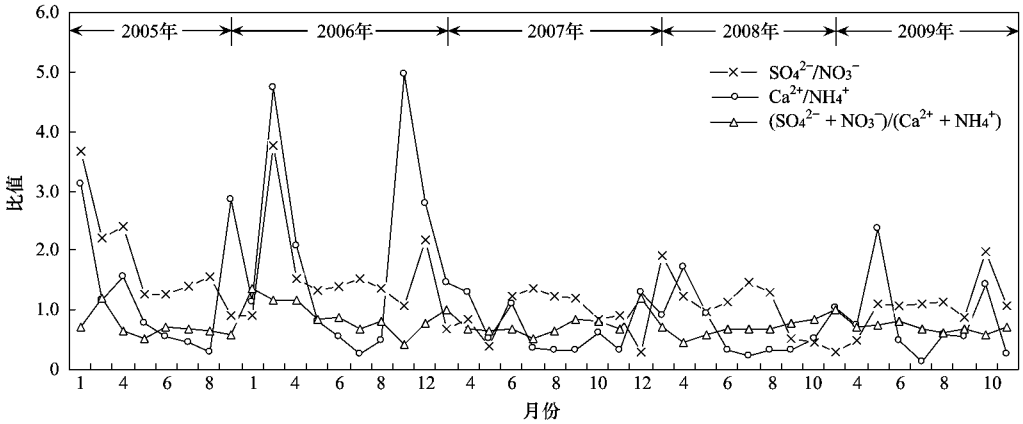


图 4　北京市降水 SO_4^{2-}/NO_3^-、Ca^{2+}/NH_4^+、$(SO_4^{2-}+NO_3^-)/(Ca^{2+}+NH_4^+)$比值月变化趋势

Fig. 4　Monthly trends of ratio of SO_4^{2-}/NO_3^-, Ca^{2+}/NH_4^+, $(SO_4^{2-}+NO_3^-)/(Ca^{2+}+NH_4^+)$ in precipitation in Beijing from 2005 to 2009

2.5　因子相关及主成分分析

表 5 为 363 个样品的可溶性离子组分线性相关分析结果. H^+ 与任何一种阴阳离子相关性均不明显,因降水中含有多种碱性离子,大部分 H^+ 均被中和,导致 H^+ 与 NO_3^- 和 SO_4^{2-} 相关性减弱. SO_4^{2-} 与 NO_3^- 有良好的相关性,同时 SO_4^{2-}、NO_3^- 与 NH_4^+ 和 Ca^{2+} 均具有良好的相关性. NH_4^+ 和 Ca^{2+} 与除 H^+ 外的任何一种阴离子均有良好的相关性,2 种碱性组分对降水的酸度起主要的中和作用[18].

为了区分天然源和人为源对北京市降水化学组分的影响,对北京市降水组分进行了因子分析,使用方差最大化旋转对数据进行处理(SPSS 16.0)得到

表 5　北京市降水可溶性离子相关系数检验[1)]

Table 5　Correlation Matrix of soluble species in Beijing

	H^+	F^-	Cl^-	NO_3^-	SO_4^{2-}	NH_4^+	Na^+	K^+	Mg^{2+}	Ca^{2+}
H^+	1.000									
F^-	−0.065	1.000								
Cl^-	−0.065	0.867	1.000							
NO_3^-	−0.033	0.779	0.767	1.000						
SO_4^{2-}	−0.027	0.899	0.811	0.747	1.000					
NH_4^+	0.023	0.673	0.711	0.669	0.677	1.000				
Na^+	−0.085	0.578	0.666	0.617	0.508	0.355	1.000			
K^+	−0.047	0.600	0.803	0.522	0.608	0.664	0.460	1.000		
Mg^{2+}	−0.076	0.607	0.697	0.495	0.576	0.504	0.508	0.686	1.000	
Ca^{2+}	−0.100	0.823	0.773	0.652	0.709	0.518	0.584	0.512	0.578	1.000

1)双侧检验; $p<0.01$; $n=363$(2005 年间大兴和密云为月混合样品)

3 个主因子,具体分析结果见表 6. 3 个主因子累计贡献率为 92.3%,第一个主因子对降水水质的贡献率为 53.1%,其中 SO_4^{2-} 对主因子的载荷最大,为 0.953. 除 H^+、Na^+、Mg^{2+} 外,其它离子均对主因子 1 有贡献. 表明主因子 1 不仅代表了燃煤、机动车污染等工业、交通对大气环境的影响,也反映了风沙等气候要素对大气环境的贡献. 对于主因子 2(贡献率为 22.3%),NO_3^- 对其加载负荷最大,为 0.830,主要代表了人为污染源排放的 NO_x 对环境的贡献. 而主因子 3 的贡献率为 17.0%,主要包含 Ca^{2+},反映了北京当地的地质条件以及远距离传输对降水离子组分的影响.

表 6 北京市降水主因子分析结果[1)]

Table 6 Results from factor analysis for precipitation in Beijing

项目	贡献率		
	主因子 1	主因子 2	主因子 3
	53.059%	22.310%	16.960%
H^+	-0.007	-0.014	-0.127
F^-	0.796	0.379	0.339
Cl^-	0.690	0.469	0.343
NO_3^-	0.524	0.830	0.142
SO_4^{2-}	0.953	0.275	0.109
NH_4^+	0.609	0.466	0.031
Na^+	0.310	0.552	0.386
K^+	0.559	0.310	0.165
Mg^{2+}	0.510	0.264	0.316
Ca^{2+}	0.575	0.283	0.763

1)主成分分析,方差最大化旋转

2.6 建议

北京市降水离子组分含量有逐年下降的趋势,北京市环境质量持续改善. 但从 2007 年起,北京市的环境质量基本维持在一个恒定的水平,与发达国家相比,还存在一定的差距. 因此,仍需进一步加强对污染物排放的总量控制,以便更好的改善环境质量状况.

含 N 污染物对北京市降水的影响加大,虽然北京市已加强了对含 N 污染物排放总量的控制,但 NH_4^+ 对降水酸度的中和作用增大,含 N 物质的排放对降水酸度的贡献还不清楚. 目前,北京市酸雨研究只局限于湿沉降方面的研究,仍未开展干沉降研究,且尚未开展酸性物质排放对降水酸度的影响机制及模型的研究[19~21]. 因此,只有综合的研究和评估污染物排放、影响机制、相关模型等对降水酸度的影响,才能更好的评估环境质量状况[22].

3 结论

(1)北京市降水存在酸化现象,5a 间 pH 年度范围变化不大,5a 年均 pH 为 5.19. 酸性降水主要发生在夏季,少量发生在冬季,城区酸性降水发生频率高于郊区及背景点位.

(2)5a 间,降水中各测定离子年均雨量加权平均值均有下降趋势,但各测定离子浓度仍处在较高水平. 必须进一步加强和巩固环境质量改善措施,才能持续有效地改善环境质量状况.

(3)降水中 NH_4^+ 离子含量明显升高,Ca^{2+} 含量略有下降,NH_4^+ 成为对降水酸度起主要中和作用的阳离子. 因子分析结果表明,北京市降水是多重因素综合作用的结果. 北京市降水污染物组分受当地 SO_2、NO_x 以及 NH_3 排放总量的影响较大;如果要改善降水酸度,除有效降低燃煤、机动车的 SO_2、NO_x 排放总量,还要进一步加强对降水酸度影响机制及模型的研究.

参考文献:

[1] 王文兴,丁国安. 中国降水酸度及离子浓度的时空分布[J]. 环境科学研究,1997, **10**(2):1-6.

[2] 金蕾,徐谦,林安国,等. 北京市近二十年湿沉降特征变化趋势分析[J]. 环境科学学报, 2006,**26**(7): 1195-1202.

[3] 王文兴, 张婉华. 论北京降水的酸性[J]. 环境科学研究, 1997, **10**(4): 6-9.

[4] Arsene C, Olariu R I O, Mihalopoulos N. Chemical composition of rainwater in the northeastern Romania, Iasi region (2003-2006) [J]. Atmospheric Environment, 2007, **41**: 9452-9467.

[5] Okay C, Akkoyunlu B O, Tayan Ç M. Composition of wet deposition in Kaynarca, Turkey [J]. Environmental Pollution, 2002, **118**:401-410.

[6] Başak B, Alagha O. The chemical composition of rainwater over Büyükçekmece Lake, Istanbul [J]. Atmospheric Research, 2004, **71**:275-288.

[7] Al-Khashman O A. Chemical characteristics of rainwater collected at a western site of Jordan [J]. Atmospheric Research, 2009, **91**:53-61.

[8] Lee B K, Hong S H, Lee D S. Chemical composition of precipitation and wet deposition of major ions on the Korean peninsula[J]. Atmospheric Environment, 2000, **34**: 563-575.

[9] Baez A P, Belmont R D, Padilla H G. Chemical composition of precipitation at two sampling sites in Mexico: A 7-year study [J]. Atmospheric Environment, 1997, **31**: 915-925.

[10] Sakata M, Asakura K. Factors contributing to seasonal variation in wet deposition fluxes of trace elements at sites along Japan Sea coast [J]. Atmospheric Environment, 2009, **43**: 3867-3875.

[11] Zhang G S, Zhang J, Liu S M. Chemical composition of atmospheric wet depositions from the Yellow Sea and East China Sea [J]. Atmospheric Research, 2007, **85**: 84-97.

[12] 叶小峰, 王自发, 安俊岭,等. 东亚地区降水离子成分时空分布及其特征分析[J]. 气候与环境研究, 2005, **10**:115-123.

[13] 冯硕清. 中国酸雨状况和自然成因综述及防治对策探究

[J]. **云南地理环境研究**, 2004, **16**:25-28.

[14] **樊后保. 世界酸雨研究概况**[J]. **福建林学院学报**, 2002, **22**:371-375.

[15] **樊后保. 世界酸雨控制技术与策略**[J]. **南昌工程学院学报**, 2005, **24**:20-29.

[16] **蓝惠霞, 周少奇, 廖雷,等. 酸雨形成机制及影响因素探讨**[J]. **四川环境**, 2003, **22**:41-43.

[17] Han Z W, Ueda H, Sakurai T. Model study on acidifying wet deposition in East Asia during wintertime [J]. Atmospheric Research, 2006, **40**: 2360-2373.

[18] Al-Khashman O A. Study of chemical composition in wet atmospheric precipitation in Eshidiya area, Jordan [J]. Atmospheric Environment, 2005, **39**: 6175-6183.

[19] Kim J, Cho S Y. A numerical simulation of present and future acid deposition in North East Asia using a comprehensive acid deposition model [J]. Atmosphere Environment, 2003, **37**: 3375-3383.

[20] Civerolo K L, Brankov E, Rao S T, *et al*. Assessing the impact of the acid deposition control program [J]. Atmospheric Environment, 2001, **35**: 4135-4148.

[21] Guicharnaud R, Paton G I. An evaluation of acid deposition on cation leaching and weathering rates of an Andosol and a Cambisol [J]. Journal of Geochemical Exploration, 2006, **88**: 279-283.

[22] **齐文启, 席俊清, 汪志国,等. 酸雨研究的现状和发展趋势**[J]. **中国环境监测**, 2002, **18**: 6-11.