ISSN 0250-3301 CODEN HCKHDV

环境科学

(HUANJING KEXUE)

ENVIRONMENTAL SCIENCE

第36卷 第2期

Vol.36 No.2

2015

中国科学院生态环境研究中心 主办

科学出版社 出版

中国期刊方阵 双奖期刊 中华人民共和国新闻出版总署

环境科学
(HUANJING KEXUE) ENVIRONMENTAL SCIENCE
第36卷 第2期
2015年2月15日

目 次

霾与非霾期间汞在不同粒径颗粒物上的分布特征 …… 朱琼宇,程金平,魏雨晴,薄丹丹,陈筱佳,江璇,王文华(373)
大气传输路径对上甸子本底站气溶胶光学特性的影响 …… 蒲维维,石雪峰,马志强,赵秀娟,张小玲,徐晓峰(379)
近3年太原市夏季降水的化学特征研究 …… 郭晓方,崔阳,王开扬,何秋生,王新明(388)
太原市 $PM_{2.5}$ 中有机碳和元素碳的污染特征 …… 刘珊,彭林,温彦平,白慧玲,刘凤娴,史美鲜,李丽娟(396)
青海省西宁市和天峻县大气颗粒物中有机氯农药和类二噁英多氯联苯的水平与分布 ……
…… 李秋旭, 何畅, 马召辉, 马丽花, 扎西卓玛, 王英, 金军(402)
北京10个常绿树种颗粒物吸附能力研究 …… 王兵,张维康,牛香,王晓燕(408)
人工湿地空气微生物群落碳源代谢特征 …… 宋志文,王琳,徐爱玲,吴等等,夏岩(415)
春季融雪补给后巩乃斯河水物理化学性质空间分布特征研究 …… 刘翔,郭玲鹏,张飞云,马杰,牟书勇,赵鑫,李兰海(421)
青藏高原湖泊小流域水体离子组成特征及来源分析 …… 李鹤, 李军, 刘小龙, 杨曦, 张伟, 王洁, 牛颖权(430)
亚热带深水水库——龙滩水库季节性分层与富营养化特征分析 ……
…… 张垒,李秋华,黄国佳,欧腾,李钥,吴迪,周黔兰,高廷进(438)
长江河口水库沉积物磷形态、吸附和释放特性 …… 金晓丹,吴昊,陈志明,宋红军,何义亮(448)
黄河口溶解无机碳时空分布特征及影响因素研究 …… 郭兴森,吕迎春,孙志高,王传远,赵全升(457)
苕溪干流悬浮物和沉积物的磷形态分布及成因分析 …… 陈海龙,袁旭音,王欢,李正阳,许海燕(464)
滇池表层沉积物氮污染特征及其潜在矿化能力 ……
…… 孟亚媛,王圣瑞,焦立新,刘文斌,肖焱波,祖维美,徐天敏,丁帅,周童(471)
城郊排水沟渠溶质传输的暂态存储影响及参数灵敏性 …… 李如忠,钱靖,董玉红,唐文坤,杨继伟(481)
艾比湖表层沉积物重金属的来源、污染和潜在生态风险研究 …… 张兆永,吉力力·阿不都外力,姜逢清(490)
工矿型绿洲城郊排污渠沉积物重金属的形态分布规律及风险评价 ……
…… 臧飞,王胜利,南忠仁,王兆炜,任业萌,王德鹏,廖琴,周婷(497)
山东省典型工业城市土壤重金属来源、空间分布及潜在生态风险评价 … 戴彬,吕建树,战金成,张祖陆,刘洋, 周汝佳(507)
UV协同 ClO_2 去除三氯生及其降解产物的研究 …… 李玉瑛,何文龙,李青松,金伟伟,陈国元,李国新(516)
氯化铁絮凝-直接过滤工艺对地下水中As(Ⅴ)的去除机制研究 …… 康英,段晋明,景传勇(523)
负载纳米零价铁铜藻基活性炭的制备及其去除水中Cr(Ⅵ)的研究…… 曾淦宁,武晓,郑林,伍希,屠美玲,王铁杆,艾宁(530)
磁性石墨烯吸附水中 Cr(Ⅵ)研究 …… 刘伟,杨琦,李博,陈海,聂兰玉(537)
TiO_2@酵母复合微球固定床吸附荧光增白剂-VBL的研究 …… 吴菲,张凯强,白波,王洪伦,索有瑞(545)
MnO_2/CFP复合电极的制备及电吸附 Pb^{2+} 特性的研究 …… 刘方园,胡承志,李永峰,梁乾伟(552)
吸附相反应技术制备微弱光响应的多组分掺杂 TiO_2 催化剂 …… 王挺,祝轶琛,孙志轩,吴礼光(559)
掺铁 TiO_2 纳米管阵列模拟太阳光光电催化降解双酚A的研究…… 项国梁,喻泽斌,陈颖,徐天佐,彭振波,刘钰鑫(568)
天然矿物负载 Fe/Co 催化 H_2O_2 氧化降解阳离子红3R …… 马楠,刘华波,谢鑫源(576)
臭氧微气泡处理酸性大红3R废水特性研究 …… 张静,杜亚威,刘晓静,周玉文,刘春,杨景亮,张磊(584)
碳源类型、温度及电子受体对生物除磷的影响 …… 韩芸,许松,董涛,王斌帆,王显耀,彭党聪(590)
低温低溶解氧 EBPR 系统的启动、稳定运行及工艺失效问题研究 …… 马娟,李璐,俞小军,魏雪芬,刘娟丽(597)
O池溶解氧水平对石化废水 A/O 工艺污染物去除效果和污泥微生物群落的影响 ……
…… 丁鹏元,初里冰,张楠,王星,王建龙(604)
改善污泥脱水性能的丝状真菌的分离及其促进污泥脱水的机制初探 …… 周雨珺,付豪逸,范先锋,王振宇,郑冠宇(612)
热碱处理对污水处理厂污泥特性的影响研究 …… 杨世东,陈霞,刘操,肖本益(619)
不同退化程度羊草草原碳收支对模拟氮沉降变化的响应 ……
…… 齐玉春,彭琴,董云社,肖胜生,贾军强,郭树芳,贺云龙,闫钟清,王丽芹(625)
地表臭氧浓度升高对旱作农田 N_2O 排放的影响 …… 吴杨周,胡正华,李岑子,陈书涛,谢燕,肖启涛(636)
亚热带次生林不同土壤呼吸组分的多年观测研究 …… 刘义凡, 陈书涛, 胡正华, 沈小帅, 张旭(644)
川中丘陵县域土壤氮素空间分布特征及其影响因素 …… 罗由林,李启权, 王昌全,李冰,张新,冯文颖,翁倩,吴冕(652)
黄土丘陵区土地利用变化对深层土壤活性碳组分的影响 …… 张帅,许明祥,张亚锋,王超华,陈盖(661)
汶川地震灾区不同气候区土壤微生物群落碳源代谢多样性 …… 张广帅,林勇明,马瑞丰,邓浩俊,杜锟,吴承祯,洪伟(669)
土壤电动修复的电极空间构型优化研究 …… 刘芳,付融冰,徐珍(678)
有机氯农药污染场地挖掘过程中污染物的分布及健康风险 … 张石磊, 薛南冬, 杨兵, 李发生, 陈宣宇, 刘博, 孟磊(686)
水稻不同生育期根际及非根际土壤砷形态迁移转化规律 …… 杨文弢, 王英杰, 周航, 易开心, 曾敏, 彭佩钦, 廖柏寒(694)
植物根系质外体溶液的提取方法研究:以多环芳烃为例 …… 朱满党,都江雪,乐乐,李金凤,杨青青,陆守昆,占新华(700)
垂序商陆叶细胞壁结合锰机制研究 …… 徐向华,刘翠英,李平,郎漫,赵小艳,杨建军,宫敏(706)
1株筛自柴油污染土壤的铜绿假单胞菌对萘的降解特性研究 …… 刘文超,吴彬彬,李晓森,卢滇楠,刘永民(712)
CdSe/ZnS量子点对斑马鱼胚胎发育的毒性效应 …… 陈幕飞,黄承志,蒲德永,郑朝依,袁开米,金星星,张耀光,金丽(719)
锯齿新米虾对 Cu^{2+} 和毒死蜱毒性的生理响应 …… 李典宝,张玮,王丽卿,张瑞雷,季高华(727)
同步衍生超声乳化微萃取气相色谱法测定环境水样中的苯胺类化合物 …… 田立勋,戴之希,王国栋,翁焕新(736)
热水环境中 Na^+ 活化斜发沸石吸附钙离子除硬过程研究 …… 张硕,王栋,陈远超,张兴文,陈贵军(744)
区域经济-污染-环境三维评价模型的构建与应用 …… 樊新刚,米文宝,马振宁(751)
《环境科学》征订启事(401) 《环境科学》征稿简则(437) 信息(489,522,726,735)

近 3 年太原市夏季降水的化学特征研究

郭晓方[1],崔阳[1],王开扬[1],何秋生[1*],王新明[2]

(1. 太原科技大学环境与安全学院,太原 030024; 2. 中国科学院广州地球化学研究所有机地球化学国家重点实验室,广州 510640)

摘要: 本研究采集了 2011 ~ 2013 年太原市夏季 66 场降水样品,分析了 pH 值、电导率和水溶性阴阳离子,探讨了太原市夏季降水的化学组成及来源. 结果表明,近 3 年太原市夏季降水 pH 值范围为 4.63 ~ 8.02,加权平均值为 5.19; 2011 ~ 2013 年酸雨频率分别为 37.0%、31.2% 和 17.4%. 太原夏季降水的化学组成以 SO_4^{2-}、NO_3^-、Ca^{2+} 和 NH_4^+ 为主,阴离子 SO_4^{2-} 和 NO_3^- 加权平均浓度分别占阴离子总浓度的 67.2% 和 22.0%,阳离子 Ca^{2+} 和 NH_4^+ 加权平均浓度分别占阳离子总浓度的 55.1% 和 29.0%; 降水中 SO_4^{2-}、NO_3^-、Ca^{2+} 和 NH_4^+ 浓度水平随年度有明显的下降趋势. 近 3 年 SO_4^{2-}/NO_3^- 的当量浓度比分别为 2.97、3.06 和 3.08,平均值为 3.02,说明太原市夏季酸性降雨类型为硫酸和硝酸复合型,且硝酸盐的贡献逐年增强. 通过中和因子分析,表明太原市夏季降水中 Ca^{2+} 和 NH_4^+ 对酸性中和起主导作用,但 Mg^{2+} 的作用不可忽略. 太原市夏季降水中水溶性化学组分主要与燃煤排放有关; 结合气团的后向轨迹分析表明太原市夏季降水主要受山西省内南部低空运行的短距离输送气团的控制; 西南和东南气团是太原市夏季降水中水溶性化学组分的主要来源. 为了有效改善太原市的空气质量,太原南部及本地焦化企业和燃煤电厂污染物的排放应给予关注.

关键词: 太原; 降水; 化学特征; 中和因子; 后向轨迹

中图分类号: X517 **文献标识码**: A **文章编号**: 0250-3301(2015)02-0388-08 **DOI**: 10.13227/j.hjkx.2015.02.003

Chemical Characteristics of 3-year Atmospheric Precipitation in Summer, Taiyuan

GUO Xiao-fang[1], CUI Yang[1], WANG Kai-yang[1], HE Qiu-sheng[1*], WANG Xin-ming[2]

(1. School of Environment and Safety, Taiyuan University of Science and Technology, Taiyuan 030024, China; 2. State Key Laboratory of Organic Geochemistry, Guangzhou Institute of Geochemistry, Chinese Academy of Sciences, Guangzhou 510640, China)

Abstract: The chemical characteristics of the precipitation in Taiyuan in summer of 2011-2013 were investigated. The results showed that the pH of precipitation varied from 4.63 to 8.02 with a volume-weighted mean of 5.19. The frequency of acid rain was 37.0%, 31.2% and 17.4%, respectively, in 2011-2013. SO_4^{2-} and NO_3^- were dominant anions in the precipitation, which accounted for 67.2% and 22.0% of the total anions, respectively. While Ca^{2+} and NH_4^+ were dominant cations in the precipitation, which accounted for 55.1% and 29.0% of the total cations, respectively. There were evident declining trends in the concentration of SO_4^{2-}, NO_3^-, Ca^{2+} and NH_4^+ in the precipitation over the study period. The mean ratio of SO_4^{2-} to NO_3^- in summer precipitation was 3.02, indicating that the acid rain was of sulfuric-nitrous mixed type, however, NO_3^- was very important for the acidity of rain water. Neutralization factors (NF) were calculated to show that Ca^{2+} and NH_4^+ were the predominant neutralizers in rainwater samples, but Mg^{2+} could also not be negligible. The correlation analysis revealed that coal combustion was the dominant source of chemical composition of rainwater in summer of Taiyuan. The back trajectory analysis demonstrated that the air pollutants of Taiyuan were from the local plants and the coal coking plants in the southern Taiyuan basin. However, to improve the air quality in this city, both industrial emissions from thermal power plants and coal coking plants in Taiyuan basin need to be controlled.

Key words: Taiyuan; precipitation; chemical characteristics; neutralization factors; backward trajectory

近年来,人们对降水酸化问题的关注不断增强,大气降水化学组成的研究受到广泛重视[1]. 大气降水过程是大气污染物的主要去除方式,降水的化学组成来源于雨滴形成过程中对云中气溶胶的溶解以及降水过程中对低层气溶胶的冲刷,近地表雨水化学组成与当地的大气污染组成有直接的相关性,能够反映大气环境特征及其污染状况[2]. 从 20 世纪 80 年代开始,国内大中城市逐步开展了降水中化学组成特征研究,结果表明我国降水中水溶性离子浓度处在较高水平,尤其是致酸离子 SO_4^{2-} 和 NO_3^-,这与我国以煤炭为主要的能源结构有关. 胡敏等[3]报道了 SO_4^{2-}、NO_3^-、NH_4^+ 和 Ca^{2+} 是北京降水中主要

收稿日期: 2014-07-29; **修订日期**: 2014-09-23

基金项目: 国家自然科学基金项目(41172316,41401584); 国家教育部重点项目(211026); 山西省青年科技研究基金项目(2011021025-2,2014021035-2); 山西省回国留学人员科研项目(2011080); 太原科技大学校青年科技研究基金项目(20133004)

作者简介: 郭晓方(1984 ~),男,博士,讲师,主要研究方向为大气干湿沉降地球化学,E-mail:xf-170@163.com

* 通讯联系人,E-mail:heqs@tyust.edu.cn

的离子，平均浓度分别为 521、174、376 和 397 μeq·L^{-1}，SO_4^{2-} 和 NO_3^- 是降水中主要的致酸组分. 艾东升等[4]分析了上海市 2 年夏季降水化学特征，酸雨频率在 50% 以上，其中，SO_4^{2-}、NO_3^- 和 NH_4^+ 在降水中占的比例较高，表明上海大气环境中二次污染严重. 张林静等[5]报道了沈阳市降水的化学组成，SO_4^{2-}、NH_4^+ 和 Ca^{2+} 是降水中主要的阴阳离子，其中，SO_4^{2-} 和 NO_3^- 主要来源于人为输入. 降水的化学组成研究表明燃煤排放成为我国降水中水溶性离子的主要来源[6,7]. 据报道[8]，燃煤贡献了全国烟尘排放量的 70%，SO_2 排放量的 85%，NO_x 排放量的 67%，CO_2 排放量的 80%.

太原市是我国煤炭重工业城市，是全国空气污染最严重的城市之一[9]. 近几年，太原市加大了大气污染防治力度，实行了严格的污染排放标准，空气质量有所好转. 2012 年主要污染物可吸入颗粒物和 SO_2 年均浓度与 2010 年相比分别下降了 10.1% 和 17.6%[10]. 但由于特殊的地理位置和自然环境以及特殊的工业结构、能源结构等多种因素制约，太原市环境空气质量仍处于高污染水平. 如贾小花等[11]报道了太原市采暖期 $PM_{2.5}$ 污染特征，与北京、天津、广州、南京、西安等城市采暖期 $PM_{2.5}$ 的平均质量浓度相比，太原市 $PM_{2.5}$ 污染最严重. Li 等[12]通过航测报道了太原市近地面(0 ~ 1 500 m)大气中 SO_2 浓度范围为 5.6 ~ 40 μg·m^{-3}，最大值接近国家环境空气质量 24 h 平均值一级标准值 50 μg·m^{-3} (GB 3095-2012). 张啸[13]采集了 2013 年 7 ~ 11 月太原市降水，分析了降水中 16 种优控的 PAHs，结果表明雨水 $\sum$16PAHs 浓度为25 542 ng·L^{-1}，其中溶解态为15 751 ng·L^{-1}，颗粒态为9 790 ng·L^{-1}，远高于国内外城市降水的报道水平. 降水过程是去除大气中污染物的重要途径之一，然而目前对太原市降水中化学特征研究还鲜见报道. 太原属于典型的温带大陆性气候，夏季降雨量占全年降雨量的 70% 左右，且太原夏季的降水受沙尘天气带来的碱性气溶胶的影响最小. 因此，本研究选取近 3 年太原夏季降水化学组成为对象，分析降水的酸性成因，探讨化学成分的主要来源，以期为太原市未来的大气环境治理提供参考.

1　材料与方法

1.1　研究区域概况

太原市(111°30′ ~ 113°09′E，37°27′ ~ 38°25′N)位于山西省中央，太原盆地的北部，太原西、北、东三面环山，中、南部为河谷平原，全市整个地形北高南低呈簸箕形，平均海拔约 800 m. 太原市为典型的温带大陆性气候，年平均降水量为 420 ~ 456 mm，其中 70% 降雨量集中在夏季(6 ~ 8 月).

1.2　样品采集与分析

采样点地处太原市的西北部，采样器设置在太原科技大学科技楼楼顶，距地面高度约 30 m，周围较开阔，没有明显局地污染源，见图 1. 样品的采集与保存按照国家标准 GB 13580.2-1992《大气降水样品的采集与保存》规范执行. 采样使用 UNS130/E 降水降尘自动采样仪(Eigenbrodt). 采样仪器的漏斗和收集降水的聚乙烯塑料瓶在每次采样前均用去离子水清洗干净，避免降水样品受到污染. 在 2011 ~ 2013 年，每年 6 ~ 8 月采集降水，共收集 66 场降水(2011 年 27 场，2012 年 16 场，2013 年 23 场)，获得 66 个降水样品.

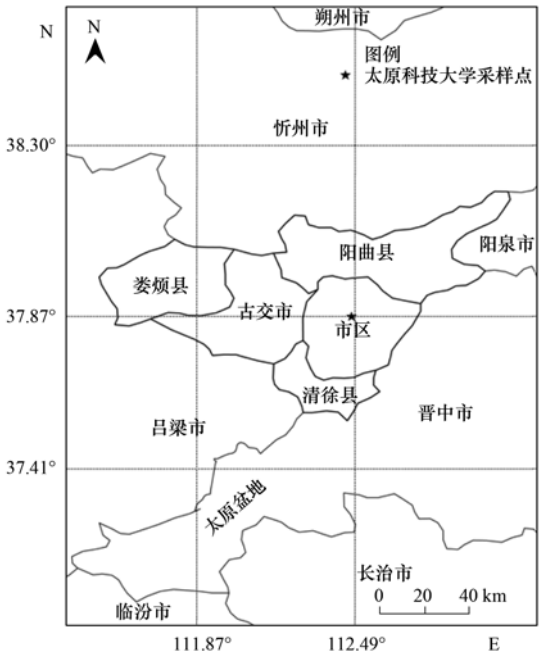

图 1　采样点示意

Fig. 1　Location of the sampling site

每次降水结束后 1 h 内把样品取回实验室，用雷磁 PHS-3C 测定 pH 值；用 FE30K 型电导率仪(METTLER TOLEDO)测定 EC 值. 剩余样品用 0.45 μm 微孔滤膜过滤后于 4℃ 冰箱保存. 采用离子色谱(Dionex，ICS-90)检测降水中的主要阴离子(F^-、Cl^-、NO_3^-、SO_4^{2-})和阳离子(Na^+、NH_4^+、K^+、Mg^{2+}、Ca^{2+}). 阴阳离子分析柱分别为 AS9-HC 和 SCS1，进样量为 10 μL. F^-、Cl^-、NO_3^-、SO_4^{2-}、

Na^+、NH_4^+、K^+、Mg^{2+}、Ca^{2+} 的检测限分别为 0.05、0.03、0.01、0.01、0.03、0.05、0.10、0.10、0.10 mg·L^{-1}.

1.3 后向轨迹分析

后向轨迹是根据大气气团在一定时间内运动路径来分析降水气团的来源和传输途径[14]. 利用美国空气质量实验室(NOAA ARL)提供的 GDAS 数据,并运用 TrajStat 软件进行模拟计算(http://ready.arl.noaa.gov/HYSPLIT.php). 以太原市万柏林区太原科技大学校园采样点(37.872° N, 112.486°E)为起点,对近 3 年太原市夏季 66 次降水气团来源做降水云团 500 m 高度以上 48 h 的后向轨迹分析[15].

1.4 数据质量控制

离子平衡是对降水化学组分数据质量评价的重要参数,根据美国环境保护署规定,离子浓度范围在 50 ~ 100 μeq·L^{-1}时,可接受的离子差为 30% ~ 60%;离子浓度 >100 μeq·L^{-1}时,可接受的离子差为 15% ~30%. 按该标准对 66 场降水样品进行检查,有 10 场降水的阴阳离子偏差超过了可接受的范围,其余降水样品阴阳离子偏差都小于 30%,近 3 年研究期间降水的雨量加权阴阳离子总浓度比值为 94%,说明本研究阴阳离子基本平衡,分析过程不存在主要离子的缺失.

2 结果与讨论

2.1 降水的 pH 值和电导率特征

图 2 显示了 2011 ~2013 年太原市夏季降水的 pH 值频率分布与降雨量的关系. 降水 pH 值范围为 4.63 ~8.02,降水量加权平均 pH 值为 5.19. 在降水 pH 值的分组中,pH >7.0 的 pH 范围降雨频率达到 31.8%,但相对应的降水量只占总降雨量的 12.6%;pH <5.6 的酸雨发生频率为 28.7%,相对应的降水量却占到总降雨量的 59.6%. 降水 pH 值反映了阴阳离子平衡的结果,降水中离子在不同的降雨量下具有不同的去除方式. 当降雨量较小时,可能主要以云下冲刷为主,颗粒物中碱性物质对降水酸度起到缓冲作用,降水 pH 值较高;当降雨量大时,在降雨的中后期,起中和作用的碱性颗粒冲刷殆尽,降水主要反映了云水特征,表现出较强的酸性[4,16].

2011 年夏季 27 场降水的 pH 值范围在 4.77 ~ 7.21 之间,降雨量加权平均 pH 值为 5.21,有 10 场降雨 pH 值在 5.6 以下,酸雨的发生频率为 37.0%. 2012 年夏季 16 场降水 pH 值范围在 4.74 ~8.02 之间,降雨量加权平均 pH 值为 5.13,有 5 场降水 pH 值在 5.6 以下,酸雨的发生频率为 31.2%. 2013 年夏季 23 场降雨 pH 值范围在 4.63 ~7.95 之间,降雨量加权平均 pH 值为 5.20,有 4 场降雨 pH 值在 5.6 以下,酸雨的发生频率为 17.4%. 以上分析表明近 3 年太原市夏季降水酸雨的发生频率有降低的趋势,这与近几年山西省环境状况公报[17]结果相一致.

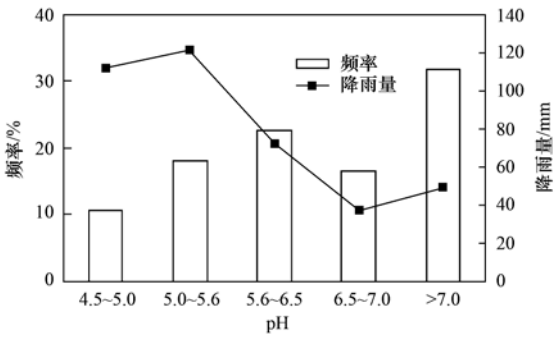

图 2 太原市近 3 年夏季降水 pH 值频率分布与降雨量

Fig. 2 Frequency distribution of pH and rainfall amount in precipitation in summer of Taiyuan 2011-2013

降水样品电导率数值与雨水中阴离子当量(A_E)和阳离子当量(C_E)总和呈正相关(图 3),说明降水电导率主要是由降雨中水溶性离子组分贡献的. 降水样品电导率在 27.1 ~1 021 μS·cm^{-1}之间,降雨量加权平均值为 69.6 μS·cm^{-1},不同降雨事件的电导率差别很大,这可能与降雨量,降雨频率以及降雨期间大气污染状况有关. 太原市夏季降雨电导率远高于我国降水背景点瓦里关山的平均电导率 14.8 μS·cm^{-1}[18];另外,也高于同处于北方城市北京平均电导率 52.2 μS·cm^{-1}[3],这反映出太原市大气污染显著.

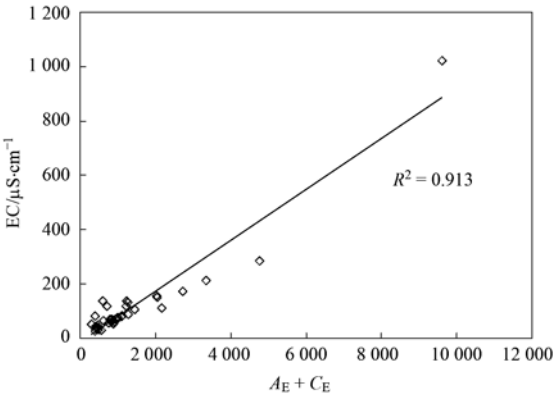

图 3 太原市近 3 年夏季降水 EC 与阴阳离子当量之和的相关性

Fig. 3 Correlation of EC and the total ions concentration in precipitation in summer of Taiyuan 2011-2013

2.2　降水中的阴、阳离子浓度特征及年度变化

从表 1 可知，太原市 2011 ~ 2013 年夏季降雨中降雨量加权离子平均浓度大小顺序为：$SO_4^{2-} > Ca^{2+} > NH_4^+ > NO_3^- > Mg^{2+} > Cl^- > Na^+ > F^- > K^+$. SO_4^{2-} 和 Ca^{2+} 是太原市夏季降水中最主要的离子，加权平均浓度分别为 299.2 μeq·L^{-1} 和 264.9 μeq·L^{-1}，对离子总浓度贡献分别为 32.3% 和 28.6%. 而 NH_4^+、NO_3^-、Mg^{2+}、Cl^-、Na^+、F^- 和 K^+ 分别占离子总浓度的 15.2%、10.7%、4.6%、3.3%、2.4%、1.7% 和 1.1%. SO_4^{2-} 浓度显著高于其他阴离子，占阴离子总浓度的 67.2%；NO_3^- 对无机阴离子总量贡献为 22.0%，表明该区致酸性物质主要是硫酸盐和硝酸盐. 阳离子中 Ca^{2+} 浓度最高，占阳离子总浓度的 55.1%；NH_4^+ 对无机阳离子总量贡献为 29.0%. 以上结果表明，SO_4^{2-}、Ca^{2+}、NO_3^- 和 NH_4^+ 是太原夏季降雨的主导离子.

2011 年夏季降雨中 SO_4^{2-}、Ca^{2+}、NO_3^- 和 NH_4^+ 加权平均浓度分别为 370.9、326.7、124.7 和 161.7 μeq·L^{-1}，而 2013 年分别为 240.0、263.5、77.9 和 109.7 μeq·L^{-1}，与 2011 年相比，降低幅度分别达 35.3%、19.3%、37.5% 和 32.2%. 从图 4 可以看出，近 3 年太原市夏季降水降雨量变化趋势平稳，然而，降雨中 SO_4^{2-}、Ca^{2+}、NO_3^- 和 NH_4^+ 浓度水平在年度间有明显的下降趋势. 这可能与近几年太原市大力调整产业结构和能源结构导致空气中主要污染物浓度总体呈下降趋势有关[10].

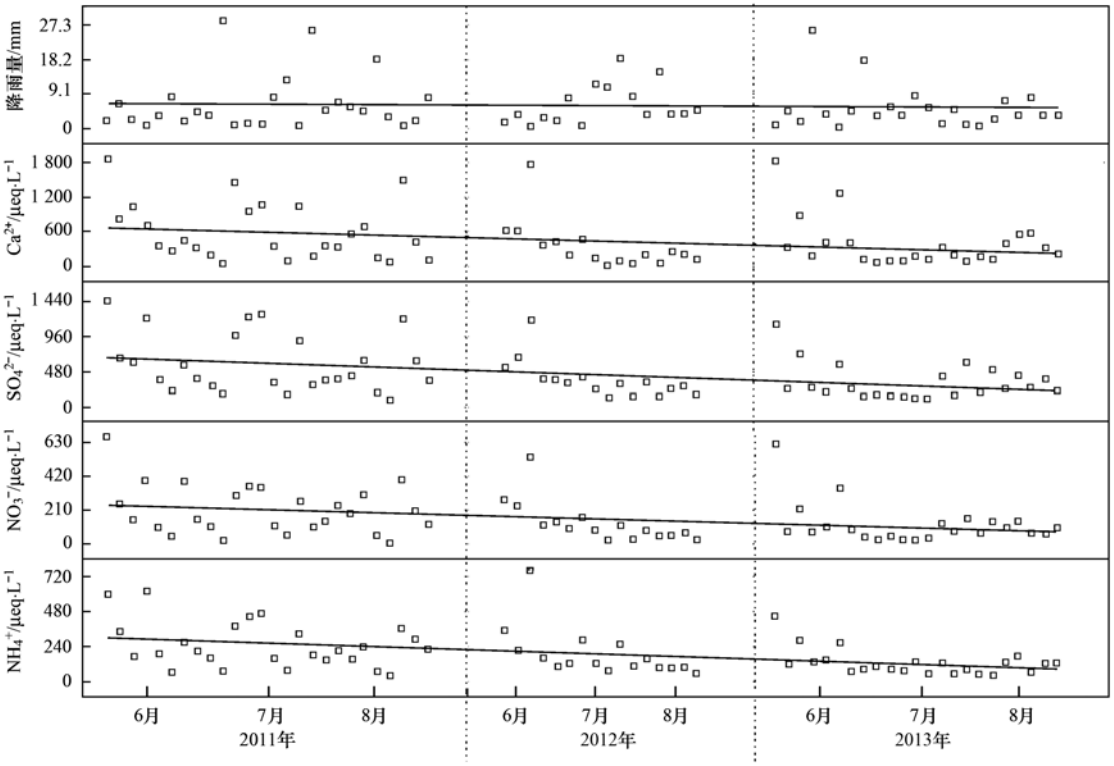

图 4　太原市近 3 年夏季降雨中主要离子浓度及降雨量变化

Fig. 4　Trends of VWM concentrations of major ions in precipitations and rainfall amount in summer of Taiyuan 2011-2013

将太原 2011 ~ 2013 年夏季降雨的 pH、离子浓度和我国其他地区比较（见表 1）. 太原市夏季降雨加权平均 pH 值呈弱酸性，高于我国南方酸雨城市，如上海（4.68）和广州（4.34）；但远低于同处的北方城市，如北京（6.00）、沈阳（6.89）和西安（5.83），表明太原市夏季降雨受到酸性物质的污染.

太原市夏季降雨中离子总浓度水平与同处于北方的城市，如西安、北京和沈阳等相当，总体水平较高；与上海和广州等沿海城市相比，太原市夏季降雨离子总浓度水平为上海和广州的 2.6 倍和 2.3 倍，说明太原夏季降雨污染程度要比南方城市严重得多，这与太原与上海、广州不同的气候条件和能源结构有重要的关系. 太原夏季降雨 SO_4^{2-} 和 Ca^{2+} 浓度与西安接近，略低于北京和沈阳，但远高于上海和广州等南方城市. 广州和上海位于亚热带季风气候区内，夏季降水量大，降水频繁，污染物不易在空气中累积；而太原虽然近几年环境空气质量得到改善，但还是我国传统的能源重化工基地，燃煤向大气中排放污染物浓度较高[13]，各种污染物容易在大气中累积，导致降雨中离子浓度较高.

表 1 太原市 2011 ~ 2013 年夏季降水雨量加权离子平均浓度与其他地区比较/μeq·L^{-1}

Table 1 VWM pH and VWM concentrations of ions in precipitations in summer of Taiyuan 2011-2013 and some major Chinese cities/μeq·L^{-1}

地区	降雨期	pH	F^-	Cl^-	NO_3^-	SO_4^{2-}	Ca^{2+}	K^+	Mg^{2+}	Na^+	NH_4^+	SO_4^{2-}/NO_3^-
太原	2011 ~ 2013 年夏季	5.19	15.8	31.0	99.2	299.2	264.9	10.5	42.2	22.4	140.9	3.0
上海[4]	2009 年夏季	4.68		42.6	48.1	102.5	39.3	4.5	9.6	11.3	97.9	2.1
丽江[19]	2006 年夏季			39.4	12.9	262.7	150.5	14.6	19.2	27.0		20.4
广州[6]	2005 年夏季	4.34	11.7	15.6	46.7	162.1	91.4	8.1	7.5	13.9	54.6	3.5
西安[20]	2009 年夏季	5.83	6.9	39.3	67.5	303.6	225.6	13.7	37.6	30.3	171.0	4.5
北京[21]	2001 ~ 2005 年	6.00	15.4	34.9	106.0	314.0	209.0	13.8	48.4	22.5	236.0	3.0
沈阳[5]	2007 年	6.89	58.1	85.0	73.9	330.0	291.2	15.0	66.9	39.9	175.1	4.5

2.3 降雨酸性成因

SO_4^{2-} 和 NO_3^- 是降雨中的主要的致酸因素,主要来自人为排放的 SO_2 和 NO_x. 太原夏季降水 SO_4^{2-} 和 NO_3^- 的雨量加权平均浓度比值为 3.02,最小值 1.44,最大值 12.7,与 1987 年相比(SO_4^{2-}/NO_3^- 为 19.02)[22],降低幅度达 84%,说明近几年太原市夏季雨水中的主导酸性离子仍是 SO_4^{2-},但是 NO_3^- 的贡献在增强. 这与我国其他城市降水中 SO_4^{2-}/NO_3^- 当量比保持下降的趋势是一致的,如 1997 ~ 2007 年上海市降水中 SO_4^{2-}/NO_3^- 当量比已经从 1997 年的 7.42 下降到 2007 年的 3.33[4].

太原市夏季雨水 SO_4^{2-}/NO_3^- 当量比与国内其他城市相比处于中等水平(表 1),说明太原市夏季降雨为硫酸和硝酸复合型. 这与太原市近年来污染企业的搬迁、能源结构调整以及燃煤脱硫等控制措施有关,表现在 SO_2 排放得到较好控制,据统计,太原市大气中 SO_2 年均浓度从 2009 年的 0.075 mg·m^{-3}降到了 2012 年的 0.056 mg·m^{-3}; 另外,太原市城区机动车保有量快速增长,机动车尾气污染较为突出,城市大气中 NO_2 年均浓度从 2009 年的 0.022 mg·m^{-3} 升高到了 2012 年的 0.026 mg·m^{-3}[10]. 以上分析表明,太原市夏季降雨酸度仍以硫酸型为主,但硝酸型对降雨酸化的贡献逐年在增强.

在我国北方城市降雨中,降水酸度被碱性颗粒物中的 $CaCO_3$ 和 CaO 中和现象较为普遍[23]. 以往研究认为 Ca^{2+}、NH_4^+ 和 Mg^{2+}是主要中和降雨酸性的离子. 为了评价各种碱性物质对降雨酸度的中和作用,采用 Possanzini 提出的中和因子(neutralization factor)算法[24]:

$$NF_x = \frac{[X]}{[SO_4^{2-}] + [NO_3^-]}$$

式中,NF 为中和因子,X 为需要评价的离子,各离子单位为 μeq·L^{-1}.

太原夏季降雨中 Ca^{2+}、NH_4^+ 和 Mg^{2+}的加权平均中和因子分别为 0.66、0.35 和 0.10,这说明太原降雨中,起主要中和作用的是 Ca^{2+} 和 NH_4^+,Mg^{2+}的中和作用相对较小. 图 5 显示采样期间所有降雨样品 Ca^{2+}、NH_4^+ 和 Mg^{2+}对酸性中和的贡献,Ca^{2+}对降雨酸性中和的贡献均高于 75%,NH_4^+ 对酸性中和贡献除了 4 次降雨外,其他均高于 25%,而 Mg^{2+}对酸性中和贡献均处于 25% 以下. 虽然,太原降雨中 Ca^{2+}和 NH_4^+ 对酸性中和起主导作用,但 Mg^{2+}的作用不可忽略.

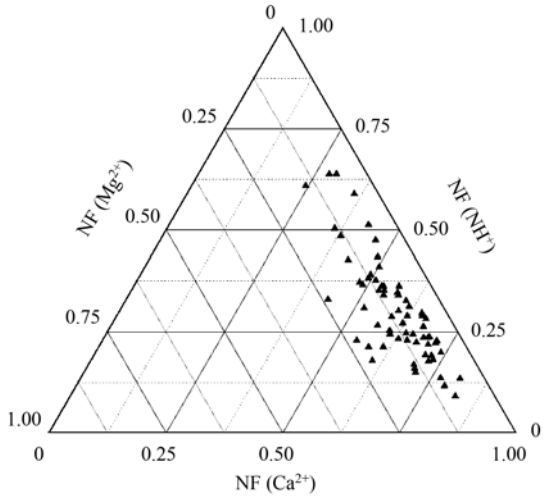

图 5 Ca^{2+}、Mg^{2+}、NH_4^+ 中和因子三角图

Fig. 5 Triangular diagrams of NF for Ca^{2+}, Mg^{2+} and NH_4^+

2.4 降水中离子相关关系及来源

表 2 中计算了降雨中离子之间的相关系数. SO_4^{2-} 和 NO_3^- 的相关系数为 0.951,这可能由于它们的前体物 SO_2 和 NO_x 有一定的共同来源以及相似的光化学反应途径. 同时,SO_4^{2-} 还与 Ca^{2+} 和 Mg^{2+}具有很好的相关性,说明具有相同来源且 SO_4^{2-} 在大气中主要以 $CaSO_4$ 和 $MgSO_4$ 的形式存在. NH_4^+ 与 SO_4^{2-} 和 NO_3^- 的相关性较好,相关系数分别为 0.772 和 0.851,其他地区研究发现 NH_4^+ 主要来源

于农业生产、生物质燃烧、动物排泄物释放等[25]，但在太原，煤燃烧、煤气化和煤焦化等过程中废气的泄漏可能是其主要来源[26]，NH_4^+ 在大气中可能主要以 NH_4NO_3 和 NH_4SO_4 的形式存在. F^- 与 SO_4^{2-} 和 NO_3^- 相关性较好，相关系数分别为 0.635 和 0.682，说明太原夏季降雨中 F^- 与燃煤排放有关，这与田晶等[20]研究西安降水 F^- 来源分析结果相一致. Na^+ 与 Mg^{2+} 和 Ca^{2+} 相关系数均在 0.8 以上，但与海洋源 Cl^- 的相关系数只有 0.513，这可能由于太原作为内陆城市，东面有太行山脉的阻挡，使太原市受海洋气团的影响较小，Na^+ 与 Cl^- 主要受本地排放源的影响.

表 2　近 3 年太原夏季降水离子组分的相关关系[1)] (n = 66)

Table 2　Correlation coefficients among ionic constituents in precipitation in summer of Taiyuan 2011-2013

	Na^+	K^+	Mg^{2+}	NH_4^+	Ca^{2+}	F^-	Cl^-	NO_3^-	SO_4^{2-}
Na^+	1								
K^+	0.572 **	1							
Mg^{2+}	0.948 **	0.688 **	1						
NH_4^+	0.734 **	0.603 **	0.764 **	1					
Ca^{2+}	0.847 **	0.632 **	0.925 **	0.788 **	1				
F^-	0.658 **	0.719 **	0.743 **	0.607 **	0.722 **	1			
Cl^-	0.513 **	0.235	0.404 **	0.516 **	0.317 **	0.384 **	1		
NO_3^-	0.799 **	0.625 **	0.892 **	0.851 **	0.955 **	0.682 **	0.318 **	1	
SO_4^{2-}	0.816 **	0.537 **	0.889 **	0.772 **	0.951 **	0.635 **	0.230	0.951 **	1

1) * * 表示 0.01 水平上显著相关；* 表示 0.05 水平上显著相关

3　气团后向轨迹分析

本研究以太原市万柏林区太原科技大学采样点(37.872°N，112.486°E)为起点，对 2011 ~ 2013 年太原夏季 66 场降雨气团来源做了降雨云团 500 m 高度 48 h 的后向轨迹分析. 从表 3 可知，太原降水气团主要来自西南和东南气团，降雨次数占到总降雨次数的 86%，降雨量更是占到总降雨量的 89%，说明影响太原市夏季降水化学成分的降雨气团主要来源于太原市西南方向，次要来源于太原市东南方向. 受西南气团和东南气团影响的降雨主要水溶性离子浓度远低于西北气团，这主要由于西北气团影响太原夏季降雨的降雨量均较小，受局地污染源的影响较大，因此降雨主要离子浓度均较高.

近 3 年太原市夏季 19 次酸性降雨事件中有 11 次来源于太原市的西南方向，有 5 次来源于太原的东南方向. 分析西南和东南方向气团后向轨迹发现(图 6)，气团轨迹运行高度较低(低于 500 m)，气团

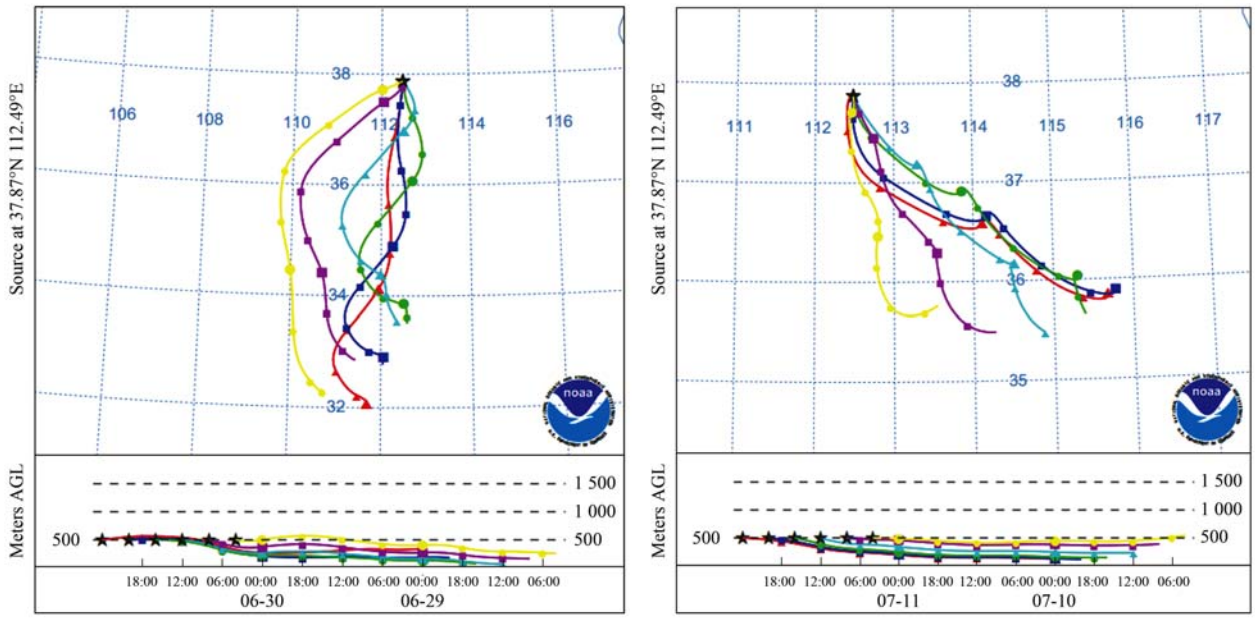

图 6　太原市夏季酸性降水气团的典型后向轨迹

Fig. 6　Typical air mass backward trajectories of acid precipitation in summer of Taiyuan

轨迹运行路径较短,说明太原市区主要受到山西省内南部低空运行的短距离输送气团的控制. 结合山西省地形分析,东面分布太行山脉,大部分海拔在1 200 m以上,西面有吕梁山的阻挡,大部分海拔在1 000 m以上. 西南气团沿太原盆地到达太原,沿途经过临汾、孝义、介休和汾阳等山西省的主要焦化区域,在此区域的焦炭产量占到山西省总产量的70%以上,空气污染较为严重. 东南气团经山西的晋城、长治和晋中等地,在此区域分布有大型火力发电厂(阳城电厂、漳泽电厂等)和焦化企业,大气中污染物的浓度也较高. 另外,除了远距离输送外,太原市本地污染源对夏季降雨中水溶性离子的贡献也较大. 总之,太原市夏季降雨中水溶性离子污染主要受到汾河流域,特别是太原盆地焦化厂、热电厂等企业排放污染物的扩散与输送的影响.

表3 不同来源气团降水pH值和主要离子加权平均浓度

Table 3 The pH value and ionic concentrations of precipitation samples with air masses from four typical transport pathways in Taiyuan

气团来源	降雨数/次	降雨量/mm	pH	SO_4^{2-}/μeq·L^{-1}	NO_3^-/μeq·L^{-1}	Ca^{2+}/μeq·L^{-1}	NH_4^+/μeq·L^{-1}
西南	40	246.5	5.15	285.6	90.0	246.9	131.4
东南	17	103.6	5.27	346.3	127.2	283.7	166.8
东北	4	34.0	5.18	202.1	44.4	180.8	69.5
西北	5	9.1	5.40	494.1	234.1	637.3	226.8

4 结论

(1)近3年太原市夏季降水pH值范围为4.63~8.02,加权平均值为5.19, 2011~2013年酸雨频率分别为37.0%、31.2%和17.4%. 降水的化学组成以SO_4^{2-}、NO_3^-、Ca^{2+}和NH_4^+为主,阴离子SO_4^{2-}和NO_3^-加权平均浓度分别占阴离子总量的67.2%和22.0%,阳离子Ca^{2+}和NH_4^+加权平均浓度分别占阳离子总量的55.1%和29.0%. 太原市夏季降水中SO_4^{2-}、NO_3^-、Ca^{2+}和NH_4^+浓度水平随年度有明显的下降趋势.

(2)SO_4^{2-}和NO_3^-是太原夏季降水的主要致酸离子,降水SO_4^{2-}/NO_3^-为3.02,说明太原市夏季酸性降雨类型为硫酸和硝酸复合型,并且硝酸盐的贡献逐年增强,值得重点关注. 太原市夏季降雨中Ca^{2+}和NH_4^+对酸性中和起主导作用,但Mg^{2+}的作用不可忽略.

(3)太原市夏季降雨中水溶性化学组分主要与燃煤排放有关. 气团的后向轨迹表明太原市夏季降雨主要受山西省内南部低空运行的短距离输送气团的控制,西南和东南气团是太原市夏季降雨中水溶性化学组分的主要来源. 为了改善太原市的空气质量,太原盆地焦化企业和燃煤电厂污染物的排放应给予关注.

参考文献:

[1] Zhang X Y, Jiang H, Zhang Q X, *et al*. Chemical characteristics of rainwater in northeast China, a case study of Dalin [J]. Atmospheric Research, 2012, **116**: 151-160.

[2] 刘君峰, 宋之光, 许涛. 广州地区雨水化学组成与雨水酸度主控因子研究[J]. 环境科学, 2006, **27**(10): 1998-2002.

[3] 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, 2005, **35**(2): 169-176.

[4] 艾东升, 郑祥民, 周立旻, 等. 近2年上海市夏季降水地球化学特征研究[J]. 环境科学, 2010, **31**(9): 2002-2009.

[5] 张林静, 张秀英, 江洪, 等. 沈阳市降水化学成分及来源分析[J]. 环境科学, 2013, **34**(6): 2081-2088.

[6] Huang D Y, Xu Y G, Peng P A, *et al*. Chemical composition and seasonal variation of acid deposition in Guangzhou, South China: Comparison with precipitation in other major Chinese cities [J]. Environmental Pollution, 2009, **157**(1): 35-41.

[7] Xiao H W, Xiao H Y, Long A M, *et al*. Chemical composition and source apportionment of rainwater at Guiyang, SW China [J]. Journal of Atmospheric Chemistry, 2013, **70**(3): 269-381.

[8] You C F, Xu X C. Coal combustion and its pollution control in China [J]. Energy, 2010, **35**(11): 4467-4472.

[9] Xie R K, Seip H M, Wibetoe G, *et al*. Heavy coal combustion as the dominant source of particulate pollution in Taiyuan, China, corroborated by high concentrations of arsenic and selenium in PM_{10}[J]. Science of the Total Environment, 2006, **370**(2-3): 409-415.

[10] 太原市环境保护局. 太原市环境空气质量公报[EB/OL]. http://www.tyshbj.com.cn/hbj/hjjc/index.asp·leibie=%B4%F3%C6%F8%BC%E0%B2%E2, 2010-2012.

[11] 贾小花, 解静芳, 马翔, 等. 太原市冬季$PM_{2.5}$水溶性组分污染特征分析[J]. 中国环境科学, 2013, **33**(4): 599-604.

[12] Li W J, Shi Z B, Zhang D Z, *et al*. Haze particles over a coal-burning region in the China Loess Plateau in winter: Three flight missions in December 2010 [J]. Journal of Geophysical Research, 2012, **117**, D12306, doi: 10.1029/2012JD017720.

[13] 张啸. 太原市雨水中PAHs的污染特征及来源分析[D]. 太原: 太原科技大学, 2014.

[14] Shen Z X, Zhang L M, Cao J J, *et al*. Chemical composition, sources, and deposition fluxes of water-soluble inorganic ions obtained from precipitation chemistry measurements collected at an urban site in northwest China [J]. Journal of Environmental Monitoring, 2012, **14**(11): 3000-3008.

[15] Walker J T, Aneja V P, Dickey D A. Atmospheric transport and wet deposition of ammonium in North Carolina [J]. Atmospheric Environment, 2000, **34**(20): 3407-3418.

[16] 肖红伟, 肖化云, 王燕丽. 贵阳大气降水化学特征及来源分析[J]. 中国环境科学, 2010, **30**(12): 1590-1596.

[17] 山西省环境保护厅. 山西省环境状况公报[EB/OL]. http://www. sxhb. gov. cn/news. do·action = info&id = 25400, 2010-2013.

[18] 汤洁, 薛虎圣, 于晓岚, 等. 瓦里关山降水化学特征的初步分析[J]. 环境科学学报, 2000, **20**(4): 420-425.

[19] 李宗省, 何元庆, 贾文雄, 等. 丽江市夏季降水化学组成分析[J]. 环境科学, 2009, **30**(2): 362-367.

[20] 田晶, 沈振兴, 张琨, 等. 西安市春、夏季大气降水的化学组成和来源分析[J]. 西安交通大学学报, 2011, **45**(5): 108-113.

[21] Yang F, Tan J, Shi B Z, *et al*. Five-year record of atmospheric precipitation chemistry in urban Beijing, China [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2012, **12**(4): 2025-2035.

[22] 冯养云. 山西省大气降水水质评价[J]. 环境监测管理与技术, 2003, **15**(4): 23-25.

[23] Larssen T, Carmichael G R. Acid rain and acidification in China: the importance of base cation deposition [J]. Environmental Pollution, 2000, **110**(1): 89-102.

[24] Possanzini M, Buttini P, Di Palo V. Characterization of a rural area in terms of dry and wet deposition [J]. Science of the Total Environment, 1988, **74**: 111-120.

[25] 肖红伟, 肖化云, 王燕丽, 等. 典型污染城市 9 d 连续大气降水化学特征: 以贵阳市为例[J]. 环境科学, 2010, **31**(4): 865-870.

[26] Xie R K, Seip H M, Liu L, *et al*. Characterization of individual airborne particles in Taiyuan City, China [J]. Air Quality, Atmosphere & Health, 2009, **2**(3): 123-131.

HUANJING KEXUE

Environmental Science (monthly)

Vol. 36 No. 2

Feb. 15, 2015

CONTENTS

Size Distribution Characteristics of Particulate Mercury on Haze and Non-haze Days ····· ZHU Qiong-yu, CHENG Jin-ping, WEI Yu-qing, *et al.* (373)

Impact of Atmospheric Pollutants Transport Pathways on Aerosol Optical Properties at Shangdianzi Background Station ····· PU Wei-wei, SHI Xue-feng, MA Zhi-qiang, *et al.* (379)

Chemical Characteristics of 3-year Atmospheric Precipitation in Summer, Taiyuan ····· GUO Xiao-fang, CUI Yang, WANG Kai-yang, *et al.* (388)

Pollution Characteristics of Organic and Elemental Carbon in $PM_{2.5}$ in Taiyuan ····· LIU Shan, PENG Lin, WEN Yan-ping, *et al.* (396)

Levels and Distribution of Organochlorine Pesticides and Dioxin-Like Polychlorinated Biphenyls in Atmospheric Particulates in Xining and Tianjun, Qinghai Province, China ····· LI Qiu-xu, HE Chang, MA Zhao-hui, *et al.* (402)

Particulate Matter Adsorption Capacity of 10 Evergreen Species in Beijing ····· WANG Bing, ZHANG Wei-kang, NIU Xiang, *et al.* (408)

Carbon Sources Metabolic Characteristics of Airborne Microbial Communities in Constructed Wetlands ····· SONG Zhi-wen, WANG Lin, XU Ai-ling, *et al.* (415)

Spatial Distribution Characteristics of the Physical and Chemical Properties of Water in the Kunes River After the Supply of Snowmelt During Spring ····· LIU Xiang, GUO Ling-peng, ZHANG Fei-yun, *et al.* (421)

Composition Characteristics and Source Analysis of Major Ions in Four Small Lake-watersheds on the Tibetan Plateau, China ····· LI He, LI Jun, LIU Xiao-long, *et al.* (430)

Seasonal Stratification and Eutrophication Characteristics of a Deep Reservoir, Longtan Reservoir in Subtropical Area of China ····· ZHANG Lei, LI Qiu-hua, HUANG Guo-jia, *et al.* (438)

Phosphorus Fractions, Sorption Characteristics and Its Release in the Sediments of Yangtze Estuary Reservoir, China ····· JIN Xiao-dan, WU Hao, CHEN Zhi-ming, *et al.* (448)

Spatial-Temporal Distributions of Dissolved Inorganic Carbon and Its Affecting Factors in the Yellow River Estuary ····· GUO Xing-sen, LÜ Ying-chun, SUN Zhi-gao, *et al.* (457)

Distributions of Phosphorus Fractions in Suspended Sediments and Surface Sediments of Tiaoxi Mainstreams and Cause Analysis ····· CHEN Hai-long, YUAN Xu-yin, WANG Huan, *et al.* (464)

Characteristics of Nitrogen Pollution and the Potential Mineralization in Surface Sediments of Dianchi Lake ····· MENG Ya-yuan, WANG Sheng-rui, JIAO Li-xin, *et al.* (471)

Influence of Transient Storage on Solute Transport and the Parameter Sensitivity Analysis in a Suburban Drainage Ditch ····· LI Ru-zhong, QIAN Jing, DONG Yu-hong, *et al.* (481)

Sources, Pollution Statue and Potential Ecological Risk of Heavy Metals in Surface Sediments of Aibi Lake, Northwest China ····· ZHANG Zhao-yong, Jilili Abuduwaili, JIANG Feng-qing (490)

Speciation Distribution and Risk Assessment of Heavy Metals in Sediments in Suburban Outfall of Industrial Oasis Region ····· ZANG Fei, WANG Sheng-li, NAN Zhong-ren, *et al.* (497)

Assessment of Sources, Spatial Distribution and Ecological Risk of Heavy Metals in Soils in a Typical Industry-based City of Shandong Province, Eastern China ····· DAI Bin, LÜ Jian-shu, ZHAN Jin-cheng, *et al.* (507)

Removal of Triclosan with the Method of UV/ClO_2 and Its Degradation Products ····· LI Yu-ying, HE Wen-long, LI Qing-song, *et al.* (516)

Mechanism of Groundwater As(Ⅴ) Removal with Ferric Flocculation and Direct Filtration ····· KANG Ying, DUAN Jin-ming, JING Chuan-yong (523)

Preparation of Nano Zero-valent Iron/*Sargassum horneri* Based Activated Carbon for Removal of Cr(Ⅵ) from Aqueous Solution ····· ZENG Gan-ning, WU Xiao, ZHENG Lin, *et al.* (530)

Adsorption of Cr(Ⅵ) on Magnetic Graphene from Aqueous Solution ····· LIU Wei, YANG Qi, LI Bo, *et al.* (537)

Adsorption of the TiO_2@ Yeast Composite Microspheres for Adsorbing Fluorescent Whitening Agent-VBL in Fixed Bed ····· WU Fei, ZHANG Kai-qiang, BAI Bo, *et al.* (545)

Preparation and Pb^{2+} Electrosorption Characteristics of MnO_2/CFP Composite Electrode ····· LIU Fang-yuan, HU Cheng-zhi, LI Yong-feng, *et al.* (552)

Preparation of Weak Light Driven TiO_2 Multi Composite Photocatalysts via Adsorption Phase Synthesis ····· WANG Ting, ZHU Yi-chen, SUN Zhi-xuan, *et al.* (559)

Photoelectrocatalytic Degradation of Bisphenol A in Water by Fe Doped-TiO_2 Nanotube Arrays Under Simulated Solar Light Irradiation ··· XIANG Guo-liang, YU Ze-bin, CHEN Ying, *et al.* (568)

Oxidation of Cationic Red 3R in Water with H_2O_2 Catalyzed by Mineral Loaded with Fe/Co ····· MA Nan, LIU Hua-bo, XIE Xin-yuan (576)

Characteristics of Acid Red 3R Wastewater Treatment by Ozone Microbubbles ····· ZHANG Jing, DU Ya-wei, LIU Xiao-jing, *et al.* (584)

Effects of Carbon Sources, Temperature and Electron Acceptors on Biological Phosphorus Removal ····· HAN Yun, XU Song, DONG Tao, *et al.* (590)

Startup, Stable Operation and Process Failure of EBPR System Under the Low Temperature and Low Dissolved Oxygen Condition ····· MA Juan, LI Lu, YU Xiao-jun, *et al.* (597)

Effects of Dissolved Oxygen in the Oxic Parts of A/O Reactor on Degradation of Organic Pollutants and Analysis of Microbial Community for Treating Petrochemical Wastewater ····· DING Peng-yuan, CHU Li-bing, ZHANG Nan, *et al.* (604)

Isolation of Filamentous Fungi Capable of Enhancing Sludge Dewaterability and Study of Mechanisms Responsible for the Sludge Dewaterability Enhancement ····· ZHOU Yu-jun, FU Hao-yi, FAN Xian-feng, *et al.* (612)

Impacts of Alkaline Thermal Treatment on Characteristics of Sludge from Sewage Treatment Plant ····· YANG Shi-dong, CHEN Xia, LIU Cao, *et al.* (619)

Responses of Ecosystem Carbon Budget to Increasing Nitrogen Deposition in Differently Degraded *Leymus chinensis* Steppes in Inner Mongolia, China ····· QI Yu-chun, PENG Qin, DONG Yun-she, *et al.* (625)

Impacts of Elevated Ozone Concentration on N_2O Emission from Arid Farmland ····· WU Yang-zhou, HU Zheng-hua, LI Cen-zi, *et al.* (636)

Multi-Year Measurement of Soil Respiration Components in a Subtropical Secondary Forest ····· LIU Yi-fan, CHEN Shu-tao, HU Zheng-hua, *et al.* (644)

Spatial Variability of Soil Nitrogen and Related Affecting Factors at a County Scale in Hilly Area of Mid-Sichuan Basin ····· LUO You-lin, LI Qi-quan, WANG Chang-quan, *et al.* (652)

Effects of Land Use Change on Soil Active Organic Carbon in Deep Soils in Hilly Loess Plateau Region of Northwest China ····· ZHANG Shuai, XU Ming-xiang, ZHANG Ya-feng, *et al.* (661)

Carbon Source Metabolic Diversity of Soil Microbial Community Under Different Climate Types in the Area Affected by Wenchuan Earthquake ····· ZHANG Guang-shuai, LIN Yong-ming, MA Rui-feng, *et al.* (669)

Optimization of Electrode Configuration in Soil Electrokinetic Remediation ····· LIU Fang, FU Rong-bing, XU Zhen (678)

Distribution and Health Risk of HCHs and DDTs in a Contaminated Site with Excavation ····· ZHANG Shi-lei, XUE Nan-dong, YANG Bing, *et al.* (686)

Transformation and Mobility of Arsenic in the Rhizosphere and Non-Rhizosphere Soils at Different Growth Stages of Rice ····· YANG Wen-tao, WANG Ying-jie, ZHOU Hang, *et al.* (694)

Extraction of Plant Root Apoplast Solution: A Case Study with Polycyclic Aromatic Hydrocarbons ····· ZHU Man-dang, DU Jiang-xue, YUE Le, *et al.* (700)

Mechanism of Manganese Binding to Leaf Cell Wall of *Phytolacca americana* L. ····· XU Xiang-hua, LIU Cui-ying, LI Ping, *et al.* (706)

Degradation Characteristics of Naphthalene with a *Pseudomonas aeruginosa* Strain Isolated from Soil Contaminated by Diesel ····· LIU Wen-chao, WU Bin-bin, LI Xiao-sen, *et al.* (712)

Toxic Effects of CdSe/ZnS QDs to Zebrafish Embryos ····· CHEN Mu-fei, HUANG Cheng-zhi, PU De-yong, *et al.* (719)

Physiological Response of *Neocaridina denticulate* to the Toxicity of Cu^{2+} and Chlorpyrifos ····· LI Dian-bao, ZHANG Wei, WANG Li-qing, *et al.* (727)

Determination of Anilines in Environmental Water Samples by Simultaneous Derivatization and Ultrasound Assisted Emulsification Microextraction Combined with Gas Chromatography-Flame Ionization Detectors ····· TIAN Li-xun, DAI Zhi-xi, WANG Guo-dong, *et al.* (736)

Adsorption of Calcium Ion from Aqueous Solution Using Na^+-Conditioned Clinoptilolite for Hot-Water Softening ····· ZHANG Shuo, WANG Dong, CHEN Yuan-chao, *et al.* (744)

Construction and Application of Economy-Pollution-Environment Three-Dimensional Evaluation Model for District ····· FAN Xin-gang, MI Wen-bao, MA Zhen-ning (751)

《环境科学》第 6 届编辑委员会

主　编：欧阳自远

副主编：赵景柱　郝吉明　田　刚

编　委：（按姓氏笔画排序）

万国江　王华聪　王凯军　王绪绪　田　刚　田　静　史培军

朱永官　刘志培　汤鸿霄　陈吉宁　孟　伟　周宗灿　林金明

欧阳自远　赵景柱　姜　林　郝郑平　郝吉明　聂永丰　黄　霞

黄　耀　鲍　强　潘　纲　潘　涛　魏复盛

环 境 科 学

（HUANJING KEXUE）

（月刊　1976 年 8 月创刊）

2015 年 2 月 15 日　第 36 卷　第 2 期

ENVIRONMENTAL SCIENCE

（Monthly　Started in 1976）

Vol. 36　No. 2　Feb. 15, 2015

主　　管	中国科学院	**Superintended** by	Chinese Academy of Sciences
主　　办	中国科学院生态环境研究中心	**Sponsored** by	Research Center for Eco-Environmental Sciences, Chinese Academy of Sciences
协　　办	（以参加先后为序） 北京市环境保护科学研究院 清 华 大 学 环 境 学 院	**Co-Sponsored** by	Beijing Municipal Research Institute of Environmental Protection School of Environment, Tsinghua University
主　　编	欧 阳 自 远	**Editor-in -Chief**	OUYANG Zi-yuan
编　　辑	《环境科学》编辑委员会 北京市 2871 信箱（海淀区双清路 18 号，邮政编码：100085） 电话：010-62941102，010-62849343 传真：010-62849343 E-mail：hjkx@ rcees. ac. cn http://www. hjkx. ac. cn	**Edited** by	The Editorial Board of Environmental Science（HUANJING KEXUE） P. O. Box 2871, Beijing 100085, China Tel：010-62941102, 010-62849343; Fax：010-62849343 E-mail：hjkx@ rcees. ac. cn http://www. hjkx. ac. cn
出　　版	科 学 出 版 社 北京东黄城根北街 16 号 邮政编码：100717	**Published** by	Science Press 16 Donghuangchenggen North Street, Beijing 100717, China
印刷装订	北京北林印刷厂	**Printed** by	Beijing Bei Lin Printing House
发　　行	科 学 出 版 社 电话：010-64017032 E-mail：journal@ mail. sciencep. com	**Distributed** by	Science Press Tel：010-64017032 E-mail：journal@ mail. sciencep. com
订 购 处	全国各地邮电局	**Domestic**	All Local Post Offices in China
国外总发行	中国国际图书贸易总公司 （北京 399 信箱）	**Foreign**	China International Book Trading Corporation（Guoji Shudian）, P. O. Box 399, Beijing 100044, China

中国标准刊号：ISSN 0250-3301 / CN 11-1895/X　　**国内邮发代号**：2-821

国 内 定 价：120.00 元　　**国外发行代号**：M 205

国 内 外 公 开 发 行