

环境科学

(HUANJING KEXUE)

ENVIRONMENTAL SCIENCE

第37卷 第12期

Vol.37 No.12

2016

中国科学院生态环境研究中心 主办
科学出版社 出版



目次(卷终)

基于数值计算的细颗粒物采样管路传输损失评估	罗李娜,程真,朱雯斐,张强,楼晟荣,乔利平,晏乃强(4457)
南京北郊重金属气溶胶粒子来源分析	秦鑫,张泽锋,李艳伟,沈艳,赵姝慧(4467)
南京青奥会期间不同天气条件下大气气溶胶中水溶性离子的分布特征	师远哲,安俊琳,王红磊,邹嘉南,王俊秀(4475)
苏州市 PM _{2.5} 中水溶性离子的季节变化及来源分析	王念飞,陈阳,郝庆菊,王欢博,杨复沐,赵晴,薄宇,贺克斌,姚玉刚(4482)
成都西南郊区春季 PM _{2.5} 中元素特征及重金属潜在生态风险评价	杨怀金,杨德容,叶芝祥,张恒德,马学款,汤志亚,毛冬艳(4490)
泉州市大气降尘中稀土元素地球化学特征及来源解析	张棕巍,于瑞莲,胡恭任,胡起超,王晓明(4504)
青奥会期间基于 $\delta^{13}\text{C}$ 观测的大气 CO ₂ 来源解析	徐家平,李旭辉,肖薇,次仁旺姆,温学发,刘寿东,杜雪婷,曹畅(4514)
民航飞机起飞过程气态污染物排放特征分析	韩博,黄佳敏,魏志强(4524)
畜禽养殖场空气中可培养抗生素耐药菌污染特点研究	张兰河,贺雨伟,陈默,高敏,仇天雷,王旭明(4531)
有序介孔材料过滤脱除纳米颗粒物	邢奕,王骥,路培,李子宜,刘应书,于晗(4538)
基于 DOC + CDPF 技术的公交车燃用生物柴油气态物道路排放特性	楼狄明,张允华,谭丕强,胡志远(4545)
亚热带浅水池塘水-气界面甲烷通量特征	龙丽,肖尚斌,张成,张文丽,谢恒,李迎晨,雷丹,穆晓辉,张军伟(4552)
浙江汤浦水库浮游植物季节演替及其影响因子分析	马沛明,施练东,张俊芳,胡菊香,赵先富(4560)
太湖典型沉水植物生理指标对水质的响应	高敏,胡维平,邓建才,胡春华(4570)
利用 UV-vis 及 EEMs 对比冬季完全混合下两个不同特征水库溶解性有机物的光学特性	黄廷林,方开凯,张春华,周石磊,曾明正,龙圣海,李扬,夏超,从海兵(4577)
三峡前置库汉丰湖试运行年水体水质现状及控制效果评估	杨兵,何丙辉,王德宝(4586)
太湖贡湖湾水域抗生素污染特征分析与生态风险评价	武旭跃,邹华,朱荣,王靖国(4596)
滇池不同湖区沉积物正构烷烃的分布特征及其环境意义	余丽燕,韩秀秀,黄晓虎,吴亚林,杨浩,黄涛,余艳红,黄昌春(4605)
洱海入湖河口湿地干湿季沉积物氮、磷、有机质垂向分布特征及污染风险差异性	王书锦,刘云根,王妍,侯磊,张超(4615)
蠡湖表层沉积物氮矿化过程及其赋存形态变化	赵丽,王书航,姜霞,黄晓峰,陈俊伊(4626)
三峡库区表层沉积物重金属含量时空变化特征及潜在生态风险变化趋势研究	卓海华,孙志伟,谭凌智,吴云丽,兰静(4633)
模拟巢湖流域氯菊酯的迁移转化和生态风险	刘亚莉,王继忠,彭书传,陈天虎(4644)
有机质胶体对卡马西平在多孔介质中迁移影响模拟实验	张思,何江涛,朱晓婧(4651)
无机型城市景观水体表面污染的悬浮颗粒物粒度分布特征:以中国运河苏州段为例	李倩倩,潘杨,贡丹燕,黄勇,夏侯刚(4662)
清水江流域岩石风化特征及其碳汇效应	吕婕梅,安艳玲,吴起鑫,吴永贵(4671)
南方典型农田区浅层地下水污染特征	郭卉,虞敏达,何小松,罗岳平(4680)
水化学和环境同位素在示踪枣庄市南部地下水硫酸盐污染源中的应用	马燕华,苏春利,刘伟江,朱亚鹏,李俊霞(4690)
粗放型绿色屋顶对多环芳烃的控制效果	沈庆然,侯娟,李田(4700)
超滤的预处理工艺对比研究:化学混凝与电絮凝	赵凯,杨春风,孙境求,李静,胡承志(4706)
QCM-D 与 AFM 联用解析 EfOM 在 SiO ₂ 改性 PVDF 超滤膜表面的吸附机制	姜家良,王磊,黄丹曦,黄松,朱振亚,徐亚伟,李青青(4712)
群体感应淬灭菌的分离及其膜污染控制性能	赵畅,王文昭,徐期勇(4720)
水力负荷对生物沉淀池污染物净化性能的影响特性	王文东,马翠,刘荟,范银萍,刘国旗,张珂(4727)
外加微量 N ₂ H ₄ 下 SBR 中硝化微生物特性	肖凡颖,张代钧,卢培利(4734)
部分半硝化 AGS-SBR 工艺的启动及其种群结构分析	鲁航,信欣,管蕾,邹长武,余静(4741)
典型油田多环芳烃污染对土壤反硝化微生物群落结构的影响	姚炎红,王明霞,左小虎,李振轮,罗锋,周志峰(4750)
生物强化膜生物反应器(MBR)处理邻苯二甲酸二乙酯(DEP)效果及微生物群落结构分析	张可,关允,罗鸿兵,陈伟,陈佳,陈强(4760)
开闭路条件下沉积物微生物燃料电池阳极细菌群落差异解析	吴义诚,邓全鑫,王泽杰,郑越,李岱霖,赵峰(4768)
全氟辛酸(PFOA)厌氧生物可降解性	李飞,陈轶丹,周真明,廖晓斌,马红芳,苑宝玲(4773)
水肥用量对玉米季土壤 CO ₂ 排放的综合影响	杨硕欢,张保成,王丽,胡田田(4780)
福建西部山地水土流失区土壤呼吸的空间异质性	姚雄,余坤勇,曾琪,杨玉洁,张今朝,刘健(4789)
基于不确定性分析的土壤-水稻系统镉污染综合风险评估	杨阳,陈卫平,李艳玲,王美娥,彭驰(4800)
北京市不同地区土壤中的球囊霉素荧光特征及其与土壤理化性质的关系	柴立伟,刘梦娇,蒋大林,樊灏,曹晓峰,黄艺(4806)
准东煤炭产业区周边土壤重金属污染与健康风险的空间分布特征	刘芳,塔西甫拉提·特依拜,依力亚斯江·努尔麦麦提,王楠,杨春,夏楠,高宇潇(4815)
河北平原潮土中微生物对氮降解特征	张灿灿,庞会从,高太忠,张静,李晓玉,付胜霞(4830)
砷-非对蜈蚣草根不同碳基团的影响	廖晓勇,龚雪刚,阎秀兰,马旭,吴泽赢(4841)
碱性固体对污泥的调质堆肥影响及产品对土壤的改良潜力	蔡函臻,宁西翠,王权,张增强,任秀娜,李荣华,王美净, Mukesh Kumar Awasthi(4848)
不同热解及来源生物炭对西北黄土吸附敌草隆的影响	孙航,蒋煜峰,石磊平,慕仲峰,展惠英(4857)
南丹矿业活动影响区人群头发中重金属含量特征	田美玲,钟雪梅,夏德尚,伏凤艳,陆素芬,李黎,宋波(4867)
Mg-Al-Me (Me = La, Ce, Zr) 复合氧化物制备及其除氟性能	汪爱河,周康根,刘行,陈泉州,刘芳(4874)
铁锰复合氧化物/壳聚糖珠:一种环境友好型除磷吸附剂	付军,范芳,李海宁,张高生(4882)
不同粒径垃圾焚烧飞灰重金属毒性浸出及生物可给性	王春峰,陈冠飞,朱艳臣,姚丹,皇晓晨,王连军(4891)
《环境科学》第37卷(2016年)总目录	(4899)
《环境科学》征稿简则(4466) 《环境科学》征订启事(4699) 信息(4489,4881)	

清水江流域岩石风化特征及其碳汇效应

吕婕梅¹, 安艳玲^{1,2,*}, 吴起鑫^{1,2,3}, 吴永贵¹

(1. 贵州大学资源与环境工程学院, 贵阳 550025; 2. 贵州大学喀斯特环境与地质灾害防治重点实验室, 贵阳 550025; 3. 中国科学院地球化学研究所环境地球化学国家重点实验室, 贵阳 550002)

摘要: 岩石风化产生的碳汇是全球碳循环的重要组成部分, 文中对清水江流域主要离子组成进行分析测定, 通过主成分分析、化学物质平衡法和扣除法估算流域岩石风化速率及对大气 CO₂ 的消耗量。结果表明, 流域河水溶质主要来源于碳酸盐岩和硅酸盐岩风化, 并以碳酸盐岩风化为主。碳酸盐、硅酸盐、大气 CO₂ 对河水溶质的贡献率分别为 58.28%、17.38%、17.74%。流域岩石化学风化速率为 109.97 t·(km²·a)⁻¹, 与乌江接近, 高于全球流域均值。流域岩石风化对大气 CO₂ 的消耗通量为 7.25 × 10⁵ mol·(km²·a)⁻¹, 岩石风化对大气 CO₂ 的消耗量为 12.45 × 10⁹ mol·a⁻¹, 其中, 碳酸盐岩风化消耗量占 63.13%, 为 7.86 × 10⁹ mol·a⁻¹, 硅酸盐岩风化消耗量占 36.87%, 为 4.59 × 10⁹ mol·a⁻¹。SO₄²⁻、F⁻、NO₃⁻ 的相关分析及空间分布特征表明, 人为活动对清水江流域河水溶质的影响不容忽视, 其贡献率为 4.87%。

关键词: 碳汇; 化学风化; 贡献率; 水化学; 清水江

中图分类号: X143 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2016)12-4671-09 DOI: 10.13227/j.hjks.201605118

Rock Weathering Characteristics and the Atmospheric Carbon Sink in the Chemical Weathering Processes of Qingshuijiang River Basin

LÜ Jie-mei¹, AN Yan-ling^{1,2,*}, WU Qi-xin^{1,2,3}, WU Yong-gui¹

(1. College of Resource and Environmental Engineering, Guizhou University, Guiyang 550025, China; 2. Key Laboratory of Karst Environment and Geohazard Prevention, Guizhou University, Guiyang 550025, China; 3. State Key Laboratory of Environmental Geochemistry, Institute of Geochemistry, Chinese Academy of Sciences, Guiyang 550002, China)

Abstract: Carbon sink produced during rock weathering is critical to global carbon cycles. In this work, the major ion chemistry and ion sources of Qingshuijiang River Basin were investigated. The principal component analysis, mass balance approach and deduction method were applied for estimating the weathering rate and atmospheric CO₂ consumption via the chemical weathering of rocks. The results demonstrated that the chemical weathering of carbonate and silicate rocks within the drainage basin was the main source of the dissolved chemical substances in the Qingshuijiang River Basin, prior to carbonate rock weathering. Some 58.28% of the total dissolved chemical substances were derived from the chemical weathering of carbonate rock, 17.38% from the dissolution of silicate rock, and 17.74% from atmospheric CO₂ contribution rates. The chemical weathering rate of this catchment was estimated to be 109.97 t·(km²·a)⁻¹, which was comparable to Wujiang River Basin, but higher than the average of global rivers. Furthermore, the atmospheric CO₂ consumption rate was estimated to be 7.25 × 10⁵ mol·(km²·a)⁻¹. The CO₂ flux consumed by the rock chemical processes within this catchment was 12.45 × 10⁹ mol·a⁻¹, of which about 63.13% (7.86 × 10⁹ mol·a⁻¹) was resulted from carbonate weathering and 36.87% (4.59 × 10⁹ mol·a⁻¹) from silicate weathering. The CO₂ consumed by rock chemical weathering in the Qingshuijiang River reduced the atmospheric CO₂ level and constituted a significant part of the global carbon budget. Correlation and spatial distribution analysis of SO₄²⁻, F⁻, NO₃⁻ showed that anthropogenic activities contributed remarkably to dissolved solutes and associated CO₂ consumption worldwide, and anthropogenic inputs probably contributed some 4.87% to the dissolved solutes in the Qingshuijiang River.

Key words: carbon sink; chemical weathering; contribution rate; water chemistry; Qingshuijiang River

全球碳循环研究中的一个关键问题是碳的不明遗失^[1], 每年约有 10 亿 t 的碳不知去向^[1~3], 寻找遗失的碳汇、如何平衡大气 CO₂ 的收支已经成为全球变化科学研究的热点问题^[1]。由于全球碳循环的复杂性, 在全球碳平衡预算中仍存在一些不确定性^[4, 5]。陆地岩石风化消耗大气或土壤中的 CO₂, 形成 CO₂ 巨大的“汇”^[6], 每年约有 0.7 × 10⁹ t 来自大气 CO₂ 的碳经陆地化学风化作用通过河流转移到

海洋中^[7~9]。因此, 利用河流水化学信息来估算流域岩石风化碳汇已成为当前全球气候变化研究的一个重要方面^[10]。

收稿日期: 2016-05-18; 修订日期: 2016-07-26

基金项目: 国家自然科学基金项目(42603123); 中国博士后科学基金项目(2014M562388); 水利部公益性行业科研专项(201401050)

作者简介: 吕婕梅(1988~), 女, 博士研究生, 主要研究方向环境地球化学, E-mail: lvjm0728@163.com

* 通讯联系人, E-mail: anyl@gzu.edu.cn

岩石风化碳汇分为碳酸盐风化碳汇和硅酸盐风化碳汇^[11, 12], 通常认为, 硅酸盐风化产生的碳汇是净碳汇, 控制着长时间尺度(大于 100 万年)的气候变化, 而短时间尺度上, 碳酸盐风化碳汇与硅酸盐风化碳汇相当^[13]. 在全球尺度上, 全球大气中 CO_2 的含量及温度变化受到碳酸盐岩或硅酸盐岩风化吸收的 CO_2 效应的调节^[14, 15]. 岩溶过程是地球表面碳酸盐风化吸收 CO_2 的过程^[16], 也是大气碳循环转换的重要过程. 岩溶区大量的研究表明碳酸盐岩在温室气体“源汇”关系中起很大的作用, 碳酸盐溶解的快速动力学性质决定了岩溶水的水化学特征^[17]. 我国西南地区是全球岩溶地貌集中分布面积最大、最集中连片、生态系统最脆弱的地区之一, 对其岩石风化碳汇的估算对全球碳循环研究具有重要意义.

清水江流域位于西南地区贵州省东南部, 流域上游是以碳酸盐岩分布为主的岩溶区, 中下游是以碎屑岩为主的非岩溶区. 由于地处亚热带湿润季风气候区, 相对湿热的气候条件使得湿润季风区的岩石风化过程较同纬度其他地区更加活跃^[18, 19]. 因此, 本文以清水江为研究对象, 测定河水主要离子(HCO_3^- 、 Na^+ 、 K^+ 、 Ca^{2+} 、 Mg^{2+} 、 NH_4^+ 、 Cl^- 、 NO_3^- 、 F^- 、 SO_4^{2-} 、 SiO_2)组成, 通过主成分分析、化学物质平衡法和扣除法, 估算其岩石风化过程中各因子对流域河水溶质的相对贡献率、岩石化学风化

速率及对大气 CO_2 的消耗量, 并与世界其他流域进行对比, 以期为研究喀斯特地区岩石风化碳汇在全球碳估算中的作用提供理论参考.

1 研究区概况

清水江地处云贵高原向湘桂丘陵过渡地带, 东经 $105^\circ 15' \sim 109^\circ 50'$, 北纬 $26^\circ 10' \sim 27^\circ 15'$ 之间, 是长江流域洞庭湖水系沅江上游重要支流. 河流全长 452.2 km, 天然落差 1 280 m, 流域面积 17 157 km^2 , 占贵州省总面积的 9.74%. 流域年平均气温 $14 \sim 18^\circ\text{C}$, 多年平均降雨量为 1 050 ~ 1 500 mm. 清水江发源于贵州省黔南布依族苗族自治州的贵定县斗蓬出南麓青杠坡, 流经都匀、丹寨、麻江、凯里、福泉等黔南黔东南 3 市 12 县, 于天柱县瓮洞镇流入湖南, 在托口镇与渠水汇合后称沅江. 流域河网密度较大, 主要支流有重安江、巴拉河、乌下河、六洞河、南哨河、亮江、鉴江河. 流域上游岩石分布主要是白云岩、灰岩等碳酸盐岩, 中下游主要是板岩、砂岩、凝灰岩等碎屑岩(图 1).

清水江流域土地利用类型主要为林地, 其次为耕地、草地. 流域矿产资源丰富, 上游福泉市的磷矿位储量居全国之首, 是中国大型的磷矿和磷化工基地. 化肥和磷化工厂排放的废水含有大量的磷酸盐和氟化物污染物, 是清水江流域主要的污染

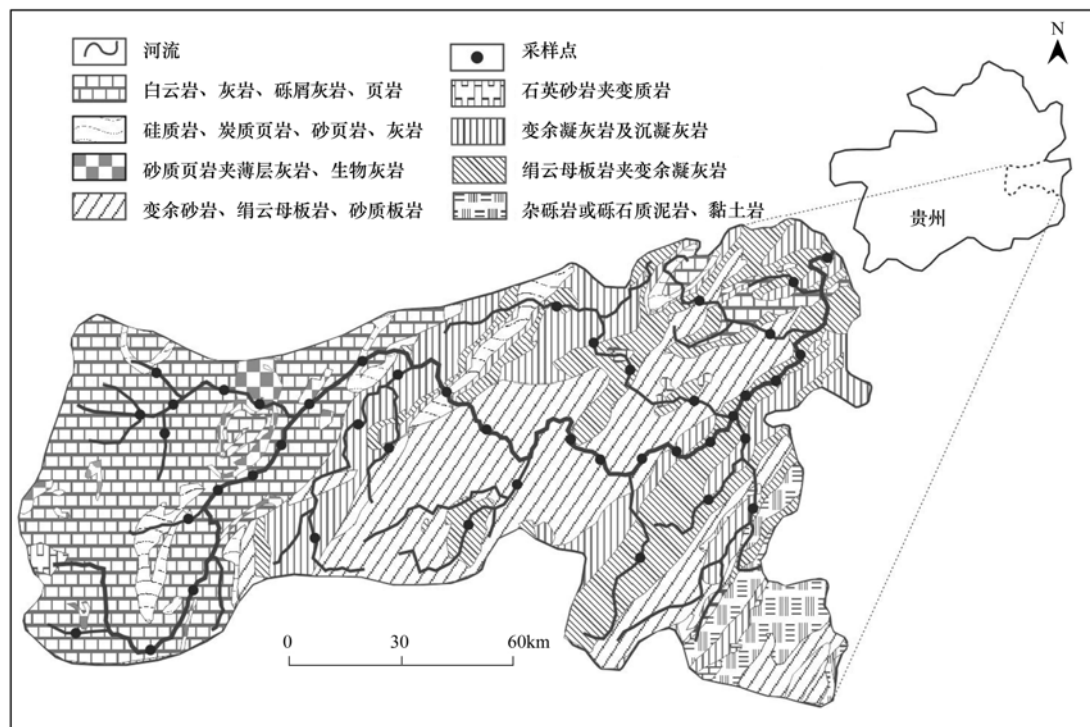


图 1 清水江流域岩性及水系分布示意

Fig. 1 Lithology and river system distribution of the Qingshuijiang River basin

源^[20, 21]. 受磷石膏等磷化工固体废物堆存淋溶及磷化工企业排污的影响,清水江流域河水磷、氟浓度历年来一直处于超标状态^[22].

2 样品的采集与分析

2013 年 8 月~2014 年 1 月对清水江全流域,分丰水期和枯水期 2 次采集样品. 采样点如图 1 所示. 使用德国 WTW Multi340i 便携式多参数测试仪现场测定水体 pH、电导(EC)、水温(t)、溶解氧(DO); $0.025\text{ mol}\cdot\text{L}^{-1}$ HCl 现场滴定 HCO_3^- ,每个水样滴定 3 次,HCl 体积误差在 0.1 mL 以内. 采集的河水样品当天过滤($0.45\text{ }\mu\text{m}$ Millipore 滤膜),存储于聚乙烯瓶密封避光保存. Na^+ 、 K^+ 、 Ca^{2+} 、 Mg^{2+} 、 NH_4^+ 、 Cl^- 、 NO_3^- 、 F^- 、 SO_4^{2-} 用离子色谱仪(DIONEX, ICS- 1100, IonPac AG- 19 阴离子柱, IonPac CS-12A 阳离子柱)分析测定, SiO_2 采用钼酸黄光度法测定. 样品测试过程中定期加入标准和平行样品,测试精度优于 $\pm 5\%$. 天然水体中无机正负电荷的平衡 $\text{NICB}[\text{NICB} = (\text{TZ}^+ - \text{TZ}^-)/\text{TZ}^+]$ 常被用来度量数据的可信度或水体受污染的程度^[23],清水江流域水体无机电荷平衡除少数几个污染比较大的点外(如 $\text{NICB}_{\text{枯水期福泉三江口}} = -16.68\%$, $\text{NICB}_{\text{丰水期羊昌河}} = -14.20\%$),其余水样都在 5% 以内.

3 结果与讨论

3.1 河水离子组成特征

清水江流域水化学参数及主量元素统计分析结果显示(表 1),水体 pH 值介于 5.96~9.90 之间,均值 7.94,水体偏弱碱性. 其中,最低点位于都匀市下

游,主要受到周边化肥厂的影响;而最高点位于剑河县柳川镇,根据采样现场观察,其 pH 偏高的主要原因是乡镇畜禽废水排放(氨氮浓度高)及水体富营养化.

清水江流域 TDS 介于 $35.29\sim 740.90\text{ mmol}\cdot\text{L}^{-1}$ 之间,平均值 $217.50\text{ mmol}\cdot\text{L}^{-1}$. 其中,最高点($\text{TDS} = 740.90\text{ mmol}\cdot\text{L}^{-1}$)位于福泉市下游三江口,该河段容纳了上游大量磷矿开采、磷化工企业废水以及市区生活污水,表现出典型污染水体特征,TDS 含量明显升高. 在流域上游地区,受碳酸盐岩广泛分布(见图 1)和大量工矿企业、城镇排污影响,TDS 含量较高;而到中、下游地区,随着工矿业活动影响减弱,以及岩性转为大面积分布的碎屑岩,TDS 含量逐渐降低.

河水主要阳离子浓度关系为 $\text{Ca}^{2+} > \text{Mg}^{2+} > \text{Na}^+ > \text{K}^+ > \text{NH}_4^+$, Ca^{2+} 、 Mg^{2+} 分别占阳离子总量的 57.47%、29.39%. 主要阴离子浓度为 $\text{HCO}_3^- > \text{SO}_4^{2-} > \text{Cl}^- > \text{NO}_3^- > \text{F}^-$, HCO_3^- 、 SO_4^{2-} 分别占阴离子总量的 66.38%、25.36%. 总阳离子($\text{TZ}^+ = 2\text{Ca}^{2+} + 2\text{Mg}^{2+} + \text{Na}^+ + \text{K}^+ + \text{NH}_4^+$)当量浓度平均值 $2.91\text{ meq}\cdot\text{L}^{-1}$,总阴离子($\text{TZ}^- = \text{HCO}_3^- + 2\text{SO}_4^{2-} + \text{NO}_3^- + \text{Cl}^- + \text{F}^-$)当量浓度平均值 $2.81\text{ meq}\cdot\text{L}^{-1}$.

3.2 大气降水及人为活动的影响

通常认为,河水中的 Cl^- 离子主要来自于大气降水,而大气降水中的 Cl^- 是主要来自于海洋输入. 根据海盐校正^[24]的方法($\text{Na}^+/\text{Cl}^- = 0.86$, $\text{Mg}^{2+}/\text{Cl}^- = 0.21$, $\text{K}^+/\text{Cl}^- = 0.004$, $\text{Ca}^{2+}/\text{Cl}^- = 0.04$, $\text{SO}_4^{2-}/\text{Cl}^- = 0.11$ ^[25])计算得出,清水江流域大气降水对流域溶质的贡献约为 1.73%,低于世界河流均值(3%)^[26].

表 1 清水江流域水体主要离子组成特征

Table 1 Major ionic compositions of river water in Qingshuijiang River basin					
项目	单位	范围	均值	中值	标准偏差(SD)
t	$^{\circ}\text{C}$	8.00~30.60	18.45	16.00	7.72
pH	—	5.96~9.90	7.94	7.82	0.56
TDS	$\text{mmol}\cdot\text{L}^{-1}$	35.29~740.90	217.50	185.13	130.67
SiO_2	$\text{mmol}\cdot\text{L}^{-1}$	1.72~14.46	6.72	6.59	3.21
Ca^{2+}	$\text{mmol}\cdot\text{L}^{-1}$	0.07~1.75	0.83	0.79	0.48
Mg^{2+}	$\text{mmol}\cdot\text{L}^{-1}$	0.03~1.32	0.48	0.40	0.37
Na^+	$\text{mmol}\cdot\text{L}^{-1}$	0.04~1.08	0.21	0.18	0.13
K^+	$\text{mmol}\cdot\text{L}^{-1}$	0.01~0.09	0.04	0.04	0.02
NH_4^+	$\text{mmol}\cdot\text{L}^{-1}$	0.00~1.83	0.04	0.01	0.20
HCO_3^-	$\text{mmol}\cdot\text{L}^{-1}$	0.18~4.61	1.81	1.45	1.08
SO_4^{2-}	$\text{mmol}\cdot\text{L}^{-1}$	0.04~2.43	0.39	0.32	0.36
Cl^-	$\text{mmol}\cdot\text{L}^{-1}$	0.02~0.22	0.10	0.09	0.04
NO_3^-	$\text{mmol}\cdot\text{L}^{-1}$	0.00~2.23	0.10	0.03	0.27
F^-	$\text{mmol}\cdot\text{L}^{-1}$	0.00~0.37	0.02	0.01	0.04

人为活动产生的污染物通过直接或间接的方式,以地表径流或地下径流的形式进入流域水体. TDS 和 Cl^-/Na^+ 摩尔浓度比常用于判断人为活动的污染程度,当河水的 $\text{TDS} > 500 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$, 且 Cl^-/Na^+ 大于海水比值 1.15 时,认为河水受到严重人为污染^[27]. 清水江流域 TDS 浓度均值为 $217.50 \text{ mmol} \cdot \text{L}^{-1}$, Cl^-/Na^+ 比值均值 0.59, 其中,上游福泉市凤山镇枯水期采样点 ($\text{TDS} = 510.56 \text{ mmol} \cdot \text{L}^{-1}$, $\text{Cl}^-/\text{Na}^+ = 1.41$) 表现出典型污染水体特征;而三江口枯水期采样点 TDS 为 $740.80 \text{ mmol} \cdot \text{L}^{-1}$, 但 Cl^-/Na^+ 为 0.21, 远小于海水比值,其主要原因是该样品点受单一的磷矿开采和磷化工影响. 相关性

较好的离子通常都有相同的来源或经历了相同的化学反应过程,清水江流域河水中 SO_4^{2-} 与 NO_3^- 相关性 ($r = 0.79$, $P < 0.01$) 良好 (图 2), 且与 F^- 显著正相关 ($r = 0.83$, $r = 0.89$; $P < 0.01$), 反映了三者共同的来源. 流域 SO_4^{2-} 、 NO_3^- 、 F^- 数据显示,上游流域 SO_4^{2-} 浓度均值分别是中游、下游流域的 2.3 倍、2.3 倍,上游 NO_3^- 浓度分别是中游、下游流域的 4.6 倍及 7.6 倍,上游 F^- 离子浓度均值是中、下游流域的 2 倍、2 倍. 由此可知, SO_4^{2-} 、 NO_3^- 、 F^- 之间的相关性很好地反映了上游人为活动(工矿、城镇)对清水江流域河水离子的影响,这也与 TDS 的分析推论一致.

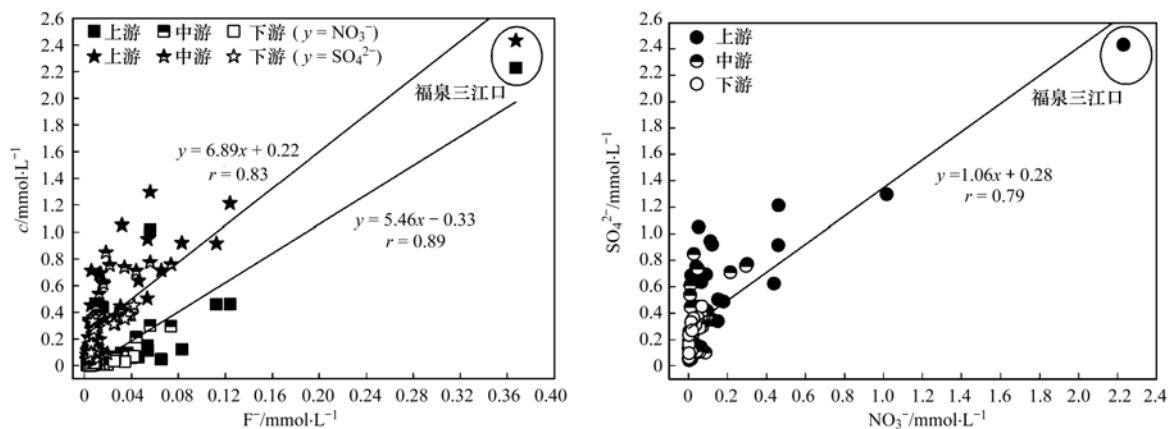


图 2 清水江流域河水 SO_4^{2-} 、 NO_3^- 与 F^- 及 SO_4^{2-} 与 NO_3^- 关系

Fig. 2 Plots of SO_4^{2-} versus F^- , NO_3^- versus F^- and SO_4^{2-} versus NO_3^- of the Qingshuijiang River basin

3.3 流域岩石风化贡献率估算

不同岩性端元间的对比可以判别流域不同岩石矿物风化对河水溶质的影响^[27~29], 从图 3 中 $\text{Mg}^{2+}/\text{Na}^+ - \text{Ca}^{2+}/\text{Na}^+$ 及 $\text{HCO}_3^-/\text{Na}^+ - \text{Ca}^{2+}/\text{Na}^+$ 的关系可

以看出,清水江流域河水溶质来源于碳酸盐岩和硅酸盐岩风化,并以碳酸盐岩风化为主.

为了探讨清水江流域不同岩石风化类型对河水溶质的影响,对河水中 8 个主要离子组分做主成分

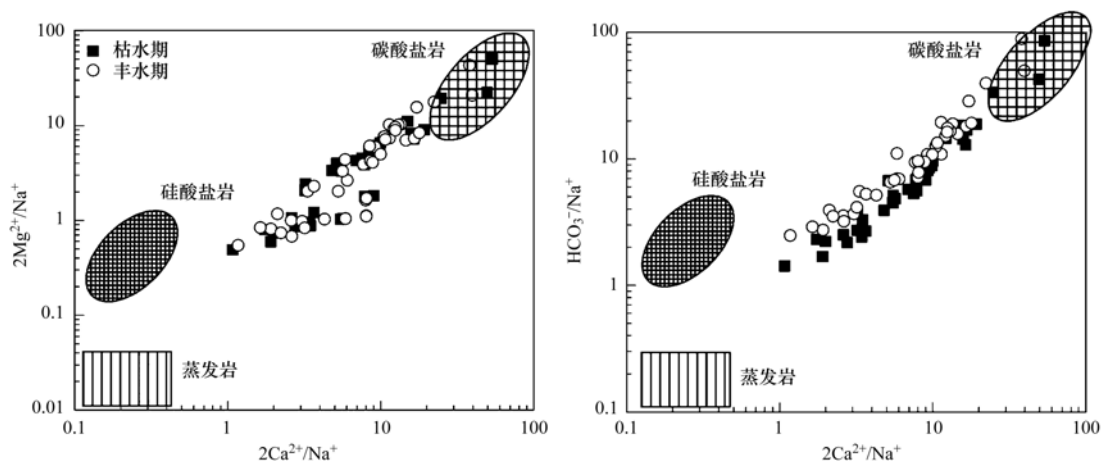


图 3 清水江流域河水 $\text{Mg}^{2+}/\text{Na}^+ - \text{Ca}^{2+}/\text{Na}^+$ 及 $\text{HCO}_3^-/\text{Na}^+ - \text{Ca}^{2+}/\text{Na}^+$ 浓度比值关系

Fig. 3 Plots of $\text{Ca}^{2+}/\text{Na}^+$ versus $\text{Mg}^{2+}/\text{Na}^+$, and $\text{Ca}^{2+}/\text{Na}^+$ versus $\text{HCO}_3^-/\text{Na}^+$ ratios of the Qingshuijiang River basin

分析(PCA),结果如表 2 所示. 提取得到 3 个公共因子,第一因子代表性离子为 Ca^{2+} 、 Mg^{2+} 、 HCO_3^- 、 SO_4^{2-} ,代表了碳酸、硫酸参与下的碳酸盐岩溶解以及含硫化物地层(如贵州省典型的含煤地层)的自然风化. 第二因子代表离子为 Na^+ 、 SiO_2 ,代表硅酸盐矿物的溶解. 第三因子代表离子为 Cl^- 、 K^+ ,代表人为活动的影响.

为了进一步估算不同端元对河水溶质的贡献,采用化学物质平衡法^[30, 31]对主成分分析结果进行校正. 对各个端元所占比例的计算如下.

(1)人为活动来源端元 人为活动对河水离子的影响主要表现为对 SO_4^{2-} 、 NO_3^- 、 F^- 及 Na^+ 、 K^+ 、 Cl^- 的影响,其中 NO_3^- 、 F^- 及 NH_4^+ 并不是岩石风化的产物,前文分析人为活动对流域河水离子组成有一定影响,扣除大气降水影响后,将其全部归于人为活动端元. 由于研究区没有明显的蒸发岩出露,扣除海盐来源后,河水中的 Cl^- 全部来自于人为活动的输入.

(2)硅酸盐岩端元 硅酸盐岩风化端元的离子主要为 Na^+ 、 K^+ 和 SiO_2 . 流域河水中的 Na^+ 、 K^+ 离子浓度较低,扣除人为活动来源的 Na^+ 、 K^+ ,剩余的 Na^+ 、 K^+ 离子全部来自于硅酸盐岩的风化. SiO_2 全部来源于硅酸盐岩风化. 河水中 SiO_2 与 Ca^{2+} 、 Mg^{2+} 、 HCO_3^- 呈负相关性($r = -0.35$, $r = -0.38$, $r = -0.35$; $P < 0.01$),表明硅酸盐岩对流域河水中 Ca^{2+} 、 Mg^{2+} 的贡献量很少. 扣除海盐输入和人为活动的来源后,硅酸盐岩风化贡献如下所示:

$$\begin{aligned} [\text{Na}^+]_{\text{silicate}} &= [\text{Na}^+]_{\text{river}} - [\text{Na}^+]_{\text{anthropogenic}} \\ [\text{K}^+]_{\text{silicate}} &= [\text{K}^+]_{\text{river}} + [\text{K}^+]_{\text{anthropogenic}} \\ [\text{Ca}^{2+}]_{\text{silicate}} &= 6.58\% [\text{Ca}^{2+}]_{\text{river}} \\ [\text{Mg}^{2+}]_{\text{silicate}} &= 13.60\% [\text{Mg}^{2+}]_{\text{river}} \\ [\text{SiO}_2]_{\text{silicate}} &= [\text{SiO}_2]_{\text{river}} \end{aligned}$$

(3)碳酸盐岩端元 碳酸盐岩端元离子主要为 Ca^{2+} 、 Mg^{2+} 、 HCO_3^- 离子. 扣除海盐贡献、人为活动及硅酸盐岩风化的离子,碳酸盐岩风化贡献如下表达式:

$$\begin{aligned} [\text{Ca}^{2+}]_{\text{carbonate}} &= [\text{Ca}^{2+}]_{\text{river}} - [\text{Ca}^{2+}]_{\text{silicate}} \\ [\text{Mg}^{2+}]_{\text{carbonate}} &= [\text{Mg}^{2+}]_{\text{river}} - [\text{Mg}^{2+}]_{\text{silicate}} \end{aligned}$$

根据以上式子计算得出,碳酸盐对河水中 Ca^{2+} 、 Mg^{2+} 、 HCO_3^- 的贡献率分别为 93.42%、86.40%、77.37%. 硅酸盐对 Ca^{2+} 、 Mg^{2+} 的贡献率分别为 6.58%、13.60%,对 HCO_3^- 的贡献为 22.63%,硅酸盐对河水中的 Na^+ 、 K^+ 离子贡献较

高,分别为 88.22%、81.77%, SiO_2 全部来自硅酸盐岩风化溶解. 在碳酸盐风化过程中,50% HCO_3^- 来自碳酸盐岩本身,其余 50% HCO_3^- 来自大气 CO_2 ,硅酸盐风化过程中, HCO_3^- 全部来自大气 CO_2 或土壤^[32]. 主成分分析方法中,每个变量因子载荷的平方除以公共性方差即为每类岩石的溶解对各变量的相对方差贡献率^[24,33],根据表 2 因子载荷,计算出清水江流域 38.69%的 HCO_3^- 来自于碳酸盐岩风化本身,61.31%的 HCO_3^- 来自于碳酸盐岩和硅酸盐岩风化过程中消耗的大气或溶解于水中的 CO_2 . 根据因子载荷和上述各端元离子表达式估算得出大气 CO_2 、人为活动、碳酸盐及硅酸盐对河水溶质的相对贡献(图 4). 大气 CO_2 对清水江流域离子的贡献率为 17.74%,接近于长江干流 19.6%,高于黄河流域(9.78%),略低于乌江(23.6%)、赣南流域(21.4%)及西江(20.6%)和北江(22.3%);明显低于世界河流均值(37%)、滇中高原西部地区河流龙川江(34.90%)及东江(39.1%). 清水江流域上游已建成中国最大的磷化工基地,人为活动因素的贡献率为 4.87%,高于世界河流均值(2.0%),略低于黄河(7.78%).

表 2 清水江流域水化学主成分分析因子载荷矩阵

Table 2 Component loadings of the Qingshuijiang River chemistry calculated in term of principal component analysis

变量	因子载荷			公共性方差
	因子 1	因子 2	因子 3	
Na^+	0.64	0.66	-0.34	0.96
K^+	0.82	0.27	0.41	0.92
Mg^{2+}	0.88	-0.35	-0.16	0.93
Ca^{2+}	0.94	-0.25	0.00	0.94
Cl^-	0.88	0.26	0.26	0.90
SO_4^{2-}	0.89	0.21	-0.33	0.94
HCO_3^-	0.81	-0.44	0.13	0.87
SiO_2	-0.18	0.85	0.14	0.77
方差贡献率/%	62.55	21.44	6.43	—
累积贡献率/%	62.55	83.99	90.42	—

对比世界河流(图 4),清水江流域的显著特点是碳酸盐岩的贡献率较高;碳酸盐岩风化对清水江流域河水的贡献率高达 58.28%,与西江(56.6%)相近,略低于北江(62.40%),明显高于世界河流均值(35.0%)及以碳酸盐岩风化为为主的长江干流(46.9%)及乌江(32.9%),也高于黄河流域(37.3%)、赣南流域(42.8%)及滇中高原西部地区河流龙川江(39%). 硅酸盐岩风化溶解对河水溶质的贡献率为 17.38%,低于以硅酸盐岩风化为为主的东江(52.9%),略高于世界河流均值(15.00%)、

长江干流(12.90%)、黄河流域(7.54%)、乌江(1.65%),也高于龙川江(6.1%)、西江(13.8%)、北江(4.43%)及受硅酸盐岩影响显著的赣南小流域(6.6%)。虽然清水江流域上游主要分布碳酸盐,中下游主要分布碎屑岩,但由于碳酸盐的风化速率

较快,湿热地区流域尺度上的碳酸盐类矿物溶蚀速率是硅酸盐类矿物的 17 倍左右^[34, 35],少量的碳酸盐也会对流域水化学产生重要影响,因此流域水化学特征表现为主要受碳酸盐岩的风化溶解控制,其次为硅酸盐岩。

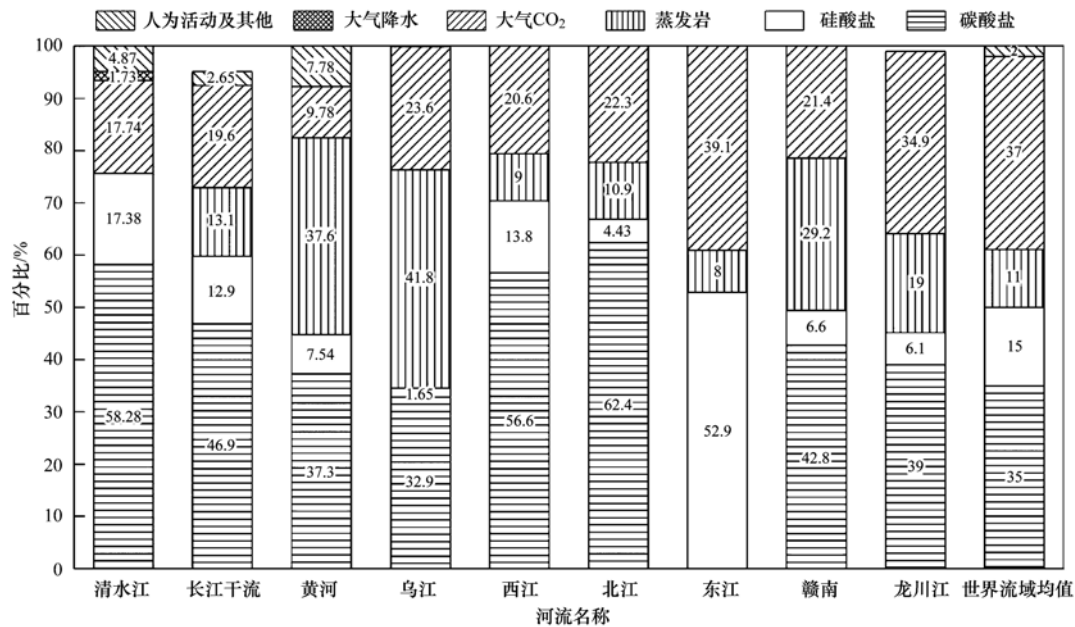


图4 不同岩性和大气对清水江河水化学组成物质的贡献率与其他地区河流比较^[27, 33, 36~38]

Fig. 4 Diagram showing the contribution rate of lithology and atmosphere to chemical composition of Qingshuijiang River in comparison with other rivers in China

3.4 岩石风化速率及碳汇估算

通常用化学风化速率来衡量化学风化作用强弱,利用河水的化学通量 $[X]_{\text{silicate}}$ 和 $[X]_{\text{carbonate}}$ 可以估算流域碳酸盐和硅酸盐的化学风化速率^[9],对于受到大气降水和人类活动影响的河流,在估算化学风化速率时要先对这部分来源进行扣除。扣除大气降水和人为活动的贡献,流域化学风化率计算如下所示:

$$\text{CDR}_{\text{QC}} = 2[\text{Ca}^{2+}]_{\text{carbonate}} + 2[\text{Mg}^{2+}]_{\text{carbonate}} + \frac{1}{2}[\text{HCO}_3^-]_{\text{carbonate}} \quad (1)$$

$$\text{CDR}_{\text{QS}} = [\text{K}^+]_{\text{silicate}} + [\text{Na}^+]_{\text{silicate}} + 2[\text{Ca}^{2+}]_{\text{silicate}} + 2[\text{Mg}^{2+}]_{\text{silicate}} + [\text{SiO}_2]_{\text{silicate}} + 2[\text{SO}_4^{2-}]_{\text{silicate}} \quad (2)$$

$$\text{CDR}_{\text{QSJ}} = [2\text{Ca}^{2+}]_{\text{carbonate}} + 2[\text{Mg}^{2+}]_{\text{carbonate}} + \frac{1}{2}[\text{HCO}_3^-]_{\text{carbonate}} + [\text{K}^+]_{\text{silicate}} + [\text{Na}^+]_{\text{silicate}} + 2[\text{Ca}^{2+}]_{\text{silicate}} + 2[\text{Mg}^{2+}]_{\text{silicate}} + [\text{SiO}_2]_{\text{silicate}} + 2[\text{SO}_4^{2-}]_{\text{silicate}} \times Q/A \quad (3)$$

式中, CDR_{QSJ} 表示流域化学风化率 $[\text{t} \cdot (\text{km}^2 \cdot \text{a})^{-1}]$, CDR_{QC} 表示流域碳酸盐岩风化速率 $[\text{t} \cdot (\text{km}^2 \cdot \text{a})^{-1}]$, CDR_{QS} 表示流域硅酸盐岩风化速率 $[\text{t} \cdot (\text{km}^2 \cdot \text{a})^{-1}]$, $[X]_{\text{carbonate}}$ 、 $[X]_{\text{silicate}}$ 分别为扣除大气降水及人为影响输入后的碳酸盐岩、硅酸盐岩对河流离子 X 的贡献浓度, Q 代表河流多年平均径流量 $(\text{m}^3 \cdot \text{a}^{-1})$, A 为流域面积 (km^2) 。

清水江流域多年平均径流量为 $355 \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$,流域面积 17157 km^2 ,扣除非岩石风化来源,根据公式(1)~(3)估算得出清水江流域碳酸盐岩风化速率为 $81.67 \text{ t} \cdot (\text{km}^2 \cdot \text{a})^{-1}$,硅酸盐岩风化速率为 $28.30 \text{ t} \cdot (\text{km}^2 \cdot \text{a})^{-1}$,流域化学风化速率为 $109.9 \text{ t} \cdot (\text{km}^2 \cdot \text{a})^{-1}$ (表3),与乌江、西江及长江相似,明显高于以蒸发岩风化为主的黄河流域及以硅酸盐风化为主赣江流域、东江。虽然清水江流域碳酸盐岩分布比例仅占全流域面积的32%左右,但其岩石风化速率却与典型喀斯特河流乌江接近,其主要可能受两方面因素影响:①高植被覆盖率,清水江流域植被覆盖率70%以上,已有研究表明,植被及相关生物会促进岩石风化速率,如Schwartzman等^[39]认

为,生物作用下的岩石化学风化速率比裸露岩石区高 100~1 000 倍,甚至更高;② 碳酸盐矿物风化速率远高于硅酸盐类矿物. Blum 等^[40] 和 Jacobson 等^[41] 对流经喜马拉雅硅酸盐岩的小流域研究发现,尽管在典型硅酸盐岩小流域中的碳酸盐矿物只占大约 1%,但是流域 HCO_3^- 通量的 82%~90% 源自溶解速率很快的碳酸盐矿物的风化. 根据贵州省区域地质志^[42],清水江流域的碎屑岩含灰岩、凝灰岩,其中灰质的碳酸盐矿物应该是中下游岩石风化的主要贡献组分.

清水江流域 HCO_3^- 浓度均值为 $1.81 \text{ mmol} \cdot \text{L}^{-1}$,根据水化学-径流^[43] 计算方法,估算得出

流域大气 CO_2 消耗通量为 $7.25 \times 10^5 \text{ mol} \cdot (\text{km}^2 \cdot \text{a})^{-1}$,与长江、乌江及西江接近,高于赣江流域、东江及鄱阳湖,远高于全球流域均值、亚马逊河、黄河流域及以硅酸盐为主的南北盘江. 流域大气 CO_2 的消耗量为 $12.45 \times 10^9 \text{ mol} \cdot \text{a}^{-1}$,其中碳酸盐岩风化消耗量占 63.13%,为 $7.86 \times 10^9 \text{ mol} \cdot \text{a}^{-1}$,硅酸盐岩风化消耗量占 36.87%,为 $4.59 \times 10^9 \text{ mol} \cdot \text{a}^{-1}$. 与世界其他河流相比,流域大气 CO_2 的消耗量明显偏低,仅为世界河流的 0.05%,分别为长江、西江、黄河及乌江的 1.13%、4.40%、11.52% 及 15.70%,与赣江流域较为接近,略高于东江.

表 3 清水江流域岩石化学风化碳汇与其他地区河流比较

Table 3 Carbon sink of rocks chemical weathering in Qingshuijiang River basin in comparison with other rivers in the world and China

河流	岩石化学风化速率 $/\text{t} \cdot (\text{km}^2 \cdot \text{a})^{-1}$	大气 CO_2 消耗通量 $\times 10^5 / \text{mol} \cdot (\text{km}^2 \cdot \text{a})^{-1}$	大气 CO_2 的消耗量 $\times 10^9 / \text{mol} \cdot \text{a}^{-1}$
清水江(本研究)	109.97	7.25	12.45
长江 ^[27, 38]	85.00	6.11	1 104.00
乌江 ^[36]	108.3	9.02	79.28
黄河 ^[38]	33.60	1.44	108.00
赣江 ^[36]	25.74	4.09	34.13
南北盘江 ^[44]	—	0.72~1.37	—
西江 ^[36]	101.5	8.32	282.90
东江 ^[23, 38]	25.02	4.84~4.93	7.65~7.79
全球流域均值 ^[27]	36.00	2.46	24 000.00

4 结论

(1)清水江流域水体总体表现为中性偏弱碱性,部分地方偏弱酸性. 河水离子组成以 Ca^{2+} 、 Mg^{2+} 、 HCO_3^- 为主,TDS 均值 $217.50 \text{ mmol} \cdot \text{L}^{-1}$,上游流域 TDS 值较高,从上游至下游浓度逐渐降低.

(2)流域河水溶质表现为同时受到岩石风化和人为活动影响的特点. 主要受到碳酸盐岩风化影响,其次是硅酸盐矿物风化. 碳酸盐岩风化对流域河水总溶解物质的贡献率为 58.28%,远高于世界流域均值;硅酸盐岩风化对河水总离子贡献率为 17.38%. 人为活动对清水江流域的影响主要表现为上游工矿企业的影响,贡献率为 4.87%,高于全球流域均值.

(3)清水江流域的平均化学风化率为 $109.97 \text{ t} \cdot (\text{km}^2 \cdot \text{a})^{-1}$,与乌江、西江及长江接近,明显高于黄河流域、赣江流域、东江及世界流域均值. 岩石化学风化对流域大气 CO_2 消耗通量为 $7.25 \times 10^5 \text{ mol} \cdot (\text{km}^2 \cdot \text{a})^{-1}$,大气 CO_2 的消耗量为 $12.45 \times 10^9 \text{ mol} \cdot \text{a}^{-1}$,是全球碳循环估算的重要组成部分;其中碳酸盐岩风化消耗量占 63.13%,为 7.86×10^9

$\text{mol} \cdot \text{a}^{-1}$,硅酸盐岩风化消耗量占 36.87%,为 $4.59 \times 10^9 \text{ mol} \cdot \text{a}^{-1}$.

参考文献:

[1] Liu Z H, Dreybrodt W. Significance of the carbon sink produced by H_2O -carbonate- CO_2 -aquatic phototroph interaction on land [J]. Science Bulletin, 2015, **60**(2): 182-191.

[2] Siegenthaler U, Sarmiento J L. Atmospheric carbon dioxide and the ocean[J]. Nature, 1993, **365**(6442): 119-125.

[3] 刘再华. 大气 CO_2 两个重要的汇[J]. 科学通报, 2000, **45**(21): 2348-2351.

[4] 陶贞, 高全洲, 王振刚, 等. 湿热山地丘陵流域化学风化过程的碳汇估算[J]. 科学通报, 2011, **56**(26): 2188-2197.

Tao Z, Gao Q Z, Wang Z G, et al. Estimation of carbon sinks in chemical weathering in a humid subtropical mountainous basin [J]. Chinese Science Bulletin, 2011, **56**(35): 3774-3782.

[5] Schindler D W. Carbon cycling: the mysterious missing sink [J]. Nature, 1999, **398**(6723): 105-107.

[6] Amiotte S P, Probst J L. Origines du carbone inorganique dissous dans les eaux de la Garonne. Variations saisonnières et interannuelles. (Sources of dissolved inorganic carbon in the Garonne river water. Seasonal and interannual variations) [J]. Sciences Géologiques Bulletin, 1996, **49**(1-4): 101-126.

[7] Milliman J D, Meade R H. World-wide delivery of river sediment to the oceans[J]. The Journal of Geology, 1983, **91**(1): 1-21.

[8] Suchet P A, Probst J L. A global model for present-day atmospheric/soil CO_2 consumption by chemical erosion of

- continental rocks (GEM-CO₂) [J]. *Tellus B*, 1995, **47**(1-2): 273-280.
- [9] 覃小群, 蒋忠诚, 张连凯, 等. 珠江流域碳酸盐岩与硅酸盐岩风化对大气 CO₂ 汇的效应[J]. *地质通报*, 2015, **34**(9): 1749-1757.
- Qin X Q, Jiang Z C, Zhang L K, *et al.* The difference of the weathering rate between carbonate rocks and silicate rocks and its effects on the atmospheric CO₂ consumption in the Pearl River Basin[J]. *Geological Bulletin of China*, 2015, **34**(9): 1749-1757.
- [10] Hindshaw R S, Tipper E T, Reynolds B C, *et al.* Hydrological control of stream water chemistry in a glacial catchment (Damma Glacier, Switzerland) [J]. *Chemical Geology*, 2011, **285**(1-4): 215-230.
- [11] 刘再华. 岩石风化碳汇研究的最新进展和展望[J]. *科学通报*, 2012, **57**(2-3): 95-102.
- Liu Z H. New progress and prospects in the study of rock-weathering-related carbon sinks[J]. *Chinese Science Bulletin*, 2012, **57**(2-3): 95-102.
- [12] Berner R A, Lasaga A C, Garrels R M. The carbonate-silicate geochemical cycle and its effect on atmospheric carbon dioxide over the past 100 million years[J]. *American Journal of Science*, 1983, **283**(7): 641-683.
- [13] 解晨骥, 高全洲, 陶贞. 流域化学风化与河流水化学研究综述与展望[J]. *热带地理*, 2012, **32**(4): 331-337, 356.
- Xie C J, Gao Q Z, Tao Z. Review and perspectives of the study on chemical weathering and hydrochemistry in river basin[J]. *Tropical Geography*, 2012, **32**(4): 331-337, 356.
- [14] Perrin A S, Probst A, Probst J L. Impact of nitrogenous fertilizers on carbonate dissolution in small agricultural catchments; implications for weathering CO₂ uptake at regional and global scales[J]. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 2008, **72**(13): 3105-3123.
- [15] 刘长礼, 林良俊, 宋超, 等. 土地利用变化对典型碳酸盐岩流域风化碳汇的影响——以云南小江岩溶流域研究为例[J]. *中国地质*, 2011, **38**(2): 479-488.
- Liu C L, Lin L J, Song C, *et al.* The impact of land use on CO₂ intake of chemical weathering in a typical karst region; a case study of Xiaojiang watershed, Yunnan Province[J]. *Geology in China*, 2011, **38**(2): 479-488.
- [16] Yan J H, Wang Y P, Zhou G Y, *et al.* Carbon uptake by karsts in the Houzhai Basin, southwest China [J]. *Journal of Geophysical Research*, 2011, **116** (G4), doi: 10.1029/2011JG001686.
- [17] Zeng C, Liu Z H, Zhao M, *et al.* Hydrologically-driven variations in the karst-related carbon sink fluxes; insights from high-resolution monitoring of three karst catchments in Southwest China[J]. *Journal of Hydrology*, 2016, **533**: 74-90.
- [18] Gao Q Z, Tao Z, Huang X K, *et al.* Chemical weathering and CO₂ consumption in the Xijiang River Basin, South China[J]. *Geomorphology*, 2009, **106**(3-4): 324-332.
- [19] 高全洲, 陶贞. 华南滨海花岗岩丘陵的化学风化与化学径流[J]. *中国科学: 地球科学*, 2010, **40**(6): 758-767.
- Gao Q Z, Tao Z. Chemical weathering and chemical runoffs in the seashore granite hills in South China[J]. *Science China: Earth Sciences*, 2010, **53**(8): 1195-1204.
- [20] 伍名群. 清水江流域氟化物季节性变化特征及防治对策[J]. *环保科技*, 2013, **19**(3): 43-46.
- Wu M Q. Seasonal change and countermeasures of fluoride pollution in the Qingshui River Basin [J]. *Environmental Protection and Technology*, 2013, **19**(3): 43-46.
- [21] 段然, 曾理, 吴法翰, 等. 清水江流域水质污染现状评价及趋势分析[J]. *环保科技*, 2012, **18**(3): 23-27.
- Duan R, Zeng L, Wu H H, *et al.* Evaluation of current water quality and changing trend of Qingshui Jiang River basin [J]. *Environmental Protection and Technology*, 2012, **18**(3): 23-27.
- [22] 贵州省环境质量状况公报[R]. 贵阳: 贵州省环境保护厅, 2011-2015.
- [23] 解晨骥, 高全洲, 陶贞, 等. 东江流域化学风化对大气 CO₂ 的吸收[J]. *环境科学学报*, 2013, **33**(8): 2123-2133.
- Xie C J, Gao Q Z, Tao Z, *et al.* Chemical weathering and CO₂ consumption in the Dongjiang River Basin [J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 2013, **33**(8): 2123-2133.
- [24] 李甜甜, 季宏兵, 江用彬, 等. 赣江上游河流水化学的影响因素及 DIC 来源[J]. *地理学报*, 2007, **62**(7): 764-775.
- Li T T, Ji H B, Jiang Y B, *et al.* Hydro-geochemistry and the sources of DIC in the upriver tributaries of the Ganjiang River [J]. *Acta Geographica Sinica*, 2007, **62**(7): 764-775.
- [25] Grosbois C, Négrel P, Grimaud D, *et al.* An overview of dissolved and suspended matter fluxes in the Loire River Basin: natural and anthropogenic inputs [J]. *Aquatic Geochemistry*, 2001, **7**(2): 81-105.
- [26] Gaillardet J, Dupre B, Allegre C J, *et al.* Chemical and physical denudation in the Amazon River Basin [J]. *Chemical Geology*, 1997, **142**(3-4): 141-173.
- [27] Gaillardet J, Dupré B, Louvat P, *et al.* Global silicate weathering and CO₂ consumption rates deduced from the chemistry of large rivers [J]. *Chemical Geology*, 1999, **159**(1-4): 3-30.
- [28] 孙平安, 于爽, 莫付珍, 等. 不同地质背景下河流水化学特征及影响因素研究: 以广西大溶江、灵渠流域为例[J]. *环境科学*, 2016, **37**(1): 123-131.
- Sun P A, Yu S, Mo F Z, *et al.* Hydrochemical characteristics and influencing factors in different geological background: a case study in Darongjiang and Lingqu Basin, Guangxi, China [J]. *Environmental Science*, 2016, **37**(1): 123-131.
- [29] 吕婕梅, 安艳玲, 吴起鑫, 等. 贵州清水江流域丰水期水化学特征及离子来源分析[J]. *环境科学*, 2015, **36**(5): 1565-1572.
- Lü J M, An Y L, Wu Q X, *et al.* Hydrochemical characteristics and sources of Qingshuijiang River Basin at wet season in Guizhou Province [J]. *Environmental Science*, 2015, **36**(5): 1565-1572.
- [30] Galy A, France-Lanord C. Weathering processes in the Ganges-Brahmaputra basin and the riverine alkalinity budget [J]. *Chemical Geology*, 1999, **159**(1-4): 31-60.
- [31] Li S Y, Lu X X, He M, *et al.* Major element chemistry in the upper Yangtze River: a case study of the Longchuanjiang River [J]. *Geomorphology*, 2011, **129**(1-2): 29-42.
- [32] Suchet P A, Probst J L. Modelling of atmospheric CO₂ consumption by chemical weathering of rocks: application to the Garonne, Congo and Amazon basins [J]. *Chemical Geology*, 1993, **107**(3-4): 205-210.

- [33] 孙媛媛, 季宏兵, 罗建美, 等. 赣南小流域的水文地球化学特征和主要风化过程[J]. 环境化学, 2006, **25**(5): 550-557.
Sun Y Y, Ji H B, Luo J M, *et al.* Hydro-geochemistry and chemical weathering processes of small watersheds in the southern Jiangxi Province[J]. Environmental Chemistry, 2006, **25**(5): 550-557.
- [34] Mortatti J, Probst J L. Silicate rock weathering and atmospheric/soil CO₂ uptake in the Amazon basin estimated from river water geochemistry: seasonal and spatial variations [J]. Chemical Geology, 2003, **197**(1-4): 177-196.
- [35] White A F, Schulz M S, Lowenstern J B, *et al.* The ubiquitous nature of accessory calcite in granitoid rocks: Implications for weathering, solute evolution, and petrogenesis[J]. Geochimica et Cosmochimica Acta, 2005, **69**(6): 1455-1471.
- [36] 李晶莹. 中国主要流域盆地的风化剥蚀作用与大气 CO₂ 的消耗及其影响因子研究[D]. 青岛: 中国海洋大学, 2003.
- [37] 何敏. 小流域风化剥蚀作用及碳侵蚀通量的初步研究[D]. 昆明: 昆明理工大学, 2009.
- [38] 李晶莹, 张经. 黄河流域化学风化作用与大气 CO₂ 的消耗[J]. 海洋地质与第四纪地质, 2003, **23**(2): 43-49.
Li J Y, Zhang J. Chemical weathering processes and atmospheric CO₂ consumption in the Yellow River drainage basin[J]. Marine Geology & Quaternary Geology, 2003, **23**(2): 43-49.
- [39] Schwartzman D W, Volk T. Biotic enhancement of weathering and the habitability of Earth[J]. Nature, 1989, **340**(6233): 457-460.
- [40] Blum J D, Gazis C A, Jacobson A D, *et al.* Carbonate versus silicate weathering in the Raikhot watershed within the High Himalayan Crystalline Series[J]. Geology, 1998, **26**(5): 411-414.
- [41] Jacobson A D, Blum J D, Walter L M. Reconciling the elemental and Sr isotope composition of Himalayan weathering fluxes: insights from the carbonate geochemistry of stream waters[J]. Geochimica et Cosmochimica Acta, 2002, **66**(19): 3417-3429.
- [42] 贵州省地质矿产局. 贵州省区域地质志[M]. 北京: 地质出版社, 1987.
- [43] 刘建栋, 胡泓, 张龙军. 流域化学风化作用的碳汇机制研究进展[J]. 土壤通报, 2007, **38**(5): 998-1002.
Liu J D, Hu H, Zhang L J. Progress of carbon sink by chemical weathering of watershed[J]. Chinese Journal of Soil Science, 2007, **38**(5): 998-1002.
- [44] Xu Z F, Liu C Q. Chemical weathering in the upper reaches of Xijiang River draining the Yunnan-Guizhou Plateau, Southwest China[J]. Chemical Geology, 2007, **239**(1-2): 83-95.

CONTENTS

Transport Loss Estimation of Fine Particulate Matter in Sampling Tube Based on Numerical Computation	LUO Li-na, CHENG Zhen, ZHU Wen-fei, <i>et al.</i> (4457)
Sources Analysis of Heavy Metal Aerosol Particles in North Suburb of Nanjing	QIN Xin, ZHANG Ze-feng, LI Yan-wei, <i>et al.</i> (4467)
Distribution Characteristics of Water Soluble Ions Under Different Weather Conditions During the Youth Olympic Games in Nanjing	SHI Yuan-zhe, AN Jun-lin, WANG Hong-lei, <i>et al.</i> (4475)
Seasonal Variation and Source Analysis of the Water-soluble Inorganic Ions in Fine Particulate Matter in Suzhou	WANG Nian-fei, CHEN Yang, HAO Qing-ju, <i>et al.</i> (4482)
Characteristics of Elements and Potential Ecological Risk Assessment of Heavy Metals in PM _{2.5} at the Southwest Suburb of Chengdu in Spring	 YANG Huai-jin, YANG De-rong, YE Zhi-xiang, <i>et al.</i> (4490)
Geochemical Characteristics and Source Apportionment of Rare Earth Elements in the Dustfall of Quanzhou City	ZHANG Zong-wei, YU Rui-lian, HU Gong-ren, <i>et al.</i> (4504)
¹³ C-based Sources Partitioning of Atmospheric CO ₂ During Youth Olympic Games, Nanjing	XU Jia-ping, LI Xu-hui, XIAO Wei, <i>et al.</i> (4514)
Gaseous Emission Characterization of Civil Aviation Aircraft During Takeoff	HAN Bo, HUANG Jia-min, WEI Zhi-qiang (4524)
Pollution Characteristics of Antibiotic Resistant Bacteria from Atmospheric Environment of Animal Feeding Operations	ZHANG Lan-he, HE Yu-wei, CHEN Mo, <i>et al.</i> (4531)
Removing Nano Particles by Filtration Using Materials with Ordered Mesoporous Structure	XING Yi, WANG Cong, LU Pei, <i>et al.</i> (4538)
Emission Characteristics of Gaseous Pollutants from City Bus Fueled with Biodiesel Based on DOC + CDPF Technology in Real Road Conditions	 LOU Di-ming, ZHANG Yun-hua, TAN Pi-qiang, <i>et al.</i> (4545)
Characteristics of Methane Flux Across the Water-air Interface in Subtropical Shallow Ponds	LONG Li, XIAO Shang-bin, ZHANG Cheng, <i>et al.</i> (4552)
Succession of Phytoplankton Assemblages and Its Influencing Factors in Tangpu Reservoir, Zhejiang Province	MA Pei-ming, SHI Lian-dong, ZHANG Jun-fang, <i>et al.</i> (4560)
Responses of Physiological Indices of Typical Submerged Macrophytes to Water Quality in Taihu Lake	GAO Min, HU Wei-ping, DENG Jian-cai, <i>et al.</i> (4570)
Optical Characteristics of Dissolved Organic Matter from Two Different Full Mixed Reservoirs in Winter Based on UV-vis and EEMs	 HUANG Ting-lin, FANG Kai-kai, ZHANG Chun-hua, <i>et al.</i> (4577)
Hanfeng Pre-dam Commissioning Eutrophication Status and Control Evaluation in Three Gorges Reservoir	YANG Bing, HE Bing-hui, WANG De-bao (4586)
Occurrence, Distribution and Ecological Risk of Antibiotics in Surface Water of the Gonghu Bay, Taihu Lake	WU Xu-yue, ZOU Hua, ZHU Rong, <i>et al.</i> (4596)
Distribution Characteristics of <i>n</i> -alkanes in Sediment Core and Implication of Environment in Different Lakes of Dianchi	YU Li-yan, HAN Xiu-xiu, HUANG Xiao-hu, <i>et al.</i> (4605)
Vertical Distribution and Pollution Risk Assessment of Nitrogen, Phosphorus, and Organic Matter in Sediment of Inflowing Rivers of Erhai Lake Estuarine Wetland in Wet and Dry Seasons	 WANG Shu-jin, LIU Yun-gen, WANG Yan, <i>et al.</i> (4615)
Variation of Nitrogen Forms in Sediments of Lihu Lake During Mineralization	 ZHAO Li, WANG Shu-hang, JIANG Xia, <i>et al.</i> (4626)
Temporal and Spatial Variation Characteristics of the Heavy Metals Content in the Surface Sediment and the Potential Ecological Risk Trends in the Three Gorges Reservoir Area	 ZHUO Hai-hua, SUN Zhi-wei, TAN Ling-zhi, <i>et al.</i> (4633)
Modeling the Environmental Behaviors and Ecological Risks of Permethrin in Chaohu Lake	LIU Ya-li, WANG Ji-zhong, PENG Shu-chuan, <i>et al.</i> (4644)
Simulation Experiment; Effect of Organic Colloid on Carbamazepine Transport in Porous Media	ZHANG Si, HE Jiang-tao, ZHU Xiao-jing (4651)
Grain Size Distribution Characteristics of Suspended Particulate Matter as Influenced by the Apparent Pollution in the Inorganic Type Urban Landscape Water: Taking the Canal of Suzhou Section as Example	LI Qian-qian, PAN Yang, GONG Dan-yan, <i>et al.</i> (4662)
Rock Weathering Characteristics and the Atmospheric Carbon Sink in the Chemical Weathering Processes of Qingshuijiang River Basin	LÜ Jie-mei, AN Yan-ling, WU Qi-xin, <i>et al.</i> (4671)
Pollution Characteristics Analysis in Shallow Groundwater of Typical Farmland Area, Southern China	GUO Hui, YU Min-da, HE Xiao-song, <i>et al.</i> (4680)
Identification of Sulfate Sources in the Groundwater System of Zaozhuang; Evidences from Isotopic and Hydrochemical Characteristics	MA Yan-hua, SU Chun-li, LIU Wei-jiang, <i>et al.</i> (4690)
Removal of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons by Extensive Green Roofs	SHEN Qing-ran, HOU Juan, LI Tian (4700)
Comparative Study on Pretreatment Process of Ultrafiltration; Chemical Coagulation and Electrocoagulation	ZHAO Kai, YANG Chun-feng, SUN Jing-qiu, <i>et al.</i> (4706)
Adsorption Mechanisms Analysis of EOM on PVDF Ultrafiltration Membranes Modified by SiO ₂ Using QCM-D and AFM	JIANG Jia-liang, WANG Lei, HUANG Dan-xi, <i>et al.</i> (4712)
Isolation of Quorum Quenching Bacteria and Their Function for Controlling Membrane Biofouling	ZHAO Chang, WANG Wen-zhao, XU Qi-yong (4720)
Effects of Hydraulic Loading Rate on the Removal of Pollutants from an Integrated Biological Settling Tank	WANG Wen-dong, MA Cui, LIU Hui, <i>et al.</i> (4727)
Characteristics of Nitrobacteria in SBR with Trace N ₂ H ₄ Addition	XIAO Peng-ying, ZHANG Dai-jun, LU Pei-li (4734)
Start-up of Partial Nitrification AGS-SBR and Analysis of Its Microbial Community Composition	LU Hang, XIN Xin, GUAN Lei, <i>et al.</i> (4741)
Effects of PAHs Pollution on the Community Structure of Denitrifiers in a Typical Oilfield	YAO Yan-hong, WANG Ming-xia, ZUO Xiao-hu, <i>et al.</i> (4750)
Performance and Microbial Community Analysis of Bioaugmented Treatment of Diethyl Phthalate (DEP) in Membrane Bioreactor	ZHANG Ke, GUAN Yun, LUO Hong-bing, <i>et al.</i> (4760)
Comparative Analysis of the Bacterial Community on Anodic Biofilms in Sediment Microbial Fuel Cell Under Open and Closed Circuits	 WU Yi-cheng, DENG Quan-xin, WANG Ze-jie, <i>et al.</i> (4768)
Anaerobic Biodegradability of Perfluorooctanoic Acid (PFOA)	LI Fei, CHEN Yi-dan, ZHOU Zhen-ming, <i>et al.</i> (4773)
Comprehensive Effects of the Application of Water and Fertilizer Amount on CO ₂ Emission from Soils of Summer-maize Field	YANG Shuo-huan, ZHANG Bao-cheng, WANG Li, <i>et al.</i> (4780)
Spatial Heterogeneity of Soil Respiration in the Soil Erosion Area of West Mountains in Fujian Province, China	YAO Xiong, YU Kun-yong, ZENG Qi, <i>et al.</i> (4789)
Comprehensive Risk Evaluation of Cadmium in Soil-rice System Based on Uncertainty Analysis	YANG Yang, CHEN Wei-ping, LI Yan-ling, <i>et al.</i> (4800)
Fluorescence Properties of Glomalin and Its Relationship with Soil Physicochemical Characteristics in Different Regions of Beijing City	 CHAI Li-wei, LIU Meng-jiao, JIANG Da-lin, <i>et al.</i> (4806)
Spatial Distribution Characteristics of Heavy Metal Pollution and Health Risk in Soil Around the Coal Industrial Area of East Junggar Basin	 LIU Fang, Tashpolat Tiyp, Ilyas Nurmamat, <i>et al.</i> (4815)
Characteristics of Microbial Nitrogen Degradation in Fluvo-aquic Soil of Hebei Plain	ZHANG Can-can, PANG Hui-cong, GAO Tai-zhong, <i>et al.</i> (4830)
Influence of Arsenate and Phenanthrene on Carbon-groups of <i>Pteris vittata</i> L. Roots	LIAO Xiao-yong, GONG Xue-gang, YAN Xiu-lan, <i>et al.</i> (4841)
Effect of Alkali Solids Amendment on Sewage Sludge Aerobic Composting and the Potential of Related Products on Infertile Soil Amelioration	 CAI Han-zhen, NING Xi-cui, WANG Quan, <i>et al.</i> (4848)
Adsorption and Influential Factors of Diuron on the Loess Soil by Adding Different Biochar Prepared at Varying Temperatures	SUN Hang, JIANG Yu-feng, SHI Lei-ping, <i>et al.</i> (4857)
Characteristics of Heavy Metal Contents in Human Hairs of Mine Contaminated Areas in Nandan County	TIAN Mei-ling, ZHONG Xue-mei, XIA De-shang, <i>et al.</i> (4867)
Preparation of Mg-Al-Me (Me = La, Ce, Zr) Composite Oxides for Efficient Fluoride Uptake	WANG Ai-he, ZHOU Kang-gen, LIU Xing, <i>et al.</i> (4874)
Fe-Mn Binary Oxide Impregnated Chitosan Bead (FMCB): An Environmental Friendly Sorbent for Phosphate Removal	FU Jun, FAN Fang, LI Hai-ning, <i>et al.</i> (4882)
Leaching Toxicity and Bioaccessibility of Heavy Metals in MSWI Fly Ash with Various Particle Sizes	WANG Chun-feng, CHEN Guan-fei, ZHU Yan-chen, <i>et al.</i> (4891)

《环境科学》第6届编辑委员会

主 编: 赵进才

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 刘 毅 汤鸿霄 孟 伟 周宗灿 林金明
赵进才 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)

2016年12月15日 第37卷 第12期(卷终)

ENVIRONMENTAL SCIENCE

(Monthly Started in 1976)

Vol. 37 No. 12 Dec. 15, 2016

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	赵进才	Editor-in -Chief		ZHAO Jin-cai
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	中国国际图书贸易集团有限公司 (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