

环境科学

(HUANJING KEXUE)

ENVIRONMENTAL SCIENCE

第38卷 第12期

Vol.38 No.12

2017

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)

京津冀区域 PM _{2.5} 污染相互输送特征	王燕丽, 薛文博, 雷宇, 王金南, 武卫玲 (4897)
顾及尺度效应的多源遥感数据“源”“汇”景观的大气霾效应	许凯, 余添添, 孙姣姣, 袁兆祥, 秦昆 (4905)
基于多源数据的 PM _{2.5} 浓度时空分布预测与制图	肖璐, 郎艺超, 夏浪, 楼昭涵, 孙楠, 黄李童, George Christakos (4913)
华东区域 PM _{2.5} 变化背景下浙江省人口经济暴露水平评估	郁珍艳, 高大伟, 李正泉, 杨续超, 王阔, 马浩, 徐宏辉 (4924)
南京北郊不同大气污染程度下气溶胶化学组分特征	张程, 于兴娜, 安俊琳, 朱彬, 林梦凡 (4932)
菏泽市 PM _{2.5} 碳组分季节变化特征	刘泽珺, 吴建会, 张裕芬, 梁丹妮, 马威, 刘保双, 冯银厂, 张勤勤 (4943)
辽宁典型城市道路扬尘 PM ₁₀ 中水溶性无机离子组分特征及来源解析	张伟, 姬亚芹, 张军, 张蕾, 王伟, 王士宝 (4951)
天津冬季一次重污染过程颗粒物中水溶性离子粒径分布特征	姚青, 刘子锐, 韩素芹, 蔡子颖, 刘敬乐, 黄小娟, 刘景云, 王跃思 (4958)
高原城市昆明公路隧道大气中 PM _{2.5} 理化特征分析	王成辉, 闫琨, 韩新宇, 施择, 毕丽玫, 向峰, 宁平, 史建武 (4968)
2015 年中国近地面臭氧浓度特征分析	段晓瞳, 曹念文, 王潇, 张玉欣, 梁静舒, 杨思鹏, 宋秀瑜 (4976)
不同 CDPF 贵金属负载量对柴油公交车 VOCs 组分排放影响	楼狄明, 张子骏, 刘继凯, 谭丕强, 胡志远 (4983)
ENSO 事件对上海降水中氢氧同位素变化的影响	董小芳, 杨华玮, 张杰, 朱志鹏, 杨言, 郑祥民, 周立旻 (4991)
我国南方两个典型森林生态系统的硫、氮和汞沉降量	程正霖, 罗遥, 张婷, 段雷 (5004)
新安江水库二氧化碳排放的时空变化特征	杨乐, 李贺鹏, 孙滨峰, 岳春雷 (5012)
三峡库区表层沉积物营养盐时空变化及评价	卓海华, 邱光胜, 翟婉盈, 刘云兵, 兰静 (5020)
三门峡水库水体中不同形态汞的分布特征	程柳, 麻冰涓, 周伟立, 王力, 耿音, 刘清伟, 毛宇翔 (5032)
太子河流域中游地区河流硝酸盐来源及迁移转化过程	李艳利, 孙伟, 杨梓睿 (5039)
典型入湖河流水体氮素变化特征及其对降雨的响应: 以太湖乌溪港为例	连慧妹, 刘宏斌, 李旭东, 宋挺, 刘申, 雷秋良, 任天志, 武淑霞, 李影 (5047)
缙云山常绿阔叶林湿沉降过程中不同空间层次水质变化特征	马明, 孙涛, 李定凯, 王定勇 (5056)
基于 MIKE11 模型提高污染河流水质改善效果的方法	熊鸿斌, 陈雪, 张斯思 (5063)
北京市地下水典型抗生素分布特征与潜在风险	陈卫平, 彭程伟, 杨阳, 吴玉梅 (5074)
深圳茅洲河下游柱状沉积物中碳氮同位素特征	凌郡鸿, 张依章, 王民浩, 周北海, 陶明, 陈惠明, 闫振广 (5081)
供水管网铁释放的影响因素相对重要性分析	刘莹, 于影, 石宝友, 刘书明, 吴雪 (5090)
低温高铁锰氨氮地下水生物同池净化	李冬, 曹瑞华, 杨航, 王刘煜, 张杰, 曾辉平 (5097)
臭氧预氧化强化混凝对二级出水中 DON 作用机制探讨	刘冰, 郑煜铭, 王大祥, 李清飞, 赵承美, 余国忠, 古励 (5106)
碱活化过一硫酸盐降解水中环丙沙星	葛勇建, 蔡显威, 林翰, 徐梦苑, 沈一挺, 周丹, 钱梦洁, 邓靖 (5116)
MIL-88A@MIP 催化活化过硫酸盐靶向降解邻苯二甲酸二丁酯	王九妹, 关泽宇, 万金泉, 王艳, 马邕文, 闫志成, 张桂华 (5124)
常温下加装脱硫装置的 MCBMBR 处理高硫酸盐有机废水试验	徐婷, 金艳青, 李勇 (5132)
载镁天然沸石复合材料对污水中氮磷的同步回收	成雪君, 王学江, 王浩, 张志昊, 赵建夫 (5139)
不同运行模式下改良型 CAST 工艺处理生活污水的除磷性能	马娟, 王谨, 俞小军, 周猛, 孙洪伟, 王磊 (5146)
ABR-MBR 工艺处理生活污水实现短程硝化	吕亮, 赵诗惠, 韦佳敏, 张敏, 尤雯, 吴鹏, 沈耀良 (5154)
海洋厌氧氨氧化菌处理含海水污水的基质抑制及其动力学特性	周同, 于德爽, 李津, 吴国栋, 王晓静 (5162)
游离氨 (FA) 对氨氧化过程氨逃逸影响试验	孙洪伟, 于雪, 尤永军, 彭永臻, 王淑莹 (5169)
西安市典型景观水体水质及反硝化细菌种群结构	康鹏亮, 黄廷林, 张海涵, 陈胜男, 商潘路, 冯稷, 贾宽宇 (5174)
厌氧氨氧化启动过程及微生物群落结构特征	汪瑶琪, 张敏, 姜滢, 徐乐中, 陈重军, 沈耀良 (5184)
SBAF 单级自养脱氮快速启动、稳定运行及微生物群落演化	岳秀, 刘竹寒, 于广平, 吉世明, 唐嘉丽 (5192)
活性污泥中硝化螺菌 (Nitrospira) 的富集及其动力学参数	姚倩, 彭党聪, 赵俏迪, 王博 (5201)
pH 值对零价铁自养反硝化过程的影响	张宁博, 李祥, 黄勇 (5208)
接种单一/混合污泥对厌氧氨氧化反应器快速启动的影响	张泽文, 李冬, 张杰, 郭跃洲, 李帅 (5215)
活性污泥法和生物膜法 SBR 工艺亚硝化启动和稳定运行性能对比	孙艺齐, 卞伟, 王盟, 赵青, 王文啸, 梁东博, 李军 (5222)
长期暴露下纳米 TiO ₂ 对厌氧颗粒污泥体系稳定性的影响	李慧婷, 崔福义 (5229)
长三角典型城郊不同土地利用土壤抗生素组成及分布特征	赵方凯, 陈利顶, 杨磊, 方力, 孙龙, 李守娟 (5237)
不同有机肥中磷在土壤剖面中累积迁移特征与有效性差异	张田, 许浩, 茹淑华, 苏德纯 (5247)
有机磷酸酯在三峡库区土壤中污染特征	何明靖, 杨婷, 杨志豪, 魏世强 (5256)
上海某生活垃圾焚烧厂周边土壤重金属污染特征、来源分析及潜在生态风险评价	郭彦海, 孙许超, 张士兵, 余广杰, 唐正, 刘振涛, 薛昱, 高品 (5262)
大庆市不同环境介质中多环芳烃污染特征对比及来源解析	宋宁宁, 冯嘉申, 于洋, 李迎霞 (5272)
工业区户外儿童游乐场地表灰尘重金属污染的磁学响应	杨孟, 李慧明, 李凤英, 王金花, 刁一伟, 钱新, 杨兆平, 王成 (5282)
上海市郊工业区附近蔬菜中重金属分布及其健康风险	周雅, 毕春娟, 周泉潇, 张焕焕, 陈振楼, 包新一 (5292)
基施硅肥对土壤微生物有效性及水稻镉累积效应的影响	高子翔, 周航, 杨文弢, 辜娇峰, 陈立伟, 杜文琪, 徐珺, 廖柏寒 (5299)
水稻对气态单质汞的吸收与挥发	尚帅, 田珮, 蒋煜, 武婧轩, 姜珊, 邓泓 (5308)
麦田 O ₃ 浓度的长期变化及其对冬小麦干物质和产量损失的估算	赵辉, 郑有飞, 李硕, 徐静馨, 曹嘉晨, 魏莉, 关清 (5315)
缓控释肥侧深施对稻田氨挥发排放的控制效果	侯朋福, 薛利祥, 俞映惊, 薛利红, 范立慧, 杨林章 (5326)
生物炭和有机肥对华北农田盐碱土 N ₂ O 排放的影响	石玉龙, 刘杏认, 高佩玲, 张晴雯, 张爱平, 杨正礼 (5333)
成都平原不同类型沟渠 CO ₂ 、CH ₄ 和 N ₂ O 排放通量特征及其影响因素	冯香荣, 邓欧平, 邓良基, 吴铭, 姚昆, 杨泽鹏 (5344)
河流 CO ₂ 与 CH ₄ 排放研究进展	王晓峰, 袁兴中, 陈槐, 何奕忻, 罗珍, 刘恋, 何宗茂 (5352)
《环境科学》第 38 卷 (2017 年) 总目录	(5367)
《环境科学》征稿简则 (4950)	
《环境科学》征订启事 (5031)	
信息 (4923, 5105, 5161)	

我国南方两个典型森林生态系统的硫、氮和汞沉降量

程正霖, 罗遥, 张婷, 段雷*

(清华大学环境学院, 环境模拟与污染控制国家重点联合实验室, 北京 100084)

摘要: 利用混合降水采样器, 对江西千烟洲和湖南会同两个森林生态站的大气硫、氮和汞的湿沉降和穿透水沉降进行了为期1 a的观测. 在2013-12~2014-11的观测期间, 千烟洲站降水中的 SO_4^{2-} -S、 NO_3^- -N、 NH_4^+ -N和Hg的体积加权平均质量浓度分别为 $1.89 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 、 $0.957 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 、 $0.401 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 和 $12.5 \text{ ng}\cdot\text{L}^{-1}$, 而穿透水中的平均浓度分别为 $2.39 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 、 $1.18 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 、 $0.897 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 和 $22.2 \text{ ng}\cdot\text{L}^{-1}$, 穿透水浓度较降水有不同比例的增加. 会同站穿透水中的元素平均浓度则分别为 $2.93 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 、 $1.60 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 、 $0.502 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 和 $22.0 \text{ ng}\cdot\text{L}^{-1}$. 基于穿透水的千烟洲站大气硫、氮和汞的沉降量分别为 $3.56 \text{ g}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{a})^{-1}$ 、 $3.02 \text{ g}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{a})^{-1}$ 和 $30.6 \text{ }\mu\text{g}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{a})^{-1}$, 会同站分别为 $6.18 \text{ g}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{a})^{-1}$ 、 $4.48 \text{ g}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{a})^{-1}$ 和 $37.3 \text{ }\mu\text{g}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{a})^{-1}$, 三者均在夏季达到最高. 汞的干湿沉降量相当, 而硫和氮的湿沉降量在总沉降量中占主导地位. 与硫沉降和氮沉降主要来自人为源不同, 自然源对汞沉降的贡献较明显, 特别是在会同站.

关键词: 酸沉降; 汞沉降; 干沉降; 湿沉降; 穿透水

中图分类号: X517 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2017)12-5004-08 DOI: 10.13227/j.hjxx.201705103

Deposition of Sulfur, Nitrogen and Mercury in Two Typical Forest Ecosystems in Southern China

CHENG Zheng-lin, LUO Yao, ZHANG Ting, DUAN Lei*

(State Key Joint Laboratory of Environmental Simulation and Pollution Control, School of Environment, Tsinghua University, Beijing 100084, China)

Abstract: Bulk precipitation collectors and canopy throughfall collectors were applied to measure the deposition of sulfur, nitrogen, and mercury at two forest ecology stations, Qianyanzhou (QYZ) in Jiangxi Province and Huitong (HT) in Hunan Province, from December 2013 to November 2014. During the observation period, the volume weighted average concentrations of SO_4^{2-} -S, NO_3^- -N, NH_4^+ -N, and Hg at QYZ station were $1.89 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$, $0.957 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$, $0.401 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$, and $12.5 \text{ ng}\cdot\text{L}^{-1}$ in the bulk precipitation, respectively, and $2.39 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$, $1.18 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$, $0.897 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$, and $22.2 \text{ ng}\cdot\text{L}^{-1}$ in the throughfall, respectively. The concentrations of these components increased by different proportions for the bulk precipitation compared to the throughfall. At HT station, the average concentrations of SO_4^{2-} -S, NO_3^- -N, NH_4^+ -N, and Hg in the throughfall were $2.93 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$, $1.60 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$, $0.502 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$, and $22.0 \text{ ng}\cdot\text{L}^{-1}$, respectively. In addition, atmospheric deposition fluxes based on the throughfall were $3.56 \text{ g}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{a})^{-1}$ for sulfur, $3.02 \text{ g}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{a})^{-1}$ for nitrogen, and $30.6 \text{ }\mu\text{g}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{a})^{-1}$ for mercury at QYZ station, while the corresponding fluxes were $6.18 \text{ g}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{a})^{-1}$, $4.48 \text{ g}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{a})^{-1}$, and $37.3 \text{ }\mu\text{g}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{a})^{-1}$ at HT station. The deposition rates of all three elements were the highest in summer. The contribution of dry deposition to the total deposition of mercury was similar to that of wet deposition, while wet deposition contributed more to the total deposition of sulfur and nitrogen than did dry deposition. Unlike sulfur and nitrogen depositions, which were mainly derived from anthropogenic sources, mercury deposition might have a greater contribution from natural sources, especially at HT station.

Key words: acid deposition; mercury deposition; dry deposition; wet deposition; throughfall

近年来, 由于社会经济的快速发展, 将大量的二氧化硫(SO_2)、氮氧化物(NO_x)和汞(Hg)排放入大气. 这些大气污染物具有共同的主要人为排放源, 包括燃煤电厂、工业锅炉、工业窑炉、金属冶炼和民用炉灶等^[1, 2]. 进入大气中的硫、氮和汞生成各种形态, 随降水或以气体/颗粒物的形式沉降到陆生或者水生生态系统中(分别称为湿沉降和干沉降), 从而可能带来一系列的环境问题. 过高的硫和氮沉降统称酸沉降(俗称酸雨, 我国南方存在大面积的酸雨分布区), 会造成土壤和水体酸化

与富营养化、森林生产力下降和生物多样性减少等问题^[3-5]. 而大气中的汞(以气态单质汞 GEM、活性气态汞 RGM 和颗粒态汞 PBM 这3种形式存在, 主要是 GEM)沉降到土壤和水体中后, 部分无机汞会转化为甲基汞, 可能经食物链富集, 危害极大^[6].

收稿日期: 2017-05-11; 修订日期: 2017-06-28

基金项目: 国家重点基础研究发展规划(973)项目(2013CB430000)

作者简介: 程正霖(1994~), 女, 硕士研究生, 主要研究方向为大气污染控制, E-mail: chengzli15@mails.tsinghua.edu.cn

* 通信作者, E-mail: lduan@tsinghua.edu.cn

湿沉降可以利用降水采样器进行长期观测。相比湿沉降，干沉降的测定通常较为困难，目前常用的方法有微气象法、浓度梯度法、涡度相关法和穿透水法等^[7-9]。其中，穿透水法特别适合于对森林地区进行观测。降水在通过森林冠层的过程中会对叶面上积累的干沉降进行淋洗，从而引起降水中化学组分的改变，表现在穿透水中各组分的沉降量高于降水中的沉降量，因此穿透水通量与湿沉降量之差，可作为干沉降量的估算值^[10-12]。此方法操作简单，应用广泛，但由于忽略了树干茎流通量以及树冠的交换作用，估算值存在一定的不确定性。冠层收支模型(canopy budget model)对用穿透水法估算干沉降量进行了进一步的补充^[13, 14]，但模型假设目前仍存诸多争议。

由于酸沉降是我国长期面临的严重的环境问题，因此国内对酸沉降的观测较多，其中还包括一些长达多年的持续观测^[15-17]。近年来，由于对大气汞污染问题的逐渐关注，有关汞沉降的观测也在一些地区开展^[18-21]。不过，大多数的观测只针对湿沉降(于是无法获得总沉降)，而且将酸沉降和汞沉降结合起来进行观测国内外尚未见报道。本研究拟在我国南方两个典型亚热带森林中进行湿沉降和总沉降的观测，以获得该地区的硫、氮和汞的沉降特征及其相关性，以期对相关元素的生物地球化学循环研究以及大气污染控制决策提供参考。

1 材料与方法

1.1 试验地概况

本研究以江西千烟洲森林生态站和湖南会同杉木林生态站作为采样点，两站的基本信息如表 1 所示。两个站点均为亚热带湿润季风气候，植被均为亚热带典型的森林类型。千烟洲生态站周边方圆 30 km 内无燃煤电厂、有色冶金厂和水泥厂等大型人为 SO₂、NO_x 和 Hg 的排放源，因此可看作一个区域背景点。而会同生态站周边虽然也无大型人为排放源，但是与万山汞矿(中国曾经最大的汞矿，现已停产)直线距离仅 100 km 左右，因此可能受到自然源汞排放的影响较大。2014 年会同站的林冠上方气态元素汞(GEM)的年均浓度高于千烟洲站(表 1)，说明会同站处于大气汞污染相对较重的地区。

1.2 样品采集与分析

在千烟洲生态站的林区内随机布设 6 个林冠穿透水(canopy throughfall, CTF)采样器，另外在林地外的空旷地随机布设 6 个混合降水(bulk

precipitation, BP)采样器。这两种采样器完全相同，都是由倒立的剪去瓶底的 PET 瓶(内径为 9.3 cm，用尼龙网盖住瓶底，以防止枯落物掉入)和正立的 teflon 材质的样品瓶(用锡箔纸包裹，避光以防止水分蒸发和成分挥发)连接而成，采样器竖直固定在距地面 1 m 的高度。将降水采样器和混合降水采样器均随机分为两组，每组各 3 个，一组取样用于分析可溶性汞含量，每次采样前需在样品瓶中预先加入 10 mL 盐酸(6 mol·L⁻¹)以减少汞的吸附和挥发损失^[25]；另一组取样用于分析 SO₄²⁻、NO₃⁻ 和 NH₄⁺ 离子含量，不作加酸处理。在会同生态站同样布设了 6 个 CTF 采样器，但是只布设 3 个 BP 采样器(只进行汞的分析)。

表 1 千烟洲站和会同站的基本信息

Table 1 Basic information for monitoring sites		
基本信息	千烟洲站	会同站
地理位置	江西省吉安市泰和县灌溪镇	湖南省怀化市会同县广平镇
经纬信息	115°4'E, 26°45'N	109°45'E, 26°50'N
年均气温 ^[22, 23]	17.9℃	16.8℃
年均降水量 ^[22, 23]	1 392 mm	1 313 mm
降水集中月份 ^[22, 23]	3~9 月	4~8 月
土壤类型	红壤	山地黄壤
植被类型	马尾松	杉木
大气汞浓度 ^[24]	3.64 ng·m ⁻³	5.93 ng·m ⁻³
站点代表性	区域背景	汞污染地区

自 2013 年 12 月起至 2014 年 11 月，在两站点开展了为期一年的水样采集，采样频率为每周一次。将来自同一采样器的每四周的水样进行混合，作为当月的水样，并记录总水量。每个月的水样需通过孔径为 0.45 μm 的滤膜后再进行化学分析(表 2)，3 个采样器的结果取平均值。NO₃-N 与 NH₄⁺-N 之和作为氮含量，SO₄²⁻-S 作为硫含量。沉降量计算如下：

$$P_i = \frac{V_i}{S} \quad (1)$$

$$F = \frac{1}{1\,000} \sum_{i=1}^{12} P_i c_i \quad (2)$$

$$C = F / \sum_{i=1}^{12} \frac{P_i}{1\,000} \quad (3)$$

$$F_{DD} = F_{CTF} - F_{BP} \quad (4)$$

式中， P 为降水量或穿透水量(单位:mm)； V 为每个样品的水量(L)； S 为采样器的横截面积(m²)； F 为年沉降通量[硫和氮沉降量 g·(m²·a)⁻¹；汞沉降量 μg·(m²·a)⁻¹]； c 和 C 分别为月浓度和年均浓度(阴阳离子:mg·L⁻¹；汞:ng·L⁻¹)；下标 i 为月份；

下标 DD、CTF 和 BP 分别表示干沉降、穿透水沉降(代表总沉降)和混合降水沉降(代表湿沉降);1 000为单位换算系数. 基于月均浓度,用 Pearson

系数反映硫、氮和汞沉降量相互之间以及各自同降水量(或穿透水量)之间的相关性(利用 SPSS 软件).

表 2 水样的分析指标、分析方法及标准样品

Table 2 Analysis indicators, methods, and standard samples for precipitation samples		
分析指标	分析方法及仪器型号	标准样品
可溶性 Hg 浓度	冷原子荧光法(CVAFS);Tekran 2600	GSB G 62069-90 汞标准溶液, 1 000 $\mu\text{g}\cdot\text{mL}^{-1}$
SO_4^{2-} 、 NO_3^- 和 NH_4^+ 浓度	离子色谱(IC);ICS-2000 和 ICS-1000	SO_4^{2-} : GSB04-1773-2004(a)、 NO_3^- : GSB04-1772-2004(a)、 NH_4^+ : GSB04-2833-2011

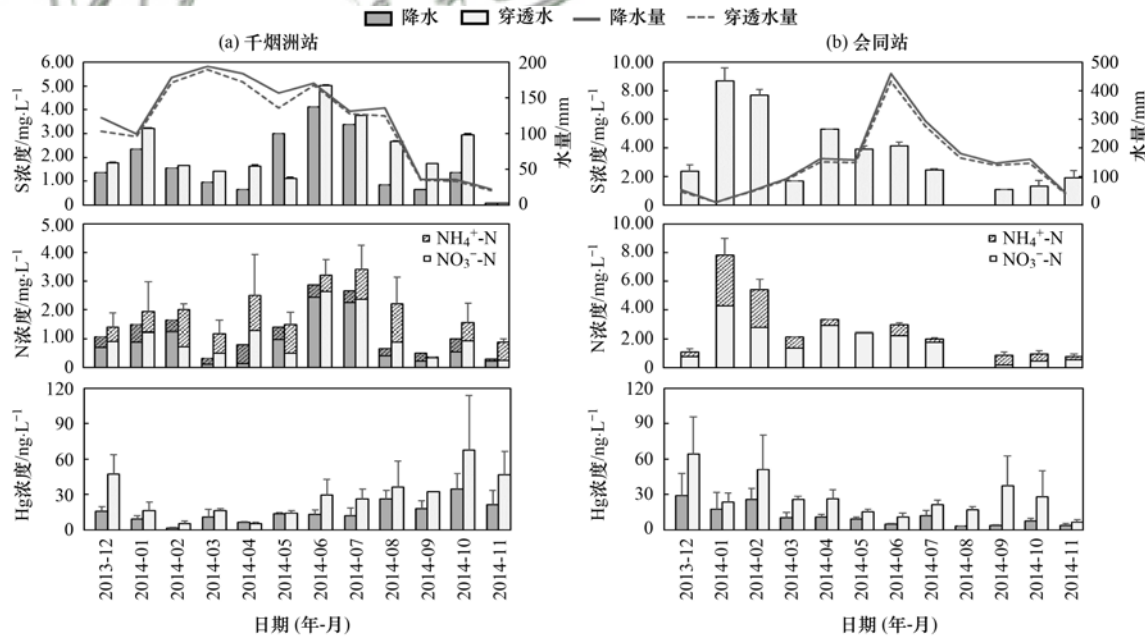
2 结果与分析

2.1 硫、氮和汞的浓度

千烟洲站和会同站降水和穿透水中的 S、N 和 Hg 浓度以及水量的月变化情况如图 1 所示,根据水量计算各组分的体积加权年均浓度,结果见图 2. 观测期间,千烟洲站降水中的 SO_4^{2-} -S、 NO_3^- -N、 NH_4^+ -N 和 Hg 的年均浓度分别为 $1.89\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 、 $0.957\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 、 $0.401\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 和 $12.5\text{ ng}\cdot\text{L}^{-1}$. S 和 N 浓度均在 6 月达到最大值($4.11\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 和 $2.88\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$), 11 月最小($0.0667\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 和 $0.304\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$). 其中, NO_3^- -N 月均浓度范围在 $0.123\sim 2.45\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 之间,最低浓度出现在 3 月,6 月浓度最高; NH_4^+ -N 在 4 月达到最高浓度 $0.672\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$, 11 月最低,仅为 $0.078\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$. Hg 月均浓度的变化范围为 $1.50\sim 34.6\text{ ng}\cdot\text{L}^{-1}$,其中最低浓度出现在 2 月,最高浓度出现在 10 月. 另外,会同站降水

中 Hg 的年均浓度为 $8.62\text{ ng}\cdot\text{L}^{-1}$,月均浓度变化范围为 $3.26\sim 29.4\text{ ng}\cdot\text{L}^{-1}$, 12 月浓度最高,8 月最低.

千烟洲站全年穿透水量为 $1\,378\text{ mm}$,略低于降水量($1\,467\text{ mm}$),两者的月变化趋势相似. 千烟洲站穿透水中的 SO_4^{2-} -S、 NO_3^- -N、 NH_4^+ -N 和 Hg 的体积加权平均浓度分别为 $2.39\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 、 $1.18\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 、 $0.897\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 和 $22.2\text{ ng}\cdot\text{L}^{-1}$;会同站穿透水中的平均浓度则分别为 $2.93\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 、 $1.60\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 、 $0.502\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 和 $22.0\text{ ng}\cdot\text{L}^{-1}$. 两站穿透水中各组分浓度均高于降水. 两站穿透水中 N 和 Hg 的浓度都十分接近,但 S 的浓度则差别较大,会同站比千烟洲站高 22.6% . 与降水中各组分浓度的月变化趋势相似,千烟洲站 6~7 月穿透水中 S 和 N 浓度显著高于其他月份,春秋两季则较低;Hg 浓度的最低值和最高值分别出现在 4 月和 10 月. 会同站全年穿透水中 S 和 N 浓度在 1 月最高,而秋季



误差线表示标准差,样本数为3,即采样器数

图 1 两个站点降水和穿透水中硫、氮和汞浓度以及水量的月变化

Fig. 1 Monthly average precipitation amounts and concentrations of sulfur, nitrogen, and mercury in rainfall and throughfall at the two sites

含量最低, 平均浓度不足年均浓度的 1/2; Hg 浓度 11 月最低, 12 月最高, 冬季 Hg 浓度是夏季的 3.52 倍.

千烟洲站和会同站穿透水中 S、N 和 Hg 浓度及穿透水量的相关性如表 3 所示. 两个站点的 SO_4^{2-} -S 均与 NO_3^- -N 浓度显著正相关 ($P < 0.01$). 会同站 NH_4^+ -N 分别与 SO_4^{2-} -S 和 NO_3^- -N 也显著相关 ($P < 0.05$). 此外, 千烟洲站 Hg 浓度和水量显著负相关 ($P < 0.01$). 两站 Hg 浓度与 S、N 浓度之间以及 S、N 浓度与 N 水量之间均无显著相关性.

2.2 硫、氮和汞的沉降量

图3所示为千烟洲站和会同站S、N 和 Hg 沉降

表 3 穿透水中硫、氮和汞浓度及穿透水量之间的相关系数¹⁾

Table 3 Correlation coefficients between concentrations of sulfur, nitrogen and mercury in throughfall and throughfall volume						
站点		SO_4^{2-} -S	NO_3^- -N	NH_4^+ -N	Hg	穿透水量
千烟洲站	SO_4^{2-} -S	1				
	NO_3^- -N	0.883 **	1			
	NH_4^+ -N	0.006	0.164	1		
	Hg	0.076	-0.075	-0.475	1	
	穿透水量	0.227	0.368	0.576	-0.740 **	1
会同站	SO_4^{2-} -S	1				
	NO_3^- -N	0.926 **	1			
	NH_4^+ -N	0.853 **	0.741 *	1		
	Hg	0.083	-0.134	0.150	1	
	穿透水量	-0.207	-0.022	-0.398	-0.418	1

1) * 表示显著相关 ($P < 0.05$); ** 表示极其显著相关 ($P < 0.01$)

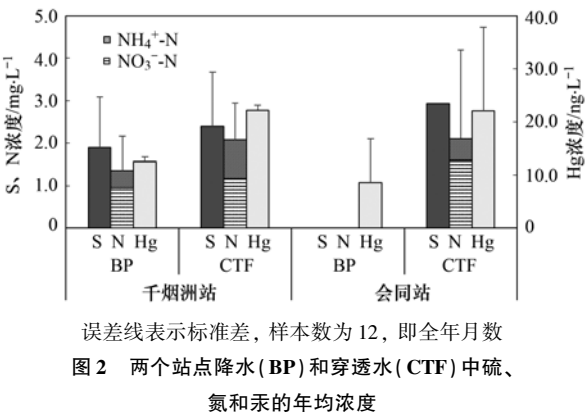


Fig. 2 Annual average concentrations of sulfur, nitrogen and mercury in rainfall and throughfall at the two sites

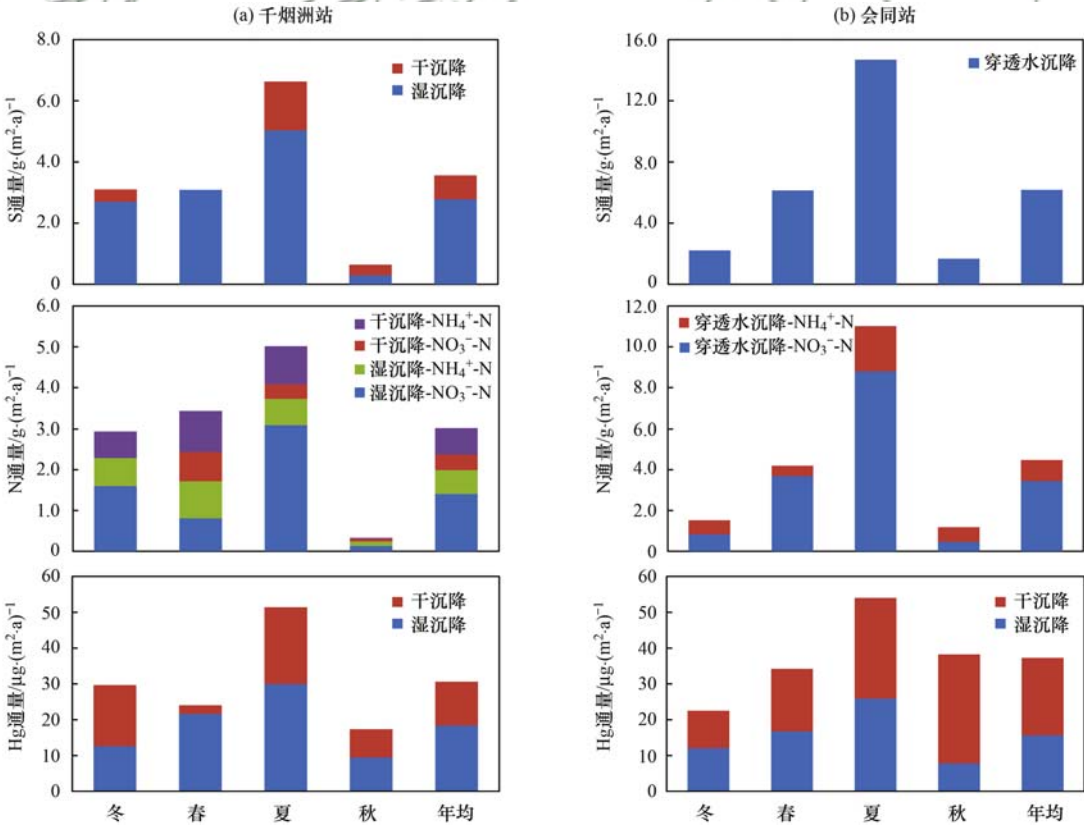


图 3 两个站点硫、氮和汞沉降通量的季节变化

Fig. 3 Seasonal variations of sulfur, nitrogen and mercury deposition fluxes at the two sites

通量的季节变化. 基于穿透水的千烟洲站大气 S、N 和 Hg 的沉降量分别为 $3.56 \text{ g} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{a})^{-1}$ 、 $3.02 \text{ g} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{a})^{-1}$ 和 $30.6 \text{ } \mu\text{g} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{a})^{-1}$, 会同站分别为 $6.18 \text{ g} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{a})^{-1}$ 、 $4.48 \text{ g} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{a})^{-1}$ 和 $37.3 \text{ } \mu\text{g} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{a})^{-1}$. 整体看来, 会同站各研究组分的沉降量均高于千烟洲站. 将总沉降通量与湿沉降通量作差, 得到干沉降量, 发现 S 和 N 的湿沉降量明显高于干沉降量, 而 Hg 的干湿沉降量基本持平. 千烟洲站 S 和 N 的干沉降量分别占总沉降量的 22.0% 和 34.1%, 其中两种不同形态的氮(NO_3^- -N 和 NH_4^+ -N)对 N 干沉降量的贡献比例分别为 25.7% 和 74.3%. 千烟洲站全年 Hg 的干沉降比例为 39.9%, 其中冬夏两季干沉降比例较高; 会同站 Hg 全年干沉降量占总沉降量的比例为 58.2%, 秋季干沉降量远高于湿沉降量, 夏季干沉降量也与湿沉降量相当.

两站 S、N 和 Hg 的总沉降量表现出相似的季节变化, 均在夏季达到最高, 平均为年沉降量的 2.12、2.11 和 1.67 倍. 千烟洲站 Hg 沉降量的季节变化趋势与 S 和 N 基本一致, 在秋季达到最低; 会同站 S 和 N 沉降量在秋冬季较低, 而 Hg 的秋季沉降量仅低于夏季.

3 讨论

3.1 干沉降的贡献

本研究用混合降水(bulk precipitation, BP)代表湿沉降, 严格来讲与真实的湿沉降(wet-only deposition, WO)存在一定的差异, 或者说在一定程度上高估了湿沉降, 原因是包含了部分气态和颗粒态的干沉降^[17]. 相应地, 公式(4)中穿透水沉降(CTF)和 BP 的差值只能表示林冠捕获的干沉降, 因此 S 和 N 的干沉降可能均被低估. 迄今为止国内对上述方法不确定性的评估很少, 根据中国-挪威合作项目“中国陆地生态系统酸化的综合观测计划”(IMPACTS)在 2001~2004 年间对重庆铁山坪的 WO、BP 和 CTF 沉降的观测结果, S 和 N 的 BP 分别比 WO 高 34% 和 29%, 同时 S 和 N 的 CTF 分别比 WO 高 3.53 倍和 75% (未发表数据). 如果认为 CTF 和 WO 之差为总的干沉降(DD), 则 BP 和 WO 之差所代表的 DD 部分只占总 DD 的 10% (S) 和 39% (N). 目前尚无有关 Hg 沉降的不确定性结果.

尽管存在低估, 千烟洲站 S、N 和 Hg 的干沉降量在总沉降量中的比例分别达到 22.0%、34.1% 和

39.9%, 而会同站 Hg 的干沉降量比例接近 60%.

利用 LRT 模型对 1995 年我国 S 沉降量的模拟结果表明, 干沉降量的平均占比为 55.6%^[26]; 程念亮等利用 CAMx 空气质量模型模拟分析 2013 年中国大陆地区 S 沉降分布, 结果显示 S 的干沉降量占总沉降量的 38% 左右^[27]. S 的干沉降量比例的下降与我国 SO_2 排放控制实现环境空气 SO_2 浓度显著下降密切相关. 国外 S 总沉降量整体较低, 但干沉降量比例接近一半; 千烟洲站的 S 干沉降量比例明显低于国外, 也低于我国重庆和贵州等地的监测结果, 略高于湖南蔡家塘(表 4). 总体来讲, 背景地区 S 和 N 的湿沉降量对总沉降量的贡献可能更高, 或者说污染较严重地区的干沉降比例通常较高.

2010 年全国 N 沉降模拟结果表明干沉降量占总沉降量的 60% 左右^[28], 即 N 的干沉降量高于湿沉降. 但是, 观测结果(特别是用穿透水法)得到的 N 干沉降比例普遍较小(表 4), 2010~2014 年全国 43 个站点实测结果显示干沉降比例为 51.6%^[29]. 重庆铁山坪马尾松林内用穿透水法估算的干沉降量仅为用沉降速率法得到结果的一半^[11]; 内蒙古太仆寺旗草原的穿透水沉降仅为用 CMAQ 模型计算总沉降的 55% 左右, 用穿透水法观测和用模型计算的干沉降量比例分别为 20.6% 和 56.2%^[30]. 这些差异说明穿透水法可能存在由于叶面对 N 的吸收而导致的 N 干沉降低估问题, 即 N 作为植物生长的必需元素, 部分在降水通过森林冠层时被植物叶片和一些微生物所吸收(以 NH_4^+ -N 为主)^[11, 31].

用 GEOS-Chem 模型模拟中国大陆地区的 Hg 沉降量分布, 发现 Hg 干沉降量的平均比例为 56.9%^[32]. 本研究中所测两站的 Hg 的干湿沉降量之比平均为 1.03, 即干湿沉降贡献相当. 国内外对于 Hg 沉降量的一些观测结果显示干沉降量比例在 40.8%~70.6% 之间(表 4), 本研究结果在此范围之内.

3.2 沉降的来源与相关性

沉降中各组分之间的相关性会在一定程度上反映其来源的一致性. 相关性分析结果显示, SO_4^{2-} -S 与 NO_3^- -N 含量显著相关($P < 0.01$), 说明区域 SO_2 和 NO_x 的来源相似, 燃煤(包括周边的民用燃煤, 以及区域电厂贡献)同时排放大量的 SO_2 和 NO_x , 可能是硫和氮沉降的重要来源. 而 NH_4^+ -N 主要来自于农业, 因此 SO_4^{2-} -S 与 NH_4^+ -N 含量相关性低甚至不相关. 人为活动和自然过程都会向大气释放 Hg, 我

表 4 国内外部分地区硫、氮和汞沉降量研究结果比较¹⁾

Table 4 Comparison of sulfur, nitrogen and mercury deposition fluxes at different sites

项目	采样点	观测年份	沉降量 ²⁾				干沉降占比 /%
			穿透水沉降	湿沉降	干沉降	总沉降	
S 沉降	江西千烟洲(本研究)	2013 ~ 2014	3.56	2.78	0.784	3.56	22.0
	湖南会同(本研究)	2013 ~ 2014	6.18	—	—	6.18	—
	德国萨克森州 ^[33]	2002 ~ 2004	1.82	0.600	1.01 *	1.61	62.7
	巴西圣塔伦 ^[34]	2003 ~ 2006	1.95	0.708	0.584 *	1.29	45.3
	重庆铁山坪 ^[11, 35]	2001 ~ 2003	15.8	2.91	11.8 *	14.7	80.3
	贵州六冲关 ^[17, 36]	2001 ~ 2003	6.97	1.59	5.38	6.97	77.2
	湖南蔡家塘 ^[17, 37]	2001 ~ 2003	2.92	2.51	0.411	2.92	14.1
N 沉降	江西千烟洲(本研究)	2013 ~ 2014	3.02	1.99	1.03	3.02	34.1
	湖南会同(本研究)	2013 ~ 2014	4.48	—	—	4.48	—
	德国萨克森州 ^[33]	2002 ~ 2004	2.14	0.880	1.26 *	2.14	58.9
	西班牙 ^[38]	2011 ~ 2013	0.576	0.379	0.197	0.576	34.2
	重庆铁山坪 ^[11, 35]	2001 ~ 2003	3.47	1.61	3.80 *	5.41	70.2
	贵州六冲关 ^[17, 36]	2001 ~ 2003	0.657	0.459	0.198	0.657	30.1
	内蒙古太仆寺旗 ^[30]	2011 ~ 2012	1.89	1.50	1.93 *	3.43	56.2
Hg 沉降	江西千烟洲(本研究)	2013 ~ 2014	30.6	18.4	12.2	30.6	39.9
	湖南会同(本研究)	2013 ~ 2014	37.3	15.6	21.7	37.3	58.2
	斯洛文尼亚 ^[39]	2006 ~ 2007	34.5	11.1	23.4	34.5	67.8
	吉林长白山 ^[18]	2005 ~ 2006	24.9	8.40	20.2 *	28.6	70.6
	四川贡嘎山 ^[19]	2005 ~ 2007	57.1	26.1	31.0	57.1	54.3
	贵州雷公山 ^[20]	2008 ~ 2009	10.5	6.10	4.40	10.5	41.9
	重庆缙云山 ^[21]	2012 ~ 2013	20.1	11.9	8.20	20.1	40.8

1) 干沉降中标“*”的值由非穿透水法测得；2) 硫和氮沉降量单位为 $\text{g} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{a})^{-1}$ ；汞沉降量单位为 $\mu\text{g} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{a})^{-1}$

国人为源 Hg 排放量约为 $500 \sim 700 \text{ t} \cdot \text{a}^{-1}$ ^[2]，而 Shetty 等利用模型估算我国自然源 Hg 排放量约为 $462 \text{ t} \cdot \text{a}^{-1}$ ^[40]，因此自然源 Hg 排放同样值得关注。千烟洲站和会同站的 Hg 浓度与 S、N 浓度之间并无显著相关性 ($P > 0.05$)，这表明自然源对 Hg 沉降的贡献比较重要。特别是，万山汞矿位于会同站西北方向不足 100 km 处，矿区土壤的 Hg 背景值较高，富 Hg 土壤会向大气中释放大量 Hg，而我国秋冬季盛行西北风，这些 Hg 随大气传输至此，会同站秋冬季对全年 Hg 沉降量的贡献相对于 S 和 N 沉降显著提升(相比而言，千烟洲站 Hg 沉降的季节分布同 S 和 N 沉降类似；图 3)。

4 结论

(1) 观测期间，基于穿透水的千烟洲站大气硫、氮和汞的沉降量分别为 $3.30 \text{ g} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{a})^{-1}$ 、 $3.02 \text{ g} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{a})^{-1}$ 和 $30.6 \mu\text{g} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{a})^{-1}$ ，会同站分别为 $6.18 \text{ g} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{a})^{-1}$ 、 $4.48 \text{ g} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{a})^{-1}$ 和 $37.3 \mu\text{g} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{a})^{-1}$ ，三者均在夏季达到峰值。会同站各研究组分的沉降量均高于千烟洲站，因此会同较千烟洲地区酸沉降和汞污染严重。

(2) 两个站点的硫和氮的湿沉降量在总沉降量

中均占主导地位，而汞的干湿沉降量贡献基本持平。对这两个站点来说，硫和氮沉降的来源相似，主要来自燃煤等人为源，而汞的自然源贡献更为显著，特别是万山汞矿土壤的汞排放对于会同站的汞沉降影响较大。

参考文献：

[1] Zhao B, Wang S X, Wang J D, *et al.* Impact of national NO_x and SO_2 control policies on particulate matter pollution in China[J]. *Atmospheric Environment*, 2013, **77**: 453-463.

[2] Zhang L, Wang S X, Wang L, *et al.* Updated emission inventories for speciated atmospheric mercury from anthropogenic sources in China[J]. *Environmental Science & Technology*, 2015, **49**(5): 3185-3194.

[3] Aber J D, Nadelhoffer K J, Steudler P, *et al.* Nitrogen saturation in northern forest ecosystems: excess nitrogen from fossil fuel combustion may stress the biosphere[J]. *BioScience*, 1989, **39**(6): 378-386.

[4] Duan L, Yu Q, Zhang Q, *et al.* Acid deposition in Asia: emissions, deposition, and ecosystem effects[J]. *Atmospheric Environment*, 2016, **146**: 55-69.

[5] Gorham E. Scientific understanding of ecosystem acidification: a historical review[J]. *AMBIO*, 1989, **18**(3): 150-154.

[6] Hua Z, Feng X B, Larssen T, *et al.* In inland China, rice, rather than fish, is the major pathway for methylmercury exposure [J]. *Environmental Health Perspectives*, 2010, **118**(9): 1183-1188.

[7] 樊建凌, 胡正义, 周静, 等. 林地大气氮沉降通量观测对比

- 研究[J]. 中国环境科学, 2013, **33**(5): 786-792.
- Fan J L, Hu Z Y, Zhou J, *et al.* Comparative study on the observation of atmospheric nitrogen deposition in a forestland[J]. China Environmental Science, 2013, **33**(5): 786-792.
- [8] Wright L P, Zhang L M, Marsik F J. Overview of mercury dry deposition, litterfall, and throughfall studies[J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2016, **16**(21): 13399-13416.
- [9] Erisman J W, Draaijers G. Deposition to forests in Europe: most important factors influencing dry deposition and models used for generalisation[J]. Environmental Pollution, 2003, **124**(3): 379-388.
- [10] Draaijers G P J, Erisman J W, Spranger T, *et al.* The application of throughfall measurements for atmospheric deposition monitoring[J]. Atmospheric Environment, 1996, **30**(19): 3349-3361.
- [11] 金蕾, 邵敏, 曾立民, 等. 穿透水方法估算主要可溶性无机组分的干沉降通量[J]. 科学通报, 2006, **51**(11): 1333-1337.
- [12] Kopáček J, Turek J, Hejzlar J, *et al.* Canopy leaching of nutrients and metals in a mountain spruce forest [J]. Atmospheric Environment, 2009, **43**(34): 5443-5453.
- [13] Draaijers G P J, Erisman J W. A canopy budget model to assess atmospheric deposition from throughfall measurements [J]. Water, Air, and Soil Pollution, 1995, **85**(4): 2253-2258.
- [14] Adriaenssens S, Staelens J, Baeten L, *et al.* Influence of canopy budget model approaches on atmospheric deposition estimates to forests[J]. Biogeochemistry, 2013, **116**(1-3): 215-229.
- [15] 金蕾, 徐谦, 林安国, 等. 北京市近二十年(1987~2004)湿沉降特征变化趋势分析[J]. 环境科学学报, 2006, **26**(7): 1195-1202.
- Jin L, Xu Q, Lin A G, *et al.* Trend analysis of wet deposition between 1987 ~ 2004 in Beijing City [J]. Acta Scientiae Circumstantiae, 2006, **26**(7): 1195-1202.
- [16] 余德祥, 马萧萧, 谭炳全, 等. 重庆市铁山坪 2001~2010 年酸沉降变化[J]. 环境科学, 2014, **35**(1): 60-65.
- Yu D X, Ma X X, Tan B Q, *et al.* Trend in acid deposition at Tieshanping, Chongqing during 2001-2010 [J]. Environmental Science, 2014, **35**(1): 60-65.
- [17] Aas W, Shao M, Jin L, *et al.* Air concentrations and wet deposition of major inorganic ions at five non-urban sites in China, 2001-2003 [J]. Atmospheric Environment, 2007, **41**(8): 1706-1716.
- [18] Wan Q, Feng X B, Lu J L, *et al.* Atmospheric mercury in Changbai Mountain area, northeastern China II. The distribution of reactive gaseous mercury and particulate mercury and mercury deposition fluxes[J]. Environmental Research, 2009, **109**(6): 721-727.
- [19] Fu X W, Feng X B, Zhu W Z, *et al.* Elevated atmospheric deposition and dynamics of mercury in a remote upland forest of southwestern China[J]. Environmental Pollution, 2010, **158**(6): 2324-2333.
- [20] Fu X W, Feng X, Dong Z Q, *et al.* Atmospheric gaseous elemental mercury (GEM) concentrations and mercury depositions at a high-altitude mountain peak in south China[J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2010, **10**(5): 2425-2437.
- [21] Ming M, Wang D Y, Du H X, *et al.* Atmospheric mercury deposition and its contribution of the regional atmospheric transport to mercury pollution at a national forest nature reserve, southwest China [J]. Environmental Science and Pollution Research, 2015, **22**(24): 20007-20018.
- [22] 陈永瑞, 林耀明, 李家永, 等. 江西千烟洲试区杉木人工林降雨过程及养分动态研究[J]. 中国生态农业学报, 2004, **12**(1): 74-76.
- Chen Y R, Lin Y M, Li J Y, *et al.* Rainfall process and nutrient dynamics of artificial Chinese fir plantation in Jiangxi Qianyanzhou experimental station[J]. Chinese Journal of Eco-Agriculture, 2004, **12**(1): 74-76.
- [23] 伍倩, 闫文德, 赵亮生, 等. 湖南会同杉木人工林林冠截留特征[J]. 生态学报, 2016, **36**(13): 4131-4140.
- Wu Q, Yan W D, Zhao L S, *et al.* Canopy interception characteristics of Chinese fir plantations in central south China [J]. Acta Ecologica Sinica, 2016, **36**(13): 4131-4140.
- [24] 罗遥. 我国南方典型森林生态系统汞的输入输出与迁移[D]. 北京: 清华大学, 2015.
- Luo Y. Mercury input, output and transport in forest ecosystems in southern China[D]. Beijing: Tsinghua University, 2015.
- [25] Luo Y, Duan L, Xu G Y, *et al.* Inhibition of mercury release from forest soil by high atmospheric deposition of Ca^{2+} and SO_4^{2-} [J]. Chemosphere, 2015, **134**: 113-119.
- [26] Hao J M, Duan L, Zhou X L, *et al.* Application of a LRT model to acid rain control in China [J]. Environmental Science & Technology, 2001, **35**(17): 3407-3415.
- [27] 程念亮, 易文杰, 张开太, 等. 2013 年中国硫沉降数值模拟研究[J]. 环境污染与防治, 2016, **38**(4): 38-44, 50.
- Cheng N L, Yi W J, Zhang K T, *et al.* Numerical simulation of sulfur deposition in China in 2013 [J]. Environmental Pollution & Control, 2016, **38**(4): 38-44, 50.
- [28] 郑丹楠, 王雪松, 谢绍东, 等. 2010 年中国大气氮沉降特征分析[J]. 中国环境科学, 2014, **34**(5): 1089-1097.
- Zheng D N, Wang X S, Xie S D, *et al.* Simulation of atmospheric nitrogen deposition in China in 2010 [J]. China Environmental Science, 2014, **34**(5): 1089-1097.
- [29] Xu W, Luo X S, Pan Y P, *et al.* Quantifying atmospheric nitrogen deposition through a nationwide monitoring network across China[J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2015, **15**(21): 12345-12360.
- [30] 张菊, 康荣华, 赵斌, 等. 内蒙古温带草原氮沉降的观测研究[J]. 环境科学, 2013, **34**(9): 3552-3556.
- Zhang J, Kang R H, Zhao B, *et al.* Monitoring nitrogen deposition on temperate grassland in Inner Mongolia [J]. Environmental Science, 2013, **34**(9): 3552-3556.
- [31] Fenn M E, Ross C S, Schilling S L, *et al.* Atmospheric deposition of nitrogen and sulfur and preferential canopy consumption of nitrate in forests of the Pacific Northwest, USA [J]. Forest Ecology & Management, 2013, **302**: 240-253.
- [32] Wang L, Wang S X, Zhang L, *et al.* Source apportionment of atmospheric mercury pollution in China using the GEOS-Chem model[J]. Environmental Pollution, 2014, **190**: 166-175.
- [33] Zimmermann F, Plessow K, Queck R, *et al.* Atmospheric N-and S-fluxes to a spruce forest-Comparison of inferential modelling and the throughfall method[J]. Atmospheric Environment, 2006, **40**(25): 4782-4796.
- [34] Junior R C D O, Keller M M, Ramos J F D F, *et al.* Chemical analysis of rainfall and throughfall in the Tapajós National Forest,

- Belterra, Pará, Brazil [J]. *Ambiente & Água-An Interdisciplinary Journal of Applied Science*, 2015, **10**(2): 263-285.
- [35] Larssen T, Duan L, Mulder J. Deposition and leaching of sulfur, nitrogen and calcium in four forested catchments in China: implications for acidification [J]. *Environmental Science & Technology*, 2011, **45**(4): 1192-1198.
- [36] 肖劲松, 武学丽, 夏园. 贵州省六冲关流域大气沉降和地表水化学特征[J]. *环境科学研究*, 2010, **23**(5): 539-542.
Xiao J S, Wu X L, Xia Y. Chemical characteristics of atmospheric deposition and surface water in Liuchongguan catchment, Guizhou Province [J]. *Research of Environmental Sciences*, 2010, **23**(5): 539-542.
- [37] 向仁军, 柴立元, 张龚, 等. 湖南蔡家塘森林小流域氮和硫的输入输出特征[J]. *环境科学学报*, 2006, **26**(8): 1372-1378.
- Xiang R J, Chai L Y, Zhang G, *et al.* Input-output dynamics of nitrogen and sulfur in Caijiatang forested catchment in Hunan Province[J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 2006, **26**(8): 1372-1378.
- [38] García-Gomez H, Izquieta-Rojano S, Aguilera L, *et al.* Atmospheric deposition of inorganic nitrogen in Spanish forests of *Quercus ilex* measured with ion-exchange resins and conventional collectors[J]. *Environmental Pollution*, 2016, **216**: 653-661.
- [39] Kocman D, Vreča P, Fajon V, *et al.* Atmospheric distribution and deposition of mercury in the Idrija Hg mine region, Slovenia [J]. *Environmental Research*, 2011, **111**(1): 1-9.
- [40] Shetty S K, Lin C J, Streets D G, *et al.* Model estimate of mercury emission from natural sources in East Asia [J]. *Atmospheric Environment*, 2008, **42**(37): 8674-8685.



CONTENTS

Regional Transport Matrix Study of PM _{2.5} in Jingjinji Region, 2015	WANG Yan-li, XUE Wen-bo, LEI Yu, <i>et al.</i> (4897)
Effect of Atmospheric Haze Based on Multi-source Remote Sensing Data Considering the Size Effect of Landscape Sources and Sinks	XU Kai, YU Tian-tian, SUN Jiao-jiao, <i>et al.</i> (4905)
Space-Time Estimations and Mapping of PM _{2.5} Fine Particulates Based on Multi-source Data	XIAO Lu, LANG Yi-chao, XIA Lang, <i>et al.</i> (4913)
Exposure Level of Population and Economy in Zhejiang Province Considering the Background of PM _{2.5} in East China	YU Zhen-yan, GAO Da-wei, LI Zheng-quan, <i>et al.</i> (4924)
Aerosol Chemical Characteristics for Different Air Pollution Levels in North Suburban Nanjing	ZHANG Cheng, YU Xing-na, AN Jun-lin, <i>et al.</i> (4932)
Seasonal Variation of Carbon Fractions in PM _{2.5} in Heze	LIU Ze-jun, WU Jian-hui, ZHANG Yu-fen, <i>et al.</i> (4943)
Characteristics and Source Apportionment of Water-soluble Inorganic Ions in Road Dust PM _{2.5} in Selected Cities in Liaoning Province	ZHANG Wei, JI Ya-qin, ZHANG Jun, <i>et al.</i> (4951)
Characteristics of the Size Distribution of Water-soluble Ions During a Heavy Pollution Episode in the Winter in Tianjin	YAO Qing, LIU Zi-rui, HAN Su-qin, <i>et al.</i> (4958)
Physico-chemical Characteristic Analysis of PM _{2.5} in the Highway Tunnel in the Plateau City of Kunming	WANG Cheng-hui, YAN Kun, HAN Xin-yu, <i>et al.</i> (4968)
Characteristics Analysis of the Surface Ozone Concentration of China in 2015	DUAN Xiao-tong, CAO Nian-wen, WANG Xiao, <i>et al.</i> (4976)
Effects of Different Precious Metal Loads of CDPF on Characteristics of VOCs Emissions from a Diesel Bus	LOU Di-ming, ZHANG Zi-jun, LIU Ji-yue, <i>et al.</i> (4983)
Influence of ENSO Events on the Hydrogen ($\delta^2\text{H}$) and Oxygen ($\delta^{18}\text{O}$) Isotopic Values of Precipitation in Shanghai	DONG Xiao-fang, YANG Hua-wei, ZHANG Luan, <i>et al.</i> (4991)
Deposition of Sulfur, Nitrogen and Mercury in Two Typical Forest Ecosystems in Southern China	CHENG Zheng-lin, LUO Yao, ZHANG Ting, <i>et al.</i> (5004)
Spatial and Temporal Variability of CO ₂ Emissions from the Xin'anjiang Reservoir	YANG Le, LI He-peng, SUN Bin-feng, <i>et al.</i> (5012)
Evaluation of Temporal and Spatial Variation Characteristics of Nutrients in Surface Sediment in the Three Gorges Reservoir Area	ZHUO Hai-hua, QIU Guang-sheng, ZHAI Wan-ying, <i>et al.</i> (5020)
Distribution of Different Mercury Species in the Waterbody at Sanmenxia Reservoir	CHENG Liu, MA Bing-juan, ZHOU Wei-li, <i>et al.</i> (5032)
Identification of Nitrate Sources and Transformation Processes in Midstream Areas; A Case in the Taizi River Basin	LI Yan-li, SUN Wei, YANG Zi-rui (5039)
Characteristics of Nitrogen Variation and Its Response to Rainfall; A Case Study in Wuxi Port at Taihu Lake Basin	LIAN Hui-shu, LIU Hong-bin, LI Xu-dong, <i>et al.</i> (5047)
Dynamics of the Water Quality in a Broad-leaf Evergreen Forest at Different Spatial Levels on Jinyun Mountain	MA Ming, SUN Tao, LI Ding-kai, <i>et al.</i> (5056)
Method of Improving the Water Quality of Polluted Rivers Based on the MIKE11 Model	XIONG Hong-bin, CHEN Xue, ZHANG Si-si (5063)
Distribution Characteristics and Risk Analysis of Antibiotic in the Groundwater in Beijing	CHEN Wei-ping, PENG Cheng-wei, YANG Yang, <i>et al.</i> (5074)
Characteristics of Carbon and Nitrogen in the Downstream Columnar Sediment of Maozhou River, Shenzhen	LING Jun-hong, ZHANG Yi-zhang, WANG Min-hao, <i>et al.</i> (5081)
Relative Importance of Factors Influencing Iron Release in Drinking Water Distribution Systems	LIU Ying, YU Ying, SHI Bao-you, <i>et al.</i> (5090)
Removal of High Concentration of Iron, Manganese and Ammonia Nitrogen from Low Temperature Groundwater Using Single Bio-filter	LI Dong, CAO Rui-hua, YANG Hang, <i>et al.</i> (5097)
Mechanism of Pre-ozonation Enhanced Coagulation on DON in the Secondary Effluent	LIU Bing, ZHENG Yu-ming, WANG Da-xiang, <i>et al.</i> (5106)
Base Activation of Peroxymonosulfate for the Degradation of Ciprofloxacin in Water	GE Yong-jian, CAI Xian-wei, LIN Han, <i>et al.</i> (5116)
MIL-88A@MIP Activated Persulfate for Targeted Degradation of Dibutyl Phthalate	WANG Jiu-mei, GUAN Ze-yu, WAN Jin-quan, <i>et al.</i> (5124)
Methane Cycle Anaerobic Membrane Bioreactor with Desulfurization for Treating High Sulfate Organic Wastewater at Normal Temperature	XU Ting, JIN Yan-qing, LI Yong (5132)
Simultaneous Recovery of Nutrients from Wastewater by Mesoporous MgO-loaded Natural Zeolite	CHENG Xue-jun, WANG Xue-jiang, WANG Hao, <i>et al.</i> (5139)
Phosphorus Removal Capacity of Domestic Wastewater Treated by a Modified CAST Process Under Different Operating Modes	MA Juan, WANG Jin, YU Xiao-jun, <i>et al.</i> (5146)
Realization of Shortcut Nitrification in the ABR-MBR Process Treating Domestic Wastewater	LÜ Liang, ZHAO Shi-hui, WEI Jia-min, <i>et al.</i> (5154)
Substrate Inhibition and Kinetic Characteristics of Marine Anaerobic Ammonium Oxidizing Bacteria Treating Saline Wastewater	ZHOU Tong, YU De-shuang, LI Jin, <i>et al.</i> (5162)
Effect of Free Ammonia on Ammonia Escape During an Ammonia Oxidation Process	SUN Hong-wei, YU Xue, YOU Yong-jun, <i>et al.</i> (5169)
Water Quality and Diversity of Denitrifier Community Structure of Typical Scenic Water Bodies in Xi'an	KANG Peng-liang, HUANG Ting-lin, ZHANG Hai-han, <i>et al.</i> (5174)
Start-up and Characteristics of the Microbial Community Structure of ANAMMOX	WANG Yao-qi, ZHANG Min, JIANG Ying, <i>et al.</i> (5184)
Fast Start-up and Performance of the CANON Process Based on a SBAF System and Evolution Properties of Microorganisms	YUE Xiu, LIU Zhu-han, YU Guang-ping, <i>et al.</i> (5192)
Enrichment of <i>Nitrospira</i> in Activated Sludge and Kinetic Characterization	YAO Qian, PENG Dang-cong, ZHAO Qiao-di, <i>et al.</i> (5201)
Effect of pH Value on Autotrophic Denitrification Process of Zero Valent Iron Substrate	ZHANG Ning-bo, LI Xiang, HUANG Yong (5208)
Effect of Seeding Single/Mixed Sludge on Rapid Start-up of an ANAMMOX Reactor	ZHANG Ze-wen, LI Dong, ZHANG Jie, <i>et al.</i> (5215)
Comparison of Start-up and Stable Performance of Nitrification in Activated Sludge and Biofilm Processes in a SBR	SUN Yi-qi, BIAN Wei, WANG Meng, <i>et al.</i> (5222)
Long-term Impacts of TiO ₂ Nanoparticles on the Stability of an Anaerobic Granular Sludge Bioreactor	LI Hui-ting, CUI Fu-yi (5229)
Composition and Distribution of Antibiotics in Soils with Different Land Use Types in a Typical Peri-urban Area of the Yangtze River Delta	ZHAO Fang-kai, CHEN Li-ding, YANG Lei, <i>et al.</i> (5237)
Distribution of Phosphorus in Soil Profiles after Continuous Application of Different Fertilizers	ZHANG Tian, XU Hao, RU Shu-hua, <i>et al.</i> (5247)
Occurrence of Organophosphate Esters in Soils of the Three Gorges Reservoir	HE Ming-jing, YANG Ting, YANG Zhi-hao, <i>et al.</i> (5256)
Pollution Characteristics, Source Analysis and Potential Ecological Risk Assessment of Heavy Metals in Soils Surrounding a Municipal Solid Waste Incineration Plant in Shanghai	GUO Yan-hai, SUN Xu-chao, ZHANG Shi-bing, <i>et al.</i> (5262)
Comparison of Characteristics and Source Apportionment of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in Different Environmental Media in the Urban Area of Daqing City	SONG Ning-ning, FENG Jia-shen, YU Yang, <i>et al.</i> (5272)
Magnetic Response of Heavy Metal Pollution in Playground Dust of an Industrial Area	YANG Meng, LI Hui-ming, LI Feng-ying, <i>et al.</i> (5282)
Distribution Characteristics and Health Risk for Heavy Metals in Vegetables Near the Industrial Areas in Shanghai	ZHOU Ya, BI Chun-juan, ZHOU Xiao-xiao, <i>et al.</i> (5292)
Impacts of Silicon Fertilizer as Base Manure on Cadmium Bioavailability in Soil and on Cadmium Accumulation in Rice Plants	GAO Zi-xiang, ZHOU Hang, YANG Wen-tao, <i>et al.</i> (5299)
Uptake and Volatilization of Gaseous Elemental Mercury by Paddy Rice	SHANG Shuai, TIAN Pei, JIANG Yu, <i>et al.</i> (5308)
Long Term Variations of Ozone Concentration of in a Winter Wheat Field and Its Loss Estimate Based on Dry Matter and Yield	ZHAO Hui, ZHENG You-fei, LI Shuo, <i>et al.</i> (5315)
Control Effect of Side Deep Fertilization with Slow-release Fertilizer on Ammonia Volatilization from Paddy Fields	HOU Peng-fu, XUE Li-xiang, YU Ying-liang, <i>et al.</i> (5326)
Effects of Biochar and Organic Fertilizer on Saline-alkali Soil N ₂ O Emission in the North China Plain	SHI Yu-long, LIU Xing-ren, GAO Pei-ling, <i>et al.</i> (5333)
Flux Characteristics of CO ₂ , CH ₄ , and N ₂ O and their Influencing Factors in Different Types of Ditches on the Chengdu Plain	FENG Xiang-rong, DENG Ou-ping, DENG Liang-ji, <i>et al.</i> (5344)
Review of CO ₂ and CH ₄ Emissions from Rivers	WANG Xiao-feng, YUAN Xing-zhong, CHEN Huai, <i>et al.</i> (5352)