

## 三峡库首秭归地区大气降水硫同位素组成及示踪研究

吴起鑫<sup>1,2</sup> 韩贵琳<sup>1\*</sup>

(1. 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; 2. 中国科学院研究生院地球科学学院, 北京 100049)

**摘要:** 2009 年 6 月~2010 年 7 月对三峡库首秭归地区大气降水  $\text{SO}_4^{2-}$  含量和硫同位素组成特征进行了连续 1 a 的研究. 结果表明, 秭归地区降水  $\text{SO}_4^{2-}$  浓度在  $31.4 \sim 668.1 \mu\text{mol}\cdot\text{L}^{-1}$  之间, 加权平均浓度为  $161.9 \mu\text{mol}\cdot\text{L}^{-1}$ ; 降水  $\text{SO}_4^{2-}$  硫同位素值  $\delta^{34}\text{S}$  在  $-2.14\% \sim 6.07\%$  之间, 平均值为  $2.06\% \pm 1.97\%$ .  $\text{SO}_4^{2-}$  含量季节变化特征明显, 夏秋季节低, 冬春季节高; 而  $\delta^{34}\text{S}$  值则冬季偏正, 而其他 3 个季节都相对偏负. 对硫同位素值分析表明, 生物来源硫可能对当地大气降水酸度有一定的贡献, 且在夏秋季节尤为明显.

**关键词:** 三峡水库; 大气降水; 硫同位素; 生物来源硫; 秭归

中图分类号: X517 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2012)07-2145-06

## Isotopic Composition and Isotope Tracing of Sulfur in Atmospheric Precipitation at the Head Area of the Three Gorges Reservoir, China

WU Qi-xin<sup>1,2</sup>, HAN Gui-lin<sup>1</sup>

(1. State Key Laboratory of Environmental Geochemistry, Institute of Geochemistry, Chinese Academy of Sciences, Guiyang 550002, China; 2. College of Earth Science, Graduate University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China)

**Abstract:** Rainwater samples were collected in the head area of the Three Gorges Reservoir from June 2009 to July 2010. The  $\text{SO}_4^{2-}$  content and the characteristics of sulfur isotopic composition were determined. The results showed that the concentrations of  $\text{SO}_4^{2-}$  ranged from  $31.4 \sim 668.1 \mu\text{mol}\cdot\text{L}^{-1}$  with a weighted average of  $161.9 \mu\text{mol}\cdot\text{L}^{-1}$ , whereas the variation of  $\delta^{34}\text{S}$  values for  $\text{SO}_4^{2-}$  ranged from  $-2.14\%$  to  $6.07\%$  with an annual average of  $2.06\% \pm 1.97\%$ . Significant seasonal variations were found in the  $\text{SO}_4^{2-}$  content, which were higher in winter and spring and lower in summer and autumn. The  $\delta^{34}\text{S}$  values for  $\text{SO}_4^{2-}$  measured in winter were much higher than those in the other seasons. Analysis of the  $\delta^{34}\text{S}$  values showed that the biogenic sulfur might have significant contribution to the acidity of rainwater, especially in summer and autumn.

**Key words:** the Three Gorges Reservoir; rainwater; sulfur isotope; biogenic sulfur; Zigui

大气中的硫是我国主要的大气污染物,也是大气环境中的主要致酸物质. 大气中的硫主要以二氧化硫、硫化氢、硫酸盐气溶胶以及各种非挥发性有机硫化物(如 DMS)的形式存在.  $\text{SO}_2$  是人为排放的主要硫污染物,进入大气后容易被氧化,通过气相均相氧化或液相多相氧化形成硫酸盐<sup>[1]</sup>. 硫酸盐是大气中重要的气溶胶粒子之一,在对流层和水滴结合形成降水,造成酸雨污染,同时通过直接和间接辐射还会对全球气候产生影响<sup>[2,3]</sup>. 因此,确定大气中硫的来源、组成、迁移转化信息,对一个地区的环境质量评价具有重要的意义. 大气降水硫同位素组成通常蕴含了硫的来源组成、迁移转化过程的重要信息,因此,硫同位素示踪技术已广泛地应用于环境领域中硫来源分析和硫循环等研究<sup>[4~6]</sup>. 我国对大气中硫同位素的研究始于 20 世纪 80 年代中期,有研究者通过对大气降水和煤炭的硫同位素分析发现,受煤炭硫同位素影响,中国大气降水硫同位素存在南北

分异特征,长江以南地区大气降水富集轻硫同位素,长江以北地区富集重硫同位素<sup>[7,8]</sup>. Mukai 等<sup>[9]</sup>对中国多个城市大气  $\text{SO}_2$  和硫酸盐气溶胶硫同位素的研究也发现了这个南北分异的特征,并认为大气硫同位素主要受当地燃煤中硫的影响. 张鸿斌等<sup>[10,11]</sup>研究了华南地区酸沉降的硫同位素发现,湘桂走廊地区大气降水明显的富集 $^{32}\text{S}$ ,而珠江三角洲地区则明显富集 $^{34}\text{S}$ ,人为硫源是最主要硫排放源,而在夏季,生物源贡献突出.

三峡库首秭归地区属于华中酸雨带,是目前我国酸雨出现频率高、强度较为严重的区域之一<sup>[12,13]</sup>. 大量的硫沉降将会导致水体酸化,水质退化,对水生生态系统的影响不可忽视. 本研究通过分

收稿日期: 2011-09-01; 修订日期: 2011-10-28

基金项目: 中国科学院知识创新工程重要方向项目(KZCX2-YW-QN109); 国家自然科学基金项目(40973088, 41021062)

作者简介: 吴起鑫(1984~),男,博士研究生,主要研究方向为水环境地球化学. E-mail: wuqixin@mails.gyig.ac.cn

\* 通讯联系人, E-mail: hanguilin@vip.skleg.cn

析三峡库首秭归地区大气降水  $\text{SO}_4^{2-}$  含量和  $\delta^{34}\text{S}$  值的变化特征,探讨了三峡库首地区降水中硫的来源及其影响。

## 1 研究区域与方法

采样点位于三峡库首地区的湖北省宜昌市秭归县县城,长江西陵峡畔,东经  $110^\circ 18' \sim 111^\circ 0'$ ,北纬  $30^\circ 38' \sim 31^\circ 11'$ ,属于长江上游下段的三峡河谷地带(图1)。该县地处亚热带季风气候区,气候温和湿润、雨量充沛、四季分明,年平均气温为  $13.1 \sim 18^\circ\text{C}$ ,年平均水量为  $1\,000\text{ mm}$ ,空气平均相对湿度  $72\%$ 。根据湖北省 2009 年环境公报<sup>[13]</sup>,秭归是湖北省酸性降雨发生频率最高的地区,酸性降水占降水总量的  $89\%$ 。

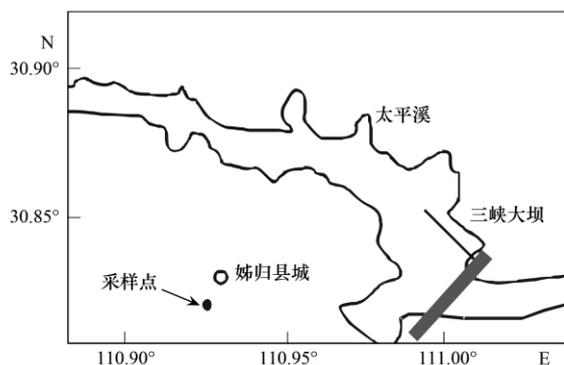


图1 采样位置示意

Fig. 1 Locations of sampling sites

采样点设置在秭归县城茅坪镇一楼房房顶,房顶周围空旷,附近没有工业排放源。采样设备是聚乙烯桶,固定于一个高于楼顶约  $1.5\text{ m}$  的采样平台上,以避免雨水溅射带来的影响。使用前,用超纯水反复冲洗,然后用盖子盖住,预防干沉降污染。每次下雨时,将预先处理过的聚乙烯桶置于采样平台收集样品。雨停后,立即测试水样 pH 值、电导、温度等基本参数。收集的雨水用  $0.45\ \mu\text{m}$  Millipore 醋酸纤维滤膜过滤,然后用预先处理过的聚乙烯瓶分装。用于分析阳离子的样品加入适量亚沸蒸馏纯硝酸使其  $\text{pH} < 2$ 。所有样品置于  $4^\circ\text{C}$  冰箱冷藏保存,并尽快分析。降水阴离子用离子色谱分析,阳离子用原子吸收分析,  $\text{NH}_4^+$  用纳氏试剂分光光度法测定,各离子测试精度都好于  $5\%$ 。

用于硫同位素的分析水样过滤后加入超纯 HCl 酸化至  $\text{pH} < 2$ ,并加入少量  $\text{HgCl}_2$ ,抑制微生物的活动。样品运回实验室后,加入过量  $10\%$   $\text{BaCl}_2$  溶液,充分摇晃,反应约 1 周,然后用  $0.22\ \mu\text{m}$  醋酸纤维滤

膜过滤,反复冲洗滤膜,除去多余的  $\text{Cl}^-$ ,转入马弗炉,缓慢升温至  $800^\circ\text{C}$ ,保持该温度灼烧  $2\text{ h}$ 。得到的  $\text{BaSO}_4$  固体在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的 IsoPrime 连续流质谱仪上分析硫同位素值。硫同位素分析采用的工作标准有 VCDT 标准 IAEA-S-1 ( $\text{Ag}_2\text{S}$ ,  $-0.30\text{‰}$ )、美国国家标准和技术研究所标准 NBS-127(重晶石,  $20.3\text{‰}$ ) 和国家参考标准 GBW04415 ( $\text{Ag}_2\text{S}$ ,  $22.15\text{‰}$ ),分析结果相对于国际标准 CDT,以  $\delta^{34}\text{S}$  值表示。

$$\delta^{34}\text{S}(\text{‰}) = (R_{\text{sa}}/R_{\text{st}} - 1) \times 10^3$$

式中  $R_{\text{sa}}$ 、 $R_{\text{st}}$  分别为样品和标准相应的硫同位素比值,分析测试的标准偏差为  $\pm 0.2\text{‰}$  ( $n = 10$ )。

## 2 结果与分析

从 2009 年 6 月 ~ 2010 年 7 月 1 a 的采样期间,共收集了 59 个雨水样品,受样品量的限制,其中 28 个样品进行了硫同位素分析。三峡库首秭归地区大气降水  $\text{SO}_4^{2-}$  浓度在  $31.4 \sim 668.1\ \mu\text{mol}\cdot\text{L}^{-1}$  之间,最高值出现在冬季(2009 年 12 月 1 日),最低值在夏季(2009 年 6 月 30 日),其加权平均浓度为  $161.9\ \mu\text{mol}\cdot\text{L}^{-1}$ 。郑泽厚等<sup>[14]</sup>在 1996 ~ 1998 年对湖北农村地区降水  $\text{SO}_4^{2-}$  进行了分析,1996 年、1997 年与秭归相邻的兴山地区的  $\text{SO}_4^{2-}$  浓度分别为  $(34 \pm 33.408)\ \mu\text{mol}\cdot\text{L}^{-1}$ 、 $(63.5 \pm 46.538)\ \mu\text{mol}\cdot\text{L}^{-1}$ ,可见,相对 90 年代,我国二氧化硫的排放量明显增加。相对于北京、上海、成都等大城市<sup>[15~17]</sup>,其  $\text{SO}_4^{2-}$  含量相对较低,而相对茂兰、东天山等偏远地区<sup>[18,19]</sup>,其含量又更高,反映了我国大气  $\text{SO}_2$  主要来源于人类活动排放的典型特征。

秭归地区降水  $\delta^{34}\text{S}$  值在  $-2.14\text{‰} \sim 6.07\text{‰}$  之间,平均值为  $2.06\text{‰} \pm 1.97\text{‰}$ 。20 世纪 90 年代,国内学者对我国大气降水的硫同位素组成分析发现,在当时所测得的数据中,大气降水硫同位素组成存在着区域分异的特征,长江以南从拉萨、贵阳到深圳广大地区的大气降水的  $\delta^{34}\text{S}$  值为负值,而长江以北由乌鲁木齐、经北京到哈尔滨地区大气降水的  $\delta^{34}\text{S}$  值均为正值<sup>[8]</sup>; Mukai 等<sup>[9]</sup>对贵阳、北京、大连、长春、哈尔滨、上海、南京、青海瓦里关、日本 Tsukuba 等城市的大气  $\text{SO}_2$  和气溶胶硫同位素组成研究,同样观察到了这种明显的区域分异现象,北方地区大连、长春、哈尔滨的大气  $\text{SO}_2$  的  $\delta^{34}\text{S}$  值大约为  $5\text{‰}$ ,而南方的贵阳约在  $-3\text{‰}$  左右,南京和上海的均值则在  $3\text{‰}$  左右。这种降水硫同位素区域分异现象与国内煤炭南北差异及酸雨分布南重北轻现象有一定

联系<sup>[8]</sup>,但在随后的研究中,一些地方的数据出现了与降水硫同位素区域分异不同的现象.1994年广州市大气降水 $\delta^{34}\text{S}$ 值为 $0.6\text{‰} \sim 14.0\text{‰}$ ,均值为 $4.9\text{‰}$ ,1996~1997年衡阳地区大气降水 $\delta^{34}\text{S}$ 组成变化范围为 $2.96\text{‰} \sim 14.92\text{‰}$ ,加权均值为 $6.12\text{‰}$ ,深圳降水 $\delta^{34}\text{S}$ 为 $4.0\text{‰} \sim 9.0\text{‰}$ ,韶关降水 $\delta^{34}\text{S}$ 值为 $3.7\text{‰} \sim 6.8\text{‰}$ ,降水明显富集重硫同位素.这些结果明显有别于降水硫同位素区域分异特征,不支持以长江为界降水硫同位素区域分异现象<sup>[10,11,20]</sup>;而肖化云等<sup>[21]</sup>对贵阳2001年的降水硫同位素分析发现,贵阳地区小雨和暴雨硫同位素有明显的差异,小雨具有偏负的硫同位素值,而暴雨的硫同位素值偏正,因此他们推测20世纪90年代观测到的雨水可能主要是小雨,因为这种类型的雨在贵阳比较普遍,发生频率高.秭归地区属于华中地区,位于中国北方地区

和南方地区的过渡地带,硫同位素值有正有负,与2006年南昌地区降水 $\delta^{34}\text{S}$ 值的变化范围相似( $-3.5\text{‰} \sim 5.5\text{‰}$ ,年平均值为 $0.9\text{‰}$ )<sup>[22]</sup>,大气降水中硫来源可能与南昌降水相似,有生物来源硫的加入.

采样期间逐场降水 $\text{SO}_4^{2-}$ 含量和 $\delta^{34}\text{S}$ 值变化见图2.2009年冬季至2010年春季降水 $\text{SO}_4^{2-}$ 含量普遍较高,而夏秋季节降水较低.2009年冬季 $\delta^{34}\text{S}$ 值最高,2010年5月 $\delta^{34}\text{S}$ 值最低.按农历春、夏、秋、冬四季划分, $\text{SO}_4^{2-}$ 与 $\delta^{34}\text{S}$ 值各季平均值变化见图3.从中可知,冬季 $\text{SO}_4^{2-}$ 含量最高,春季次之,而夏秋季节较低.这种变化特征与我国其他地区类似;而 $\delta^{34}\text{S}$ 值除冬季样品 $\delta^{34}\text{S}$ 值较高外,其他季节变化不明显,春、夏、秋三季的 $\delta^{34}\text{S}$ 值差异不大,夏季略高一些.

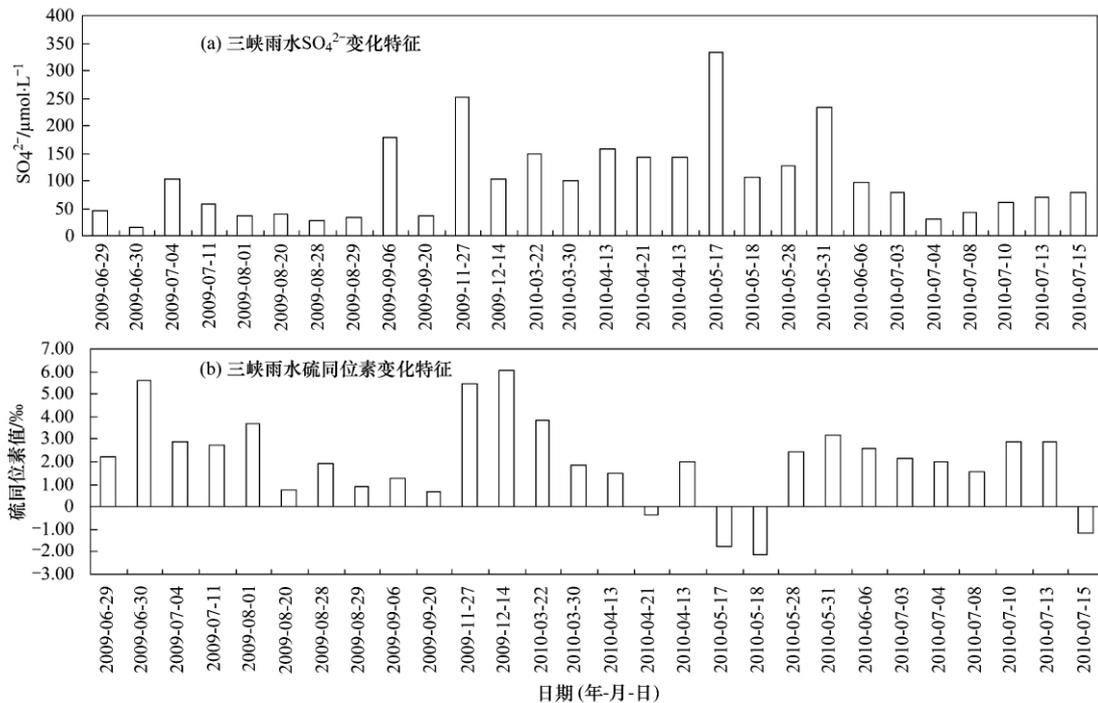


图2 三峡库首地区 $\text{SO}_4^{2-}$ 含量和 $\delta^{34}\text{S}$ 值

Fig. 2 Sulfate concentration and the isotopic composition of sulphur in the rainwater at the head area of the Three Gorges Reservoir

### 3 讨论

#### 3.1 $\text{SO}_4^{2-}$ 来源分析

大气环境中硫有多种来源,既有自然来源,也有人为来源.在全球范围内,这2种来源对大气硫的贡献是相当的<sup>[23]</sup>.大气自然来源的硫主要包括:海沫来源、火山来源、生物来源、陆壳颗粒来源等;人为来源主要包括:化石燃料燃烧、硫化物金属冶炼、和硫酸制造工业等<sup>[24]</sup>.据估计,人为排放的 $\text{SO}_2$ 占全球

$\text{SO}_2$ 排放量的70%,其中,一半来自于化石燃料的燃烧<sup>[25]</sup>.

国内对大气 $\text{SO}_2$ 和 $\text{SO}_4^{2-}$ 气溶胶的来源示踪已经做了一定的研究.洪业汤<sup>[8]</sup>、刘广深<sup>[26]</sup>等对贵阳地区的大气 $\text{SO}_2$ 和气溶胶的硫同位素进行了分析测定,张鸿斌等<sup>[11]</sup>对华南的部分地区大气 $\text{SO}_2$ 和气溶胶的硫同位素进行研究,发现大气硫同位素具有明显的区域分异特征,产生这种特征的原因主要是不同地区使用的化石燃料来源不同.不同地区的化

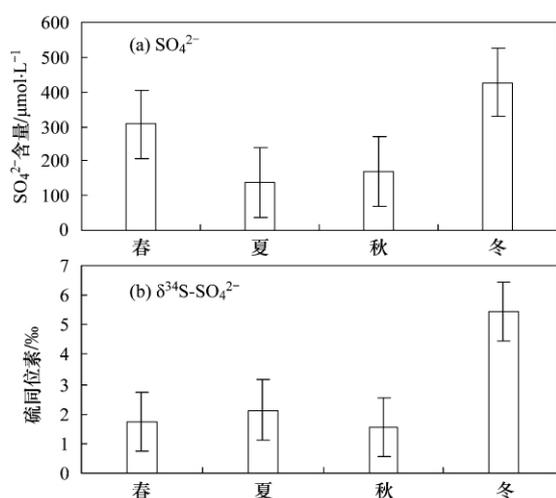
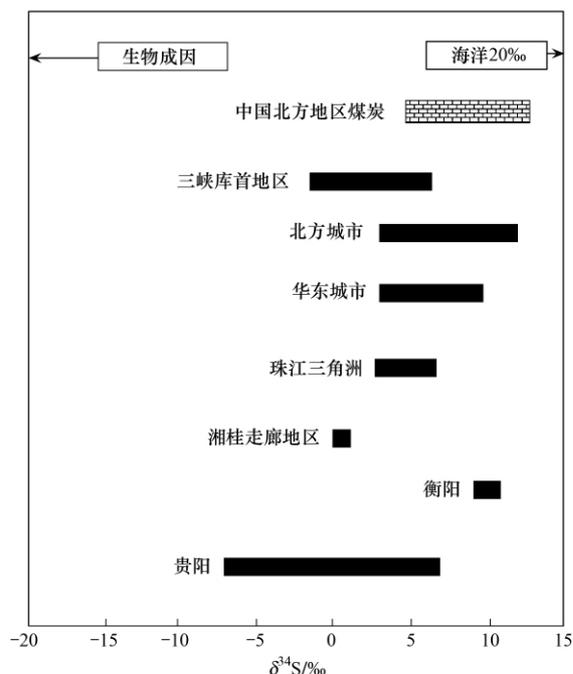


图3 三峡库首地区 SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> 含量和 δ<sup>34</sup>S 值季节变化

Fig. 3 Seasonal variations of SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> and δ<sup>34</sup>S in the head area of the Three Gorges Reservoir

石燃料由于其形成的地质背景不同,其硫同位素组成有很大的差异.图4是不同地区降水或 SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> 气溶胶硫同位素的变化范围.华东城市(上海、南京、金华)和北方城市使用的燃煤都主要来源于北方地区,其气溶胶 δ<sup>34</sup>S 值与北方地区煤炭 δ<sup>34</sup>S 也很接近,反映了大气硫同位素组成主要继承了当地所使用煤炭的硫同位素值特征<sup>[9]</sup>.而湖北地区的煤炭也主要来源于山西、河南等北方省份<sup>[27]</sup>,但其降水 δ<sup>34</sup>S 值



图中数据来自文献[8,9,11,20]

图4 不同地区降水 SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> 硫同位素组成

Fig. 4 Sulfur isotopic compositions of SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> in rainwater in different regions of China

与北方煤炭硫同位素存在明显的差异,由此可见,秭归地区降水 δ<sup>34</sup>S 除了煤炭燃烧释放硫之外,还存在其他来源.与北方、华东城市相比,秭归地区降水明显偏负,表明有低硫同位素的硫源的输入.通常,低硫同位素的主要硫源有2个:①远距离低硫同位素 SO<sub>2</sub> 或 SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> 气溶胶传输;②本地生物成因硫.黄美元等<sup>[28]</sup>对我国秋冬季硫污染物沉降与跨地区输送模拟研究认为,我国各大区的总硫沉降主要来自于本地区的源排放.因此,生物成因硫的输入应该是导致三峡库首秭归地区硫同位素偏负的主要因素.

### 3.2 生物成因硫

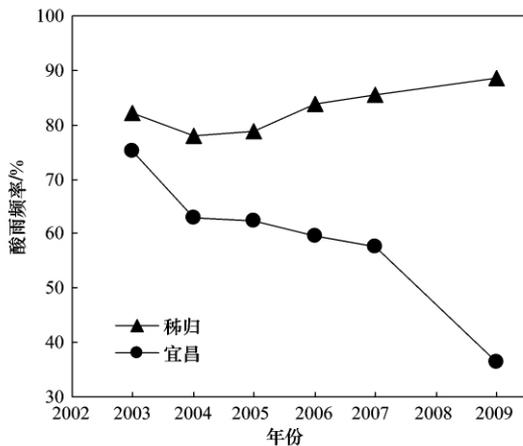
生物成因硫主要是由于微生物还原水体中(海洋、湖泊、河流、沼泽等)的 SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> 而产生.陆地有机质中的含硫物质通过微生物的分解也会产生,其主要是以 H<sub>2</sub>S、DMS、COS、CS<sub>2</sub> 等物质形式释放,与母源物质相比,具有相对较低的硫同位素值.如海洋硫酸盐 δ<sup>34</sup>S 值约为 20‰,产生的 DMS 的 δ<sup>34</sup>S 值为 15‰<sup>[29]</sup>,日本沿海地区生物成因 H<sub>2</sub>S 的 δ<sup>34</sup>S 平均值为 -2.6‰左右,而在加拿大北部偏远地区排放的生物成因硫为 -2.4‰<sup>[30]</sup>.广东鼎湖山环境自然保护区,雨水中硫主要为生物来源硫,其硫同位素相对受人为输入影响大的广州市区明显偏负,为 -2.95‰<sup>[10]</sup>.湿地属于水生生态系统和陆地生态系统交错的特殊系统,水位变化频繁,土壤交替出露水面,将释放 H<sub>2</sub>S、DMS、COS、DMDS、CS<sub>2</sub> 等含硫气体<sup>[31]</sup>.土壤理化性质受水位影响也变化频繁,氧化还原条件也随之改变.土壤氧化还原条件是影响硫气体释放的一个重要因素,随着 Eh 的变化,土壤硫的释放量、形态随之发生变化. Devail 等<sup>[32]</sup>研究了 Eh 的变化对含硫气体产生的影响,发现随着氧化还原电位的降低,总的含硫气体释放量增加,但不同的气体增加的比例不同, H<sub>2</sub>S 在 -100 mV 时释放速率达到最大值, COS 在 -100 ~ -70 mV 之间增加显著.已有数据表明,湿地由于其水陆交替的特殊生态系统的特殊性,其硫释放量比陆地土壤高一个或几个数量级<sup>[23]</sup>.

三峡水库蓄水后,水域面积增加,两岸大片土地淹没,形成总面积 1 084 km<sup>2</sup> 的人工湖泊,冬季水位最高 175 m,夏季水位最低 145 m,期间形成的消落带湿地最大高差达 30 m,面积达 300 km<sup>2</sup><sup>[33]</sup>.由于蓄水导致的水域面积增加和消落带湿地面积增加将引起生物成因硫的释放增加(如 H<sub>2</sub>S 和 COS).该地区雨水低硫同位素值很可能是由于三峡消落带释放大量的低硫同位素比值的生物来源硫.由于生物活动受

温度,光照影响明显,通常温度越高,生物活动也越强烈,夏秋季节生物作用要强于冬春季节.在本研究中,硫同位素为负值的样品都发生在夏秋季节,也证明生物成因硫是该季节雨水硫同位素值偏负的重要原因.

### 3.3 生物成因硫对三峡地区降水影响分析

为了分析三峡蓄水后库区降水的变化趋势,本研究收集了 2003~2009 年湖北省环境质量状况公报,分析了代表受三峡库区影响最大的秭归地区和离秭归最近的城市宜昌地区酸雨发生频率(图 5).



数据来自湖北省环境质量状况公报 2003~2009 年<sup>[13, 34~38]</sup>

图 5 近年来秭归、宜昌酸性降水发生率变化趋势

Fig. 5 Temporal variations of acid rain frequency in Zigui and Yichang

从图 5 可知,2003~2009 年,秭归地区酸性降水频率呈上升的趋势,而宜昌地区的酸性降水呈下降的趋势.在我国,通常酸性降水发生频率上升,主要是由于工业排放的酸性气体增加所致.而从 1998 年我国实施酸雨和 SO<sub>2</sub> 污染控制区区划、关闭小火电站、大型火电站必须安装除尘脱硫设备等大气治理政策实施以来,我国部分地区的酸性降水发生频率已经开始降低<sup>[39]</sup>.宜昌是距离秭归最近的城市,从 2002~2009 年,酸性降水发生频率降低,说明在国家环保政策的实施下,该地区大气环境污染得到一定的改善,酸性降水得到控制,并有好转的趋势.通过调研,在“十五”期间,秭归通过产业结构调整,压缩冶金、煤炭行业,对效益低下、浪费资源、污染环境的工业企业实行“关、停、并、转”,逐步淘汰了以“砖瓦灰砂石”为代表的低档次产品,并实施烟气处理工程,提高工业废气处理率.然而,秭归从 2003~2009 年酸性降水发生频率呈升高趋势,与该地区大背景变化不一致.三峡水利工程 1997 年截流,2003 年首

次蓄水,坝前水位达到 135 m,极大地改变了秭归县的地貌特征,对当地局域小气候也产生一定的影响,因此推测,三峡大坝蓄水可能是该地区酸性降水发生频率变化的诱发因素之一.三峡水库蓄水,水域面积扩大,淹没周围土壤,生物成因硫的释放增加,很可能会导致酸性降水增加,甚至在某些气候条件下(如炎热的夏天),可能会取代人为排放硫的主导地位,成为控制当地降水酸度的主要因素.由于目前没有研究该地区生物成因硫的释放通量,因此只能推测生物成因硫排放可能是该地区酸性降水发生频率升高的一个重要因素.另外,三峡水库蓄水,水面蒸发面积增大,改变区域小气候,降雨量发生变化,也可能是造成该地区酸性降水发生频率升高的原因.

## 4 结论

(1) 三峡库首秭归地区大气降水 SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> 浓度在 31.4~668.1 μmol·L<sup>-1</sup> 之间,最高值出现在冬季,最低值在夏季,其加权平均浓度为 161.9 μmol·L<sup>-1</sup>;降水 SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> 硫同位素值在 -2.14‰~6.07‰ 之间,平均值为 2.06‰ ± 1.97‰,冬季样品硫同位素偏正,而其他 3 个季节都偏负.

(2) 三峡库首秭归地区大气降水硫同位素比值年平均值低于当地燃煤硫同位素比值,表明来源于三峡水库蓄水形成的大片水域和消落带湿地释放低硫同位素比值生物来源硫对当地大气硫有重要的贡献.三峡消落带湿地释放的含硫气体还可能是导致近年来酸性降水频率增加的一个主要因素.

### 参考文献:

- [1] Jamieson R E, Wadleigh M A. Tracing sources of precipitation sulfate in eastern Canada using stable isotopes and trace metals [J]. *Journal of Geophysical Research*, 2000, **105** (D16): 20549-20556.
- [2] Charlson R J, Schwartz S E, Hales J M, et al. Climate forcing by anthropogenic aerosols [J]. *Science*, 1992, **255** (5043): 423-430.
- [3] Haywood J, Boucher O. Estimates of the direct and indirect radiative forcing due to tropospheric aerosols: a review [J]. *Reviews of Geophysics*, 2000, **38** (4): 513-543.
- [4] Nakai N, Jensen M L. Sources of atmospheric sulfur compounds [J]. *Geochemical Journal*, 1967, **1** (4): 199-210.
- [5] Nielsen H. Isotopic composition of the major contributors to atmospheric sulfur [J]. *Tellus*, 1974, **26** (1-2): 213-221.
- [6] Nriagu J O, Coker R D, Barrie L A. Origin of sulphur in Canadian Arctic haze from isotope measurements [J]. *Nature*, 1991, **349** (6305): 142-145.
- [7] Hong Y T, Zhang H B, Zhu Y X. Sulfur isotopic characteristics of coal in China and sulfur isotopic fractionation during coal-

- burning process [J]. *Chinese Journal of Geochemistry*, 1993, **12** (1): 51-59.
- [8] 洪业汤, 张鸿斌, 朱詠煊, 等. 中国大气降水的硫同位素组成特征 [J]. *自然科学进展*, 1994, **4**(6): 741-745.
- [9] Mukai H, Tanaka A, Fujii T, *et al.* Regional characteristics of sulfur and lead isotope ratios in the atmosphere at several Chinese urban sites [J]. *Environmental Science & Technology*, 2001, **35** (6): 1064-1071.
- [10] 张鸿斌, 陈毓蔚, 刘德平. 广州地区酸雨硫源的硫同位素示踪研究 [J]. *地球化学*, 1995, **24**(Suppl): 126-133.
- [11] 张鸿斌, 胡霏琴, 卢承祖, 等. 华南地区酸沉降的硫同位素组成及其环境意义 [J]. *中国环境科学*, 2002, **22**(2): 165-169.
- [12] 张霞, 李兰, 魏静. 湖北西部城市酸雨特征及其与气象条件的关系 [J]. *暴雨灾害*, 2007, **26**(2): 175-178.
- [13] 湖北省环境保护厅. 2009 年湖北省环境质量状况 [R]. 2009.
- [14] 郑泽厚, 方满, 金涛, 等. 湖北农村降水中  $\text{SO}_4^{2-}$  浓度变化研究 [J]. *长江流域资源与环境*, 2000, **9**(2): 248-253.
- [15] Xu Z F, Han G L. Chemical and strontium isotope characterization of rainwater in Beijing, China [J]. *Atmospheric Environment*, 2009, **43**(12): 1954-1961.
- [16] Huang K, Zhuang G, Xu C, *et al.* The chemistry of the severe acidic precipitation in Shanghai, China [J]. *Atmospheric Research*, 2008, **89**(1-2): 149-160.
- [17] Wang H, Han G L. Chemical composition of rainwater and anthropogenic influences in Chengdu, Southwest China [J]. *Atmospheric Research*, 2011, **99**(2): 190-196.
- [18] Han G L, Tang Y, Wu Q X, *et al.* Chemical and strontium isotope characterization of rainwater in karst virgin forest, Southwest China [J]. *Atmospheric Environment*, 2010, **44**(2): 174-181.
- [19] Zhao Z P, Tian L D, Fischer E, *et al.* Study of chemical composition of precipitation at an alpine site and a rural site in the Urumqi River Valley, Eastern Tien Shan, China [J]. *Atmospheric Environment*, 2008, **42**(39): 8934-8942.
- [20] 姚文辉, 陈佑蒲, 刘坚, 等. 衡阳大气硫同位素组成环境意义的研究 [J]. *环境科学研究*, 2003, **16**(3): 3-5.
- [21] 肖化云, 刘丛强, 李思亮. 贵阳地区夏季雨水硫和氮同位素地球化学特征 [J]. *地球化学*, 2003, **32**(3): 248-254.
- [22] 乐淑葵, 潘家永, 陈益平, 等. 南昌市雨水和湖水硫同位素特征的研究 [J]. *地球与环境*, 2007, **35**(4): 297-302.
- [23] 李新华, 刘景双, 王金达, 等. 陆地生态系统含硫气体释放研究进展 [J]. *生态环境*, 2005, **14**(1): 117-120.
- [24] Canfield D E. Biogeochemistry of sulfur isotopes [J]. *Reviews in Mineralogy and Geochemistry*, 2001, **43**(1): 607-636.
- [25] Lu Z, Streets D G, Zhang Q, *et al.* Sulfur dioxide emissions in China and sulfur trends in East Asia since 2000 [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2010, **10**(13): 6311-6331.
- [26] 刘广深, 洪业汤, 朴河春, 等. 贵阳城、郊近地面大气颗粒物的硫同位素组成特征 [J]. *矿物学报*, 1996, **16**(4): 353-357.
- [27] 贾曙光. 湖北: 建立煤炭供应长效机制 [J]. *当代经济*, 2006, (1): 28-29.
- [28] 黄美元, 王自发, 何东阳, 等. 我国冬夏季硫污染物沉降与跨地区输送模拟研究 [J]. *科学通报*, 1996, **41**(11): 1013-1016.
- [29] Calhoun J A, Bates T S, Charlson R J. Sulfur isotope measurements of submicrometer sulfate aerosol particles over the Pacific Ocean [J]. *Geophys Research Letters*, 1991, **18**(10): 1877-1880.
- [30] Nriagu J O, Holdway D A, Coker R D. Biogenic sulfur and the acidity of rainfall in remote areas of Canada [J]. *Science*, 1987, **237**(4819): 1189-1192.
- [31] Morrison M C, Hines M E. The variability of biogenic sulfur flux from a temperate salt marsh on short time and space scales [J]. *Atmospheric Environment Part A General Topics*, 1990, **24**(7): 1771-1779.
- [32] Devai I, DeLaune R D. Formation of volatile sulfur compounds in salt marsh sediment as influenced by soil redox condition [J]. *Organic Geochemistry*, 1995, **23**(4): 283-287.
- [33] 张虹. 三峡库区消落带土地资源特征分析 [J]. *水土保持通报*, 2008, **28**(1): 46-49.
- [34] 湖北省环境保护局. 2003 年湖北省环境质量状况 [R]. 2003.
- [35] 湖北省环境保护局. 2004 年湖北省环境质量状况 [R]. 2004.
- [36] 湖北省环境保护局. 2005 年湖北省环境质量状况 [R]. 2005.
- [37] 湖北省环境保护局. 2006 年湖北省环境质量状况 [R]. 2006.
- [38] 湖北省环境保护局. 2007 年湖北省环境质量状况 [R]. 2007.
- [39] 张新民, 柴发合, 王淑兰, 等. 中国酸雨研究现状 [J]. *环境科学研究*, 2010, **23**(5): 527-532.