

方知库  
Eco-Environmental  
Knowledge Web

# 环境科学

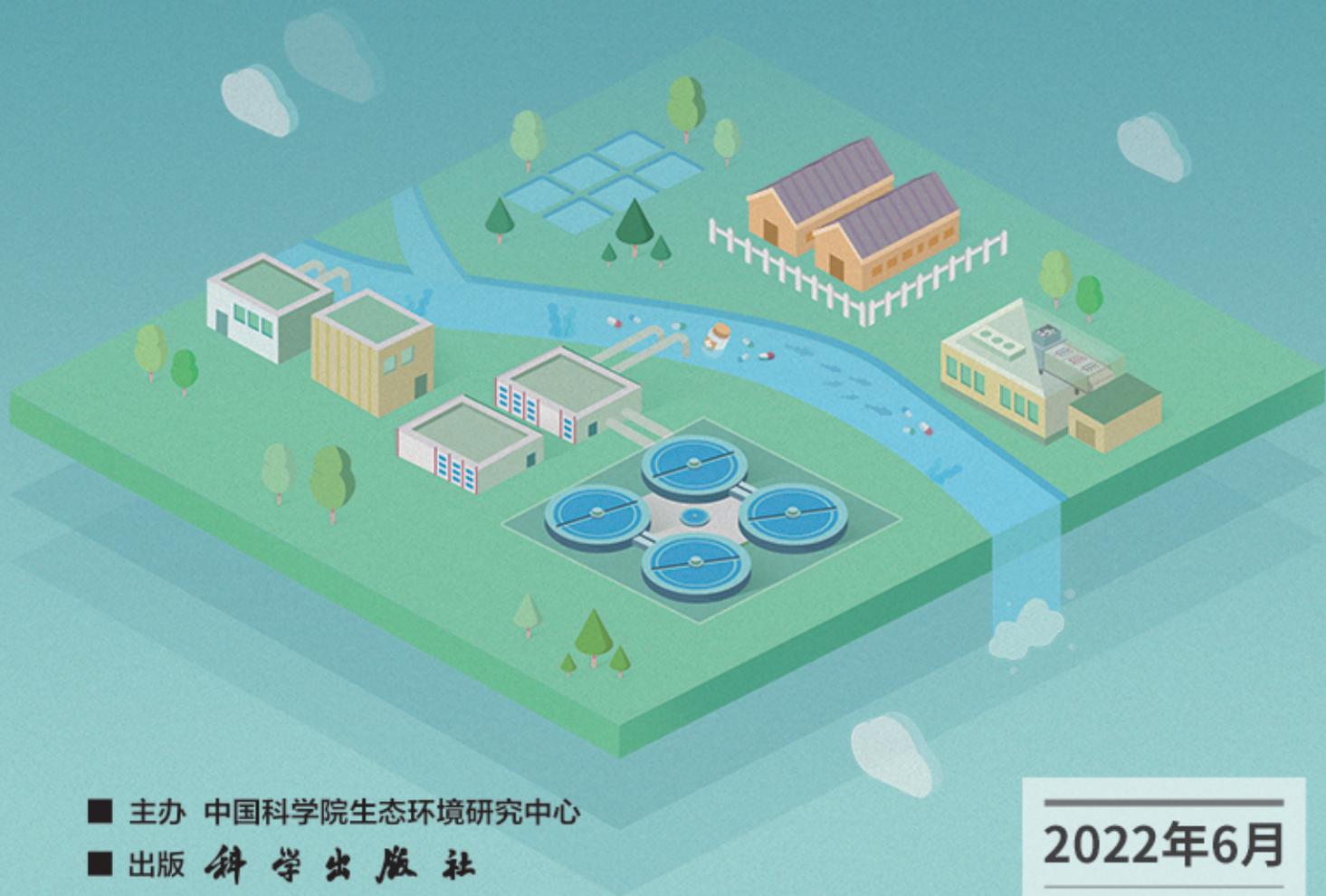
ENVIRONMENTAL SCIENCE

ISSN 0250-3301 CODEN HCKHDV

HUANJING KEXUE

长江中游典型饮用水水源中药物的时空分布及风险评价

武俊梅, 魏琳, 彭晶倩, 何鹏, 施鸿媛, 汤冬梅, 吴振斌



■ 主办 中国科学院生态环境研究中心

■ 出版 科学出版社



2022年6月

第43卷 第6期

Vol.43 No.6

目次

COVID-19 管控期间气象条件变化对京津冀 PM<sub>2.5</sub> 浓度影响 ..... 邱雨露, 陈磊, 朱佳, 马志强, 李梓铭, 郭恒, 唐颖潇 (2831)

新冠疫情管控措施对郑州市 PM<sub>2.5</sub> 浓度、粒径分布、组分和来源的影响 ..... 黄兵, 王申博, 和兵, 薛若雨, 高更宇, 张瑞芹 (2840)

COVID-19 管控期间苏州市 PM<sub>2.5</sub> 中金属元素浓度变化及来源解析 ..... 缪青, 杨倩, 吴也正, 魏恒, 周民锋, 张晓华, 邹强 (2851)

2015 ~ 2019 年南京北郊碳质气溶胶组成变化 ..... 谢添, 曹芳, 章炎麟, 林煜棋, 范美益, 宋文怀, 鲍孟盈, 项妍琨, 赵祝钰, 杨笑影, 谢锋, 张煜炯, 俞浩然, 张子金, 邢佳莉 (2858)

基于受体和化学传输的综合模型解析重庆 PM<sub>2.5</sub> 来源 ..... 彭超, 李振亮, 曹云攀, 蒲茜, 方维凯, 王晓宸, 汪凌韬 (2867)

保定市冬季 PM<sub>2.5</sub> 的氧化潜势特征及其影响来源分析 ..... 吴继炎, 杨池, 张春燕, 范美益, 吴爱坪, 章炎麟 (2878)

南京江北新区 PM<sub>2.5</sub> 中水溶性有机氮的污染特征及其来源 ..... 关璐, 丁铨, 张毓秀, 胡建林, 于兴娜 (2888)

广西十万大山背景点 PM<sub>2.5</sub> 中非极性有机气溶胶组成及来源解析 ..... 邢佳莉, 曹芳, 王谦, 张煜炯, 章炎麟 (2895)

大气多环芳烃区域迁移转化模型比较与关键影响因素: 以京津冀地区为例 ..... 张馨露, 刘世杰, 韩美丽, 苏超, 张志鹏, 马琳琳, 李洋, 程苗苗 (2906)

基于过程分析的京津冀区域典型城市臭氧成因 ..... 唐颖潇, 姚青, 蔡子颖, 丁净, 樊文雁, 杨旭, 韩素芹 (2917)

天津市 PM<sub>2.5</sub>-O<sub>3</sub> 复合污染特征及气象影响分析 ..... 肖致美, 李源, 孔君, 李鹏, 蔡子颖, 高璟, 徐虹, 戴运峰, 邓小文 (2928)

2016 ~ 2020 年山东省空气质量时空分布特征及影响因素分析 ..... 周梦鸽, 杨依, 孙媛, 张凤英, 李永华 (2937)

河南省臭氧污染趋势特征及敏感性变化 ..... 晏洋洋, 尹沙沙, 何秦, 秦凯, 张瑞芹 (2947)

热带气旋对珠三角秋季臭氧污染的影响 ..... 赵伟, 吕梦瑶, 卢清, 高博, 梁小明, 刘明, 孙家仁, 陈来国, 范绍佳 (2957)

武汉市夏季大气挥发性有机物实时组成及来源 ..... 苏维峰, 孔少飞, 郑煌, 陈楠, 祝波, 全继宏, 祁士华 (2966)

运城市区夏季大气挥发性有机物污染特征及来源解析 ..... 温肖宇, 赵文婷, 罗淑贞, 张强, 王姝涛, 马俊杰, 刘新罡 (2979)

我国地表水新烟碱类杀虫剂对水生生物安全的威胁 ..... 范丹丹, 刘红玲, 杨柳燕 (2987)

长江中游典型饮用水水源中药物的时空分布及风险评价 ..... 武俊梅, 魏琳, 彭晶倩, 何鹏, 施鸿媛, 汤冬梅, 吴振斌 (2996)

内蒙古东北部地区地下水-地表饮用水源多环芳烃污染特征与风险 ..... 张坤峰, 昌盛, 付青, 樊月婷, 王思璐, 孙兴滨, 王山军 (3005)

不同尺度土地利用方式对地表水环境质量的影响及驱动机制 ..... 宋静雯, 张学霞, 姜东旸, 赵丞豪, 李鹏飞 (3016)

高原湖泊周边浅层地下水: 氮素时空分布及驱动因素 ..... 李桂芳, 杨恒, 叶远行, 陈清飞, 崔景阳, 陈安强, 张丹 (3027)

青海湖沉积物重金属分布及其潜在生态风险分析 ..... 张雅然, 车霏霏, 付正辉, 许野, 李薇 (3037)

东江湖表层沉积物重金属污染特征与潜在生态风险评价 ..... 赵晓亮, 李响, 卢洪斌, 卢少勇, 王涛, 张森霖, 国晓春, 张静, 弥启欣, 刘晓贺, 宋书峰 (3048)

湖泊沉积物有机磷释放动力学特征及水质风险 ..... 刘哲哲, 倪兆奎, 刘思儒, 李晓秀, 王圣瑞 (3058)

长三角一体化示范区青浦区水体表层沉积物有机质分布特征、来源解析及污染评价 ..... 张智博, 段艳平, 涂耀仁, 罗鹏程, 高峻 (3066)

香溪河流域微塑料的分布特征及其迁移规律分析 ..... 陈圣盛, 李卫明, 张坤, 熊伟唯, 张续同, 刘子健 (3077)

城市水体微塑料垂向分布下附着细菌群落结构和功能响应 ..... 陈玉芳, 闫振华, 张燕, 赵海洲 (3088)

2015 ~ 2020 年洪泽湖浮游植物群落结构及其环境影响因子 ..... 屈宁, 邓建明, 张祯, 蔡永久, 龚志军, 李明 (3097)

嘉兴南湖不同湖区浮游植物群落结构特征与环境因子关系 ..... 王雅雯, 李迎鹤, 张博, 郭云艳, 陈俊伊, 韩松 (3106)

近 20 年来广东省农业面源污染负荷时空变化与来源分析 ..... 葛小君, 黄斌, 袁再健, 王栋栋, 王泉泉, 陈佳村, 谢真越 (3118)

长江上游平原丘陵区农业非点源污染输出特征和驱动机制 ..... 谭少军, 刘洋, 朱小婕, 刘荷, 邵景安, 邓华 (3128)

高分辨率数据驱动的流域非点源污染输出风险评估方法 ..... 顾晶晶, 冶涛涛, 董甲平, 蒋钟钟, 曹引, 赵红莉 (3140)

不同面源强度影响下城市河流溶解性有机质光谱特征变化 ..... 陈旭东, 高良敏 (3149)

生态沟渠-生物滞留池组合控制农村径流污染 ..... 石雷, 杨小丽, 吴青宇, 王亦铭, 徐佳莹 (3160)

不同水力扰动强度对老化 PSMPs 在泥水两相间迁移的影响 ..... 吴香香, 艾萍, 李大鹏 (3168)

北京市中心城区屋面径流污染特征及来源分析 ..... 席玥, 郭婧, 陶蕾, 田颖, 陈吉吉, 吴悦, 徐苏士, 荆红卫, 刘保献 (3177)

不同植被绿色屋顶径流水质年际变化特征 ..... 章孙逊, 张守红, 葛德, 闫婧, 杨航, 王任重远, 魏良怡, 张成玉 (3187)

可见光促有机物诱导铁还原的多相类芬顿体系强化效能与机制 ..... 曹丝雨, 许路, 付权超, 金鑫, 石炬, 金鹏康 (3195)

4 种典型抗生素在反硝化体系中的去除特性 ..... 唐佳, 陈茜, 覃牧川, 唐溪, 唐崇俭 (3204)

农业废弃物基生物炭对水溶液中镉的吸附效果与机制 ..... 龚沛云, 孙丽娟, 宋科, 孙雅菲, 秦秦, 周斌, 薛永 (3211)

腐殖酸-重金属对 ANAMMOX 菌脱氮性能的影响及其动力学分析 ..... 李芸, 崔楠, 熊星星, 黄志远, 李泽兵, 王东亮, 李朝明, 许丹, 李军 (3221)

2000 ~ 2020 年西南地区植被 NDVI 对气候变化和人类活动响应特征 ..... 徐勇, 黄雯婷, 窦世卿, 郭振东, 李欣怡, 郑志威, 靖娟利 (3230)

黄河三角洲湿地不同植被类型下土壤营养元素空间分布及其生态化学计量学特征 ..... 孙德斌, 栗云召, 于君宝, 杨继松, 杜朝红, 孙丹丹, 凌越, 马元庆, 周迪, 王雪宏, 赵佳怡 (3241)

青藏高原东北部地区表层土壤中全氟化合物的分布特征及来源解析 ..... 温祥洁, 陈朝辉, 徐维新, 吴小娟, 郝云庆, 刘伟, 印红玲, 方淑红 (3253)

西南典型“退耕还林”区土地利用/覆被变化对土壤中硒及重金属含量的影响 ..... 刘永林, 刘属灵, 吴梅, 田兴鑫, 刘双燕 (3262)

贵州普定喀斯特关键带土壤重金属形态特征及风险评价 ..... 张倩, 韩贵琳 (3269)

南丹盆地东部山区土壤锆分布特征及其影响因素分析 ..... 董秋瑶, 赖书雅, 宋超, 温皓天, 严明疆, 杨振京 (3278)

神农架川金丝猴栖息地重金属污染特征及风险评价 ..... 严佳莉, 于紫玲, 余辉亮, 向明灯, 王传华 (3288)

石灰海泡石钝化后两种轮作模式对重度镉污染农田土壤的利用及修复 ..... 许璐, 周春海, 刘梅, 孔辉, 李元, 黄志红 (3299)

水稻磷盈亏对镉吸收转运的影响 ..... 谭文韬, 霍洋, 周航, 仇银燕, 曾鹏, 辜娇峰, 廖柏寒 (3308)

改良剂调控下水稻镉累积和土壤溶解性有机质光谱特征的响应 ..... 罗会龙, 陈娟, 张云慧, 袁贝, 杨宾, 张昊, 杜平 (3315)

土壤真菌群落对五台山亚高山草甸退化的响应 ..... 罗正明, 赫磊, 刘晋仙, 胡砚秋, 周妍英, 郑庆荣, 柴宝峰 (3328)

小麦与不同作物多样化轮作对土壤真菌群落的影响 ..... 靳海洋, 岳俊芹, 闫雅倩, 张德奇, 杨程, 张素瑜, 李向东, 邵运辉, 方保停, 王汉芳, 秦峰 (3338)

重庆农田土壤有机碳稳定性同位素空间分布特征 ..... 廖宇琴, 龙娟, 木志坚, 文首鑫, 李翠莲, 杨志敏, 赵秀兰 (3348)

长江三角洲 2018 年土壤 NO 排放特征 ..... 廖加强, 薛金, 王文锦, 朱永慧, 朱安生, 黄凌, 王杨君, 李莉 (3357)

基于多源数据的城市扩张中热环境演变及响应 ..... 梁建设, 白永平, 杨雪菡, 高祖桥, 李玲蔚, 张春悦, 王倩 (3365)

《环境科学》征订启事 (3004) 《环境科学》征稿简则 (3047) 信息 (3252, 3298, 3327)

# 长江三角洲 2018 年土壤 NO 排放特征

廖加强, 薛金, 王文锦, 朱永慧, 朱安生, 黄凌\*, 王杨君, 李莉

(上海大学环境与化学工程学院, 环境污染与健康研究所, 上海 200444)

**摘要:** 土壤是大气一氧化氮(NO)重要的来源之一,在大气化学中起着重要的作用. 基于最新的 BDSNP 算法构建长三角地区 2018 年土壤 NO 排放清单,并进一步分析其时空特征和不确定性. 结果表明,长三角地区 2018 年土壤 NO 排放量为 213.6 kt, 占人为源 NO<sub>x</sub> 排放总量的 7.3%,排放高值区主要集中在安徽省北部和江苏省大部分地区. 从月变化来看,土壤 NO 排在 6 月达到峰值,占全年排放的 19.9%,占 6 月人为源 NO<sub>x</sub> 排放量的 19.7%; 从小时变化来看,土壤 NO 排在 16:00 点达到峰值,占全天的 5.5%. 土壤 NO 排放包括土壤本底、氮肥施用和氮沉降这 3 个部分; 氮肥施用是土壤 NO 排放的主要来源,占比高达 77.8%. 随着机动车和工业等 NO<sub>x</sub> 排放的深入减排,土壤 NO 排放的重要性将日益凸显.

**关键词:** 土壤 NO; BDSNP 模型; 氮肥; 人为源 NO<sub>x</sub>; 长三角地区

中图分类号: X144 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2022)06-3357-08 DOI: 10.13227/j.hjxx.202109015

## Characteristics of Soil NO Emissions in the Yangtze River Delta Region for Year 2018

LIAO Jia-qiang, XUE Jin, WANG Wen-jin, ZHU Yong-hui, ZHU An-sheng, HUANG Ling\*, WANG Yang-jun, LI Li

(Institute of Environmental Pollution and Health, School of Environmental and Chemical Engineering, Shanghai University, Shanghai 200444, China)

**Abstract:** Soil NO emissions represent an important source of atmospheric nitric oxide (NO) and play an important role in atmospheric chemistry. Based on the latest BDSNP algorithm, this study estimated the soil NO emissions over the Yangtze River Delta region for the year 2018 and further analyzed the associated temporal and spatial variations and uncertainties. The results showed that the annual soil NO emissions in 2018 over the YRD region was 213.6 kt, accounting for 7.3% of the total anthropogenic NO<sub>x</sub> emissions. Areas with high emissions were mainly concentrated in northern Anhui Province and most parts of Jiangsu Province. In terms of monthly variations, soil NO emissions peaked in June, accounting for 19.9% of the annual emissions and 19.7% of anthropogenic NO<sub>x</sub> emissions in June. In terms of daily variations, soil NO emissions peaked around 16:00 and accounted for 5.5% of daily emissions. Soil NO emissions came from three components: soil background, nitrogen fertilizer application, and nitrogen deposition. Nitrogen fertilizer application was the main source of soil NO emissions, accounting for up to 77.8%. With the in-depth reduction in NO<sub>x</sub> emissions from motor vehicles and industries, the importance of soil NO emissions will become increasingly prominent.

**Key words:** soil NO; BDSNP model; nitrogen fertilizer; anthropogenic NO<sub>x</sub>; Yangtze River Delta

对流层中的氮氧化物(NO<sub>x</sub>,为NO+NO<sub>2</sub>)在大气化学中具有重要的作用<sup>[1]</sup>.一方面,通过诱导臭氧的产生、消耗以及影响羟基自由基(·OH)的形成来决定对流层的氧化能力,是地表臭氧的重要前体物之一;另一方面,NO<sub>x</sub>的光化学产物HNO<sub>3</sub>和NO<sub>3</sub>·会促进二次气溶胶的形成、雨水的酸化和氮沉积<sup>[2]</sup>.对流层中的NO主要来源于雷电、土壤排放、生物质燃烧和化石燃料燃烧<sup>[3]</sup>.其中,农村地区由于耕地较多,化石燃料使用较少,农业土壤可能是主要的NO来源<sup>[4]</sup>.土壤NO的排放受到许多因素的影响,包括氮肥施用量、土壤有机碳含量、土壤温度、湿度和土壤pH等<sup>[5,6]</sup>.为了实现农作物的高生产力来满足不断增长的人口需求,中国的氮肥消费量约占全球氮肥消费总量的三分之一<sup>[7]</sup>,并且大部分土地处于高氮沉积状态<sup>[8]</sup>.因此,我国土壤NO的排放量不可忽视.

土壤NO的排放量估算方法包括基于过程的模型、经验模型和基于观测数据的模型. Yienger等<sup>[9]</sup>的研究在1995年提出了估算土壤NO<sub>x</sub>排放的经验模型(YL95模型),被广泛运用在三维化学模式中. YL95模型考虑了温度、湿度、氮肥施用、植被类型

和覆盖对土壤NO排放的影响. Steinkamp等<sup>[10]</sup>的研究在YL95的基础上更新了植被类型分布、施肥率、肥料损失的比例和排放因子等,估算了2005年土壤NO排放总量为8.6Tg(以N计). Yan等<sup>[11]</sup>的研究基于土壤有机碳(SOC)、土壤pH、土地覆盖类型、气候和氮输入等因素,建立统计模型估算全球2001年土壤NO<sub>x</sub>排放量为7.43Tg(以N计).为进一步准确模拟土壤NO排放, Hudman等<sup>[12]</sup>的研究在YL95模型的基础上于2012年提出了BDSNP模型(berkeley-dalhousie soil NO<sub>x</sub> parameterization). 与较早的YL95模型相比, BDSNP具有更连续的土壤温度/湿度依赖性函数,可以更好地模拟干旱期处于休眠状态的硝化细菌被第一场降雨激活后开始代谢释放土壤中积累的氮从而形成的脉冲排放,并进一步更新了土壤湿度和温度、N脉冲的排放强度和施

收稿日期: 2021-09-02; 修订日期: 2021-11-04

基金项目: 上海市科技创新行动计划项目(19DZ1205007); 国家自然科学基金青年基金项目(42005112); 上海市青年科技英才扬帆计划项目(19YF1415600); 上海高校青年教师培养资助计划项目(ZZsd20029)

作者简介: 廖加强(1997~),男,硕士研究生,主要研究方向为大气排放清单及污染成因分析, E-mail: liaojiaqiang@shu.edu.cn

\* 通信作者, E-mail: lmghuang@shu.edu.cn

肥数据等. 基于 BDSNP 模型估算的 2006 年全球土壤  $\text{NO}_x$  排放量为 10.7 Tg(以 N 计)<sup>[12]</sup>. 土壤  $\text{NO}_x$  排放有显著的季节变化. Butterbach-Bahl 等<sup>[4]</sup>的研究发现虽然土壤  $\text{NO}_x$  排放量在  $\text{NO}_x$  排放总量中占比不高(4%~6%),但在夏季农业土壤中化肥引起的  $\text{NO}_x$  排放达到峰值时,占比很可能远高于 10%. Lin<sup>[13]</sup>的研究发现在 7 月土壤  $\text{NO}_x$  排放的占比会显著增加(约占 13%). Sha 等<sup>[14]</sup>的研究发现 2018 年 7 月加利福尼亚州土壤  $\text{NO}_x$  可占该州总  $\text{NO}_x$  排放的 40.1%,部分地区甚至高达 50.7%,与人为源不相上下;通过模拟发现加利福尼亚土壤  $\text{NO}_x$  排放使月平均地表臭氧体积分数增加了  $8.4 \times 10^{-9}$  (23.0%). Lu 等<sup>[15]</sup>的研究基于 BDSNP 模型估算了 2017 年我国华北平原土壤  $\text{NO}_x$  排放,模拟结果表明土壤  $\text{NO}_x$  排放使得 7 月臭氧平均体积分数增加  $2.9 \times 10^{-9}$ ,同时会抑制臭氧对人为源  $\text{NO}_x$  减排的响应程度. 因此,土壤  $\text{NO}$  排放对臭氧生成和管控的影响尤为重要,同时由于土壤  $\text{NO}$  通常被认为是天然源,在管控策略中尚未被考虑.

长三角地区作为我国人口最密集、经济最发达的地区之一,是我国大气污染防治的重点地区<sup>[16~21]</sup>. 近年来,随着细颗粒物浓度的逐年下降,长三角地区的臭氧污染问题日益突出. 2013~2017 年臭氧日最大 8 h 均值和 SOMO35(臭氧日最大 8 h 均值体积分数每年超过  $35 \times 10^{-9}$  的总和)平均增长率分别为  $4.5\% \cdot \text{a}^{-1}$  和  $14.4\% \cdot \text{a}^{-1}$ <sup>[22]</sup>. 目前,针对长三角地区  $\text{NO}_x$  排放的研究多集中在人为源(如机动车和能源消耗)的排放控制<sup>[23~25]</sup>,而针对长三角地区土壤  $\text{NO}$  排放的研究十分匮乏. Mei 等<sup>[26]</sup>的研究观测了长三角地区典型菜田  $\text{NO}$  的排放通量; Fang 等<sup>[27,28]</sup>研究了长三角地区不同季节农田  $\text{NO}$  排放,发现农田  $\text{NO}$  排放受季节影响较大; Xie 等<sup>[29]</sup>的研究采用三维空气质量模型系统 WRF-CALGRID 估算 2008 年上海和江浙地区土壤  $\text{NO}$  排放,发现长三角地区  $\text{O}_3$  的形成对 VOCs 不敏感,更容易受到未来  $\text{NO}_x$  控制政策的影响. 然而,以往针对长三角地区土壤  $\text{NO}$  排放的研究年份久远,且估算方法中的参数设置过于简单. 随着机动车和工业减排措施的深化,土壤  $\text{NO}$  排放对空气质量的影响将日益凸显. 本文以长三角地区为研究对象,基于最新的 BDSNP 模型对长三角地区土壤  $\text{NO}$  排放的时空分布特征进行探讨,并进一步分析不同因素对土壤  $\text{NO}$  排放的影响,以及估算方法的不确定性,以期改善长三角地区臭氧污染和制定科学的大气污染防治计划提供重要基础数据.

## 1 材料与方法

### 1.1 研究范围

本研究以 2018 年为目标年份,研究区域涵盖了上海市、浙江省、江苏省和安徽省. 近年来长三角地区经济发展迅速,成为中国第一大经济区,但建设用地占比不大,仍以耕地为主<sup>[30]</sup>. 2018 年长三角地区土地利用占比分别为:耕地占 43.8%,林地占 30.1%,建设用地占 15.2%,水域占 9.7%,草地和未利用土地占 1.2%,如图 1 所示.

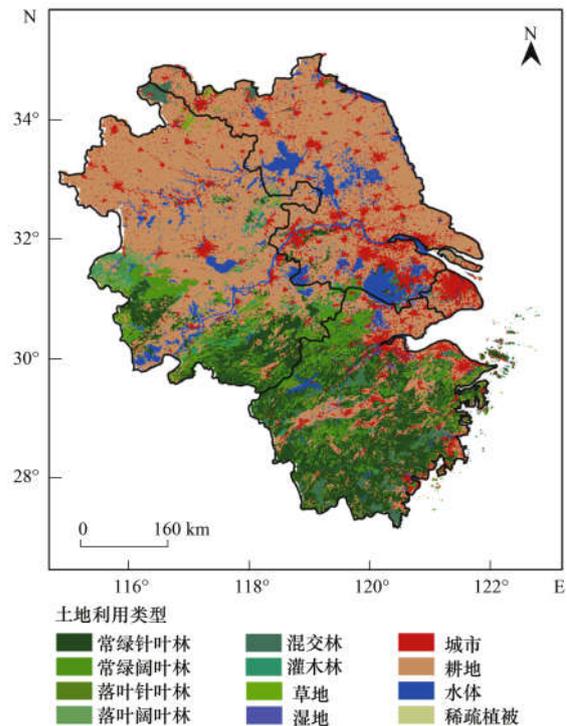


图 1 研究区域示意和长三角 2018 年土地利用类型分布示意  
Fig. 1 Map of the study area and spatial distribution of land use over the Yangtze River Delta region in 2018

### 1.2 土壤 $\text{NO}$ 排放估算方法

本研究采用的 BDSNP 模型包含在最新一代的天然源排放模型 MEGAN3.1(离线版)中. BDSNP 模型中土壤  $\text{NO}$  排放通量由排放因子 [ $A'_{\text{biome}}$ ]、土壤温度响应函数 [ $f(T)$ ]、土壤湿度响应函数 [ $g(\theta)$ ]、脉冲 ( $P$ ) 和冠层减少因子 (CRF) 决定,如式(1)所示:

$$\text{NO}_{\text{emission flux}} = A'_{\text{biome}} (N_{\text{avail}}) \times f(T) \times g(\theta) \times P(l_{\text{dry}}) \times \text{CRF}(\text{LAI}, \text{Biome}, \text{Meterology}) \quad (1)$$

式中,  $A'_{\text{biome}}$  为排放因子,由生物群落排放因子  $A_{\text{biome}}$ 、氮肥中的可用氮  $N_{\text{avail}}$  (包括未被利用的氮肥以及大气中氮的干、湿沉降) 和排放速率  $E$  决定 [式(2)]:

$$A'_{\text{biome}} = A_{\text{biome}} + N_{\text{avail}} \times E \quad (2)$$

式中,  $A_{\text{biome}}$  为生物群落排放因子 [ $\text{ng} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{s})^{-1}$ ],

取决于不同土壤条件下的生物群落类型,生物群落排放因子使用的是 Steinkamp 等<sup>[10]</sup>更新的干旱或湿润土壤的生物群落排放因子,例如,草原的干旱土壤排放因子为  $0.37 \text{ ng} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{s})^{-1}$ ,湿润土壤排放因子为  $0.05 \text{ ng} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{s})^{-1}$ ;常绿阔叶林的干旱土壤排放因子为  $0.22 \text{ ng} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{s})^{-1}$ ,湿润土壤排放因子为  $0.03 \text{ ng} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{s})^{-1}$ . 本文用  $A_{\text{biome}}$  区分土壤本底的排放量. 与生物群落的排放不同,由氮肥和氮沉降 [ $N_{\text{avail}}(0)$ ] 带来的排放速率随时间变化[式(3)]:

$$N_{\text{avail}}(t) = N_{\text{avail}}(0) \times e^{-t/\tau} + F \times \tau \times (1 - e^{-t/\tau}) \quad (3)$$

式中,  $F$  为氮肥施用量(假设 37% 的氮肥未被利用而被释放),  $\tau$  为衰减周期(在 BDSNP 模型中默认为 4 个月),  $t$  为时间(d). 本文用  $N_{\text{avail}}(0)$  计算氮沉降引起的排放量,用  $F$  区分氮肥施用导致的排放量.

式(4)为温度和湿度对土壤 NO 排放的影响,使用 Pleim-Xiu 陆面模型提供的土壤温度/湿度信息<sup>[31]</sup>.

$$f(T) \times g(\theta) = e^{0.103 \times T} \times a \times \theta \times e^{-b \times \theta^2} \quad (4)$$

式中, 0.103 为生物群落温度依赖性的加权平均值;使用泊松函数来表示排放速率对土壤湿度( $\theta$ )的依赖关系,  $\theta$  为土壤体积含水量与孔隙度的比值( $\text{m}^3 \cdot \text{m}^{-3}$ ),  $a$  和  $b$  随不同的气候而变化;对于干旱土壤,当  $\theta = 0.2 \text{ m}^3 \cdot \text{m}^{-3}$  时,达到排放峰值,对于其它土壤,排放峰值出现在  $\theta = 0.3 \text{ m}^3 \cdot \text{m}^{-3}$  处.

长期干旱之后的降雨会导致土壤 NO 的脉冲排放( $P$ ),由式(5)所示:

$$P(l_{\text{dry}}, t) = [13.01 \times \ln(l_{\text{dry}}) - 53.6] \times e^{-c \times t} \quad (5)$$

式中,  $l_{\text{dry}}$  为降雨前干旱期的时间(h),  $c$  为脉冲的

指数衰减( $0.068 \text{ h}^{-1}$ ),  $t$  为时间(h).

植物冠层表面的吸附可以减少进入大气的土壤 NO 排放量,由冠层减少因子 CRF 表示,与风速、湍流和冠层结构(用叶面积指数 LAI 表征)相关. 冠层减少因子使用 Wang 等<sup>[32]</sup>的月平均 CRF,与生物群落分类相结合应用在 BDSNP 中. 具体的参数设置见文献[33].

本研究使用的气象数据(包括温度、湿度、风速和辐射)为模拟数据,由三维气象模型 Weather Research Forecasting(WRF, 4.0 版本)生成. WRF 模式需要的初始和边界气象条件来自于美国国家环境预报中心提供的 FNL 全球再分析资料,空间分辨率为  $1^\circ \times 1^\circ$ ,时间分辨率为 6 h. WRF 的主要参数设置包括:微物理过程参数化方案为 Purdue-Lin 方案<sup>[34]</sup>,辐射方案为 RRTM 长波方案<sup>[35]</sup>和 Goddard 短波方案<sup>[36]</sup>,积云对流参数化方案为 Kain-Fritsch 方案<sup>[37]</sup>,边界层参数化方案为 YSU 方案<sup>[38]</sup>,陆面过程参数化方案选用 Noah 方案<sup>[39]</sup>. 笔者对 WRF 的模拟结果进行了评估,评估结果见文献[40],验证结果表明气象模拟结果较好. WRF 的输出为每小时的气象数据,用模拟的气象数据去驱动 MEGAN 中 BDSNP 模块,获得逐小时和网格化的气象数据. 因此,使用的气象数据是网格化和逐小时的气象数据. 模型的区域设置见文献[41].

本研究用 2018 年的 WRF 模拟气象数据驱动 MEGAN 模式中的 BDSNP 模块,获得了 2018 年逐日、逐小时和网格化的土壤 NO 排放量. 在 BDSNP 模型中,土壤 NO 来自 3 个部分:土壤本底、氮肥施用和氮沉降. 因此,在运行 BDSNP 模型时,设置了 3 个情景(如表 1),通过情景(1)、(2)和(3)区分来自土壤本底、氮肥施用和氮沉降导致的排放量.

表 1 BDSNP 模型情景设置

Table 1 BDSNP model scenario settings

情景设置	土壤本底( $A_{\text{biome}}$ )	氮肥施用( $F$ )	氮沉降 [ $N_{\text{avail}}(0)$ ]	土壤 NO 排放量
情景(1): 基准	默认值	默认值	默认值	土壤本底 + 氮肥施用 + 氮沉降
情景(2): 氮肥	默认值	默认值	0	土壤本底 + 氮肥施用
情景(3): 土壤本底	默认值	0	0	土壤本底

天然源排放模型 MEGAN3.1 中默认的氮肥输入数据使用的是 Potter 等<sup>[42]</sup>基于国际肥料工业协会(International Fertilizer Industry Association)得到 88 个国家和地区的两种主要肥料(氮和磷)的国家级肥料施用率统计的全球氮肥数据. 该数据与文献[43~46]的氮肥数据(折纯量,即只考虑氮的质量)相比,在施用量和空间分布上有一定的差异. 例如, Potter 等<sup>[42]</sup>统计的全球氮肥数据中长三角地区氮肥施用量

为 2 192.2 kt,与 2018 年中国统计年鉴中氮肥施用数据相比,低估了 22.1%. 本文使用的氮肥数据是城市级别的数据,数据来源于各省 2019 年统计年鉴,例如,合肥市 2018 年施用氮肥 79 379 t<sup>[46]</sup>. 本研究将文献[42]的全球氮肥输入数据替换为基于长三角地区 41 个城市统计年鉴中的年氮肥施用量,日氮肥施用量和空间分布的分配参考文献[42]的数据,以获得更加准确的长三角地区土壤 NO 排放量.

## 2 结果与讨论

### 2.1 2018 年长三角土壤 NO 时空排放特征

2018 年长三角地区土壤 NO 排放总量为 213.6 kt,空间分布如图 2 所示. 整体来看,长三角地区土壤 NO 排放量呈现东北部高、南部低的趋势,与耕

地和氮肥施用量的空间分布一致. 土壤 NO 排放高值区域主要集中在安徽省北部和江苏省大部分地区,排放强度最高超过 $1\,500\text{ kg}\cdot\text{km}^{-2}$ ,是长三角地区土壤 NO 排放的主要来源;而安徽省南部和浙江省的土地类型主要为阔叶林和针叶林,氮肥施用量低,这些地区的土壤 NO 排放量相对较低.

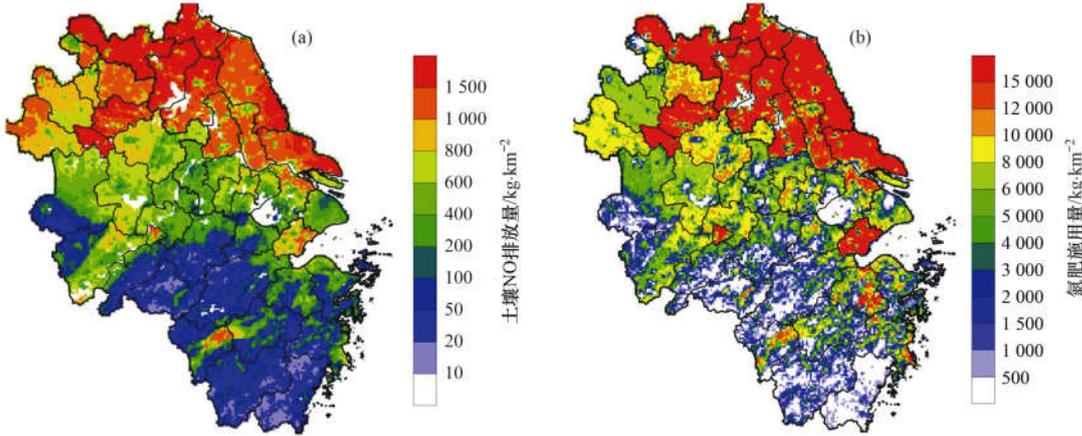


图 2 长三角 2018 年土壤 NO 排放量和氮肥施用量空间分布

Fig. 2 Spatial distribution of annual soil NO emissions and nitrogen fertilizer application in 2018 over the YRD region

江苏省 NO 排放量最高,为 115.8 kt,占比 54.2%,安徽省次之,排放量为 78.8 kt,占比 36.9%;浙江省和上海市土壤 NO 排放量相对较低,分别为 16.6 kt (7.8%) 和 2.5 kt (1.1%). 从城

市土壤 NO 的排放总量来看(图 3),徐州市土壤 NO 排放量远高于其他市,排放量为 26.3 kt,占长三角地区排放总量的 12.3%,其次为盐城市,排放量为 18.3 kt(占比 8.6%),温州市和舟山市土壤 NO 排

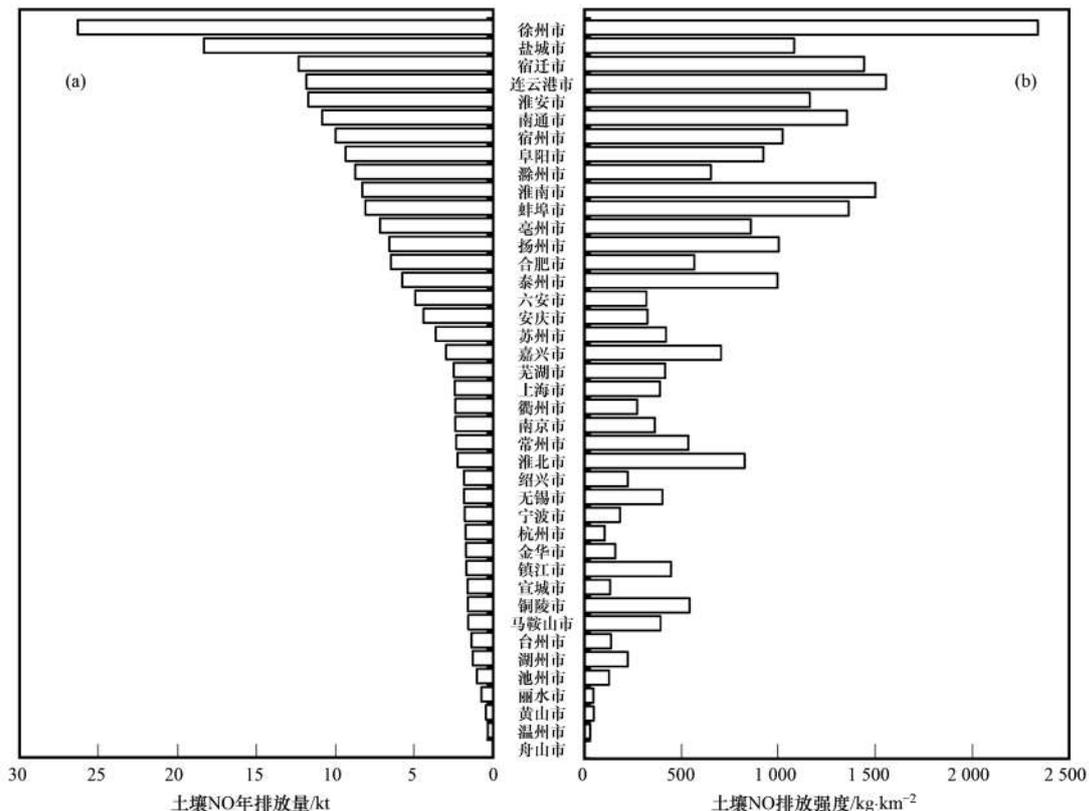


图 3 2018 年长三角地区各市土壤 NO 排放量和排放强度

Fig. 3 City-level soil NO emissions and intensities in the YRD region in 2018

排放量最低,排放量仅为 0.4 kt 和 0.1 kt(图 3). 从排放强度来看,徐州市单位面积土壤 NO 排放量最高,为  $2.3 \text{ t} \cdot \text{km}^{-2}$ ,连云港市次之,为  $1.6 \text{ t} \cdot \text{km}^{-2}$ . 部分地区受其地理环境的影响,耕地面积占比较小,导致单位面积土壤 NO 排放量相对较低. 例如,盐城市土壤 NO 排放量仅次于徐州市,但由于其城市面积较大( $16931 \text{ km}^2$ ),导致单位面积土壤 NO 排放量远低于徐州市. 杭州市占地面积为  $16850 \text{ km}^2$ ,但主要以建设用地为主,耕地面积受限,因此杭州市单位面积土壤 NO 排放量较低.

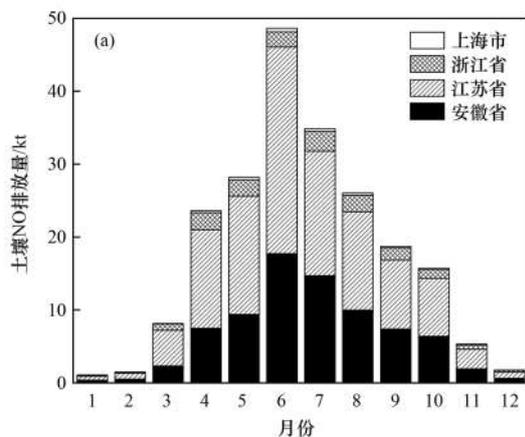


图 4(a) 为长三角地区土壤 NO 排放量月变化情况. 夏季(6~8月)土壤 NO 排放量最高,为 109.6 kt, 占全年的 51.3%. 长三角地区 2018 年氮肥施用量为 2812.8 kt, 月变化如图 4(b) 所示. 从 3 月开始, 春季播种对肥料的需求激增, 氮肥施用量增加, 4 月和 5 月达到峰值. 从氮肥施用量和土壤 NO 排放量的月变化差异可以看出, 氮肥在施用后并不会迅速转化为 NO 排放, 而是随着时间的推移逐渐释放, 并且受到温度、降水的影响, 在 6 月土壤 NO 排放达到峰值.

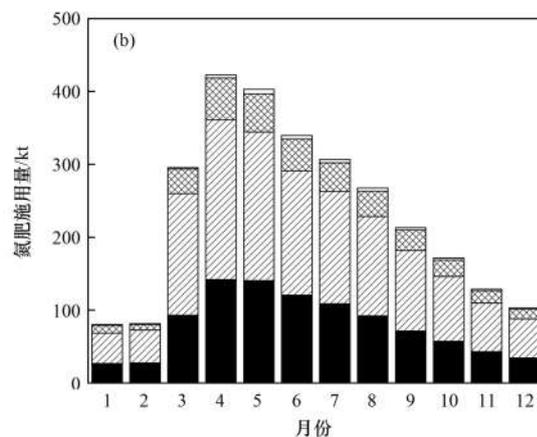


图 4 长三角地区 2018 年土壤 NO 排放和氮肥施用月变化

Fig. 4 Monthly variations in soil NO emissions and nitrogen fertilizer application over the YRD region

图 5 为长三角地区 6 月土壤 NO 排放平均日变化情况. 由于土壤 NO 排放主要受温度的影响[式(4)], 随着温度的升高, NO 排放量逐渐增加, 在午后达到峰值, 高值段(13:00~19:00)NO 排放量占比达 37.6%. 在 BDSNP 模型中, 温度达到  $30^\circ\text{C}$  后土壤 NO 排放不再受温度影响, 因此在午后土壤 NO 排放趋于稳定. 对 6 月土壤 NO 排放量进行进一步分解, 表明土壤本底导致的 NO 日排放量为 186.7 t, 占土壤 NO 排放总量的 11.5%; 而氮肥施用产生的 NO 日排放量为 1256.7 kt, 占比为 77.8%; 氮沉降产生的 NO 日排放量为 176.7 t, 占比为 10.9%. 因此, 土壤 NO 排放主要来自于氮肥施用.

## 2.2 与人为源 $\text{NO}_x$ 对比

2017 年长三角地区人为源  $\text{NO}_x$  排放为 2935.7 kt<sup>[47]</sup>, 从全年来看, 土壤 NO 排放量仅占人为源  $\text{NO}_x$  排放的 7.3%. 图 6 为长三角 41 市人为源及土壤 NO 年排放量. 人为源  $\text{NO}_x$  主要来源于电厂、工业锅炉和机动车等, 因此, 排放主要集中在较发达的地区. 上海市人为源  $\text{NO}_x$  排放量最高, 为 224.7 kt, 其次为苏州市、徐州市和宁波市以及南京市、杭州市和合肥市这 3 个省会城市, 黄山市  $\text{NO}_x$  排放量最低, 为 8.7 kt. 与人为源  $\text{NO}_x$  排放量相反, 土壤 NO

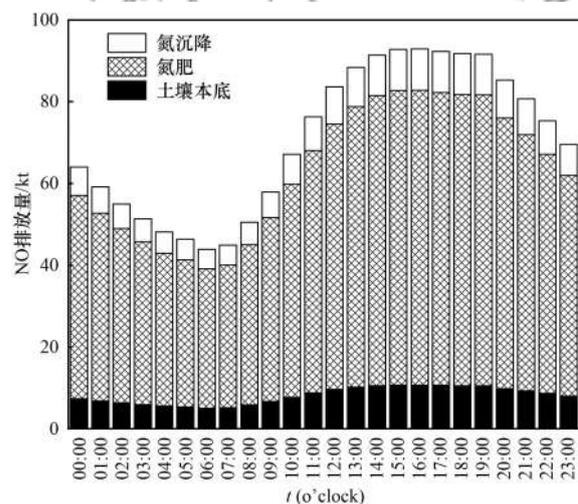


图 5 长三角地区 2018 年 6 月日均土壤 NO 排放变化

Fig. 5 Hourly soil NO emissions in the Yangtze River Delta in June in 2018

排放主要来源于耕地较多的农村地区, 上海市土壤 NO 排放仅占人为源  $\text{NO}_x$  排放的 1.4%, 而亳州市土壤 NO 排放占人为源  $\text{NO}_x$  中的占比高达 23.5%. 另一方面, 除电厂的  $\text{NO}_x$  排放有较为明显的月变化外, 机动车和工业锅炉、窑炉的  $\text{NO}_x$  排放量月变化不明显. 而土壤 NO 排放量有明显的月变化(图 4). 因此, 在夏季土壤 NO 排放量较高时, 土壤 NO 排放

量对 NO<sub>x</sub> 排放总量的贡献不可忽视. 例如, 长三角地区 6 月土壤 NO 排放量可达人为源 NO<sub>x</sub> 排放量的 19.7%, 江苏省土壤 NO 排放量在人为源 NO<sub>x</sub> 排放量中占比最高, 为 29.2%. 部分城市 (如徐州和盐城) 土壤 NO 排放量占比高达 20.9%. 因此, 在夏季特别是臭氧污染高发季节, 土壤 NO 排放量对臭氧的贡献亟待进一步研究.

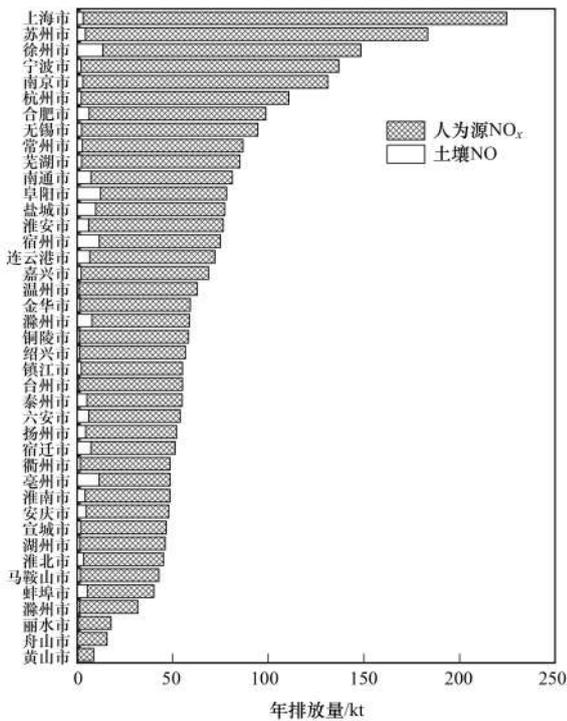


图 6 长三角地区人为源 NO<sub>x</sub> 和土壤 NO 排放量

Fig. 6 Anthropogenic NO<sub>x</sub> emissions and soil NO emissions in the Yangtze River Delta

自 2013 年开始, 为了逐步消除重污染天气, 改善全国空气质量, 实现环境效益、经济效益和社会效益多赢, 国家颁布了“大气污染防治行动计划”和“打赢蓝天保卫战三年行动计划”等政策, 长三角地区人

为源 NO<sub>x</sub> 排放量逐年递减. 图 7 为长三角地区 2014 ~ 2018 年氮肥施用量和人为源 NO<sub>x</sub> 排放, 从中可知, 长三角地区人为源 NO<sub>x</sub> 排放量由 2014 年的 3 457 kt 减少至 2017 年的 2 936 kt<sup>[47]</sup>, 年均下降幅度达 5.0%. 同时, 2014 ~ 2018 年长三角地区氮肥施用量也在逐年递减<sup>[43-46]</sup>, 年均降幅为 3.1%, 缓于人为源 NO<sub>x</sub> 的降幅. 因此, 随着人为源 NO<sub>x</sub> 管控措施的持续推进<sup>[48]</sup>, 土壤 NO 排放的影响将日益凸显.

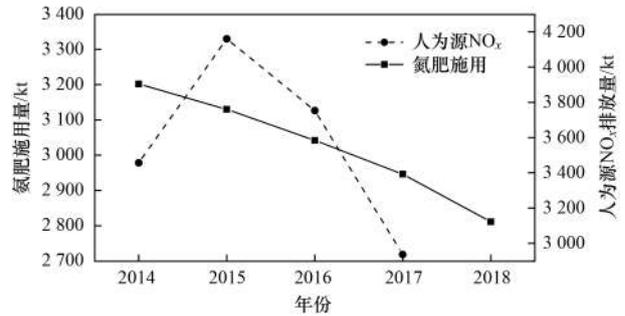


图 7 2014 ~ 2018 年氮肥施用量和人为源 NO<sub>x</sub> 排放量

Fig. 7 Trends of anthropogenic NO<sub>x</sub> emissions and nitrogen fertilizer application over the YRD region from 2014 to 2018

### 2.3 不确定性分析

本研究基于 BDSNP 模型对长三角地区土壤 NO 排放量进行了估算, 氮肥施用的输入数据来自中国统计年鉴, 与 Potter 等<sup>[42]</sup> 统计的全球氮肥数据的施用量相差较大, 其数据中长三角地区氮肥施用量为 2 192.2 kt, 和中国统计年鉴中实际氮肥施用数据相比低估了 22.1%, 但空间分布较为一致 (图 8). 若采用文献[42]的全球氮肥数据作为输入, 估算的土壤 NO 排放量为 176.4 kt, 与替换了统计年鉴的氮肥数据结果相比, 下降 17.4%. Wang 等<sup>[49]</sup> 编制了 1999 年 7 月中国土壤 NO 排放清单, 土壤 NO 排放量为 657 Gg (以 N 计), 约占中国人均为源 NO<sub>x</sub> 排放量的 12.5%. Lu 等<sup>[15]</sup> 的研究对华北平原农业土壤 NO<sub>x</sub>

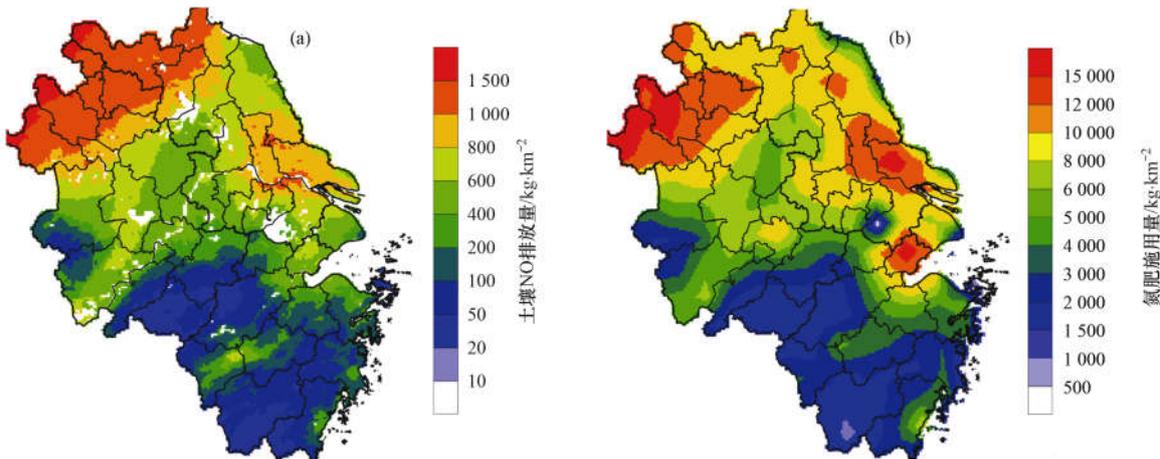


图 8 基于 Potter 等氮肥施用数据的 2018 年长三角土壤 NO 排放和氮肥施用量空间分布

Fig. 8 Spatial distribution of soil NO emissions and nitrogen fertilizer application in the Yangtze River Delta in 2018 based on Potter fertilizer data

排放进行估算,认为 2008~2017 年的 7 月华北平原的土壤 NO<sub>x</sub> 排放量约占人为源的 11%~20%。Fang 等<sup>[27,28]</sup>的研究估算长三角地区 2006 年春夏季菜地 NO 排放量(以 N 计,下同)约为 12 Gg,夏秋季稻田和菜地 NO 排放量约为 12.5 Gg;与没有施肥的农田相比,施肥农田的 NO 排放量显著增加。Xie 等<sup>[29]</sup>的研究表明 2008 年上海和江浙地区土壤 NO 排放量为 19.1 Gg,夏季最高,春季次之。总体来说,以往研究结果与本研究中的结果较为接近。Sha 等<sup>[14]</sup>的研究发现当土壤温度高于 30℃ 时,土壤 NO<sub>x</sub> 受土壤温度的非线性响应仍会继续增加,当土壤温度从 30~35℃ 升高到 35~40℃ 时,土壤 NO<sub>x</sub> 排放平均增加 38%。而在 BDSNP 模型中土壤 NO 排放对土壤温度的响应阈值设为 30℃,当温度超过 30℃ 后,温度对土壤 NO 排放的影响为常数,因此,可能在一定程度上低估了土壤 NO 的排放量。为进一步验证土壤 NO 排放量的准确性,需进一步通过空气质量模型模拟,评估清单的准确性以及其对臭氧的影响。

### 3 结论

(1) 基于 BDSNP 算法首次对长三角地区 2018 年土壤 NO 排放总量进行了估算,排放总量为 213.6 kt,主要集中在安徽省的北部和江苏省的西北部等氮肥施用量较多的区域。徐州市排放量最高,舟山市排放量最低。

(2) 长三角地区土壤 NO 排放呈现夏季高、冬季低的月变化特征,排放量在 6 月达到峰值,夏季排放量占全年 51.3%。从日变化来看,随着温度的升高,NO 排放量逐渐增加,在午后达到峰值,高值段(13~19 点)NO 排放量占比达 37.6%。

(3) 与人为源 NO<sub>x</sub> 排放量相反,土壤 NO 排放主要来源于耕地较多的农村地区,上海市土壤 NO 排放仅占人为源 NO<sub>x</sub> 排放的 1.4%,而亳州市土壤 NO 排放占人为源 NO<sub>x</sub> 中的占比高达 23.5%。6 月部分城市(如徐州和盐城)土壤 NO 排放占比高达 20.9%。

(4) 氮肥施用量对土壤 NO 排放贡献最大,贡献率高达 73.0%。使用全球氮肥数据会导致土壤 NO 排放量低估 17.4%。随着人为源 NO<sub>x</sub> 的管控加强,土壤 NO 对臭氧的贡献将日益凸显。

#### 参考文献:

[1] Maljanen M, Martikkala M, Koponen H T, *et al.* Fluxes of nitrous oxide and nitric oxide from experimental excreta patches in boreal agricultural soil [J]. *Soil Biology and Biochemistry*, 2007, **39**(4): 914-920.

[2] Huang Y, Li D J. Soil nitric oxide emissions from terrestrial ecosystems in China: a synthesis of modeling and measurements [J]. *Scientific Reports*, 2014, **4**, doi: 10.1038/srep07406.

[3] Medinets S, Skiba U, Rennenberg H, *et al.* A review of soil NO

transformation; associated processes and possible physiological significance on organisms [J]. *Soil Biology and Biochemistry*, 2015, **80**: 92-117.

[4] Butterbach-Bahl K, Kahl M, Mykhayliv L, *et al.* A European-wide inventory of soil NO emissions using the biogeochemical models DNDC/Forest-DNDC [J]. *Atmospheric Environment*, 2009, **43**(7): 1392-1402.

[5] Pilegaard K. Processes regulating nitric oxide emissions from soils [J]. *Philosophical Transactions of the Royal Society B: Biological Sciences*, 2013, **368** (1621), doi: 10.1098/rstb.2013.0126.

[6] Bouwman A F, Boumans L J M, Batjes N H. Modeling global annual N<sub>2</sub>O and NO emissions from fertilized fields [J]. *Global Biogeochemical Cycles*, 2002, **16** (4), doi: 10.1029/2001GB001812.

[7] Heffer P, Prud'homme M. Global nitrogen fertiliser demand and supply: trend, current level and outlook [A]. In: *Proceedings of the 2016 International Nitrogen Initiative Conference* [C]. Melbourne, 2016.

[8] Liu X J, Zhang Y, Han W X, *et al.* Enhanced nitrogen deposition over China [J]. *Nature*, 2013, **494** (7438): 459-462.

[9] Yienger J J, Levy II H. Empirical model of global soil-biogenic NO<sub>x</sub> emissions [J]. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 1995, **100** (D6): 11447-11464.

[10] Steinkamp J, Lawrence M G. Improvement and evaluation of simulated global biogenic soil NO emissions in an AC-GCM [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2011, **11** (12): 6063-6082.

[11] Yan X Y, Ohara T, Akimoto H. Statistical modeling of global soil NO<sub>x</sub> emissions [J]. *Global Biogeochemical Cycles*, 2005, **19** (3), doi: 10.1029/2004GB002276.

[12] Hudman R C, Moore N E, Mebust A K, *et al.* Steps towards a mechanistic model of global soil nitric oxide emissions: implementation and space based-constraints [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2012, **12**(16): 7779-7795.

[13] Lin J T. Satellite constraint for emissions of nitrogen oxides from anthropogenic, lightning and soil sources over East China on a high-resolution grid [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2012, **12**(6): 2881-2898.

[14] Sha T, Ma X Y, Zhang H X, *et al.* Impacts of soil NO<sub>x</sub> emission on O<sub>3</sub> air quality in rural California [J]. *Environmental Science & Technology*, 2021, **55**(10): 7113-7122.

[15] Lu X, Ye X P, Zhou M, *et al.* The underappreciated role of agricultural soil nitrogen oxide emissions in ozone pollution regulation in North China [J]. *Nature Communications*, 2021, **12**(1), doi: 10.1038/s41467-021-25147-9.

[16] 闫慧, 张维, 侯墨, 等. 我国地级及以上城市臭氧污染来源及控制区划分 [J]. *环境科学*, 2020, **41**(12): 5215-5224.

[17] Yan H, Zhang W, Hou M, *et al.* Sources and control area division of ozone pollution in cities at prefecture level and above in China [J]. *Environmental Science*, 2020, **41**(12): 5215-5224.

[17] 李瑞, 李清, 徐健, 等. 秋冬季区域性大气污染过程对长三角北部典型城市的影响 [J]. *环境科学*, 2020, **41**(4): 1520-1534.

[18] Li R, Li Q, Xu J, *et al.* Regional air pollution process in winter over the Yangtze River delta and its influence on typical northern cities [J]. *Environmental Science*, 2020, **41**(4): 1520-1534.

[18] 严茹莎, 王红丽, 黄成, 等. 上海市夏季臭氧污染特征及削峰方案 [J]. *环境科学*, 2021, **42**(8): 3577-3584.

[18] Yan R S, Wang H L, Huang C, *et al.* Characteristics and control strategies on summertime peak ozone concentration in Shanghai [J]. *Environmental Science*, 2021, **42**(8): 3577-

- 3584.
- [19] 金丹. 上海城郊夏季大气 VOCs 在臭氧生成中的作用[J]. 环境科学, 2022, **43**(1): 132-139.  
Jin D. Role of atmospheric VOCs in ozone formation in summer in Shanghai suburb [J]. Environmental Science, 2022, **43**(1): 132-139.
- [20] 赵辉, 郑有飞, 魏莉, 等. 南京大气臭氧浓度的季节变化及其对主要作物影响的评估[J]. 环境科学, 2018, **39**(7): 3418-3425.  
Zhao H, Zheng Y F, Wei L, *et al.* Seasonal variation in surface ozone and its effect on the winter wheat and rice in Nanjing, China [J]. Environmental Science, 2018, **39**(7): 3418-3425.
- [21] 谢放尖, 陆晓波, 杨峰, 等. 2017 年春季期间南京地区臭氧污染输送影响及潜在源区[J]. 环境科学, 2021, **42**(1): 88-96.  
Xie F J, Lu X B, Yang F, *et al.* Transport influence and potential sources of ozone pollution for Nanjing during spring and summer in 2017 [J]. Environmental Science, 2021, **42**(1): 88-96.
- [22] Yu Y J, Wang Z, He T, *et al.* Driving factors of the significant increase in surface ozone in the Yangtze River Delta, China, during 2013-2017 [J]. Atmospheric Pollution Research, 2019, **10**(4): 1357-1364.
- [23] He S T, Zhao L Z, Ding S H, *et al.* Mapping economic drivers of China's NO<sub>x</sub> emissions due to energy consumption [J]. Journal of Cleaner Production, 2019, **241**, doi: 10.1016/j.jclepro.2019.118130.
- [24] Liu D G, Lou D M, Liu J, *et al.* Evaluating nitrogen oxides and ultrafine particulate matter emission features of urban bus based on real-world driving conditions in the Yangtze river delta area, China [J]. Sustainability, 2018, **10**(6), doi: 10.3390/su10062051.
- [25] 邵平, 安俊琳, 杨辉, 等. 南京北郊夏季近地层臭氧及其前体物体积分数变化特征[J]. 环境科学, 2014, **35**(11): 4031-4043.  
Shao P, An J L, Yang H, *et al.* Variation characteristics of surface ozone and its precursors during summertime in Nanjing Northern suburb [J]. Environmental Science, 2014, **35**(11): 4031-4043.
- [26] Mei B L, Zheng X H, Xie B H, *et al.* Nitric oxide emissions from conventional vegetable fields in southeastern China [J]. Atmospheric Environment, 2009, **43**(17): 2762-2769.
- [27] Fang S X, Mu Y J. NO<sub>x</sub> fluxes from several typical agricultural fields during summer-autumn in the Yangtze Delta, China [J]. Atmospheric Environment, 2009, **43**(16): 2665-2671.
- [28] Fang S X, Mu Y J. NO<sub>x</sub> fluxes from three kinds of agricultural lands in the Yangtze Delta, China [J]. Atmospheric Environment, 2007, **41**(22): 4766-4772.
- [29] Xie M, Shu L, Wang T J, *et al.* Natural emissions under future climate condition and their effects on surface ozone in the Yangtze River Delta region, China [J]. Atmospheric Environment, 2017, **150**: 162-180.
- [30] 王文锦, 王卿, 朱安生, 等. 2000 ~ 2018 年长三角土地利用变化对农田生态系统氨排放的影响[J]. 环境科学, 2021, **42**(7): 3442-3450.  
Wang W J, Wang Q, Zhu A S, *et al.* Role of land use changes on ammonia emissions from agricultural ecosystems in the Yangtze River Delta region from 2000 to 2018 [J]. Environmental Science, 2021, **42**(7): 3442-3450.
- [31] Pleim J E, Xiu A J. Development of a land surface model. Part II: data assimilation [J]. Journal of Applied Meteorology and Climatology, 2003, **42**(12): 1811-1822.
- [32] Wang Y H, Logan J A, Jacob D J. Global simulation of tropospheric O<sub>3</sub>-NO<sub>x</sub>-hydrocarbon chemistry: 2. Model evaluation and global ozone budget [J]. Journal of Geophysical Research: Atmospheres, 1998, **103**(D9): 10727-10755.
- [33] Rasool Q Z, Zhang R, Lash B, *et al.* Enhanced representation of soil NO emissions in the community multiscale air quality (CMAQ) model version 5.0.2 [J]. Geoscientific Model Development, 2016, **9**(9): 3177-3197.
- [34] Lin Y L, Farley R D, Orville H D. Bulk parameterization of the snow field in a cloud model [J]. Journal of Applied Meteorology and Climatology, 1983, **22**(6): 1065-1092.
- [35] Mlawer E J, Taubman S J, Brown P D, *et al.* Radiative transfer for inhomogeneous atmospheres; RRTM, a validated correlated-k model for the longwave [J]. Journal of Geophysical Research: Atmospheres, 1997, **102**(D14): 16663-16682.
- [36] Kim H J, Wang B. Sensitivity of the WRF model simulation of the East Asian summer monsoon in 1993 to shortwave radiation schemes and ozone absorption [J]. Asia-Pacific Journal of Atmospheric Sciences, 2011, **47**(2): 167-180.
- [37] Kain J S, Fritsch J M. Convective parameterization for mesoscale models: the Kain-Fritsch scheme [A]. In: Emanuel K A, Raymond D J (Eds.). The Representation of Cumulus Convection in Numerical Models [M]. Boston: American Meteorological Society, 1993.
- [38] Hong S Y, Noh Y, Dudhia J. A new vertical diffusion package with an explicit treatment of entrainment processes [J]. Monthly Weather Review, 2006, **134**(9): 2318-2341.
- [39] Chen F, Dudhia J. Coupling an advanced land surface-hydrology model with the Penn State-NCAR MM5 modeling system. Part I: model implementation and sensitivity [J]. Monthly Weather Review, 2001, **129**(4): 569-585.
- [40] Shi L S, Zhu A S, Huang L, *et al.* Impact of the planetary boundary layer on air quality simulations over the Yangtze River Delta region, China [J]. Atmospheric Environment, 2021, **263**, doi: 10.1016/j.atmosenv.2021.118685.
- [41] Huang L, Wang Q, Wang Y J, *et al.* Simulation of secondary organic aerosol over the Yangtze River Delta region: the impacts from the emissions of intermediate volatility organic compounds and the SOA modeling framework [J]. Atmospheric Environment, 2021, **246**, doi: 10.1016/j.atmosenv.2020.118079.
- [42] Potter P, Ramankutty N, Bennett E M, *et al.* Characterizing the spatial patterns of global fertilizer application and manure production [J]. Earth Interactions, 2010, **14**(2): 1-22.
- [43] 上海市统计局. 上海统计年鉴 [M]. 北京: 中国统计出版社, 2015-2019.
- [44] 江苏省统计局. 江苏统计年鉴 [M]. 北京: 中国统计出版社, 2015-2019.
- [45] 浙江省统计局. 浙江统计年鉴 [M]. 北京: 中国统计出版社, 2015-2019.
- [46] 安徽省统计局. 安徽统计年鉴 [M]. 北京: 中国统计出版社, 2015-2019.
- [47] An J Y, Huang Y W, Huang C, *et al.* Emission inventory of air pollutants and chemical speciation for specific anthropogenic sources based on local measurements in the Yangtze River Delta region, China [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2021, **21**(3): 2003-2025.
- [48] Zheng B, Tong D, Li M, *et al.* Trends in China's anthropogenic emissions since 2010 as the consequence of clean air actions [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2018, **18**(19): 14095-14111.
- [49] Wang Q G, Han Z W, Higano Y. An inventory of nitric oxide emissions from soils in China [J]. Environmental Pollution, 2005, **135**(1): 83-90.

## CONTENTS

Impacts of Changes in Meteorological Conditions During COVID-19 Lockdown on PM <sub>2.5</sub> Concentrations over the Jing-Jin-Ji Region .....	QIU Yu-lu, CHEN Lei, ZHU Jia, <i>et al.</i> (2831)
Influence of COVID-19 Prevention and Control Measures on PM <sub>2.5</sub> Concentration, Particle Size Distribution, Chemical Composition, and Source in Zhengzhou, China .....	HUANG Bing-yi, WANG Shen-bo, HE Bing, <i>et al.</i> (2840)
Concentration Variation and Source Analysis of Metal Elements in PM <sub>2.5</sub> During COVID-19 Control in Suzhou .....	MIAO Qing, YANG Qian, WU Ye-zheng, <i>et al.</i> (2851)
Changes in Carbonaceous Aerosol in the Northern Suburbs of Nanjing from 2015 to 2019 .....	XIE Tian, CAO Fang, ZHANG Yan-lin, <i>et al.</i> (2858)
Source Apportionment of PM <sub>2.5</sub> Based on Hybrid Chemical Transport and Receptor Model in Chongqing .....	PENG Chao, LI Zhen-liang, CAO Yun-qing, <i>et al.</i> (2867)
Analysis on the Characteristics of Oxidation Potential and Influence Sources of PM <sub>2.5</sub> in Baoding City in Winter .....	WU Ji-yan, YANG Chi, ZAHNG Chun-yan, <i>et al.</i> (2878)
Pollution Characteristics and Sources of Water-soluble Organic Nitrogen in PM <sub>2.5</sub> in Jiangbei New Area, Nanjing .....	GUAN Lu, DING Cheng, ZHANG Yu-xiu, <i>et al.</i> (2888)
Organic Aerosols and Source Analysis of Fine Particles in the Background of Shiwanda Mountain, Guangxi .....	XING Jia-li, CAO Fang, WANG Qian, <i>et al.</i> (2895)
Comparison of Regional Transport and Transformation Models of Atmospheric Polycyclic Aromatic Hydrocarbons and Research on Key Influencing Factors: Take the Beijing-Tianjin-Hebei Region as Example .....	ZHANG Xin-lu, LIU Shi-jie, HAN Mei-li, <i>et al.</i> (2906)
Exploring Formation of Ozone in Typical Cities in Beijing-Tianjin-Hebei Region Using Process Analysis .....	TANG Ying-xiao, YAO Qing, CAI Zi-ying, <i>et al.</i> (2917)
Characteristics and Meteorological Factors of PM <sub>2.5</sub> -O <sub>3</sub> Compound Pollution in Tianjin .....	XIAO Zhi-mei, LI Yuan, KONG Jun, <i>et al.</i> (2928)
Spatio-temporal Characteristics of Air Quality and Influencing Factors in Shandong Province from 2016 to 2020 .....	ZHOU Meng-ge, YANG Yi, SUN Yuan, <i>et al.</i> (2937)
Trend Changes in Ozone Pollution and Sensitivity Analysis of Ozone in Henan Province .....	YAN Yang-yang, YIN Sha-sha, HE Qin, <i>et al.</i> (2947)
Effects of Tropical Cyclones on Ozone Pollution in the Pearl River Delta in Autumn .....	ZHAO Wei, LÜ Meng-yao, LU Qing, <i>et al.</i> (2957)
Real-time Composition and Sources of VOCs in Summer in Wuhan .....	SU Wei-feng, KONG Shao-fei, ZHENG Huang, <i>et al.</i> (2966)
Pollution Characteristics and Source Apportionment of Atmospheric Volatile Organic Compounds in Summer in Yuncheng City .....	WEN Xiao-yu, ZHAO Wen-ting, LUO Shu-zhen, <i>et al.</i> (2979)
Neonicotinoid Insecticides Threaten Surface Waters at the National Scale in China .....	FAN Dan-dan, LIU Hong-ling, YANG Liu-yan (2987)
Spatiotemporal Distribution and Risk Assessment of Pharmaceuticals in Typical Drinking Water Sources in the Middle Reaches of the Yangtze River .....	WU Jun-mei, WEI Lin, PENG Jing-qian, <i>et al.</i> (2996)
Pollution Characteristics and Risks of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in Underground and Surface Drinking Water Sources in Northeast Inner Mongolia .....	ZHANG Kun-feng, CHANG Sheng, FU Qing, <i>et al.</i> (3005)
Impact of Land Use Types at Different Scales on Surface Water Environment Quality and Its Driving Mechanism .....	SONG Jing-wen, ZHANG Xue-xia, JIANG Dong-yang, <i>et al.</i> (3016)
Shallow Groundwater Around Plateau Lakes: Spatiotemporal Distribution of Nitrogen and Its Driving Factors .....	LI Gui-fang, YANG Heng, YE Yuan-hang, <i>et al.</i> (3027)
Distribution and Potential Ecological Risk Assessment of Heavy Metals in Sediments of Lake Qinghai .....	ZHANG Ya-ran, CHE Fei-fei, FU Zheng-hui, <i>et al.</i> (3037)
Analysis of Heavy Metal Pollution Characteristics and Potential Ecological Risks of Surface Sediments in Dongjiang Lake .....	ZHAO Xiao-liang, LI Xiang, LU Hong-bin, <i>et al.</i> (3048)
Kinetic Release Characteristics of Organic Phosphorus of Sediment-water and Water Quality Risks .....	LIU Zhe-zhe, NI Zhao-kui, LIU Si-ru, <i>et al.</i> (3058)
Distribution Characteristics, Source Analysis, and Pollution Evaluation of Organic Matter in Surface Sediments of Qingpu District, Yangtze River Delta Integration Demonstration Area .....	ZHANG Zhi-bo, DUAN Yan-ping, TU Yao-ji, <i>et al.</i> (3066)
Distribution Characteristics of Microplastics and Their Migration Patterns in Xiangxi River Basin .....	CHEN Sheng-sheng, LI Wei-ming, ZHANG Kun, <i>et al.</i> (3077)
Community Structure and Microbial Function Responses of Biofilms Colonizing on Microplastics with Vertical Distribution in Urban Water .....	CHEN Yu-fang, YAN Zhen-hua, ZHANG Yan, <i>et al.</i> (3088)
Community Structure of Phytoplankton and Environmental Impact Factors in Lake Hongze from 2015 to 2020 .....	QU Ning, DENG Jian-ming, ZHANG Zhen, <i>et al.</i> (3097)
Structural Characteristics of Zooplankton and Phytoplankton Communities and Its Relationship with Environmental Factors in Different Regions of Nanhu Lake in Jiaxing City .....	WANG Ya-wen, LI Ying-he, ZHANG Bo, <i>et al.</i> (3106)
Temporal and Spatial Variation Characteristics and Source Analysis of Agricultural Non-point Source Pollution Load in Guangdong During the Past 20 Years .....	GE Xiao-jun, HUANG Bin, YUAN Zai-jian, <i>et al.</i> (3118)
Output Characteristics and Driving Mechanism of Agricultural Non-point Source (AGNPS) Pollutant in Plain and Valley Region of Upper Yangtze River, China .....	TAN Shao-jun, LIU Yang, ZHU Xiao-jie, <i>et al.</i> (3128)
Risk Assessment Method of Non-point Source Pollution Output for Watershed Using High Resolution Data .....	GU Jing-jing, YE Yun-tao, DONG Jia-ping, <i>et al.</i> (3140)
Spectral Characteristics Change in Dissolved Organic Matter in Urban River Under the Influences of Different Intensities of Non-point Source Pollution .....	CHEN Xu-dong, GAO Liang-min (3149)
Combination of Ecological Ditch and Bioretention Pond to Control Rural Runoff Pollution .....	SHI Lei, YANG Xiao-li, WU Qing-yu, <i>et al.</i> (3160)
Influence of Different Hydraulic Disturbance Intensities on the Migration of Aged PSMPs Between Sediment and Water .....	WU Xiang-xiang, AI Ping, LI Da-peng (3168)
Analysis of Pollution Characteristics and Sources of Rainfall Runoff from Roofs in the Central District of Beijing .....	XI Yue, GUO Jing, TAO Lei, TIAN Ying, <i>et al.</i> (3177)
Inter-annual Changes in Runoff Quality from Green Roofs with Different Vegetation .....	ZHANG Sun-xun, ZHANG Shou-hong, GE De, <i>et al.</i> (3187)
Effectivity of Multiphase Fenton-like System of Iron Reduction Induced by Bisphenol A Authigenic Photoelectron .....	CAO Si-yu, XU Lu, FU Quan-chao, <i>et al.</i> (3195)
Removal Characteristics of Four Typical Antibiotics in Denitrification System .....	TANG Jia, CHEN Xi, QIN Mu-chuan, <i>et al.</i> (3204)
Adsorption Capacity and Mechanism of Biochar Derived from Typical Agricultural Wastes for Cadmium in Aqueous Solutions .....	GONG Pei-yun, SUN Li-juan, SONG Ke, <i>et al.</i> (3211)
Effect of Humic Acid-Heavy Metals on the Nitrogen Removal Performance of ANAMMOX Bacteria and Its Kinetic Analysis .....	LI Yun, CUI Nan, XIONG Xing-xing, <i>et al.</i> (3221)
Responding Mechanism of Vegetation Cover to Climate Change and Human Activities in Southwest China from 2000 to 2020 .....	XU Yong, HUANG Wen-ting, DOU Shi-qing, <i>et al.</i> (3230)
Spatial Distribution and Eco-stoichiometric Characteristics of Soil Nutrient Elements Under Different Vegetation Types in the Yellow River Delta Wetland .....	SUN De-bin, LI Yun-zhao, YU Jun-bao, <i>et al.</i> (3241)
Distribution Characteristics and Source Apportionment of Perfluoroalkyl Substances in Surface Soils of the Northeast Tibetan Plateau .....	WEN Xiang-jie, CHEN Zhao-hui, XU Wei-xin, <i>et al.</i> (3253)
Effect of Land Use/Land Cover Change on the Concentration of Se and Heavy Metals in Soils from a "Return Cropland to Forest" Area, Southwest China .....	LIU Yong-lin, LIU Shu-ling, WU Mei, <i>et al.</i> (3262)
Speciation Characteristics and Risk Assessment of Soil Heavy Metals from Puding Karst Critical Zone, Guizhou Province .....	ZHANG Qian, HAH Gui-lin (3269)
Distribution Characteristics and Influencing Factors of Germanium in Soil in the Eastern Mountainous Area of the Nanyang Basin .....	DONG Qiu-yao, LAI Shu-ya, SONG Chao, <i>et al.</i> (3278)
Heavy Metal Pollution Characteristics and Risk Assessment of Golden Snub-nosed Monkey ( <i>Rhinopithecus roxellana</i> ) Habitat in Shennongjia Mountains .....	YAN Jia-li, YU Zi-ling, YU Hui-liang, <i>et al.</i> (3288)
Utilization and Remediation of Heavily Cadmium-Contaminated Agricultural Soils by Two Crop Rotation Patterns After Lime and Sepiolite Passivation .....	XU Lu, ZHOU Chun-hai, LIU Mei, <i>et al.</i> (3299)
Effects of Phosphorus Sufficiency and Deficiency on Cadmium Uptake and Transportation by Rice .....	TAN Wen-tao, HUO Yang, ZHOU Hang, <i>et al.</i> (3308)
Responses of Cd Accumulation in Rice and Spectral Characteristics of Soil Dissolved Organic Matter Regulated by Soil Amendments .....	LUO Hui-long, CHEN Juan, ZHANG Yun-hui, <i>et al.</i> (3315)
Responses of Soil Fungal Communities to Subalpine Meadow Degradation in Mount Wutai .....	LUO Zheng-ming, HE Lei, LIU Jin-xian, <i>et al.</i> (3328)
Response of Soil Fungal Communities in Diversified Rotations of Wheat and Different Crops .....	JIN Hai-yang, YUE Jun-qin, YAN Ya-qian, <i>et al.</i> (3338)
Spatial Characterization of Stable Isotope Composition of Organic Carbon from Farmland Soils in Chongqing .....	LIAO Yu-qin, LONG Juan, MU Zhi-jian, <i>et al.</i> (3348)
Characteristics of Soil NO Emissions in the Yangtze River Delta Region for Year 2018 .....	LIAO Jia-qiang, XUE Jin, WANG Wen-jin, <i>et al.</i> (3357)
Thermal Environment Evolution and Response Mechanism of Urban Sprawl Based on Multi-source Data .....	LIANG Jian-she, BAI Yong-ping, YANG Xue-di, <i>et al.</i> (3365)