

环境科学

(HUANJING KEXUE)

ENVIRONMENTAL SCIENCE

第38卷 第4期

Vol.38 No.4

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

西宁近郊大气氮干湿沉降研究 许稳,金鑫,罗少辉,冯兆忠,张霖,潘月鹏,刘学军(1279)

兰州春夏季 PM₁₀ 碳组分昼夜变化特征与来源分析 马丽,余晔,王博,赵素平,李刚(1289)

海南三亚大气颗粒物中水溶性无机离子浓度及其粒径分布特征 王璐,刘子锐,温天雪,苗红妍,王跃思(1298)

2015年北京城区大气 PM_{2.5} 中 NH₄⁺、NO₃⁻、SO₄²⁻ 及前体气体的污染特征 丁萌萌,周健楠,刘保献,王焱,张博韬,石爱军,杨懂艳,常森(1307)

北京市某垃圾焚烧厂周边大气二噁英污染特征及暴露风险 齐丽,任玥,刘爱民,黄业茹,赵震,王江,李泓(1317)

北京和保定地区大气细颗粒物中可培养细菌的种群特征 胡亚东,马安周,吕鹏翼,张扬,庄国强(1327)

基于实时交通数据的南京市主次干道机动车排放特征分析 李笑语,吴琳,邹超,张意,毛洪钧,荆博宇(1340)

过渡金属掺杂对镉锡烧绿石催化碳烟燃烧性能的影响 李曦峰,孙宇琦,王仲鹏,牟宗刚,崔兆杰(1348)

南水北调中线北京段水质状况分析 徐华山,赵磊,孙昊苏,任玉芬,丁涛,常帅,王海东,李森,果钊(1357)

三峡前置库汉丰湖试运行年水文水质变化特征 杨兵,何丙辉,王德宝(1366)

基于偏最小二乘模型的河流水质对土地利用的响应 李琳琳,张依章,唐常源,郑磊,孟伟,卢少勇,敦宇(1376)

抚仙湖夏季热分层时期水温及水质分布特征 王琳杰,余辉,牛勇,牛远,张有林,刘倩,吉正元(1384)

千岛湖溶解氧与浮游植物垂向分层特征及其影响因素 俞焰,刘德富,杨正健,张佳磊,徐雅倩,刘晋高,严广寒(1393)

高通量测序技术研究辽河真核浮游藻类的群落结构特征 王靖淇,王书平,张远,林佳宁,高欣,臧小苗,赵茜(1403)

三门湾近海有机污染对浮游细菌群落的影响 戴文芳,郭永豪,郁维娜,熊金波(1414)

沉积物-水界面氮的源解析和硝化反硝化 金赞芳,龚嘉临,施伊丽,金漫彤,李非里(1423)

广州南沙红树林湿地水体和沉积物中有机氯农药的残留特征 丁洋,黄焕芳,李绘,罗杰,郑煌,孙焰,杨丹,张原,祁士华(1431)

太湖西岸河网沉积物中重金属污染特征及风险评价 边博,周燕,张琴(1442)

锁磷剂对杭州西湖底泥磷释放的控制效果 朱广伟,李静,朱梦圆,龚志军,许海,杨桂军,张运林,秦伯强(1451)

超滤处理东江水不可逆膜污染物的识别和活性炭对其吸附去除 杨海燕,王灿,鄢忠森,李冬平,赵焱,瞿芳术,梁恒,徐叶琴,李圭白(1460)

UV/SPS 降解水中三氯生的效能及动力学 李青松,李学艳,姚宁波,骆靖宇,李国新,陈国元,高乃云(1467)

真空紫外-亚硫酸盐法降解 PFOS 影响因素 韩慧丽,王宏杰,董文艺(1477)

g-C₃N₄ 协同光催化还原 Cr(VI) 及氧化磺基水杨酸 李莉莉,陈翠柏,兰华春,刘菲,安晓强(1483)

锆改性硅藻土吸附水中磷的研究 范艺,王哲,赵连勤,吴德意(1490)

3种常规消毒方法对磺胺类抗性基因削减效果的比较 郑吉,周振超,陈芳,陈涛,魏媛媛,韩玥,陈红(1497)

典型生活污水处理工艺对雌激素效应的去除 张秋亚,马晓妍,王晓昌,游猛(1506)

SRT 对酵母-SBR 处理油脂废水稳定性的影响 吕文洲,张树林,乔宇祥,刘英(1513)

分散染料 neocron black(NB) 的生物降解特性 杨波,丁凤友,徐辉,李方,田晴,马春燕(1520)

多聚磷酸盐激酶基因在污水生物除磷中的功能 南亚萍,周国田,苏雪莹,袁林江(1529)

生物膜短程硝化系统的恢复及其转化为 CANON 工艺的过程 付昆明,周厚田,苏雪莹,王会芳(1536)

厌氧氨氧化反应器脱氮性能及细菌群落多样性分析 曹雁,王桐屿,秦玉洁,韩彬,任君怡(1544)

内环境调节层对厌氧生物反应器填埋场中氮转化的影响 何正坤,宋博宇,朱南文,董军(1551)

矿化垃圾中 Fe(III) 还原耦合 CH₄ 厌氧去除特性 王立立,何婷,龙焰,刘常宝(1558)

应用铅铋同位素示踪研究泉州某林地垂直剖面土壤中重金属污染及来源解析 孙境蔚,于瑞莲,胡恭任,苏光明,王晓明(1566)

畜禽粪有机肥中重金属在土壤剖面中积累迁移特征及生物有效性差异 何梦媛,董同喜,茹淑华,苏德纯(1576)

山东省农田土壤多环芳烃的污染特征及源解析 葛蔚,程琪琪,柴超,曾路生,吴娟,陈清华,朱祥伟,马东(1587)

江汉平原典型土壤环境中有机磷农药的分布特征及影响因素 王建伟,张彩香,潘真真,廖小平,刘媛,吕幽,汤蜜(1597)

基于生物有效性的农田土壤磷素组分特征及其影响因素分析 蔡观,胡亚军,王婷婷,袁红朝,王久荣,李巧云,葛体达,吴金水(1606)

秸秆还田对外源氮在土壤中转化及其微生物响应的影响 陈珊,丁成庆,祝贞科,王娟,彭佩钦,葛体达,吴金水(1613)

生物炭输入对城郊农业区农田地表反照率及土壤呼吸的影响 张阳阳,胡学玉,邹娟,张迪,陈威,王向前,陈窈君,刘扬(1622)

淹水水稻土消耗 N₂O 能力及机制 王玲,邢肖毅,秦红灵,刘毅,魏文学(1633)

不同污水处理工艺非二氧化碳温室气体的释放 李惠娟,彭党聪,刘文博,姚倩,卓杨(1640)

施用不同污泥堆肥对土壤温室气体排放的影响 杨雨滢,易建婷,张成,陈宏,木志坚(1647)

不同镉水平下纳米沸石对土壤 pH、CEC 及 Cd 形态的影响 迟苏琳,徐卫红,熊仕娟,王卫中,秦余丽,赵婉伊,张春来,李彦华,李桃,张进忠,熊治庭,王正银,谢德体(1654)

不同作物对外源硒动态吸收、转运的差异及其机制 彭琴,李哲,梁东丽,王梦柯,郭璐(1667)

褪黑素对水稻幼芽镍胁迫的缓解作用 刘仕翔,黄益宗,罗泽娇,黄永春,蒋航(1675)

不同形态磺胺类药物在根-土界面的空间分布及毒性评价 金彩霞,司晓薇,王万峰,王春峰,王子英,张琴文,王婉(1683)

三峡库区消落带沉积物对鱼体富集率的影响 孙松,李楚娴,张成,王永敏,王定勇(1689)

重庆市居民头发重金属富集特征及其相关性分析 何明靖,李琦,王登祥,赵佳渊,杨婷(1697)

16S rRNA 高通量测序研究集雨窖水中微生物群落结构及多样性 杨浩,张国珍,杨晓妮,武福平,赵炜,张洪伟,张翔(1704)

石墨烯掺杂聚苯胺阳极提高微生物燃料电池性能 黄力华,李秀芬,任月萍,王新华(1717)

美国污染场地清理的风险评估简介及政策制定 容跃(1726)

《环境科学》征稿简则(1505) 《环境科学》征订启事(1682) 信息(1339, 1459, 1612)

西宁近郊大气氮干湿沉降研究

许稳^{1,2}, 金鑫³, 罗少辉³, 冯兆忠², 张霖⁴, 潘月鹏⁵, 刘学军^{1*}

(1. 中国农业大学资源与环境学院, 北京 100193; 2. 中国科学院生态环境研究中心城市与区域生态国家重点实验室, 北京 100085; 3. 青海省气象局, 西宁 810001; 4. 北京大学物理学院大气与海洋科学系, 北京 100871; 5. 中国科学院大气物理研究所大气边界层物理和大气化学国家重点实验室, 北京 100029)

摘要: 本研究在青海省西宁市城郊二十里铺莫家泉湾气象站开展了完整的 2 年(2014 和 2015 年)大气无机氮干沉降和混合沉降(湿沉降加部分干沉降)监测. 干沉降估算通过被动采样器采集的 NH_3 和 NO_2 浓度和 Geos-Chem 全球化学模式模拟的气体干沉降速率相乘获得; 混合沉降的测定采用雨量器. 结果表明, 气态 NH_3 和 NO_2 年均浓度分别为 $8.8 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 和 $19.6 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, 且 2015 年 NH_3 月均浓度显著高于 2014 年. NH_3 浓度的季节变化呈现春夏高、秋冬低的特征, 而 NO_2 浓度季节变化幅度较小. 降水中 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 和 $\text{NO}_3^-\text{-N}$ 年均浓度为 $2.2 \text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 和 $1.8 \text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$, 秋季降水 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 浓度比其他季节低 55%, 而 $\text{NO}_3^-\text{-N}$ 浓度在秋冬季比春夏季高约 26%. 气态 NH_3 和 NO_2 的干沉降量分别为 $9.0 \text{kg}\cdot(\text{hm}^2\cdot\text{a})^{-1}$ 和 $2.8 \text{kg}\cdot(\text{hm}^2\cdot\text{a})^{-1}$, 降水中 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 和 $\text{NO}_3^-\text{-N}$ 的混合沉降量分别为 $7.6 \text{kg}\cdot(\text{hm}^2\cdot\text{a})^{-1}$ 和 $6.2 \text{kg}\cdot(\text{hm}^2\cdot\text{a})^{-1}$. 还原态氮(NH_3 和 $\text{NH}_4^+\text{-N}$) 在氮沉降中占主导地位. 大气氮素总沉降(干沉降加混合沉降)量为 $25.6 \text{kg}\cdot(\text{hm}^2\cdot\text{a})^{-1}$, 为城郊农田提供重要的环境养分; 但这一氮素输入量超过了陆地生态系统氮沉降临界负荷 [$10 \sim 20 \text{kg}\cdot(\text{hm}^2\cdot\text{a})^{-1}$], 意味着研究区周边林地(如北山)和水体生态系统面临“氮饱和”的环境风险.

关键词: 大气活性氮; 干沉降; 湿沉降; 城郊地区; 青藏高原

中图分类号: X51 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2017)04-1279-10 DOI: 10.13227/j.hjxx.201609237

Dry and Bulk Nitrogen Deposition in Suburbs of Xining City

XU Wen^{1,2}, JIN Xin³, LUO Shao-hui³, FENG Zhao-zhong², ZHANG Lin⁴, PAN Yue-peng⁵, LIU Xue-jun^{1*}

(1. College of Resources and Environmental Sciences, China Agricultural University, Beijing 100193, China; 2. State Key Laboratory of Urban and Regional Ecology, Research Center for Eco-Environmental Sciences, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100085, China; 3. Bureau of Qinghai Meteorology, Xining 810001, China; 4. Department of Atmospheric and Oceanic Sciences, School of Physics, Peking University, Beijing 100871, China; 5. State Key Laboratory of Atmospheric Boundary Layer Physics and Atmospheric Chemistry (LAPC), Institute of Atmospheric Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100029, China)

Abstract: This study conducted a full two-year (2014 and 2015) measurements of dry and bulk deposition of atmospheric inorganic nitrogen (N) at the suburb of Xining city, Qinghai province. Dry N deposition fluxes were calculated by multiplying the atmospheric concentrations of NH_3 and NO_2 measured using passive samplers with the modeled dry deposition velocities provided by the GEOS-Chem global chemical transport model, while bulk N deposition fluxes were measured using precipitation gauge. Annual mean concentrations of gaseous NH_3 and NO_2 averaged 8.8 and $19.6 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, respectively, with significantly higher values in 2015 than in 2014. Seasonal mean NH_3 concentrations were higher in spring and summer than in autumn and winter, but the concentrations of NO_2 changed little from season to season, with a small peak in autumn. Annual mean concentrations of $\text{NH}_4^+\text{-N}$ and $\text{NO}_3^-\text{-N}$ in precipitation averaged 2.2 and $1.8 \text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$, respectively. Concentrations of $\text{NH}_4^+\text{-N}$ in autumn were $\sim 55\%$ lower than those in other seasons, whereas those of $\text{NO}_3^-\text{-N}$ in autumn or winter were $\sim 26\%$ higher than those in spring and summer. Dry deposition of NH_3 and NO_2 was 9.0 and $2.8 \text{kg}\cdot(\text{hm}^2\cdot\text{a})^{-1}$, respectively. Bulk deposition of $\text{NH}_4^+\text{-N}$ and $\text{NO}_3^-\text{-N}$ in precipitation was 7.6 and $6.2 \text{kg}\cdot(\text{hm}^2\cdot\text{a})^{-1}$, respectively. Reduced N (gaseous NH_3 and $\text{NH}_4^+\text{-N}$ in precipitation) was the dominant form of N deposition. The total dry and wet N deposition was $25.6 \text{kg}\cdot(\text{hm}^2\cdot\text{a})^{-1}$, which represented significant nutrient input from the environment to the suburban farmland, but this amount of deposited N exceeded the critical loads [$10\sim 20 \text{kg}\cdot(\text{hm}^2\cdot\text{a})^{-1}$] of terrestrial ecosystems, suggesting a risk of “N saturation” in the local natural environment.

Key words: atmospheric reactive N; dry deposition; wet deposition; suburban area; Tibetan Plateau

氮(N)是自然界所有有机体生长的一种必需元素,控制着陆地和海洋生态系统的净生产力^[1]. 空气中的氮素主要以三重键结合的氮气(N_2)形式存在,约占空气总体积的 78%,其不能被生物体直接利用,除非转化成活性氮(N_r ,除 N_2 以外的所有含

氮化合物). 在过去一个世纪,由于受人为活动(如

收稿日期: 2016-09-28; 修订日期: 2016-11-11

基金项目: 国家自然科学基金项目(41425007)

作者简介: 许稳(1988~),男,博士,助理研究员,主要研究方向为大气氮沉降及其生态效应, E-mail: wwxu@cees.ac.cn

* 通信作者, E-mail: liu310@cau.edu.cn

过量施肥、集约化畜禽养殖和大量化石燃料燃烧)的影响,全球活性氮排放已增加数倍^[2]。进入大气的 N_r 化合物主要通过干沉降和湿沉降途径向地表生态系统输送,但过量的 N_r 沉降会给森林、草地和水体生态系统(通常是氮缺乏系统)带来巨大的负担,造成水体富营养化、物种多样性减少和土壤酸化等负面影响^[3]。

我国经济的快速发展使得化学肥料和化石燃料的消耗急剧增加,其消费量在1980~2000年之间分别增加了2倍和3.2倍^[4]。与之而来, NH_3 排在2006年达到了9.8 Tg,占到全球和亚洲总排放的15%和35%。 NO_x ($NO + NO_2$)的排放也从1980年的1.1 Tg增加到2010年的6.0 Tg^[5]。大量的 NH_3 和 NO_x 排放已经使得我国成为全球氮沉降的三大热点区域(中国、西欧和北美)之一。氮沉降的定量研究对评价活性氮排放趋势,探索如何控制水体富营养化,推荐农田N肥施用量和开发氮沉降模型等方面有着重要的作用^[6]。青藏高原地区位于我国的西部,面积约为257万 m^2 ,占国土面积的1/5^[7]。在青藏高原,高山生态系统分布广泛,且对大气氮沉降的增加十分敏感。氮添加梯度试验表明青藏高原高山草地生态系统处于氮限制,对增加的氮沉降有潜在的吸收能力^[8,9]。然而,长期氮添加能减少青藏高原高山生态系统植被和土壤种子库的物种丰富度^[10]。冰芯数据显示最近几十年青藏高原大气无机氮沉降呈增加趋势^[11]。Liu等^[12]通过在青藏高原5个偏远监测点的降水收集,发现氮湿沉降量平均为 $1.58 \text{ kg} \cdot (\text{hm}^2 \cdot \text{a})^{-1}$,尽管如此,青藏高原地区仍缺乏同步的干、湿沉降定量研究,尤其是人为活动密集区,这意味着整个青藏高原地区氮沉降水平仍不清楚。

西宁市位于青藏高原东北部,是西部大开发战略实施以来在西部地区城市化水平提高较快的城市之一。该市海拔2261 m,四周环山,植物种类较为丰富,属高原大陆性气候。因此,本研究在西宁市城郊地区建立长期原位监测点,旨在通过大气和降水中活性氮监测的基础上较为准确估算西宁城郊地区大气活性氮干沉降和混合沉降(湿沉降加部分气态和颗粒态N的干沉降),以期为城郊地区氮沉降系统定量、农田氮素养分管理和周边生态环境评价提供数据支持。

1 材料与方法

1.1 监测点简介

监测点位于青海省西宁气象局的二十里铺莫家

泉湾气象观测站(36.44°N,101.45°E)内,在西宁市城北郊区,距离市中心约10 km。在城北区,70%的土地用于学校、居民住宅和商业,另外30%的土地用于耕地(27%)和林地(3%),所选观测站周围有学校、村庄和高速公路,在其东南方向3 km左右有青海省农业科学院试验农田(7 hm^2)和玛珂河林场(33 hm^2)。该地区农业生产和林场育苗的氮肥施用及放牧活动主要在春末和夏季。监测点可能会受到来自机动车和农业源活性氮(如 NH_3 和 NO_2)排放的污染。监测点年平均降水量345 mm,蒸发量1363.6 mm,年平均日照为1939.7 h,无霜期为219 d。年平均气压771 hPa,年平均气温5.8℃,月均最高气温17.1℃,月均最低气温-8℃[图1(a)]。常年风向主要为北方,风速主要在 $2 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ 以内[图1(b)]。

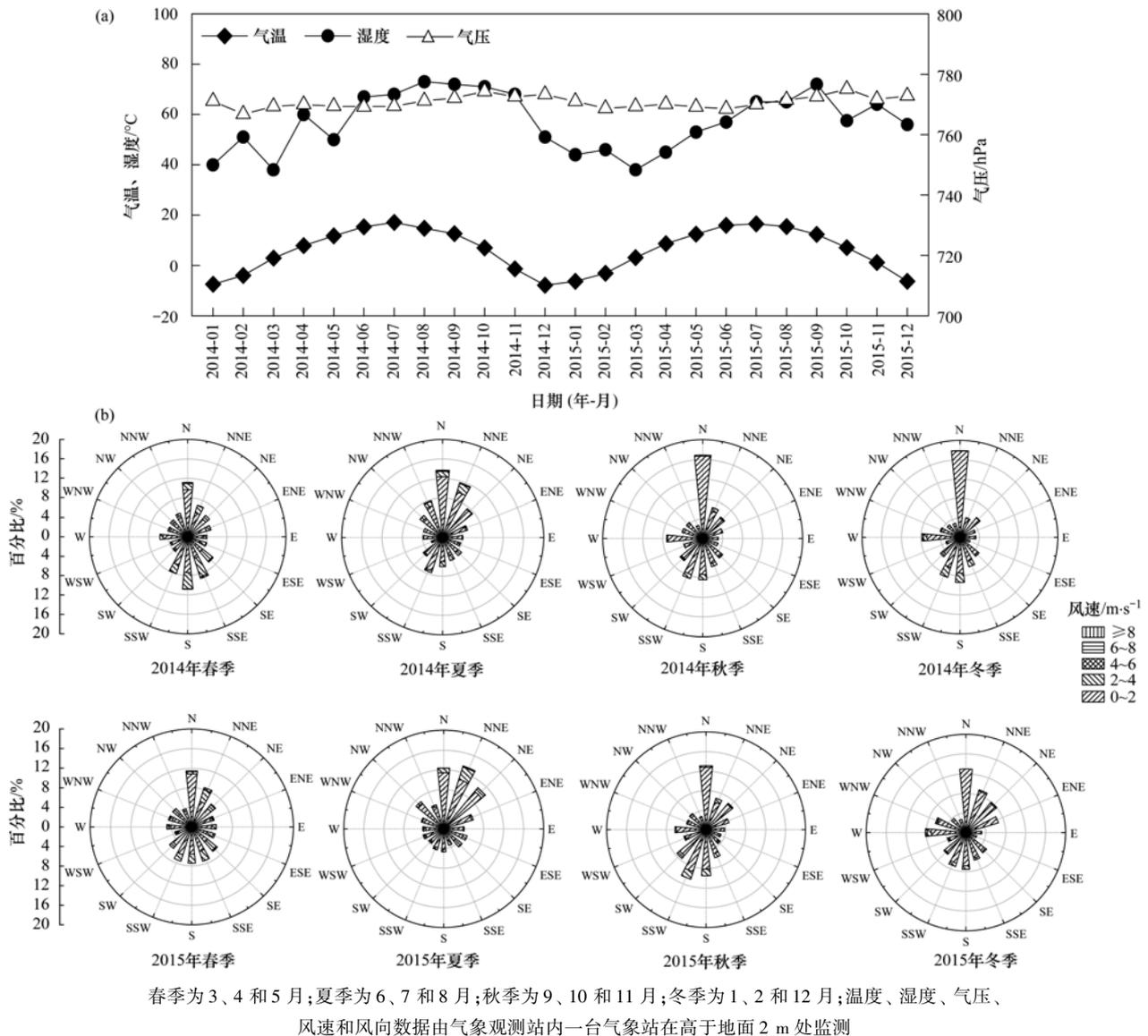
1.2 样品采集

1.2.1 大气降水收集

2014年1月~2015年12月期间的大气降水收集采用SDM6雨量器(天津气象仪器厂)。每次降雨发生后用量筒量取体积,再置于50 mL的聚乙烯瓶中。在实验室中使用0.45 μm 注射过滤器对每瓶雨水样品进行过滤,取15 mL过滤液置于聚乙烯瓶中,在-15℃冷冻保存。

1.2.2 气态 NH_3 和 NO_2 采集

在监测期内,进行连续的每月大气 NH_3 和 NO_2 采集。 NH_3 采集使用ALPHA(Adapted Low-Cost Passive High Absorption)被动采样器(爱丁堡生态水文中心,英国), NO_2 采集采用Gradko被动扩散管(Gradko国际有限公司)。ALPHA被动采样器由长26 mm、外径27 mm且一端开口的聚乙烯管组成^[13]。开口端含有一个5 μm PTFE薄膜,能让气态 NH_3 扩散穿过,然后被吸附在采样器另一端带有柠檬酸浸渍的采样膜上。Gradko被动采样器由三部分组成:一个丙烯酸管,两个聚乙烯帽(灰色和白色,分别位于扩散管两端),两层不锈钢网。采样时 NO_2 吸附在位于灰色聚乙烯帽的两个不锈钢网片上,吸附剂为30 μL 20%的三乙醇胺溶液。以上2种被动采样器的采样高度为2 m。每月采样采用3个重复,采样周期为1个月,且使用3个现场空白样品和3个实验室空白进行严格的质量控制。每次采样结束后,所有采样器均密封在自封袋中,存于4℃冰箱,在一个月內分析测定。ALPHA采样器所测的 NH_3 浓度计算需要考虑一个温度依赖(temperature dependent)的扩散系数^[13]。依照Gradko说明手册



春季为3、4和5月;夏季为6、7和8月;秋季为9、10和11月;冬季为1、2和12月;温度、湿度、气压、
风速和风向数据由气象观测站内一台气象站在高于地面2 m处监测

图1 2014~2015监测点月均气温、湿度、气压和不同季节每小时风向风速玫瑰图

Fig. 1 Monthly mean air temperature, daily mean relative humidity and air pressure and wind speed and wind rose diagrams of hourly wind direction and wind speed for different seasons during 2014-2015 at the motoring site

和先前研究^[14], NO_2 浓度计算是使用基于 25°C 假设下不变的气体扩散系数。

1.3 样品分析

NH_3 样品从 ALPHA 采样器取出放入 15 mL 的离心管, 加入 10 mL 高纯水浸提 1 h, 浸提过程开始和结束时摇动离心管, 使样品充分浸提。浸提结束时, 用镊子将采样膜上的浸提液挤干, 然后将其取出。雨水过滤液在测定前先在常温下解冻。浸提液和过滤液中 NH_4^+ 和 NO_3^- 采用 AA3 连续流动分析仪 (AA3, Bran + Luebbe GmbH, Norderstedt, Germany) 测定。 NH_4^+ 和 NO_3^- 的仪器检测限度均为 $0.1 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 。 Gradco 被动扩散管中的不锈钢网片用 4.2 mL 磺胺、磷酸、NEDA 的混合溶液浸提, 在 542

nm 波长下比色测定其中的 NO_2^- 浓度。 NO_2^- 的仪器检测限度为 $0.1 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 。

1.4 大气氮沉降的计算方法

1.4.1 混合沉降估算

混合沉降中无机氮的月或年浓度和沉降量计算分别根据公式(1)和公式(2)^[10]:

$$c(\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}) = \sum_{i=1}^n c_i \times P_i / \sum_{i=1}^n P_i \quad (1)$$

$$D(\text{kg} \cdot \text{hm}^{-2}) = \sum_{i=1}^n c_i \times P_i / 100 \quad (2)$$

式中, c_i 为每次降水中氮素的浓度 ($\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$), P_i 为每次降雨量 (mm), n 为对应的时段内降雨的次数, 100 为单位换算系数。

1.4.2 干沉降估算

大气活性氮的月或年干沉降量采用推算法计算^[14],即所测大气活性氮浓度乘以其干沉降速率,如公式(3)所示:

$$F = c(N_r)V_d = [(c_s - c_b) \times v/V] \times V_d \quad (3)$$

式中, F 为一定面积内月或年沉降量($\text{kg} \cdot \text{hm}^{-2}$); $c(N_r)$ 为一定高度大气活性氮组分的浓度($\mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$); V_d 为该种气体的干沉降速率($\text{cm} \cdot \text{s}^{-1}$). c_s 表示测定的样品浸提液浓度($\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$), c_b 表示空白浓度($\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$), v 表示浸提液体积(mm), V 表示一定时间段内采集的大气体积(m^3).

大气 NH_3 和 NO_2 月均 V_d 采用大气化学输送模型 Geos-Chem 进行模拟. 驱动 GEOS-Chem 模式的气象场是美国国家航空航天局全球同化办公室 GEOS-5 再分析资料,其水平分辨率为纬度 $(1/2)^\circ \times$ 经度 $(1/3)^\circ$,时间分辨率为 6 h(地表数据以及混合层高度为 3 h). 在本研究中,对沉降速率的模拟采用 GEOS-Chem 的亚洲嵌套网版本,其含有一个水平分辨率为 $(1/2)^\circ \times (1/3)^\circ$ 的东亚($70^\circ \sim 150^\circ \text{E}$, $11^\circ \sim 55^\circ \text{N}$)区域模式^[15]. 该嵌套模式已经被应用于调查西北太平洋地区大气 N 沉降^[16],并且一个针

对北美地区的相似嵌套模式已被用于分析整个美国的大气 N 沉降^[17]. 干沉降速率的估算遵照标准的大叶阻力串联模型,气体干沉降速率模拟所用参数见文献^[18]. V_d 是根据公式 $V_d = (R_a + R_b + R_c)^{-1}$ 计算而来,由当地气象条件和地表类型决定^[17]. 这里, R_a 是空气动力学阻力[其阻碍污染物在监测高度(距离地表 2 m 高度)至大气粗糙度长度间的湍流传输], R_b 是类层流层阻力(阻碍分子扩散), R_c 是表面阻力. 其中, R_a 和 R_b 主要是由风速、表面粗糙度、高度、大气稳定度及气体自身特性决定,这两种参数不确定性相对较小且对 V_d 的影响通常很小. 表面阻力 R_c 受到气体的溶解性、活泼性和下垫面特性的影响,模拟难度较大. 关于详细的模型介绍和活性氮干沉降速率模拟过程见文献^[17].

2 结果与分析

2.1 大气和降水中活性氮浓度

监测期间大气 NH_3 和 NO_2 的月均浓度如图 2(a)所示. 大气 NH_3 月均浓度的波动范围为 $3.2 \sim 19.0 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$,其在春夏季较高,达到 $11.0 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ 以上,而秋冬季较低,平均为 $5.6 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ (表 1).

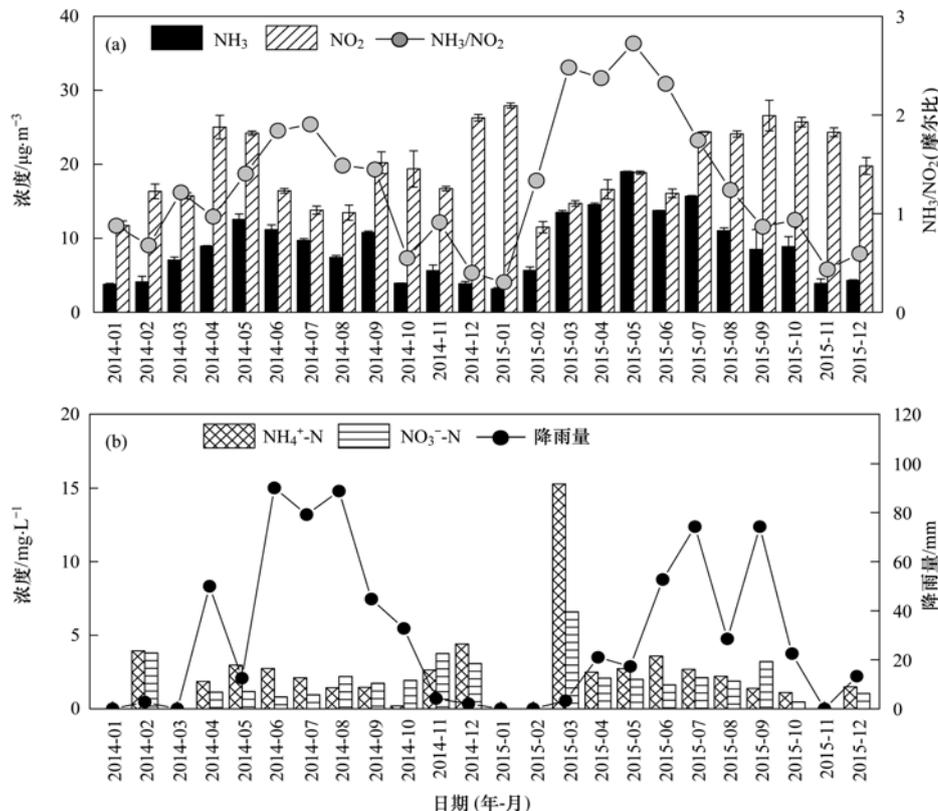


图 2 2014~2015 年监测点大气 NH_3 和 NO_2 月均浓度及降水中 NH_4^+-N 和 NO_3^--N 月均浓度时间序列

Fig. 2 Time series of monthly mean concentrations of NH_3 and NO_2 in air and monthly volume-weighted mean concentrations of NH_4^+-N and NO_3^--N in precipitation at the monitoring site during 2014-2015

NH_3 年均浓度在 2014 和 2015 年分别为 $7.4 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 和 $10.2 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, 且 NH_3 月均浓度在 2015 年显著 ($P < 0.05$) 高于 2014 年. NO_2 月均浓度在 $11.5 \sim 19.6 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 之间波动, 其在秋季达到最高值, 但季节性波动不明显 (表 1). 2015 年 NO_2 年均浓度比 2014 年浓度增加 14%, 但两年间 NO_2 月均浓度无显著性 ($P > 0.05$) 差异.

监测期降水量与降水中 NH_4^+ -N 和 NO_3^- -N 月均浓度如图 2(b) 所示. 该地区降水主要发生在 4 ~ 10 月, 降雨高峰期集中在 6 ~ 9 月, 月降水量最高可达

90 mm. 监测期间年降水量平均为 357 mm, 降雨量最高发生在夏季、最低在冬季, 且其季节性变化可达 23 倍 (表 1). 降雨水无机氮组分以 NH_4^+ -N 为主, NH_4^+ -N 月均浓度范围为 $0.2 \sim 15.3 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$, 其浓度在秋季要比其他季节低约 55%. 大部分月份降水中 NO_3^- -N 月均浓度要小于 NH_4^+ -N, 范围为 $0.5 \sim 6.6 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$, 其秋冬季浓度比春夏季浓度高约 26% (表 1). 与 2014 年相比, 2015 年 NH_4^+ -N 和 NO_3^- -N 年均浓度分别增加 28% 和 49%, 但两年间 2 种无机氮月均浓度均无显著性 ($P > 0.05$) 差异.

表 1 监测点季节性大气和降雨中活性氮浓度及其沉降量¹⁾

Table 1 Seasonal mean concentrations and deposition fluxes of various N_r species in air and precipitation

季节	浓度/ $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$		浓度/ $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$		干沉降/ $\text{kg}\cdot\text{hm}^{-2}$		降雨量 /mm	湿沉降/ $\text{kg}\cdot\text{hm}^{-2}$	
	NH_3	NO_2	NH_4^+ -N	NO_3^- -N	NH_3	NO_2		NH_4^+ -N	NO_3^- -N
春季	12.6 (4.4)	19.2 (3.5)	2.8 (1.1)	1.8 (0.9)	2.5 (0.9)	0.4 (0.1)	52.0 (14.8)	1.4 (0.1)	0.9 (0.2)
夏季	11.5 (2.9)	18.0 (4.9)	2.5 (0.6)	1.6 (0.4)	4.1 (1.1)	1.6 (0.5)	206.8 (72.5)	5.0 (0.6)	3.2 (0.3)
秋季	6.9 (0.2)	22.2 (4.8)	1.2 (0.2)	2.2 (0.5)	1.5 (0.0)	0.7 (0.1)	89.3 (10.6)	1.0 (0.3)	2.0 (0.7)
冬季	4.2 (0.3)	18.9 (1.1)	2.8 (1.9)	2.3 (1.7)	0.8 (0.1)	0.1 (0.0)	9.0 (6.0)	0.2 (0.0)	0.2 (0.0)

1) 括弧内数字为相同季节浓度或沉降量的标准差

2.2 大气氮干湿沉降量

利用 Geos-Chem 模式模拟的大气 NH_3 和 NO_2 月均沉降速率范围分别为 $0.30 \sim 0.62 \text{ cm}\cdot\text{s}^{-1}$ 和 $0.01 \sim 0.43 \text{ cm}\cdot\text{s}^{-1}$, 均呈现单峰模式 [图 3(a)]. 两种活性

氮年均沉降速率平均 (标准差) 分别为 $(0.38 \pm 0.00) \text{ cm}\cdot\text{s}^{-1}$ 和 $(0.15 \pm 0.00) \text{ cm}\cdot\text{s}^{-1}$. 夏季 NH_3 沉降速率比其他季节高 44% 左右, 而夏季 NO_2 沉降速率比其他季节高 67% ~ 95% [图 3(b)].

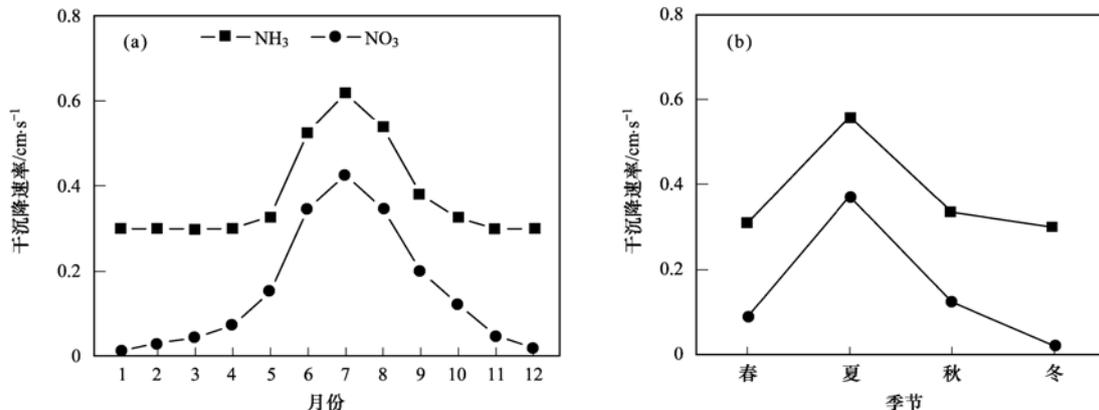


图 3 监测点 NH_3 和 NO_2 干沉降速率

Fig. 3 Dry deposition velocities of NH_3 and NO_2 at the monitoring site

基于月均浓度和月均沉降速率, 计算的 NH_3 和 NO_2 月干沉降量范围分别为 $0.2 \sim 2.7 \text{ kg}\cdot(\text{hm}^2\cdot\text{month})^{-1}$ 和 $0.01 \sim 0.83 \text{ kg}\cdot(\text{hm}^2\cdot\text{month})^{-1}$ [图 4(a)]. NH_3 和 NO_2 干沉降量均表现为夏季最高、冬季最低, 且两者的季节性变化分别可达 5 倍和 16 倍. 两年 (2014 和 2015) 的 NH_3 和 NO_2 年干沉降量平均分别为 $(9.0 \pm 2.0) \text{ kg}\cdot(\text{hm}^2\cdot\text{a})^{-1}$ 和 $(2.8 \pm 2.0) \text{ kg}\cdot(\text{hm}^2\cdot\text{a})^{-1}$, 其中 2015 年 NH_3 和 NO_2 沉降较 2014 年分别增加了

35% 和 31%, 这主要是两种气体年均浓度的增加所致. 监测期间 NH_4^+ -N 和 NO_3^- -N 月湿沉降量如图 4 (b) 所示. 如果排除零降水月份, NH_4^+ -N 和 NO_3^- -N 月混合沉降量范围分别为 $0.1 \sim 2.5 \text{ kg}\cdot(\text{hm}^2\cdot\text{month})^{-1}$ 和 $0.1 \sim 2.4 \text{ kg}\cdot(\text{hm}^2\cdot\text{month})^{-1}$ [图 4(b)]. NH_4^+ -N 和 NO_3^- -N 混合沉降的季节特征分别与 NH_3 和 NO_2 干沉降特征相似 (表 1), 这主要是由于夏季降水量大, 而冬季仅有少量降水 (或雪). 两年间两种无机氮湿沉降量变化很小, 平均

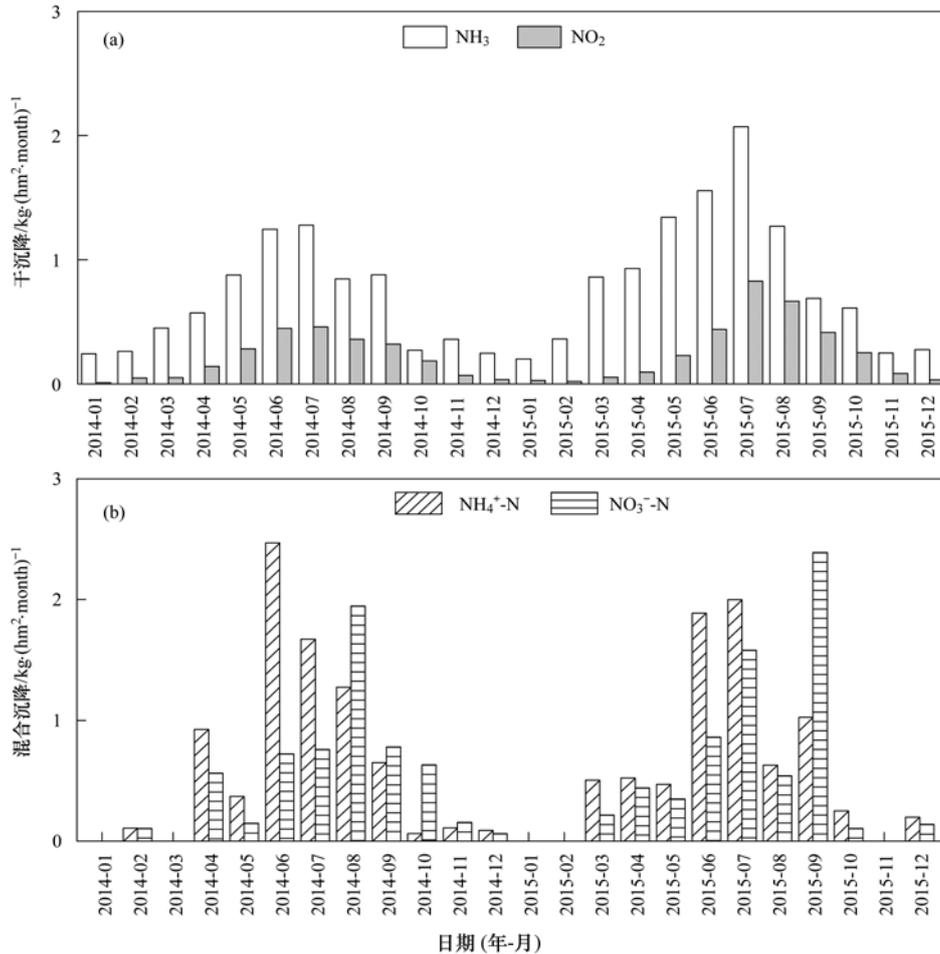


图4 2014~2015年监测点大气 NH_3 和 NO_2 月干沉降量及 NH_4^+ -N和 NO_3^- -N月混合沉降量的时间序列

Fig. 4 Time series of monthly deposition fluxes of NH_3 and NO_2 and bulk deposition fluxes of NH_4^+ -N and NO_3^- -N at the monitoring site during 2014-2015

别为 $(7.6 \pm 0.2) \text{ kg} \cdot (\text{hm}^2 \cdot \text{a})^{-1}$ 和 $(6.2 \pm 0.5) \text{ kg} \cdot (\text{hm}^2 \cdot \text{a})^{-1}$.

3 讨论

3.1 大气和降雨中活性氮浓度

气态 NH_3 和 NO_2 是大气活性氮的主要组分,不仅对大气氮沉降有明显影响,而且在大气化学反应中起着重要作用^[2]. 农田氮肥和畜禽粪便的氨挥发是大气 NH_3 的主要来源,分别占到全球总氨排放的 39% 和 17%^[19];对我国 2012 年总氨排放的贡献分别为 29% 和 52%^[20]. 本研究发现春夏季 NH_3 浓度比秋冬季浓度高 50%,这一现象与卫星观测结果及 NH_3 季节排放特征均相似^[20,21]. 一方面是春夏季农业施肥和温度升高[图 1(a)]引发的氮肥和畜禽粪便氨挥发增加所致^[22,23],另一方面,南方和东南风在春夏季时有发生[图 1(b)],可使 NH_3 从周边农业试验田和林场向监测点传输. 另外,监测点位于

城郊地区,夏季高温也能促进 NH_3 从城市及其周边排放源(如垃圾填埋场、城市下水道、城市垃圾箱)的排放^[24],可导致地区大气 NH_3 含量上升. 相比之下,发电厂、工业和交通运输行业中化石燃料的燃烧是大气中 NO_x 的主要贡献源,在我国分别占到总排放的 39%、25% 和 25%^[25]. 这些源大多数为非季节性排放源,因而 NO_2 浓度的季节变化不大. NO_2 浓度在秋冬季的若干月份中出现较高值[图 2(a)],这与我国北方地区室内供暖导致的 NO_x 高排放有关. 2015 年 NH_3 年均浓度较 2014 年浓度增加 38%,且 NH_3 月均浓度要显著 ($P < 0.05$) 高于 2014 年. 2014 和 2015 年间的月均温度、湿度、气压、降雨量和风速无显著差异 ($P > 0.05$),而且相同季节的风向情况基本类似[图 1(b)]. 因而 2015 年 NH_3 浓度的增加反映出西宁市农业和非农业源 NH_3 排放有所加强. 例如 2015 年间西宁市统计年鉴 (<http://xntjj.xining.gov.cn>) 显示西宁市 2008 ~

2014 年间的畜牧养殖、氮肥施用量和居民机动车保有量均呈现稳定增长趋势,其平均年增长率分别为 1.5%、0.8% 和 16.1%。这些 NH_3 排放源的增加进而会导致环境 NH_3 浓度的上升。与 NH_3 不同,尽管 2015 年 NO_2 浓度比 2014 年仅增加 14%,且两年间 NO_2 月均浓度无显著差异 ($P > 0.05$),这部分是由近年来不断增加的机动车数量所致。另外,这一结果也反映西宁市在“十二五”减排期间(2011~2015 年)对 NO_x 排放的控制初见成效。与我国不同土地类型监测结果^[26~30]比较发现(表 2),本监测点 NH_3 年均浓度($8.8 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$)略低于华北地区北京市和郑州市 NH_3 浓度,但高于西北地区乌鲁木齐市 NH_3 浓度。此外,值得一提的是所测 NH_3 浓度甚至高于我国大部分农田地区的监测值,这可能归因于该点周边有大规模的试验农田和林场。Cape 等^[31]提出了陆地生态系统中敏感物种新的氨气临界阈值:草本植物为 $3 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$,地衣和苔藓植物约为 $1.0 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 。因此,该地区的大气氨浓度水平仍可能引

起生态风险。当前,我国城市地区 NH_3 排放源众多,且主要 NH_3 源对不同天气情况下 NH_3 浓度贡献明显不同,例如 Pan 等^[32]利用 ^{15}N 同位素源解析技术发现北京市区大气 NH_3 在空气质量良好情况下主要来自于农业源(84%),而在霾天主要来自于化石燃料燃烧(90%)。未来的研究有必要通过源解析技术来探究西宁市大气 NH_3 的主要来源,进而制定具有针对性的 NH_3 减排措施。相反,本研究所测 NO_2 年均浓度($19.6 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$)低于我国其他地区不同土地类型下监测值($23.7 \sim 53.1 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$),且比我国环境空气质量标准中 NO_2 年均浓度二级限值($40 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$)低 50%。这说明大气 NO_2 污染较轻。大气中 NH_3/NO_2 的摩尔浓度比可用来评价农业源和工业源对气态活性氮的贡献大小,其比值 > 1 说明农业源的贡献较大^[22,33]。监测期间 NH_3/NO_2 的年均摩尔浓度比为 $0.3 \sim 2.7$ (平均为 1.3) [图 2(a)],意味着农业源主导当地大气活性氮水平。

表 2 本研究结果同国内其他研究的比较

Table 2 Comparison of the results in Xining with those in other areas reported in other studies

监测点	土地利用	监测年份	浓度/ $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$		浓度/ $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$		干沉降 / $\text{kg}\cdot\text{hm}^{-2}$	湿沉降 / $\text{kg}\cdot\text{hm}^{-2}$	数据来源
			NH_3	NO_2	NH_4^+-N	NO_3^--N			
西宁	城郊	2014~2015	8.8	19.6	2.2	1.8	11.8	13.8	本研究
北京	城市	2010~2014	12.9	44.7	2.9	2.3	24.5	31.1	[26]
北京	农田	2010~2014	9.9	28.2	2.5	2.5	17.4	25.2	[26]
郑州	城市	2010~2014	10.6	46.7	2.3	1.9	14.9	32.5	[26]
河北	农田	2011	11.4	37.8	2.9	2.2	14.1	25.2	[26]
江苏	农田	2007~2008	4.1	42.6	1.3	1.3	7.6	27.0	[27]
陕西	农田	2010~2013	7.3	23.7	4.1	3.3	11.2	27.2	[28]
乌鲁木齐	城市	2009~2010	6.5	53.1	1.3	1.0	12.8	6.0	[29]
乌鲁木齐	城郊	2009~2010	9.2	34.3	2.2	1.0	11.3	8.8	[29]
重庆	农田	2011~2013	4.5	8.6	1.5	1.1	4.1	16.7	[30]

降雨中的活性氮主要来源是大气中水溶性的含氮化合物(如气态 NH_3 和 HNO_3 , 颗粒态 NH_4^+ 和 NO_3^-)通过降雨或雪的冲刷作用从大气中移除,进而从气态转变成液态氮素。本研究结果显示 2015 年降雨中 NH_4^+-N 和 NO_3^--N 浓度相比于 2014 年均不同幅度的增加[图 2(b)],这可能是由能源消耗和氮肥施用增加带来的大气活性氮(如 NH_3 和 NO_2)浓度上升[图 2(a)]所致,同时,2015 年降水量的减少也会起到一定的贡献。Jia 等^[34]发现能源消耗和氮肥施用相对于降雨在氮沉降的年代变化中占主导地位。从季节性动态来看, NH_4^+-N 与 NH_3 浓度及 NO_3^--N 与 NO_2 浓度均无显著相关性($P > 0.05$) (表 1)。这是因为雨水中的 NH_4^+-N 浓度除受到大气

NH_3 水平影响,也取决于空气中颗粒态 NH_4^+ 浓度^[26];而降水 NO_3^--N 浓度受大气 NO_2 浓度影响较小,这是因为 NO_2 气体水溶性差。相反,大气 HNO_3 和颗粒态 NO_3^- 浓度能明显影响降水中 NO_3^--N 浓度。

3.2 大气氮沉降

大气混合沉降中 $\text{NH}_4^+-\text{N}/\text{NO}_3^--\text{N}$ 比率主要用来说明沉降中氮素的主要来源,当比值 > 1 ,说明氮素主要来自于农业源,反之则来自于工业和交通源^[26,33]。监测点的 $\text{NH}_4^+-\text{N}/\text{NO}_3^--\text{N}$ 比值范围为 $0.1 \sim 3.4$,在 2014 和 2015 年分别平均为 1.3 和 1.1,这说明农业源主导该地区的混合沉降。所测西宁点无机氮混合沉降量 [$(13.9 \pm 0.4) \text{kg}\cdot(\text{hm}^2\cdot\text{a})^{-1}$] 低于 21 世纪初我国混合沉降平均值 [21.1

$\text{kg} \cdot (\text{hm}^2 \cdot \text{a})^{-1}$]^[4], 但非常接近全国平均湿沉降量 [$13.2 \text{ kg} \cdot (\text{hm}^2 \cdot \text{a})^{-1}$]^[35]. 在我国不同地区, 降雨量、能源消耗和氮肥施用量存在差异, 这使大气湿沉降具有明显的空间变异性^[34,36]. 本研究结果低于我国大气 N_r 污染最为严重且年降水量较大(基本在 500 ~ 1 000 mm)的华北和东南地区监测值 [$25.2 \sim 35.2 \text{ kg} \cdot (\text{hm}^2 \cdot \text{a})^{-1}$], 但比降水量少(150 mm 左右)的西北地区乌鲁木齐混合沉降量高 50% (表 2). 需要指出的是, 采用雨量器所测的氮素混合沉降量包括湿沉降和少量的气态和颗粒态氮干沉降. Liu 等^[37]发现 2003 ~ 2004 年间北京市城郊监测点大气氮混合沉降量比湿沉降高出 8.3 ~ 8.4 $\text{kg} \cdot (\text{hm}^2 \cdot \text{a})^{-1}$. 本研究监测点位于降水量较少的青藏高原地区, 混合沉降中干沉降所占比例应该较高, 未来研究可以采取雨量器和湿沉降自动收集仪同步采样的方法来推算混合沉降中干沉降量.

相比湿沉降, 大气干沉降的测定相对较为困难. 这主要是因为干沉降过程受到大气传输过程、沉降表明物理、化学和生物特性等影响, 而且一些大气活性氮气态(如 NH_3)在地表和大气间存在双向流动的特点, 这使干沉降定量存在很大不确定性. 本研究采用国内外广泛应用的推算方法来估算干沉降通量, 其中不确定因素为干沉降速率. 国内文献报道的我国城市大气 NH_3 和 NO_2 年均干沉降速率范围分别为 $0.28 \sim 0.78 \text{ cm} \cdot \text{s}^{-1}$ 和 $0.06 \sim 0.12 \text{ cm} \cdot \text{s}^{-1}$ ^[26,29,33]. 相比之下, 本研究模拟的 NH_3 年均干沉降速率 ($0.38 \text{ cm} \cdot \text{s}^{-1}$) 介于上述研究报道值范围内, 而 NO_2 干沉降速率 ($0.15 \text{ cm} \cdot \text{s}^{-1}$) 要略高于研究报道范围. 不过, NO_2 干沉降对总干沉降中贡献很小^[26,33], 即使 NO_2 沉降速率提高 5 倍, NO_2 干沉降增幅不足 3%^[38], 因而 NO_2 干沉降速率的影响可以忽略. NH_3 和 NO_2 干沉降速率的最大值均发生在夏季[图 3(b)], 这可能是因为夏季空气湿度高[图 1(a)]且地面有较多植物覆盖, 进而使得气体更容易吸附在叶表面或通过气孔进行扩散且进一步与细胞液中物质进行反应.

本研究估算的干沉降量 [NH_3 与 NO_2 干沉降之和, $11.8 \text{ kg} \cdot (\text{hm}^2 \cdot \text{a})^{-1}$] 略低于华北地区部分农田和城市的干沉降量, 接近于乌鲁木齐市区和市郊的估算值, 但比江苏和重庆地区农田干沉降量高 1.5 ~ 3 倍(表 2). 所估算的干沉降占总沉降的 48%, 低于湿沉降的贡献. 但干沉降结果仅包含气态 NH_3 和 NO_2 , 而未考虑气态 HNO_3 、颗粒态 NH_4^+ 和 NO_3^- .

根据我国大气氮沉降监测网结果^[26], 上述未考虑的活性氮组分干沉降在城市地区占到干沉降总量的 47%. 如果采用这个比例估算, 监测点的干沉降总量约为 $22.2 \text{ kg} \cdot (\text{hm}^2 \cdot \text{a})^{-1}$, 因而西宁城郊地区大气氮沉降途径很可能以干沉降为主. 尽管如此, 所估干沉降量仍存在一定的不确定性, 原因在于 NH_3 通量在覆盖有植被的土地上具有双向性, 且这个净通量通常很不确定. 之前的研究^[39]通常采用一个所谓的植物 NH_3 补偿点的方法来确定 NH_3 通量究竟是排放还是沉降; 当空气 NH_3 浓度大于补偿点时, 沉降发生; 如果是低于补偿点, NH_3 则是从地表排向大气. 补偿点的计算需要叶片质外体中 $\text{NH}_4^+ / \text{H}^+$ 比值和叶片温度^[27]. 由于本研究未测量这些参数, 因为无法计算补偿点数值. Loubet 等^[40]发现为半自然生态系统(如草地)不同季节的 NH_3 补偿点大多数小于 $1 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$, 最小值仅为 $0.02 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$. 鉴于所测 NH_3 浓度 ($3.2 \sim 19.0 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$) 高于 $1 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$, 推断监测点 NH_3 主要为沉降过程. 尽管这样, 未考虑 NH_3 的双向交换原理可能在一定程度上高估了 NH_3 沉降量.

降水是补充地下水和地表水的唯一途径, 氮素含量较高的雨水必然会影响到地表水和地下水的水质. 同样, 我国主要湖泊和水库的氮沉降临界载荷很低, 且大部分湖泊和水库已处于氮饱和状态^[1]. 西宁市地表水和地下水也十分丰富, 湟水河贯穿市区, 全年径流量 18.9 亿 m^3 , 自产地表水资源量 7.01 亿 m^3 . 此外, 该市属寒温带, 植物种类较为丰富, 共有经济植物 75 科、331 属、947 种, 其中种子植物约占 1/3. 据资料报道^[41], 长期营养贫乏的水体和大部分自然或半自然生态系统, 氮沉降的经验临界载荷为 $5 \sim 10 \text{ kg} \cdot (\text{hm}^2 \cdot \text{a})^{-1}$. 本研究估算的大气氮沉降量为 $25.6 \text{ kg} \cdot (\text{hm}^2 \cdot \text{a})^{-1}$. 因此, 西宁市水体及其周边生态系统(如树林和草地)很可能受到氮沉降的负面影响, 该地区水体和林地生态系统的安全问题需要得到关注.

4 结 论

(1) 本研究估算出西宁市城郊地区大气氮干沉降 (NH_3 与 NO_2 之和) 和混合沉降 ($\text{NH}_4^+ - \text{N}$ 与 $\text{NO}_3^- - \text{N}$ 之和) 分别为 $11.8 \text{ kg} \cdot (\text{hm}^2 \cdot \text{a})^{-1}$ 和 $13.8 \text{ kg} \cdot (\text{hm}^2 \cdot \text{a})^{-1}$, 有可能使周边水域和林地生态系统处于氮饱和状态.

(2) 气态干沉降对大气氮沉降的贡献与湿沉降

或混合沉降相当,表明干沉降监测在该地区大气 N 沉降定量和与之相关的生态效应评估中非常重要。

(3)还原性氮在干沉降和混合沉降中所占比例均高于氧化态氮,说明农业源在氮沉降中占主导地位。控制大气 N_r 污染和 N 沉降需要采取农业和非农业 NH₃ 减排、机动车单双号限行和燃煤脱硫脱硝等综合措施。

参考文献:

- [1] Liu X J, Duan L, Mo J M, *et al.* Nitrogen deposition and its ecological impact in China: an overview [J]. *Environmental Pollution*, 2011, **159**(10): 2251-2264.
- [2] Galloway J N, Dentener F J, Capone D G, *et al.* Nitrogen cycles: past, present, and future [J]. *Biogeochemistry*, 2004, **70**(2): 153-226.
- [3] Vitousek P M, Aber J D, Howarth R W, *et al.* Human alteration of the global nitrogen cycle: sources and consequences [J]. *Ecological Applications*, 1997, **7**(3): 737-750.
- [4] Liu X J, Zhang Y, Han W X, *et al.* Enhanced nitrogen deposition over China [J]. *Nature*, 2013, **494**(7438): 459-462.
- [5] Ohara T, Akimoto H, Kurokawa J, *et al.* An Asian emission inventory of anthropogenic emission sources for the period 1980-2020 [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2007, **7**(16): 4419-4444.
- [6] Liu X J, Song L, He C E, *et al.* Nitrogen deposition as an important nutrient from the environment and its impact on ecosystems in China [J]. *Journal of Arid Land*, 2010, **2**(2): 137-143.
- [7] 张德铤, 李炳元, 郑度. 论青藏高原范围与面积 [J]. *地理研究*, 2002, **21**(1): 1-8.
Zhang Y L, Li B Y, Zheng D. A discussion on the boundary and area of the Tibetan Plateau in China [J]. *Geographical Research*, 2002, **21**(1): 1-8.
- [8] Liu Y W, Xu R, Xu X L, *et al.* Plant and soil responses of an alpine steppe on the Tibetan Plateau to multi-level nitrogen addition [J]. *Plant and Soil*, 2013, **373**(1-2): 515-529.
- [9] Xu X L, Wanek W, Zhou C P, *et al.* Nutrient limitation of alpine plants: implications from leaf N: P stoichiometry and leaf $\delta^{15}\text{N}$ [J]. *Journal of Plant Nutrition and Soil Science*, 2014, **177**(3): 378-387.
- [10] Ma Z, Ma M J, Baskin J M, *et al.* Responses of alpine meadow seed bank and vegetation to nine consecutive years of soil fertilization [J]. *Ecological Engineering*, 2014, **70**: 92-101.
- [11] Zheng W, Yao T D, Joswiak D R, *et al.* Major ions composition records from a shallow ice core on Mt. Tanggula in the central Qinghai-Tibetan Plateau [J]. *Atmospheric Research*, 2010, **97**(1-2): 70-79.
- [12] Liu Y W, Ri X, Wang Y S, *et al.* Wet deposition of atmospheric inorganic nitrogen at five remote sites in the Tibetan Plateau [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2015, **15**(20): 11683-11700.
- [13] Puchalski M A, Sather M E, Walker J T, *et al.* Passive ammonia monitoring in the United States: comparing three different sampling devices [J]. *Journal of Environmental Monitoring*, 2011, **13**(11): 3156-3167.
- [14] Shen J L, Li Y, Liu X J, *et al.* Atmospheric dry and wet nitrogen deposition on three contrasting land use types of an agricultural catchment in subtropical central China [J]. *Atmospheric Environment*, 2013, **67**: 415-424.
- [15] Chen D, Wang Y, McElroy M B, *et al.* Regional CO pollution and export in China simulated by high-resolution nested-grid GEOS-Chem model [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2009, **9**(11): 3825-3839.
- [16] Zhao Y H, Zhang L, Pan Y P, *et al.* Atmospheric nitrogen deposition to the northwestern Pacific: seasonal variation and source attribution [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2015, **15**(18): 10905-10924.
- [17] Zhang L, Jacob D J, Knipping E M, *et al.* Nitrogen deposition to the United States: distribution, sources, and processes [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2012, **12**(10): 4539-4554.
- [18] Wesely M L. Parameterization of surface resistances to gaseous dry deposition in regional-scale numerical models [J]. *Atmospheric Environment*, 1989, **23**(6): 1293-1304.
- [19] Clarisse L, Clerbaux C, Dentener F, *et al.* Global ammonia distribution derived from infrared satellite observations [J]. *Nature Geoscience*, 2009, **2**(7): 479-483.
- [20] Kang Y N, Liu M X, Song Y, *et al.* High-resolution ammonia emissions inventories in China from 1980 to 2012 [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2016, **16**(4): 2043-2058.
- [21] Warner J X, Wei Z G, Strow L L, *et al.* The global tropospheric ammonia distribution as seen in the 13-year AIRS measurement record [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2016, **16**(8): 5467-5479.
- [22] Xu W, Wu Q H, Liu X J, *et al.* Characteristics of ammonia, acid gases, and PM_{2.5} for three typical land-use types in the North China Plain [J]. *Environmental Science and Pollution Research*, 2016, **23**(2): 1158-1172.
- [23] Xu W, Zheng K, Liu X J, *et al.* Atmospheric NH₃ dynamics at a typical pig farm in China and their implications [J]. *Atmospheric Pollution Research*, 2014, **5**(3): 455-463.
- [24] Reche C, Viana M, Pandolfi M, *et al.* Urban NH₃ levels and sources in a Mediterranean environment [J]. *Atmospheric Environment*, 2012, **57**: 153-164.
- [25] Streets D G, Bond T C, Carmichael G R, *et al.* An inventory of gaseous and primary aerosol emissions in Asia in the year 2000 [J]. *Journal of Geophysical Research*, 2013, **108**(D21): GTE 30-1.
- [26] 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.
- [27] Yang R, Hayashi K, Zhu B, *et al.* Atmospheric NH₃ and NO₂ concentration and nitrogen deposition in an agricultural catchment of Eastern China [J]. *Science of the Total Environment*, 2010, **408**(20): 4624-4632.
- [28] Liang T, Tong Y A, Liu X J, *et al.* High nitrogen deposition in an agricultural ecosystem of Shaanxi, China [J]. *Environmental Science and Pollution Research*, 2016, **23**(13): 13210-13221.
- [29] Li K H, Liu X J, Song W, *et al.* Atmospheric nitrogen deposition at two sites in an arid environment of central Asia [J]. *PLoS One*, 2013, **8**(6): e67018.

- [30] Kuang F H, Liu X J, Zhu B, *et al.* Wet and dry nitrogen deposition in the central Sichuan Basin of China [J]. *Atmospheric Environment*, 2016, **143**: 39-50.
- [31] Cape J N, van der Eerden L J, Sheppard L J, *et al.* Evidence for changing the critical level for ammonia [J]. *Environmental Pollution*, 2009, **157**(3): 1033-1037.
- [32] Pan Y P, Tian S L, Liu D W, *et al.* Fossil fuel combustion-related emissions dominate atmospheric ammonia sources during severe haze episodes: evidence from ¹⁵N-stable isotope in size-resolved aerosol ammonium [J]. *Environmental Science & Technology*, 2016, **50**(15): 8049-8056.
- [33] Pan Y P, Wang Y S, Tang G Q, *et al.* Wet and dry deposition of atmospheric nitrogen at ten sites in Northern China [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2012, **12**(14): 6515-6535.
- [34] Jia Y L, Yu G R, He N P, *et al.* Spatial and decadal variations in inorganic nitrogen wet deposition in China induced by human activity[J]. *Scientific Reports*, 2014, **4**: 3763.
- [35] Zhu J X, He N P, Wang Q F, *et al.* The composition, spatial patterns, and influencing factors of atmospheric wet nitrogen deposition in Chinese terrestrial ecosystems[J]. *Science of the Total Environment*, 2015, **511**: 777-785.
- [36] Liu L, Zhang X Y, Wang S Q, *et al.* A review of spatial variation of inorganic nitrogen (N) wet deposition in China[J]. *PLoS One*, 2016, **11**(1): e0146051.
- [37] Liu X J, Ju X T, Zhang Y, *et al.* Nitrogen deposition in agroecosystems in the Beijing area[J]. *Agriculture, Ecosystems & Environment*, 2006, **113**(1-4): 370-377.
- [38] 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.
- [39] Sutton M A, Burkhardt J K, Guerin D, *et al.* Development of resistance models to describe measurements of bi-directional ammonia surface-atmosphere exchange [J]. *Atmospheric Environment*, 1998, **32**(3): 473-480.
- [40] Loubet B, Milford C, Hill P W, *et al.* Seasonal variability of apoplastic NH₄⁺ and pH in an intensively managed grassland[J]. *Plant and Soil*, 2002, **238**(1): 97-110.
- [41] UNECE. Manual on methodologies and criteria for modeling and mapping critical loads and levels and air pollution effects, risks and trends [R/OL]. 2004. Retrieved from <http://www.icpmapping.org>.

CONTENTS

Dry and Bulk Nitrogen Deposition in Suburbs of Xining City	XU Wen, JIN Xin, LUO Shao-hui, <i>et al.</i> (1279)
Day-Night Variation and Source Apportionment of Carbonaceous Aerosols in PM ₁₀ During Spring and Summer of Lanzhou	MA Li, YU Ye, WANG Bo, <i>et al.</i> (1289)
Characteristics of the Size Distribution of Water Soluble Inorganic Ions in Sanya, Hainan	WANG Lu, LIU Zi-rui, WEN Tian-xue, <i>et al.</i> (1298)
Pollution Characteristics of NH ₄ ⁺ , NO ₃ ⁻ , SO ₄ ²⁻ in PM _{2.5} and Their Precursor Gases During 2015 in an Urban Area of Beijing	DING Meng-meng, ZHOU Jian-nan, LIU Bao-xian, <i>et al.</i> (1307)
Pollution Characteristics of PCDD/Fs in Ambient Air and Exposure Risk Assessment Around a Municipal Solid Waste Incinerator in Beijing	QI Li, REN Yue, LIU Ai-min, <i>et al.</i> (1317)
Community Characteristics of Cultivable Bacteria in Fine Particles (PM _{2.5}) of Beijing and Baoding	HU Ya-dong, MA An-zhou, LÜ Peng-yi, <i>et al.</i> (1327)
Emission Characteristics of Vehicle Exhaust in Artery and Collector Roads in Nanjing Based on Real-time Traffic Data	LI Xiao-yu, WU Lin, ZOU Chao, <i>et al.</i> (1340)
Catalytic Combustion of Soot Particulates over Rare Earth Pyrochlore Oxides Doped with Transition Metals	LI Xi-feng, SUN Yu-qi, WANG Zhong-peng, <i>et al.</i> (1348)
Water Quality Analysis of Beijing Segment of South-to-North Water Diversion Middle Route Project	XU Hua-shan, ZHAO Lei, SUN Hao-su, <i>et al.</i> (1357)
Hanfeng Pre-reservoir Commissioning Time Variation Feature of the Hydrology and Water Quality in Three Gorges Reservoir	YANG Bing, HE Bing-hui, WANG De-bao (1366)
Modeling of Water Quality Response to Land-use Patterns in Taizi River Basin Based on Partial Least Squares	LI Lin-lin, ZHANG Yi-zhang, TANG Chang-yuan, <i>et al.</i> (1376)
Distribution Characteristics of Water Temperature and Water Quality of Fuxian Lake During Thermal Stratification Period in Summer	WANG Lin-jie, YU Hui, NIU Yong, <i>et al.</i> (1384)
Vertical Stratification Characteristics of Dissolved Oxygen and Phytoplankton in Thousand-Island Lake and Their Influencing Factors	YU Yan, LIU De-fu, YANG Zheng-jian, <i>et al.</i> (1393)
Community Structure Characteristics of Eukaryotic Planktonic Algae in Liaohé River Through High-throughput Sequencing	WANG Jing-qi, WANG Shu-ping, ZHANG Yuan, <i>et al.</i> (1403)
Effects of Coastal Organic Pollution on Bacterioplankton Community in Sanmen Bay	DAI Wen-fang, GUO Yong-hao, YU Wei-na, <i>et al.</i> (1414)
Nitrate Source Identification and Nitrification-denitrification at the Sediment-water Interface	JIN Zan-fang, GONG Jia-lin, SHI Yi-li, <i>et al.</i> (1423)
Residues of Organochlorine Pesticides (OCPs) in Water and Sediments from Nansha Mangrove Wetland	DING Yang, HUANG Huan-fang, LI Hui, <i>et al.</i> (1431)
Pollution Characteristics and Risk Assessment of Heavy Metals from River Network Sediment in Western Area of Taihu Lake	BIAN Bo, ZHOU Yan, ZHANG Qin (1442)
Efficacy of Phoslock® on the Reduction of Sediment Phosphorus Release in West Lake, Hangzhou, China	ZHU Guang-wei, LI Jing, ZHU Meng-yuan, <i>et al.</i> (1451)
Identification and PAC Adsorption of Foulants Responsible for Irreversible Fouling During Ultrafiltration of Dongjiang River Water	YANG Hai-yan, WANG Can, YAN Zhong-sen, <i>et al.</i> (1460)
Efficiency and Kinetics of Triclosan Degradation in Aqueous Solution by UV/Sodium Persulfate	LI Qing-song, LI Xue-yan, YAO Ning-bo, <i>et al.</i> (1467)
Influencing Factors on the Degradation of PFOS Through VUV-SO ₂ ⁻	HAN Hui-li, WANG Hong-jie, DONG Wen-yi (1477)
Simultaneous Photocatalytic Reduction of Cr(VI) and Oxidation of SSA by Carbon Nitride	LI Li-li, CHEN Cui-hai, LAN Hua-chun, <i>et al.</i> (1483)
Modification of Diatomite by Zirconium and Its Performance in Phosphate Removal from Water	FAN Yi, WANG Zhe, ZHAO Lian-qin, <i>et al.</i> (1490)
Reducing Effect of Three Disinfection Technologies for Sulfonamides Resistance Genes	ZHENG Ji, ZHOU Zhen-chao, CHEN Fang, <i>et al.</i> (1497)
Removal of Estrogenic Effect by Typical Domestic Wastewater Treatment Processes	ZHANG Qiu-ya, MA Xiao-yan, WANG Xiao-chang, <i>et al.</i> (1506)
Effect of SRT on Stability of Yeast-SBR in Treating Oil-containing Wastewater	LÜ Wen-zhou, ZHANG Shu-lin, QIAO Yu-xiang, <i>et al.</i> (1513)
Degradation of the Disperse Dye Neocron Black(NB) by Biological Treatment	YANG Bo, DING Feng-you, XU Hui, <i>et al.</i> (1520)
Function of Polyphosphate Kinase Gene in Biological Phosphate Removal During the Wastewater Treatment Process	NAN Ya-ping, ZHOU Guo-biao, YUAN Lin-jiang (1529)
Short-cut Nitrification Recovery and Its Transformation into CANON Process in a Biofilm Reactor	FU Kun-ming, ZHOU Hou-tian, SU Xue-ying, <i>et al.</i> (1536)
Nitrogen Removal Characteristics and Diversity of Microbial Community in ANAMMOX Reactor	CAO Yan, WANG Tong-yu, QIN Yu-jie, <i>et al.</i> (1544)
Effect of Environment Adjustment Layers on Nitrogen Transformation in Anaerobic Bioreactor Landfills	HE Zheng-kun, SONG Bo-yu, ZHU Nan-wen, <i>et al.</i> (1551)
Characteristics of Anaerobic Methane Removal Coupled to Fe(III) Reduction in Aged Refuse	WANG Li-li, HE Ting, LONG Yan, <i>et al.</i> (1558)
Assessment of Heavy Metal Pollution and Tracing Sources by Pb & Sr Isotope in the Soil Profile of Woodland in Quanzhou	SUN Jing-wei, YU Rui-lian, HU Gong-ren, <i>et al.</i> (1566)
Accumulation and Migration Characteristics in Soil Profiles and Bioavailability of Heavy Metals from Livestock Manure	HE Meng-yuan, DONG Tong-xi, RU Shu-hua, <i>et al.</i> (1576)
Pollution Characteristics and Source Analysis of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in Agricultural Soils from Shandong	GE Wei, CHENG Qi-qi, CHAI Chao, <i>et al.</i> (1587)
Distribution Characteristics and Influencing Factors of Organophosphorus Pesticides in Typical Soil Environment of Jiangnan Plain	WANG Jian-wei, ZHANG Cai-xiang, PAN Zhen-zhen, <i>et al.</i> (1597)
Characteristics and Influencing Factors of Biologically-based Phosphorus Fractions in the Farmland Soil	CAI Guan, HU Ya-jun, WANG Ting-ting, <i>et al.</i> (1606)
Effect of Straw Application on the Dynamics of Exogenous Nitrogen and Microbial Activity in Paddy Soil	CHEN Shan, DING Xian-qing, ZHU Zhen-ke, <i>et al.</i> (1613)
Effects of Biochar on Surface Albedo and Soil Respiration in Suburban Agricultural Soil	ZHANG Yang-yang, HU Xue-yu, ZOU Juan, <i>et al.</i> (1622)
N ₂ O Consumption Ability of Submerged Paddy Soil and the Regulatory Mechanism	WANG Ling, XING Xiao-yi, QIN Hong-ling, <i>et al.</i> (1633)
Non-CO ₂ Greenhouse Gas Release from Different Biological Wastewater Treatment Processes	LI Hui-juan, PENG Dang-cong, LIU Wen-bo, <i>et al.</i> (1640)
Effect of Application of Sewage Sludge Composts on Greenhouse Gas Emissions in Soil	YANG Yu-han, YI Jian-ting, ZHANG Cheng, <i>et al.</i> (1647)
Effect of Nano Zeolites on pH, CEC in Soil and Cd Fractions in Plant and Soil at Different Cadmium Levels	CHI Sun-lin, XU Wei-hong, XIONG Shi-juan, <i>et al.</i> (1654)
Dynamic Differences of Uptake and Translocation of Exogenous Selenium by Different Crops and Its Mechanism	PENG Qin, LI Zhe, LIANG Dong-li, <i>et al.</i> (1667)
Alleviation Effects of Exogenous Melatonin on Ni Toxicity in Rice Seedlings	LIU Shi-xiang, HUANG Yi-zong, LUO Ze-jiao, <i>et al.</i> (1675)
Forms Distribution and Ecotoxicity of Three Forms of Sulfonamides in Root-Soil Interface of Maize	JIN Cai-xia, SI Xiao-wei, WANG Wan-feng, <i>et al.</i> (1683)
Effect of Sediments on Bioaccumulation of Mercury in Fish Body in the Water-Level-Fluctuating Zone of the Three Gorges Reservoir Area	SUN Song, LI Chu-xian, ZHANG Cheng, <i>et al.</i> (1689)
Bioaccumulation and Correlation of Heavy Metals in Human Hairs From Urban and Rural Areas of Chongqing	HE Ming-jing, LI Qi, WANG Deng-xiang, <i>et al.</i> (1697)
Microbial Community Structure and Diversity in Cellar Water by 16S rRNA High-throughput Sequencing	YANG Hao, ZHANG Guo-zhen, YANG Xiao-ni, <i>et al.</i> (1704)
Performance Improvement of Microbial Fuel Cell with Polyaniline Doped Graphene Anode	HUANG Li-hua, LI Xiu-fen, REN Yue-ping, <i>et al.</i> (1717)
Brief Introduction of Pollution Sites Remediation and Risk Assessment and Its Policy Making in United States	RONG Yue (1726)