

环境科学

(HUANJING KEXUE)

ENVIRONMENTAL SCIENCE

第38卷 第6期

Vol.38 No.6

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

PM _{2.5} 浓度空间分异模拟模型对比:以京津冀地区为例	吴健生,王茜,李嘉诚,涂媛杰(2191)
北京地区近35年大气污染扩散条件变化	郭淳薇,孙兆彬,李梓铭,张小玲,杨慧玲(2202)
北京市典型区域夏季降水及其对大气污染物的影响	韩力慧,张海亮,向欣,张鹏,程水源,魏巍(2211)
北京山谷风环流特征分析及其对PM _{2.5} 浓度的影响	董群,赵普生,王迎春,苗世光,高健(2218)
北京市建筑施工扬尘排放特征	薛亦峰,周震,黄玉虎,王堃,聂滕,聂磊,秦建平(2231)
生物质成型燃料锅炉挥发性有机物排放特征	吴昌达,张春林,白莉,沈丽冉,王伯光,刘军,杨立辉(2238)
广州番禺大气成分站复合污染过程VOCs对O ₃ 与SOA的生成潜势	邹宇,邓雪娇,李菲,殷长泰(2246)
南京北郊大气臭氧周末效应特征分析	王俊秀,安俊琳,邵平,邹嘉南,林旭,张玉欣(2256)
亚热带稻区大气氨/铵态氮污染特征及干湿沉降	王杰飞,朱潇,沈健林,曾冠军,王娟,吴金水,李勇(2264)
宣威肺癌高发区燃煤排放颗粒物中铁的价态及其氧化性	王强翔,谭正莹,赵慧,李继华,田林玮,王青曜,米持真一,吕森林(2273)
垃圾焚烧厂区二噁英污染及厂区工人呼吸暴露评估	杜国勇,汪倩,张姝琳,张素坤,邓春萍,张洪铭,朱盟翔,蒋昕,朱成旺,任燕玲(2280)
重庆市新型干法水泥厂汞排放特征	张成,张雅惠,王永敏,王定勇,罗程钟,徐凤,何秀清(2287)
轻型汽油车简易瞬态工况法与定容全流稀释采样法(CVS)的排放相关性	王鸿宇,黄成,胡馨遥,李莉,陈勇航,徐健(2294)
不同排放标准公交车燃用生物柴油颗粒物排放特性	楼狄明,赵成志,徐宁,谭丕强,胡志远(2301)
西江水氢氧同位素组成的空间变化及环境意义	许琦,李建鸿,孙平安,何师意,于爽(2308)
基于SWAT与DNDC模型对比研究亚热带流域氮淋溶与输出过程	韩宁,陈维梁,高扬,郝卓,于贵瑞(2317)
三峡库区澎溪河与磨刀溪电导率等水质特征与水华的关系比较	姜伟,周川,纪道斌,刘德富,任豫霜,Douglas Haffner,谢德体,张磊(2326)
滇池草海间隙水与上覆水氮磷时空变化特征	王一茹,王圣瑞,焦立新,张云,高秋生,杨枫(2336)
香溪河沉积物、间隙水的磷分布特征及释放通量估算	罗玉红,聂小倩,李晓玲,戴泽龙,胥焘,黄应平(2345)
大冶湖表层水和沉积物中重金属污染特征与风险评价	张家泉,田倩,许大毛,占长林,刘婷,姚瑞珍,刘先利,肖文胜(2355)
海水淡化低温多效蒸馏工艺(LT-MED)沿程溴代消毒副产物的生成	齐菲,孙迎雪,杨哲,胡春芳,常学明,胡洪营(2364)
两种水体铜配合容量测试方法的适用性比较及应用	王晨烨,姜括,谢文龙,汪磊(2373)
高地下水位地区透水铺装控制径流污染的现场实验	金建荣,李田,时珍宝(2379)
稳定型纳米零价铁去除地下水中2,4-二氯苯酚	张永祥,常杉,李飞,徐毅,高维春(2385)
超声、紫外增强H ₂ O ₂ /KI降解磺胺甲基嘧啶	魏红,孙博成,杨小雨,李克斌(2393)
不同铅负载量改性膨润土对水中磷酸盐吸附作用的对比	姜博汇,林建伟,詹艳慧,邢云青,黄宏,储鸣,王星星(2400)
铁炭内电解垂直流人工湿地对污水厂尾水深度脱氮效果	郑晓英,朱星,周翔,徐亚东,王菊,韦诚,高雅洁,周橄(2412)
组合生物滤池对养殖废水的净化效率及影响因素分析	张世羊,张胜花,张翔凌,王广军(2419)
温度对聚磷菌活性及基质竞争的影响	张玲,彭党聪,常蝶(2429)
海洋厌氧氨氧化菌的富集培养及其脱氮特性	冯莉,于德爽,李津,单晓静,杨振琳(2435)
不同生物过滤系统铵态氮转化速率及生物膜特性分析	周洪玉,韩梅琳,仇天雷,高敏,孙兴滨,王旭明(2444)
磷酸盐对厌氧氨氧化活性污泥脱氮效能的影响	周正,刘凯,王凡,林兴,李祥,黄勇,顾澄伟(2453)
碳源胁迫下脱氮除磷颗粒污泥性能变化及其机制	秦诗友,陈威,马兆瑞,刘小英,陈晓国,余文韬,夏媛媛,黄健(2461)
外源Ca ²⁺ 对SBR启动期活性污泥胞外多聚物的动态影响	任丽飞,杨新萍,张雯雯(2470)
膨胀污泥中丝状菌的分离鉴定与特性分析	张崇森,牛全睿,徐丽梅,王陇梅,王岱,武少华(2477)
反硝化悬浮填料适用性及其微生物群落结构解析	谭阳,李激,徐巧,付磊,尤世界,王硕(2486)
硫代硫酸钠对排硫硫杆菌固碳能力的影响及其作用机制	李欢,王磊,王亚楠(2496)
关帝山森林土壤真菌群落结构与遗传多样性特征	乔沙沙,周永娜,柴宝峰,贾彤,李鑫(2502)
基于受体模型与地统计的城市居民区土壤重金属污染源解析	陈秀端,卢新卫(2513)
基于蒙特卡罗模拟的土壤环境健康风险评价:以PAHs为例	佟瑞鹏,杨校毅(2522)
Eh、pH和铁对水稻土钾释放的影响机制	钟松雄,尹光彩,陈志良,林亲铁,黄润林,刘德玲,彭焕龙,黄玲,王欣,蒋晓璐(2530)
典型土壤不同提取态Cd与水稻吸收累积的关系	陈齐,邓潇,陈珊,侯红波,彭佩钦,廖柏寒(2538)
复合改良剂对Cd污染稻田早晚稻产地修复效果	陈立伟,杨文骏,辜娇峰,周航,高子翔,廖柏寒(2546)
两种钝化剂对土壤Pb、Cd、As复合污染的菜地修复效果	田桃,雷鸣,周航,杨文骏,廖柏寒,胡立琼,曾敏(2553)
大豆和小麦根系对非的吸持作用及其生物有效性	王红菊,李倩倩,沈羽,顾若尘,盛好,占新华(2561)
源自腐殖土的溶解性有机质组分对棕壤和黑土吸附苯并三唑的影响	杨宁伟,毕二平(2568)
地形、树种和土壤属性对喀斯特山区土壤胞外酶活性的影响	罗攀,陈浩,肖孔操,杨利琼,文丽,李德军(2577)
长期定位有机物料还田对关中平原冬小麦-玉米轮作土壤N ₂ O排放的影响	郝耀旭,刘继璇,袁梦轩,周应田,杨学云,顾江新(2586)
基于大气被动式采样的人体头发中类二噁英多氯联苯暴露的途径	袁浩东,白瑶,李秋旭,王英,金军(2594)
广西刁江野生鱼类重金属积累特征及其健康风险评价	王俊能,马鹏程,张丽娟,陈棉彪,黄楚珊,柳晓琳,胡国成,许振成(2600)
活性炭在中高温条件下对玉米秸秆厌氧发酵的影响	甘荣,葛明民,刘勇迪,贾红华,闫志英,雍晓雨,吴夏荒,周俊(2607)
工艺过程源和溶剂使用源挥发性有机物排放成分谱研究进展	王红丽,杨肇勋,景盛翱(2617)
《环境科学》征稿简则(2452) 《环境科学》征订启事(2560) 信息(2201, 2230, 2384)	

亚热带稻区大气氨/铵态氮污染特征及干湿沉降

王杰飞^{1,2,3}, 朱潇^{1,2,3}, 沈健林^{1,2,*}, 曾冠军^{1,2}, 王娟^{1,2}, 吴金水^{1,2}, 李勇^{1,2,*}

(1. 中国科学院亚热带农业生态研究所亚热带农业生态过程重点实验室, 长沙 410125; 2. 中国科学院长沙农业环境观测研究站, 长沙 410125; 3. 中国科学院大学资源与环境学院, 北京 100049)

摘要: 氨气(NH_3)是重要的碱性气体,是气溶胶和雨水中铵态氮的重要前体物质。在高强度的 NH_3 及酸性气体排放下,我国亚热带双季稻区大气中氨氮($\text{NH}_3\text{-N}$)、气溶胶及雨水中铵态氮污染特征及其干湿沉降量还不清楚。本研究在我国亚热带丘陵区一个典型双季稻区,同步监测大气中 NH_3 、气溶胶中铵态氮以及雨水中铵态氮浓度及相关气象因子,旨在明确各种大气氨/铵组分浓度特征及其影响因素,并定量计算氨/铵态氮的干湿沉降量。结果表明,大气中 $\text{NH}_3\text{-N}$ 、大气颗粒物 PM_{10} 中铵态氮以及雨水中铵态氮年平均浓度分别为 $5.7\ \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 、 $12.8\ \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 和 $0.8\ \text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$,氮沉降量分别为8.38、5.61和 $9.07\ \text{kg}\cdot(\text{hm}^2\cdot\text{a})^{-1}$ 。稻田施氮肥显著提高 $\text{NH}_3\text{-N}$ 浓度,且 $\text{NH}_3\text{-N}$ 浓度与气温表现出显著正相关;颗粒态铵态氮浓度与 $\text{NH}_3\text{-N}$ 浓度无显著相关,表明研究区 $\text{NH}_3\text{-N}$ 浓度不是形成颗粒态铵态氮污染的主要限制因子;雨水中铵态氮浓度主要与颗粒态铵态氮浓度成正相关,与降雨量成负相关。采样点较高的大气氨/铵态氮浓度和沉降量说明当地的大气氨/铵污染比较严重,大气氨/铵态氮沉降已成为农田氮素的重要来源,需要在氮素养分管理中加以考虑。

关键词: 氨气;气溶胶;活性氮;大气沉降;水稻

中图分类号: X51 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2017)06-2264-09 DOI: 10.13227/j.hjks.201610177

Atmospheric Ammonia/Ammonium-nitrogen Concentrations and Wet and Dry Deposition Rates in a Double Rice Region in Subtropical China

WANG Jie-fei^{1,2,3}, ZHU Xiao^{1,2,3}, SHEN Jian-lin^{1,2,*}, ZENG Guan-jun^{1,2}, WANG Juan^{1,2}, WU Jin-shui^{1,2}, LI Yong^{1,2,*}

(1. Key Laboratory of Agro-ecological Processes in Subtropical Regions, Institute of Subtropical Agriculture, Chinese Academy of Sciences, Changsha 410125, China; 2. Changsha Research Station for Agricultural & Environmental Monitoring, Institute of Subtropical Agriculture, Chinese Academy of Sciences, Changsha 410125, China; 3. College of Resources and Environment, University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China)

Abstract: Ammonia (NH_3) is the most abundant alkaline gas in the ambient air, and it is also one of the important precursors for the ammonium salts in aerosol and rainwater. Though the emission intensities of NH_3 and acidic gases are high, the concentrations and deposition rates of atmospheric ammonia-nitrogen ($\text{NH}_3\text{-N}$), particulate ammonium-nitrogen ($\text{NH}_4^+\text{-N}_p$) and rainwater ammonium-nitrogen ($\text{NH}_4^+\text{-N}_r$) in double rice regions in subtropical China are still less known. In this study, atmospheric concentrations of $\text{NH}_3\text{-N}$, $\text{NH}_4^+\text{-N}_p$ in PM_{10} and $\text{NH}_4^+\text{-N}_r$ and related meteorological parameters were observed simultaneously in a typical double rice region in the subtropical hilly region of China, with the aim to clarify the characteristics and influencing factors of atmospheric $\text{NH}_3/\text{NH}_4^+\text{-N}$ concentrations and to quantify the wet and dry deposition rates of atmospheric $\text{NH}_3/\text{NH}_4^+\text{-N}$. The results showed that the annual mean concentrations of nitrogen in $\text{NH}_3\text{-N}$, $\text{NH}_4^+\text{-N}_p$ and $\text{NH}_4^+\text{-N}_r$ were $5.7\ \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, $12.8\ \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ and $0.8\ \text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$, respectively, and their deposition rates were 8.38, 5.61 and $9.07\ \text{kg}\cdot(\text{hm}^2\cdot\text{a})^{-1}$, respectively. The $\text{NH}_3\text{-N}$ concentration was significantly increased after application of nitrogen fertilizer in the paddy field, and had a significant positive correlation with the air temperature. The $\text{NH}_4^+\text{-N}_p$ concentration did not show significant correlation with $\text{NH}_3\text{-N}$ concentration, indicating that atmospheric $\text{NH}_3\text{-N}$ concentration was not the main limiting factor for the $\text{NH}_4^+\text{-N}_p$ pollution in the studied region. The $\text{NH}_4^+\text{-N}_r$ concentration was positively correlated with the $\text{NH}_4^+\text{-N}_p$ concentration but negatively correlated with precipitation. The high concentrations and deposition rates of atmospheric $\text{NH}_3\text{-N}/\text{NH}_4^+\text{-N}$ in the studied region indicated that the atmospheric $\text{NH}_3/\text{NH}_4^+\text{-N}$ pollution was serious, and atmospheric deposition of $\text{NH}_3/\text{NH}_4^+\text{-N}$ was an important nitrogen source in paddy fields, which should be considered in cropland nitrogen nutrient management.

Key words: ammonia; aerosol; reactive nitrogen; atmospheric deposition; rice

氨气是大气中含量最高的碱性气体,主要来源于农田施氮肥及畜禽粪便产生的氨挥发^[1,2]。大气中的氨(NH_3)可与酸性气体(H_2SO_4 、 HNO_3 、 HCl 等)反应,形成 $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ 、 NH_4HSO_4 、 NH_4NO_3 和 NH_4Cl 等含铵盐的二次气溶胶颗粒物,这些颗粒物

收稿日期: 2016-10-24; 修订日期: 2017-01-04

基金项目: 国家重点研发计划项目(2016YFD0200307); 国家自然科学基金项目(41371303)

作者简介: 王杰飞(1990~),男,硕士研究生,主要研究方向为农田活性氮排放与沉降, E-mail: wjfhzz@163.com

* 通信作者, E-mail: jlshen@isa.ac.cn; yli@isa.ac.cn

可占到 $\text{PM}_{2.5}$ 和 PM_{10} (分别为空气动力学直径小于 $2.5\ \mu\text{m}$ 和 $10\ \mu\text{m}$ 的大气颗粒物) 质量的 30% ~ 50%^[3,4], 对空气质量、人体健康和太阳辐射有重要的影响, 且能随大气环流进行长距离迁移而对远离排放源的地方产生影响。

存在于大气中氨和气溶胶态铵盐可通过干湿沉降返回地表, 是大气沉降氮素的主要组分, 其沉降量通常可占到氮沉降总量的 50% 以上^[5,6]。近 30 年来, 随着我国氮肥使用量及畜禽养殖规模的不断提高, 排放到大气中的氨气逐年增多^[5]。有研究表明, 与 20 世纪 60 年代相比本世纪初我国平均氨/铵沉降量增加了 5.6 倍^[7]。从空间格局上看, 我国华北地区、东南地区、西南地区氨/铵浓度及沉降量均较高, 大体呈现由东南到西北递减趋势^[7,8]。过多的氮沉降将引起水体富营养化、土壤酸化、土壤及水体 N_2O 排放增加、生物多样性减少等多种不良生态环境效应。因此, 氨是一种对人体健康和生态环境都有重要影响的气体。

我国亚热带区域是我国工业、农业以及交通业均十分发达的区域, 区域内 NH_3 以及酸性气体二氧化硫 (SO_2) 和氮氧化物 (NO_x) 的排放量较大。以湖南省为例, 全省 NH_3 、 SO_2 和 NO_x 的平均排放强度分别为 $1\ 811$ ^[9]、 $3\ 800$ ^[10] 和 $3\ 966\ \text{kg}\cdot\text{km}^{-2}$ ^[11]。在高强度的 NH_3 及酸性气体排放下, 我国亚热带区大气中氨氮 ($\text{NH}_3\text{-N}$)、气溶胶及雨水中铵态氮污染特征及其沉降量报道还较少, 且大部分都集中于雨水中铵态氮的研究, 对于气态和气溶胶态氨/铵态氮的研究比较缺乏^[12, 13]。近期有研究结果表明, 我国亚热带东南丘陵区一个农业小流域降雨中铵态氮可达 $0.3 \sim 1.1\ \text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$, 年湿沉降氮可达 $7.7\ \text{kg}\cdot(\text{hm}^2\cdot\text{a})^{-1}$ ^[12]; 位于亚热带区的桂林市 2008 年雨水中铵态氮平均为 $1.7\ \text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$, 年铵态氮湿沉降达 $30\ \text{kg}\cdot(\text{hm}^2\cdot\text{a})^{-1}$ ^[13]。这些研究初步表明亚热带区域具有较高的氨/铵沉降。本研究在位于我国亚热带区的湖南省长沙县的一个典型双季稻区设置监测点 ($28^\circ34'\text{N}$, $113^\circ19'\text{E}$), 同步监测 $\text{NH}_3\text{-N}$ 、气溶胶中铵态氮以及雨水中铵态氮浓度及相关气象因子, 通过明确各种大气氨/铵组分浓度特征及其影响因素, 并定量氨/铵态氮的干湿沉降量, 以期为大气中氨/铵态氮浓度控制提供科学依据, 并为亚热带双季稻区氨/铵的大气沉降输入提供基础数据。

1 材料与方法

1.1 采样地点

本研究选取湘中丘陵区 (湖南省长沙县金井镇) 一成片双季稻区 ($28^\circ34'\text{N}$, $113^\circ19'\text{E}$), 海拔 80 m, 地处中亚热带季风气候, 年平均气温 17.5°C , 年平均降雨量为 $1\ 330\ \text{mm}$, 降雨主要集中在每年 3 ~ 8 月, 占年降雨量的 60% 以上, 无霜期约 300 d, 常年盛行西北-东南风。稻区南北长 3.3 km, 东西长 0.4 ~ 0.7 km, 双季稻种植比例在 80%, 其余稻田种植一季稻, 实验地土壤类型为花岗岩红壤发育的水稻土。双季稻年化肥施氮量约 $360\ \text{kg}\cdot\text{hm}^{-2}$, 施肥时间为 4 月中旬和 7 月中旬施基肥 (复合肥) 5 月上旬和 8 月上旬追肥 (尿素), 稻区北部、东侧以及西侧均为丘陵, 南部为苗圃和菜地, 东西两侧沿山脚分布有居民区, 周边无大型养殖污染和工业污染。采样点布置在稻区的中部, 采样区域种植双季稻, 距离北部边缘 1.6 km, 距南部边缘 1.7 km, 东部边缘 0.2 km, 西部边缘 0.3 km, 以保证所采样品能代表丘陵区稻区特征。

1.2 样品采集、测定

本研究采样时间段为 2013 年 6 月 ~ 2014 年 5 月。 $\text{NH}_3\text{-N}$ 浓度通过 LGR 增强型 NH_3 分析仪 (EAA-22, Los Gatos Research Inc., 美国) 测定, 仪器量程为 $0 \sim 10\ 000 \times 10^{-9}$ 体积分数 (或 $0 \sim 6\ 250\ \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, 0°C , 101 kPa), 精度为 0.2×10^{-9} 体积分数 ($0.13\ \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, 0°C , 101 kPa), 采样点离地面 2 m, 分析仪至采样点的距离约 10 m, 采用 1/4 英寸特氟龙管连接。为防止管内水汽凝结及减少 NH_3 吸附, 在特氟龙管外绑上一条控温为 50°C 的加热带, 并外套一层保温管, 以保持特氟龙管内温度稳定。在特氟龙管的进气口加装 $0.45\ \mu\text{m}$ 孔径的特氟龙滤膜, 用于过滤空气的颗粒物。 NH_3 分析仪具有内置泵抽取气, 抽气流量为 $3\ \text{L}\cdot\text{min}^{-1}$, 测定频率为 0.1 Hz, 连续不断地测定大气中 $\text{NH}_3\text{-N}$ 浓度 (如遇暴雨、停电、仪器故障维修等特殊情况下会有中断)。

采用大流量颗粒物采样器 (型号 2031, 青岛崂山应用技术研究所) 每隔 2 d 采集一个 PM_{10} 日样品, 每月共采集 10 个 PM_{10} 日样品, 并用一张空白滤膜作为对照。颗粒物采样流量为 $1.05\ \text{m}^3\cdot\text{min}^{-1}$, 采样滤膜为玻璃纤维滤膜。滤膜恒温恒湿 (25°C , 40%) 条件下平衡 24 h, 并采用万分之一天平称重。采样后的滤膜用铝箔包裹, 并放置在 -18°C 冷藏。并在一个月内进行采样后称重, 称重前同样将滤膜放置

在恒温恒湿(25℃,40%)条件下平衡24 h,并采用万分之一天平称重.称重后的滤膜,对其八等分,取八分之一滤膜,加高纯水50 mL,超声波振荡30 min,之后用0.45 μm 特氟龙滤膜过滤浸提液,采用流动分析仪(AA3,SEAL Analytical Limited,德国)测定滤液中 NH_4^+-N 浓度,并采用以下公式计算得到颗粒物铵态氮(NH_4^+-N_p)浓度($\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$):

$$c(\text{NH}_4^+-\text{N}_p) = c(\text{NH}_4^+-\text{N}_f) \times V_f \times n / V_{\text{air}}$$

式中, $c(\text{NH}_4^+-\text{N}_f)$ 为滤液中铵态氮浓度($\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 或者 $\mu\text{g}\cdot\text{mL}^{-1}$), V_f 为滤液体积(mL), n 为滤膜等分数, V_{air} 采集的空气标准体积(m^3 ,0℃,101 kPa).

采用自动降雨采集器(智能5020,青岛崂山应用技术研究所)收集每天的降雨(上午08:00采集),记录降雨量.采集的雨水样品用聚乙烯瓶保存,并放置在-18℃冷冻保存,并在一个月内测定雨水中铵态氮(NH_4^+-N_r)浓度.测定前先用0.45 μm 特氟龙滤膜对雨水样品进行过滤,采用流动分析仪测定滤液中 NH_4^+-N 浓度.

采样点气象因子采用小型气象站(Intelime Advantage, Dynamax Inc.,美国)进行测定,主要观测指标包括气温、风速、风向、相对湿度、降雨量等.

1.3 氨(铵)氮干湿沉降量的计算

将每次降雨量与 NH_4^+-N_r 浓度相乘,得到每次降雨的铵态氮湿沉降量.将每10 d、月、每季度和全年各次湿沉降量累加分别得到每10 d、每月、每季度和全年的铵态氮湿沉降量.

采用推算法来计算干沉降量,即 NH_3-N 和 NH_4^+-N_p 的干沉降量为其浓度与其沉降速率的乘积.由于较难直接测定实地沉降速率值,本研究采用阻力模式,基于采样点的气象数据、以及下垫面水稻株高数据来计算 NH_3-N 和 NH_4^+-N_p 的干沉降速率.对于 NH_3-N ,基于大叶阻力模式^[14],其沉降速率(V_d)值为3种不同阻力之和的倒数,其计算公式为:

$$V_d = 1 / (R_a + R_b + R_c)$$

式中, R_a 为空气动力学阻力, R_b 为类层流边界层阻力, R_c 为冠层阻力. R_a 、 R_b 和 R_c 的参数化方法参考文献[15,16]中的方法.

对于 NH_4^+-N_p ,依据文献[17]中的方法,采用下式来计算其沉降速率:

$$V_d = \frac{1}{R_a + R_{\text{surf}}} + V_g$$

式中, R_a 为空气动力学阻力, R_{surf} 为表面阻力, V_g 为重力加速度,而 R_{surf} 和 V_g 的参数化方法参考文献

[18].

1.4 统计分析

采用SPSS 13.0进行数据的统计分析,其中相关性分析采用Pearson相关性分析法, $P < 0.05$ 为显著相关, $P < 0.01$ 为极显著相关.

2 结果与分析

2.1 气象因子动态

由图1(a)可看出,采样点四季温度变化明显,夏季(6~8月)和冬季(12~次年2月)气温相对稳定,春季(3~5月)和秋季(9~11月)温度变化较大.夏季炎热,日平均温度变化范围14.5~27.8℃,平均为24.3℃;冬季温度较低,温度变化范围-6.0~9.5℃,平均为1.2℃;春季温度变化范围2.6~24.6℃,整体是一个温度从低到高变化的过程,平均为13.8℃;秋季温度变化范围-2.0~24.6℃,是一个温度缓慢降低的过程,平均为温度13.6℃.相对湿度在17.2%~90.2%之间,夏季波动相对平缓,春、秋、冬三季波动相对剧烈,季节之间变化范围无明显差异[图1(b)].日平均风速在0.62~3.40 $\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ 之间,且无显著的季节差异[图1(c)].一年总共下雨75场,累计降雨量1178.8 mm,最高日降雨量85 mm,春季累计降雨量591.1 mm,占总降雨量的50%[图1(d)].

2.2 氨氮和颗粒态铵态氮浓度变化

采样期间大气中 NH_3-N 和 NH_4^+-N_p 浓度(每10 d平均值)变化趋势见图2.其中 NH_3-N 浓度变化范围在0.4~28.8 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$,平均浓度5.7 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$.从图2中可以看出一年期间 NH_3 浓度明显有两个高峰,一个出现在早稻施基肥和追肥的4月下旬和5月上旬,另一个出现在晚稻施基肥和追肥的7月中旬和下旬,因此可认为两次峰值均是由稻田施肥后氨挥发引起的.休闲季(11月~次年3月)与水稻季相比 NH_3-N 浓度相对较低,平均浓度2.8 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$. NH_4^+-N_p 浓度在1.3~18.9 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$,平均为9.3 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$,6~10月浓度相对较低,平均值为4.4 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$,11月~次年5月浓度较高,平均值12.8 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$.

2.3 雨水中铵态氮浓度及沉降量

采样期间, NH_4^+-N_r 浓度变异较大,变异范围在0.16~3.45 $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 之间(图3),体积加权平均为0.77 $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$.高浓度的 NH_4^+-N_r 主要出现在降雨量小的降雨事件,低浓度的 NH_4^+-N_r 则主要出现在降雨

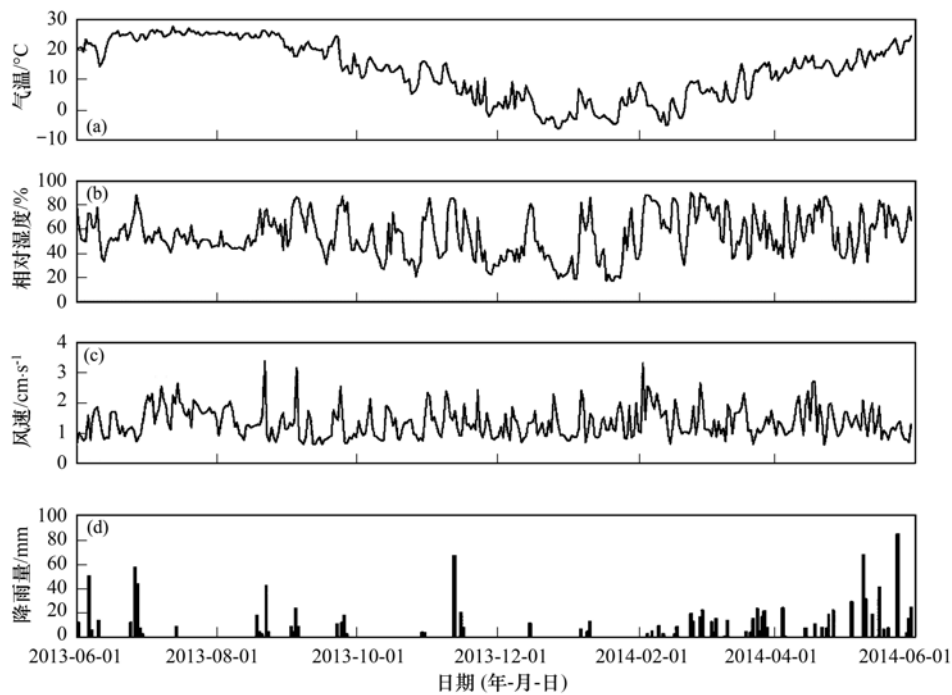


图1 采样期间日平均气温、相对湿度、风速及降雨量

Fig. 1 Daily mean air temperature, relative humidity, wind speed and precipitation during the sampling period

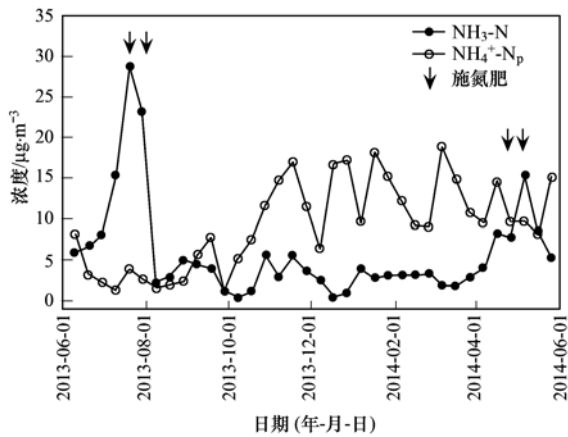


图2 采样期间每 10 d 氨氮和颗粒态铵态氮平均浓度

Fig. 2 Mean $\text{NH}_3\text{-N}$ and particulate $\text{NH}_4^+\text{-N}_p$ concentrations of every ten days during the sampling period

量大的降雨事件. 75 场雨中有 10 场 $\text{NH}_4^+\text{-N}_r$ 浓度大于 $2\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$, 超国家 V 类地表水标准. 虽然降雨对 $\text{NH}_4^+\text{-N}_r$ 浓度有一定的稀释作用, 但在降雨集中的春季, $\text{NH}_4^+\text{-N}_r$ 仍维持较高的浓度, 与春季较高的 $\text{NH}_4^+\text{-N}_p$ 浓度时间上同步.

每 10 d 的 $\text{NH}_4^+\text{-N}_r$ 沉降量变异也较大, 但要较 $\text{NH}_4^+\text{-N}_r$ 浓度变化相对平缓, 其变异范围在 $0\sim0.83\text{ kg}\cdot\text{hm}^{-2}$ 之间. 受降雨量分布的影响, 湿沉降主要发生在春季, 其次为夏季、冬季, 秋季湿沉降最少.

2.4 影响各种铵态氮浓度的影响因素

对 $\text{NH}_3\text{-N}$ 浓度、 $\text{NH}_4^+\text{-N}_p$ 浓度、 $\text{NH}_4^+\text{-N}_r$ 浓度、

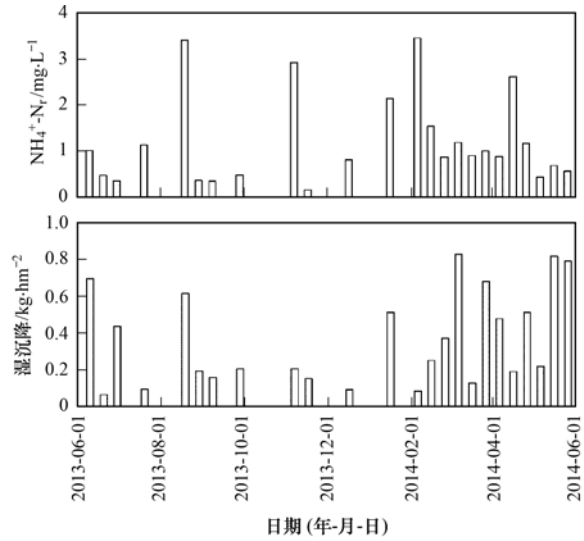


图3 采样期间每 10 d 雨水中铵态氮浓度及沉降量

Fig. 3 Mean $\text{NH}_4^+\text{-N}_r$ concentration in rainwater and $\text{NH}_4^+\text{-N}_r$ wet deposition of every ten days during the sampling period

$\text{NH}_4^+\text{-N}_r$ 湿沉降量和各气象因子(降雨量、温度、风速、相对湿度)之间进行了相关性分析(表 1). $\text{NH}_3\text{-N}$ 浓度主要与气温成显著正相关, $\text{NH}_4^+\text{-N}_p$ 浓度与气温成显著负相关, $\text{NH}_4^+\text{-N}_r$ 浓度主要与降雨量、气温成负相关, 湿沉降铵态氮则主要与降雨量成显著正相关.

2.5 氨氮、气溶胶态铵态氮和雨水中铵态氮季节平均浓度

3 种大气氨/铵态氮组成的季节平均浓度各不

相同(图4). $\text{NH}_3\text{-N}$ 浓度夏季最高,其次为春季,秋季和冬季浓度较低,夏季和春季 $\text{NH}_3\text{-N}$ 平均浓度分别是冬季的 4.5 倍和 3.1 倍. 而 $\text{NH}_4^+\text{-N}_p$ 浓度与 $\text{NH}_3\text{-N}$ 浓度相反,冬季最高,夏季最低. $\text{NH}_4^+\text{-N}_r$ 浓度无明显季节变化趋势,浓度由高到低依次是冬季、春季、夏季、秋季.

表 1 $\text{NH}_3\text{-N}$ 、 $\text{NH}_4^+\text{-N}_p$ 、 $\text{NH}_4^+\text{-N}_r$ 浓度及其沉降量与气象因子相关性分析¹⁾

Table 1 Correlation analysis among $\text{NH}_3\text{-N}$, particulate $\text{NH}_4^+\text{-N}$, rainwater $\text{NH}_4^+\text{-N}$ concentrations and meteorological parameters								
	$\text{NH}_3\text{-N}$	$\text{NH}_4^+\text{-N}_p$	$\text{NH}_4^+\text{-N}_r$	湿沉降量	降雨量	气温	相对湿度	风速
$\text{NH}_3\text{-N}$	1							
$\text{NH}_4^+\text{-N}_p$	-0.294	1						
$\text{NH}_4^+\text{-N}_r$	-0.134	0.385 *	1					
湿沉降量	0.024	0.132	0.057	1				
降雨量	0.220	-0.013	-0.567 **	0.628 **	1			
气温	0.465 **	-0.698 **	-0.445 *	0.083	0.297	1		
相对湿度	0.096	-0.011	-0.011	0.336	0.366	0.336 *	1	
风速	0.271	-0.023	0.391	-0.337	-0.401 *	0.243	0.385 *	1

1) $\text{NH}_3\text{-N}$ 浓度和 $\text{NH}_4^+\text{-N}_r$ 浓度取对数值以使数据成正态分布, * 表示在 0.05 水平上显著相关, ** 表示在 0.01 水平上显著相关

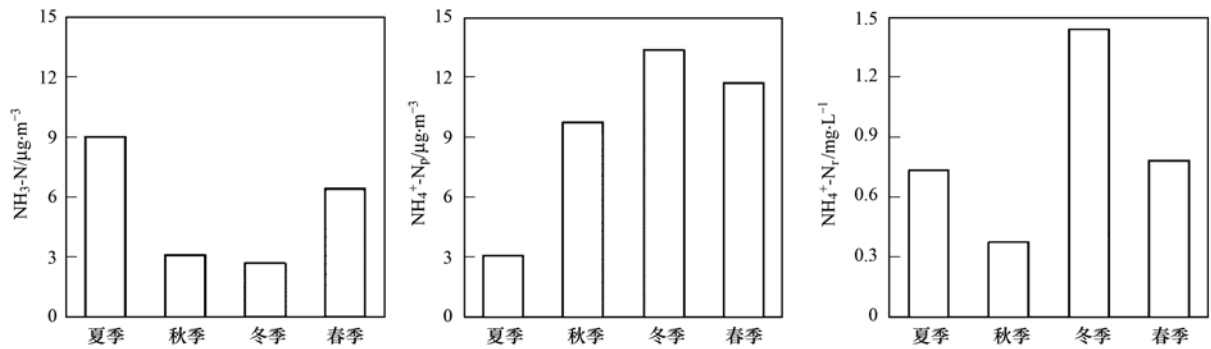


图 4 氨氮、颗粒态铵态氮和雨水中铵态氮季节平均浓度

Fig. 4 Seasonal mean concentrations of $\text{NH}_3\text{-N}$, particulate $\text{NH}_4^+\text{-N}$ and rainwater $\text{NH}_4^+\text{-N}$

2.6 氨/铵态氮沉降

图 5 为不同形态的氨/铵态氮月沉降量. 其中, $\text{NH}_4^+\text{-N}_r$ 一年总的湿沉降量为 $9.07 \text{ kg} \cdot (\text{hm}^2 \cdot \text{a})^{-1}$, 每月平均值为 $0.76 \text{ kg} \cdot (\text{hm}^2 \cdot \text{M})^{-1}$, 湿沉降量最多的月份为 5 月, 沉降量为 $2.00 \text{ kg} \cdot (\text{hm}^2 \cdot \text{M})^{-1}$, 最低的月份为 12 月, 沉降量为 $0.09 \text{ kg} \cdot (\text{hm}^2 \cdot \text{M})^{-1}$. $\text{NH}_3\text{-N}$ 干沉降全年为 $8.38 \text{ kg} \cdot (\text{hm}^2 \cdot \text{a})^{-1}$, 月平均值为 $0.70 \text{ kg} \cdot (\text{hm}^2 \cdot \text{M})^{-1}$, 沉降最高月份为 7 月 [$2.74 \text{ kg} \cdot (\text{hm}^2 \cdot \text{M})^{-1}$], 最低月份为 12 月 [$0.12 \text{ kg} \cdot (\text{hm}^2 \cdot \text{M})^{-1}$]. $\text{NH}_4^+\text{-N}_p$ 干沉降全年为 $5.61 \text{ kg} \cdot (\text{hm}^2 \cdot \text{a})^{-1}$, 沉降量最高月份为 1 月 [$0.68 \text{ kg} \cdot (\text{hm}^2 \cdot \text{M})^{-1}$], 最低的月份为 8 月 [$0.15 \text{ kg} \cdot (\text{hm}^2 \cdot \text{M})^{-1}$]. $\text{NH}_3\text{-N}$ 和 $\text{NH}_4^+\text{-N}_p$ 总的干沉降量为 $14.0 \text{ kg} \cdot (\text{hm}^2 \cdot \text{a})^{-1}$. 由图 6 可以看出在不同的季节, 氨/铵态氮的主要沉降形式变化比较明显, 春季干湿沉降比例约各占一半, 其余季节主要以干沉降为主, 夏季主要以 $\text{NH}_3\text{-N}$ 沉降为主, 秋冬两季以 $\text{NH}_4^+\text{-N}_p$ 沉降贡献最大, 对总沉降的贡献均达到

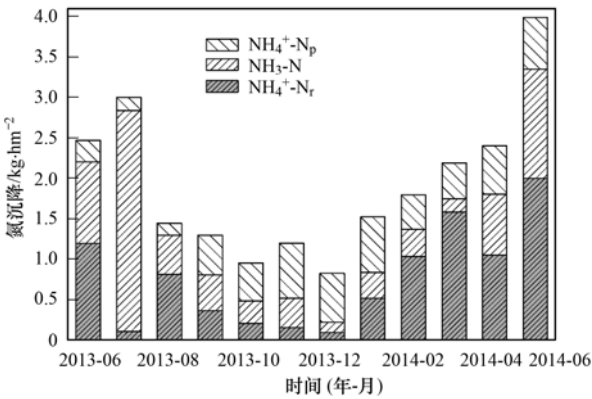


图 5 氨氮、颗粒态铵态氮和雨水中铵态氮月沉降量

Fig. 5 Monthly deposition rates of $\text{NH}_3\text{-N}$, particulate $\text{NH}_4^+\text{-N}$ and rainwater $\text{NH}_4^+\text{-N}$

40% 以上.

3 讨论

本研究结果表明亚热带稻区采样点具有较高的 $\text{NH}_3\text{-N}$ 、 $\text{NH}_4^+\text{-N}_p$ 和 $\text{NH}_4^+\text{-N}_r$ 浓度. 前人研究结果表明, 在自然、受人为活动干扰少的环境下, $\text{NH}_3\text{-N}$ 浓

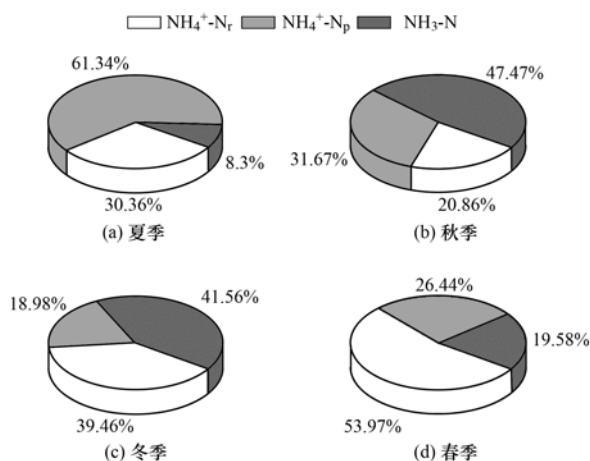


图6 氨氮、颗粒态铵态氮和雨水中铵态氮沉降量季节比例

Fig. 6 Proportions of deposition rates of NH₃-N, particulate

NH₄⁺-N and rainwater NH₄⁺-N in the total NH_x-N deposition in each season

度一般都较低,通常在 $1 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 以下^[19]. 在我国一些农区,受高施肥量的影响,大气中的 NH₃-N 浓度均较高,如华北平原、长三角平原、黄土高原、四川盆地等地^[8,20,21]. 本研究结果也表明,在氮肥施用后, NH₃-N 浓度出现峰值. 这是因为当地施用的氮肥大多为尿素,尿素水解过程中,土壤 pH 上升,土壤 NH₄⁺ 含量快速增加,从而产生大量的氨挥发^[22]. 且温度越高,氨挥发量越大(表 1),大气中 NH₃-N 浓度也越高,这也是晚稻季 NH₃-N 浓度峰值要高于早稻季峰值的原因. 前人研究结果表明,稻田氮肥施用后的氨挥发损失可占到施氮量的 10% ~ 40%^[22,23]. 本研究中施肥主要发生在 4 月中下旬 ~ 5 月上旬(早稻)、6 月下旬 ~ 7 月上旬(中稻)和 7 月中旬 ~ 7 月下旬,而氨挥发大多发生在施肥后的 5 ~ 7 d 内^[24],除去这些受施肥影响的时期,监测点其他监测时期的 NH₃-N 浓度相比于背景区 NH₃-N 浓度仍较高. 不施肥时期大气 NH₃-N 浓度仍较高的原因可能有:一是受施氮肥的影响,水稻冠层的 NH₃-N 补偿点(指既不发生氨排放也不产生氨沉降时的冠层 NH₃-N 浓度)仍较高,当补偿点大于大气中 NH₃-N 浓度时,水稻能向大气中排放氨气,从而提高大气 NH₃-N 浓度^[25,26];二是外源(菜地施肥、畜禽粪便、生活垃圾等)的氨气输送也可使研究点 NH₃-N 浓度上升^[27]. 因此,下一步研究有必要结合¹⁵N 稳定同位素示踪技术^[28] 和风向资料^[29] 解析研究点 NH₃-N 的来源.

研究人员对城市监测点的 NH₄⁺-N_p 浓度监测的结果表明,目前我国许多大城市大气颗粒物 PM₁₀ 和

PM_{2.5} 中都具有较高的铵态氮浓度^[30,31],但有关农村采样点 NH₄⁺-N_p 浓度的报道还相对较少^[32]. 本研究中所测的 NH₄⁺-N_p 浓度较高,与一些城市监测点的结果^[30,31,33] 相当,略低于文献^[4,20] 报道的华北平原监测的结果. 氨气是形成颗粒态铵的重要前体,本研究中高的 NH₃-N 浓度主要出现在春、夏季节,而高的 NH₄⁺-N_p 浓度主要出现在秋、冬季节, NH₃-N 浓度与 NH₄⁺-N_p 浓度成一定负相关. 因此, NH₃-N 浓度在本研究区域可能并不是形成 NH₄⁺-N_p 污染的主要限制因子,气象因子、酸性气体等前体物质浓度对 NH₄⁺-N_p 浓度的影响可能更大. 相关性分析表明(表 1), NH₄⁺-N_p 浓度与气温成显著负相关,表明低温有助于颗粒态铵态氮的形成. 前人研究结果表明,低温条件下受采暖活动的影响,燃煤消耗量大,排放到空气中的 SO₂、NO_x 增加,有利于大气颗粒物生成,加上冬季降雨量少不利于颗粒物的清除,从而导致较高的 NH₄⁺-N_p 浓度^[34]. 近期的研究结果表明,控制 SO₂、NO_x 等前体物质的浓度对于控制大气颗粒物污染更有效^[35,36].

本研究中较高的 NH₄⁺-N_r 浓度,与前人在亚热带区域报道的高的 NH₄⁺-N_r 浓度较为一致^[37,38]. NH₄⁺-N_r 浓度主要与 NH₄⁺-N_p 浓度成正相关,与降雨量、气温呈负相关(表 1). 气温低时,颗粒物浓度高,云水中将凝聚较多的 NH₄⁺-N_p,而降雨进行云下清除的 NH₄⁺-N_p 也多,从而增加 NH₄⁺-N_r 浓度. 降雨量大时, NH₄⁺-N_r 浓度被稀释,从而使其浓度与降雨量成负相关.

本研究中氨/铵态氮的年干湿沉降总量达到 $23.1 \text{ kg}\cdot(\text{hm}^2\cdot\text{a})^{-1}$,表明氨/铵态氮沉降已经成为农田氮素的一个重要来源. 在华北平原^[16.3 ~ 43.2 \text{ kg}\cdot(\text{hm}^2\cdot\text{a})^{-1}]^[39]、黄土高原^[5.7 ~ 23.2 \text{ kg}\cdot(\text{hm}^2\cdot\text{a})^{-1}]^[40]、长三角平原区^[36.9 \text{ kg}\cdot(\text{hm}^2\cdot\text{a})^{-1}]^[41]、四川盆地^[17.8 \text{ kg}\cdot(\text{hm}^2\cdot\text{a})^{-1}]^[38] 农区均报道有较高的氨/铵态氮沉降,表明我国农区当前大气氨/铵态氮污染比较严重,会产生较高的氨/铵态氮大气沉降输入. 根据本研究区域双季稻生产中平均年施氮量 $360 \text{ kg}\cdot\text{hm}^{-2}$ 计,氨/铵态氮沉降占到肥料氮投入的 6.2%. 稻田化肥氮氨挥发比例一般在 10%^[22,23] 以上,因此稻田仍是大气中氨/铵态氮的净排放源. 本研究中高的氨/铵态氮沉降,也将为稻田周边的杂草提供重要氮源,可能是造成研究区农田周边杂草丛生的重要原因.

本研究采用阻力模式估算了大气 $\text{NH}_3\text{-N}$ 和 $\text{NH}_4^+\text{-N}_p$ 的干沉降速率. 采样点 $\text{NH}_3\text{-N}$ 的月平均干沉降速率在 $0.34 \sim 0.60 \text{ cm}\cdot\text{s}^{-1}$ 之间, 平均为 $0.44 \text{ cm}\cdot\text{s}^{-1}$; $\text{NH}_4^+\text{-N}_p$ 的月平均干沉降速率在 $0.16 \sim 0.33 \text{ cm}\cdot\text{s}^{-1}$ 之间, 平均为 $0.21 \text{ cm}\cdot\text{s}^{-1}$ (图 7). 本研究模拟的干沉降速率与前人报道的农田(麦地、玉米) $\text{NH}_3\text{-N}$ 和 $\text{NH}_4^+\text{-N}_p$ 干沉降速率具有可比性^[39,42], 表明模拟结果有一定的可靠性. 对于氨气, 其在地表-大气之间通常存在双向传输, 既有地表向大气的排放, 也有大气到地表的沉降. 而这种排放-沉降之间的转换可能会发生在亚小时尺度、日尺度和季节尺度, 调控因子主要包括有植物叶片/土壤/凋落层氮营养状况、叶片湿度、叶片温度等^[25]. 这种调控作用, 使得氨气在植物冠层高度存在一个补偿浓度(补偿点), 当大气中的 $\text{NH}_3\text{-N}$ 浓度高于冠层补偿点时, 氨气便由大气向地表沉降; 反之, 氨气则由地表向大气挥发^[26]. 由于受研究手段的限制, 本研究未能测定氨气补偿点, 而是认为排放到大气的 $\text{NH}_3\text{-N}$ 时刻发生沉降, 因此可能对 $\text{NH}_3\text{-N}$ 沉降有所高估. 为进一步校正模型结果, 今后有必要采用微气象学方法^[43], 测定实地 $\text{NH}_3\text{-N}$ 和 $\text{NH}_4^+\text{-N}_p$ 的干沉降速率.

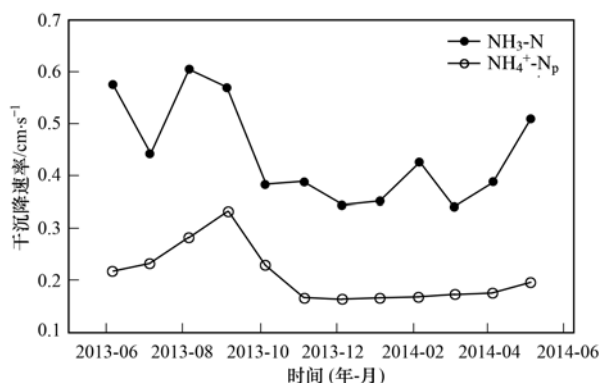


图 7 采样期间氨氮、颗粒态铵态氮干沉降速率

Fig. 7 Monthly mean dry deposition velocities of $\text{NH}_3\text{-N}$ and particulate $\text{NH}_4^+\text{-N}_p$ during the sampling period

4 结论

(1)在我国亚热带丘陵区的一个典型双季稻区监测结果表明,大气中 $\text{NH}_3\text{-N}$ 、大气颗粒物 PM_{10} 中 $\text{NH}_4^+\text{-N}_p$ 浓度以及 $\text{NH}_4^+\text{-N}_r$ 年平均浓度分别为 $5.7 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 、 $12.8 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 和 $0.8 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$. $\text{NH}_3\text{-N}$ 浓度为夏季和春季较高,秋季和冬季较低; $\text{NH}_4^+\text{-N}_p$ 浓度与 $\text{NH}_3\text{-N}$ 浓度相反,冬季最高,夏季最低; $\text{NH}_4^+\text{-N}_r$ 浓度以冬季最高,秋季最低.

(2)稻田施氮肥显著提高 $\text{NH}_3\text{-N}$ 浓度,且 $\text{NH}_3\text{-N}$ 浓度与气温成显著正相关; $\text{NH}_4^+\text{-N}_p$ 浓度与 $\text{NH}_3\text{-N}$ 浓度并未显著相关,表明 $\text{NH}_3\text{-N}$ 浓度在本研究区域并不是形成 $\text{NH}_4^+\text{-N}_p$ 污染的主要限制因子; $\text{NH}_4^+\text{-N}_r$ 浓度主要与 $\text{NH}_4^+\text{-N}_p$ 浓度成正相关,与降雨量成负相关.

(3)本研究稻区的大气氨/铵态氮的年大气干湿沉降总量为 $23.1 \text{ kg}\cdot(\text{hm}^2\cdot\text{a})^{-1}$,是稻田的重要氮素来源.

参考文献:

- [1] Skjoth C A, Geels C. The effect of climate and climate change on ammonia emissions in Europe [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2013, **13**(1): 117-128.
- [2] 尤翔宇, 刘湛, 张青梅, 等. 长株潭地区人为源氨排放清单及分布特征[J]. *环境科学*, 2016, **37**(1): 94-101.
You X Y, Liu Z, Zhang Q M, et al. Anthropogenic ammonia emission inventory and its spatial distribution in Chang-Zhu-Tan region [J]. *Environmental Science*, 2016, **37**(1): 94-101.
- [3] Aneja V P, Schlesinger W H, Erisman J W. Farming pollution [J]. *Nature Geoscience*, 2008, **1**(7): 409-411.
- [4] Shen J L, Liu X J, Zhang Y, et al. Atmospheric ammonia and particulate ammonium from agricultural sources in the North China Plain [J]. *Atmospheric Environment*, 2011, **45**(28): 5033-5041.
- [5] Liu X J, Zhang Y, Han W X, et al. Enhanced nitrogen deposition over China [J]. *Nature*, 2013, **494**(7438): 459-462.
- [6] 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.
- [7] 顾峰雪, 黄玫, 张远东, 等. 1961-2010 年中国区域氮沉降时空格局模拟研究[J]. *生态学报*, 2016, **36**(12): 3591-3600.
Gu F X, Huang M, Zhang Y D, et al. Modeling the temporal-spatial patterns of atmospheric nitrogen deposition in China during 1961-2010 [J]. *Acta Ecologica Sinica*, 2016, **36**(12): 3591-3600.
- [8] 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.
- [9] Huang X, Song Y, Li M M, et al. A high-resolution ammonia emission inventory in China [J]. *Global Biogeochemical Cycles*, 2012, **26**(1): GB1030.
- [10] 李名升, 任晓霞, 周磊, 等. 中国大气 SO_2 污染与排放的空间分离分析[J]. *环境科学学报*, 2013, **33**(4): 1150-1157.
Li M S, Ren X X, Zhou L, et al. Spatial mismatch between SO_2 pollution and SO_2 emission in China [J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 2013, **33**(4): 1150-1157.
- [11] Zhao B, Wang S X, Liu H, et al. NO_x emissions in China: historical trends and future perspectives [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2013, **13**(19): 9869-9897.
- [12] 郝卓, 高扬, 张进忠, 等. 南方红壤区氮湿沉降特征及其对流域氮输出的影响[J]. *环境科学*, 2015, **36**(5): 1630-

1638.
Hao Z, Gao Y, Zhang J Z, *et al.* Characteristics of atmospheric nitrogen wet deposition and associated impact on N transport in the watershed of red soil area in southern China [J]. *Environmental Science*, 2015, **36**(5): 1630-1638.
- [13] 郭雅思, 于爽, 黎泳珊, 等. 桂林市酸雨变化特征及来源分析[J]. *环境科学*, 2016, **37**(8): 2897-2905.
Gao Y S, Yu S, Li Y S, *et al.* Chemical characteristics and source of acid precipitation in Guilin [J]. *Environmental Science*, 2016, **37**(8): 2897-2905.
- [14] Wesely M L, Hicks B B. Some factors that affect the deposition rates of sulfur dioxide and similar gases on vegetation [J]. *Journal of the Air Pollution Control Association*, 1977, **27**(11): 1110-1116.
- [15] Erisman J W, Draaijers G P J. Atmospheric deposition in relation to acidification and eutrophication [M]. Amsterdam: Elsevier, 1995. 1-404.
- [16] Wesely M L. Parameterization of surface resistances to gaseous dry deposition in regional-scale numerical models [J]. *Atmospheric Environment*, 1989, **23**(6): 1293-1304.
- [17] Slinn W G N. Predictions for particle deposition to vegetative canopies[J]. *Atmospheric Environment*, 1982, **16**(7): 1785-1794.
- [18] Zhang L M, Gong S L, Padro J B L, *et al.* A size-segregated particle dry deposition scheme for an atmospheric aerosol module [J]. *Atmospheric Environment*, 2001, **35**(3): 549-560.
- [19] Chen X, Day D, Schichtel B, *et al.* Seasonal ambient ammonia and ammonium concentrations in a pilot IMPROVE NH_x monitoring network in the western United States[J]. *Atmospheric Environment*, 2014, **91**: 118-126.
- [20] 孟昭阳, 谢育林, 贾诗卉, 等. 2013 年夏季华北乡村站点固城大气氨变化特征[J]. *应用气象学报*, 2015, **26**(2): 141-150.
Meng Z Y, Xie Y L, Jia S H, *et al.* Characteristics of atmospheric ammonia at Guojing, a rural site on North China plain in summer of 2013 [J]. *Journal of Applied Meteorological Science*, 2015, **26**(2): 141-150.
- [21] 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.
- [22] 田光明, 蔡祖聪, 曹金留, 等. 镇江丘陵区稻田化肥氮的氨挥发及其影响因素[J]. *土壤学报*, 2001, **38**(3): 324-332.
Tian G M, Cai Z C, Cao J L, *et al.* Ammonia volatilization from paddy field and its affecting factors in Zhenjiang hilly region[J]. *Acta Pedologica Sinica*, 2001, **38**(3): 324-332.
- [23] 朱兆良. 中国土壤氮素研究[J]. *土壤学报*, 2008, **45**(5): 778-783.
Zhu Z L. Research on soil nitrogen in China [J]. *Acta Pedologica Sinica*, 2008, **45**(5): 778-783.
- [24] 敖玉琴, 张维, 田玉华, 等. 脲胺氮肥对太湖地区稻田氨挥发及氮肥利用率的影响[J]. *土壤*, 2016, **48**(2): 248-253.
Ao Y Q, Zhang W, Tian Y H, *et al.* Effects of urea-ammonium mixed nitrogen fertilizer on ammonia volatilization and nitrogen use efficiency in paddy field of Taihu lake region [J]. *Soils*, 2016, **48**(2): 248-253.
- [25] Massad R S, Nemitz E, Sutton M A. Review and parameterisation of bi-directional ammonia exchange between vegetation and the atmosphere[J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2010, **10**(21): 10359-10386.
- [26] Sutton M A, Schjorring J K, Wyers G P, *et al.* Plant-atmosphere exchange of ammonia [and discussion] [J]. *Philosophical Transactions of the Royal Society A: Mathematical, Physical and Engineering Sciences*, 1995, **351**(1696): 261-278.
- [27] Shen J L, Chen D L, Bai M, *et al.* Ammonia deposition in the neighbourhood of an intensive cattle feedlot in Victoria, Australia [J]. *Scientific Reports*, 2016, **6**: 32793.
- [28] 谢志英, 肖化云, 朱仁果, 等. 利用石生苔藓氮含量与氮同位素探讨江西省大气氮沉降量和来源[J]. *环境科学*, 2011, **32**(4): 943-948.
Xie Z Y, Xiao H Y, Zhu R G, *et al.* Nitrogen concentrations and stable isotope in epilithic mosses to investigate atmospheric N deposition and N sources in Jiangxi province [J]. *Environmental Science*, 2011, **32**(4): 943-948.
- [29] Baek B H, Aneja V P, Tong Q S. Chemical coupling between ammonia, acid gases, and fine particles [J]. *Environmental Pollution*, 2004, **129**(1): 89-98.
- [30] 曹双, 吴丹, 陈利珍, 等. 中国大气气溶胶中水溶性离子的污染特征[J]. *环境科学与技术*, 2016, **39**(8): 103-115.
Cao S, Wu D, Chen L Z, *et al.* Characteristics of water-soluble inorganic ions of aerosol in China: a review [J]. *Environmental Science & Technology*, 2016, **39**(8): 103-115.
- [31] 张秋晨, 朱彬, 龚佃利. 南京地区大气气溶胶及水溶性无机离子特征分析[J]. *中国环境科学*, 2014, **34**(2): 311-316.
Zhang Q C, Zhu B, Gong D L. Characterization of water-soluble ion species of aerosol in Nanjing, China [J]. *China Environmental Science*, 2014, **34**(2): 311-316.
- [32] 陈仕意, 曾立民, 董华斌, 等. 华北地区乡村站点(曲周)夏季 PM_{2.5} 中二次无机组分的生成机制与来源解析[J]. *环境科学*, 2015, **36**(10): 3554-3565.
Chen S Y, Zeng L M, Dong H B, *et al.* Transformation mechanism and sources of secondary inorganic components in PM_{2.5} at an agriculture site (Quzhou) in the North China Plain in summer [J]. *Environmental Science*, 2015, **36**(10): 3554-3565.
- [33] 杨懂艳, 刘保献, 张大伟, 等. 2012~2013 年间北京市 PM_{2.5} 中水溶性离子时空分布规律及相关性分析[J]. *环境科学*, 2015, **36**(3): 768-773.
Yang D Y, Liu B X, Zhang D W, *et al.* Correlation, seasonal and temporal variation of water-soluble ions of PM_{2.5} in Beijing during 2012-2013 [J]. *Environmental Science*, 2015, **36**(3): 768-773.
- [34] 严文莲, 周德平, 王扬峰, 等. 沈阳秋冬季可吸入颗粒物浓度及尺度谱分布特征[J]. *应用气象学报*, 2008, **19**(4): 435-443.
Yan W L, Zhou D P, Wang Y F, *et al.* Concentrations and size distributions of inhalable particles in summer and winter in Shenyang [J]. *Journal of Applied Meteorological Science*, 2008, **19**(4): 435-443.
- [35] Pan Y P, Wang Y S, Zhang J K, *et al.* Redefining the importance of nitrate during haze pollution to help optimize an emission control strategy [J]. *Atmospheric Environment*, 2016, **141**: 197-202.

- [36] Cheng Y F, Zheng G J, Wei C, *et al.* Reactive nitrogen chemistry in aerosol water as a source of sulfate during haze events in China [J]. *Science Advances*, 2016, **2** (12): e1601530.
- [37] Cui J, Zhou J, Peng Y, *et al.* Atmospheric wet deposition of nitrogen and sulfur to a typical red soil agroecosystem in Southeast China during the ten-year monsoon seasons (2003-2012) [J]. *Atmospheric Environment*, 2014, **82**: 121-129.
- [38] 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.
- [39] Luo X S, Liu P, Tang A H, *et al.* An evaluation of atmospheric N_x pollution and deposition in North China after the Beijing Olympics[J]. *Atmospheric Environment*, 2013, **74**: 209-216.
- [40] Liang T, Tong Y A, Xu W, *et al.* Atmospheric nitrogen deposition in the Loess area of China[J]. *Atmospheric Pollution Research*, 2016, **7**(3): 447-453.
- [41] 孙丽英. 南京地区大气氮磷沉降及模拟氮沉降对土壤气体排放的影响研究[D]. 南京: 南京农业大学, 2014. 50-56.
- Sun L Y. Atmospheric nitrogen and phosphorus deposition in Nanjing and effects of simulated nitrogen deposition on gaseous emissions of soils[D]. Nanjing: Nanjing Agricultural University, 2014. 50-56.
- [42] Flechard C R, Nemitz E, Smith R I, *et al.* Dry deposition of reactive nitrogen to European ecosystems; a comparison of inferential models across the Nitro Europe network [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2011, **11**(6): 2703-2728.
- [43] Lee X. On micrometeorological observations of surface-air exchange over tall vegetation [J]. *Agricultural and Forest Meteorology*, 1998, **91**(1-2): 39-49.

CONTENTS

Comparison of Models on Spatial Variation of PM _{2.5} Concentration; A Case of Beijing-Tianjin-Hebei Region	WU Jian-sheng, WANG Xi, LI Jia-cheng, <i>et al.</i> (2191)
Change of Atmospheric Pollution Diffusion Conditions in Beijing in Recent 35 Years	GUO Chun-wei, SUN Zhao-bin, LI Zi-ming, <i>et al.</i> (2202)
Precipitation and Its Effects on Atmospheric Pollutants in a Representative Region of Beijing in Summer	HAN Li-hui, ZHANG Hai-liang, XIANG Xin, <i>et al.</i> (2211)
Impact of Mountain-Valley Wind Circulation on Typical Cases of Air Pollution in Beijing	DONG Qun, ZHAO Pu-sheng, WANG Ying-chun, <i>et al.</i> (2218)
Fugitive Dust Emission Characteristics from Building Construction Sites of Beijing	XUE Yi-feng, ZHOU Zhen, HUANG Yu-hu, <i>et al.</i> (2231)
Characteristics of Volatile Organic Compounds Emitted from Biomass-pellets-fired Boilers	WU Chang-da, ZHANG Chun-lin, BAI Li, <i>et al.</i> (2238)
Effect of VOCs on O ₃ and SOA Formation Potential During the Combined Pollution Process in Guangzhou Panyu Atmospheric Composition Station	ZOU Yu, DENG Xue-jiao, LI Fei, <i>et al.</i> (2246)
Characteristic Study on the "Weekend Effect" of Atmospheric O ₃ in Northern Suburb of Nanjing	WANG Jun-xiu, AN Jun-lin, SHAO Ping, <i>et al.</i> (2256)
Atmospheric Ammonia/Ammonium-nitrogen Concentrations and Wet and Dry Deposition Rates in a Double Rice Region in Subtropical China	WANG Jie-fei, ZHU Xiao, SHEN Jian-lin, <i>et al.</i> (2264)
Species of Iron in Size-resolved Particle Emitted from Xuanwei Coal Combustion and Their Oxidative Potential	WANG Qiang-xiang, TAN Zheng-ying, ZHAO Hui, <i>et al.</i> (2273)
Dioxin Pollution and Occupational Inhalation Exposure of PCDD/Fs in Municipal Solid Waste Incinerator	DU Guo-yong, WANG Qian, ZHANG Shu-lin, <i>et al.</i> (2280)
Characteristics of Mercury Emissions from Modern Dry Processing Cement Plants in Chongqing	ZHANG Cheng, ZHANG Ya-hui, WANG Yong-min, <i>et al.</i> (2287)
Correlations of Light-duty Gasoline Vehicle Emissions Based on VMAS and CVS Measurement Systems	WANG Hong-yu, HUANG Cheng, HU Qing-yao, <i>et al.</i> (2294)
Emission Characteristics of Particulate Matter from Diesel Buses Meeting Different China Emission Standards Fueled with Biodiesel	LOU Di-ming, ZHAO Cheng-zhi, XU Ning, <i>et al.</i> (2301)
Spatial Variation and Environmental Significance of $\delta^{18}\text{O}$ and δD Isotope Composition in Xijiang River	XU Qi, LI Jian-hong, SUN Ping-an, <i>et al.</i> (2308)
Comparative Study of SWAT and DNDC Applied to N Leach and Export from Subtropical Watershed	HAN Ning, CHEN Wei-liang, GAO Yang, <i>et al.</i> (2317)
Comparison of Relationship Between Conduction and Algal Bloom in Pengxi River and Modao River in Three Gorges Reservoir	JIANG Wei, ZHOU Chuan, JI Dao-bin, <i>et al.</i> (2326)
Temporal and Spatial Variation Characteristics of Nitrogen and Phosphorus in Sediment Pore Water and Overlying Water of Dianchi Caohai Lake	WANG Yi-ru, WANG Sheng-ru, JIAO Li-xin, <i>et al.</i> (2336)
Distribution and Emission Flux Estimation of Phosphorus in the Sediment and Interstitial Water of Xiangxi River	LUO Yu-hong, NIE Xiao-qian, LI Xiao-ling, <i>et al.</i> (2345)
Pollution Characteristics and Risk Assessment of Heavy Metals in Water and Sediment from Daye Lake	ZHANG Jia-quan, TIAN Qian, XU Da-mao, <i>et al.</i> (2355)
Formation of Brominated Disinfection By-products in Low Temperature Multi-effect Distillation (LT-MED) Process for Seawater Desalination	QI Fei, SUN Ying-xue, YANG Zhe, <i>et al.</i> (2364)
Applicability Comparison and Application Study of Two Methods for Determination of the Copper Complexing Capacity of Waters	WANG Chen-ye, JIANG Kuo, XIE Wen-long, <i>et al.</i> (2373)
Performance of Applying Scale Permeable Pavements for Control of Runoff Pollution in an Area with High Groundwater Level	JIN Jian-rong, LI Tian, SHI Zhen-bao, <i>et al.</i> (2379)
Removal of 2,4-dichlorophenol in Underground Water by Stabilized Nano Zero-valent Iron	ZHANG Yong-xiang, CHANG Shan, LI Fei, <i>et al.</i> (2385)
Enhancement of Sulfamerazine Degradation Under H ₂ O ₂ /KI System by Ultrasound and UVA Irradiation	WEI Hong, SUN Bo-cheng, YANG Xiao-yu, <i>et al.</i> (2393)
Comparison of Phosphate Adsorption onto Zirconium-Modified Bentonites with Different Zirconium Loading Levels	JINAG Bo-hui, LIN Jian-wei, ZHAN Yan-hui, <i>et al.</i> (2400)
Removal of Nitrogen in Municipal Secondary Effluent by a Vertical Flow Constructed Wetland Associated with Iron-carbon Internal Electrolysis	ZHENG Xiao-ying, ZHU Xing, ZHOU Xiang, <i>et al.</i> (2412)
Purification Efficiency and Influencing Factors of Combined Bio-filters for Aquaculture Wastewater	ZHANG Shi-yang, ZHANG Sheng-hua, ZHANG Xiang-ling, <i>et al.</i> (2419)
Effect of Temperature on PAO Activity and Substrate Competition	ZHANG Ling, PENG Dang-cong, CHANG Die, <i>et al.</i> (2429)
Enrichment and Nitrogen Removal Characteristics of Marine Anaerobic Ammonium Oxidizing Bacteria	FENG Li, YU De-shuang, LI Jin, <i>et al.</i> (2435)
Ammonia Removal Rate and Microbial Community Structures in Different Biofilters for Treating Aquaculture Wastewater	ZHOU Hong-yu, HAN Mei-lin, QIU Tian-lei, <i>et al.</i> (2444)
Influence of Phosphate on Nitrogen Removal Efficiency of ANAMMOX Sludge	ZHOU Zheng, LIU Kai, WANG Fan, <i>et al.</i> (2453)
Characteristics and Mechanism of Biological Nitrogen and Phosphorus Removal Granular Sludge Under Carbon Source Stress	QIN Shi-you, CHEN Wei, MA Zhao-nui, <i>et al.</i> (2461)
Evolution of Extracellular Polymeric Substances of the Activated Sludge with Calcium Ion Addition During Set-up Period of Sequencing Batch Reactors	REN Li-fei, YANG Xin-ping, ZHANG Wen-wen, <i>et al.</i> (2470)
Isolation, Identification and Characterization of the Filamentous Microorganisms from Bulking Sludge	ZHANG Chong-miao, NIU Quan-rui, XU Li-mei, <i>et al.</i> (2477)
Applicability and Microbial Community Structure of Denitrification Suspended Carriers	TAN Yang, LI Ji, XU Qiao, <i>et al.</i> (2486)
Effect of Thiosulfate on the Carbon Fixation Capability of <i>Thiobacillus thioparus</i> and Its Mechanism	LI Huan, WANG Lei, WANG Ya-nan, <i>et al.</i> (2496)
Characteristics of Fungi Community Structure and Genetic Diversity of Forests in Guandi Mountains	QIAO Sha-sha, ZHOU Yong-na, CHAI Bao-feng, <i>et al.</i> (2502)
Source Apportionment of Soil Heavy Metals in City Residential Areas Based on the Receptor Model and Geostatistics	CHEN Xiu-duan, LU Xin-wei, <i>et al.</i> (2513)
Environmental Health Risk Assessment of Contaminated Soil Based on Monte Carlo Method; A Case of PAHs	TONG Rui-peng, YANG Xiao-yi, <i>et al.</i> (2522)
Influencing Mechanism of Eh, pH and Iron on the Release of Arsenic in Paddy Soil	ZHONG Song-xiong, YIN Guang-cai, CHEN Zhi-liang, <i>et al.</i> (2530)
Correlations Between Different Extractable Cadmium Levels in Typical Soils and Cadmium Accumulation in Rice	CHEN Qi, DENG Xiao, CHEN Shan, <i>et al.</i> (2538)
Remedying Effects of a Combined Amendment for Paddy Soil Polluted with Cd for Spring and Autumn Rice	CHEN Li-wei, YANG Wen-tao, GU Jiao-feng, <i>et al.</i> (2546)
Effects of Two Amendments on Remedying Garden Soil Complexly Contaminated with Pb, Cd and As	TIAN Tao, LEI Ming, ZHOU Hang, <i>et al.</i> (2553)
Sorption of Phenanthrene to Soybean and Wheat Roots and the Bioavailability of Sorbed Phenanthrene	WANG Hong-ju, LI Qian-qian, SHEN Yu, <i>et al.</i> (2561)
Effects of Dissolved Organic Matter Fractions Extracted from Humus Soil on Sorption of Benzotriazole in Brown Soil and Black Soil	YANG Ning-wei, BI Er-ping, <i>et al.</i> (2568)
Effects of Topography, Tree Species and Soil Properties on Soil Enzyme Activity in Karst Regions	LUO Pan, CHEN Hao, XIAO Kong-cai, <i>et al.</i> (2577)
Effects of Long-term Organic Amendments on Soil N ₂ O Emissions from Winter Wheat-maize Cropping Systems in the Guanzhong Plain	HAO Yao-xu, LIU Ji-xuan, YUAN Meng-xuan, <i>et al.</i> (2586)
Exposure Route of Dioxin-like Polychlorinated Biphenyls in Hair Based on Passive Sampling	YUAN Hao-dong, BAI Yao, LI Qiu-xu, <i>et al.</i> (2594)
Accumulation Characteristics and Health Risk Assessment of Heavy Metals in Wild Fish Species from Diaojiang River, Guangxi	WANG Jun-neng, MA Peng-cheng, ZHANG Li-juan, <i>et al.</i> (2600)
Effect of Activated Carbon Addition on the Anaerobic Fermentation of Corn Straw in Mesophilic and Thermophilic Conditions	GAN Rong, GE Ming-min, LIU Yong-di, <i>et al.</i> (2607)
Volatile Organic Compounds (VOCs) Source Profiles of Industrial Processing and Solvent Use Emissions; A Review	WANG Hong-li, YANG Zhao-xun, JING Sheng-ao, <i>et al.</i> (2617)