

环境科学

(HUANJING KEXUE)

ENVIRONMENTAL SCIENCE

第39卷 第6期

Vol.39 No.6

2018

中国科学院生态环境研究中心 主办
科学出版社 出版



目 次

北京市二次有机气溶胶生成潜势的日变化规律	刘俊, 楚碧武, 贺泓 (2505)
太原冬季 PM _{2.5} 影响霾污染的关键尺度谱特征	杨素英, 余欣洋, 赵秀勇, 李义宇, 孙洪博, 田芷洁, 李岩, 吴尚, 王梓航 (2512)
盘锦市冬季 PM _{2.5} 水溶性离子特征及来源分析	张蕾, 姬亚芹, 王士宝, 赵静琦, 张军, 李越洋, 张伟 (2521)
广州市天河区 2016 年雨季挥发性有机物污染特征及来源解析	古颖纲, 虞小芳, 杨闻达, 田智林, 李梅, 程鹏 (2528)
热带树木燃烧颗粒物中脱水糖和醋基烯的排放特征	金诚妙, 崔敏, 韩勇, 陈颖军, 唐娇, 李军, 张干 (2538)
天津地区污染天气分析中垂直扩散指标构建及运用	蔡子颖, 韩素芹, 张敏, 姚青, 刘敬乐 (2548)
亚热带农田和林地大气氨湿沉降与混合沉降比较	朱潇, 王杰飞, 沈健林, 肖润林, 王娟, 吴金水, 李勇 (2557)
京津冀地区黄标车政策的总量减排效益评估	卢亚灵, 周佳, 程曦, 张伟, 蒋洪强 (2566)
北京北运河河流生态系统健康评价	顾晓昀, 徐宗学, 刘麟菲, 殷旭旺, 王汨 (2576)
长江武汉段丰水期水体和沉积物中多环芳烃及邻苯二甲酸酯类有机污染物污染特征及来源分析	董磊, 汤显强, 林莉, 郇超, 黎睿, 吴敏 (2588)
福建省敖江下游抗生素抗性基因分布特征	张丹丹, 郭亚平, 任红云, 周昕原, 黄福义, 张炯 (2600)
三峡库区支流河口沉积物重金属分布特征及风险评价	方志青, 陈秋禹, 尹德良, 王志康, 孙涛, 王永敏, 谢德体, 王定勇 (2607)
三峡水库蓄水至 175 m 后干流沉积物理化性质与磷形态分布特征	潘婊娟, 黎睿, 汤显强, 夏振尧, 李青云, 杨文俊, 许文年 (2615)
基于水化学和稳定同位素的白洋淀流域地表水和地下水硝酸盐来源	孔晓乐, 王仕琴, 丁飞, 梁慧雅 (2624)
天目湖沙河水库热分层变化及其对水质的影响	孙祥, 朱广伟, 笄文怡, 余茂蕾, 杨文斌, 朱梦圆, 许海, 国超旋, 余丽, 李恒鹏, 李慧赞 (2632)
重庆雪玉洞滴水水文地球化学时空变化特征及其环境意义	曾泽, 蒋勇军, 吕现福, 曾思博, 胡刘焯, 雷佳琪 (2641)
岩溶地表河旱季有色溶解有机质组成及来源: 以金佛山碧潭河为例	刘跃, 贺秋芳, 刘宁坤, 刘九雄, 王正雄, 段世辉 (2651)
托来河流域不同海拔降水稳定同位素的环境意义	李永格, 李宗省, 冯起, 肖莲桂, 吕越敏, 桂娟, 袁瑞丰, 张百娟 (2661)
五里峡水库初级生产力对水气界面二氧化碳和甲烷排放速率时空变化的影响	彭文杰, 李强, 宋昂, 靳振江 (2673)
西南山区典型河道型水库藻类功能群时空演替特征及其影响因素: 以紫坪铺水库为例	张耀文, 李洪, 李嘉, 宋洋, 张陵蕾, 李永, 蒲迅赤, 黄文典 (2680)
四明湖水库浮游植物功能类群的季节演替及其影响因子	郑诚, 陆开宏, 徐镇, 郑志明, 朱津永 (2688)
营养盐添加对水华蓝藻——卵孢金胞藻生长和竞争影响的原位实验	王梦梦, 张伟, 张军毅, 尚光霞, 杜彩丽, 王丽卿 (2698)
植物配置与进水碳氮比对沉水植物塘水质净化效果的影响	刘森, 陈开宁 (2706)
江汉平原水稻季灌排单元沟渠中氮磷变化特征及其环境风险	华玲玲, 张富林, 翟丽梅, 刘宏斌, 范先鹏, 王洪媛 (2715)
冀西北典型北方小城镇污水处理厂中抗生素的分布和去除	柴玉峰, 张玉秀, 陈梅雪, 王瑞, 柳蒙蒙, 郑嘉熹, 魏源送 (2724)
臭氧-粉末炭联用作为预处理缓解膜污染的效果与机制	董秉直, 高昊旻, 胡孟柳 (2732)
中试 SAD-ASBR 系统处理含盐废水的启动与工艺特性	于德爽, 唐佳佳, 张军, 王晓霞, 赵红, 韩长民, 孙捷 (2740)
海藻酸钙/聚 N-异丙基丙烯酰胺半互穿网络凝胶球的除磷性能	曾学阳, 骆华勇, 张耀坤, 荣宏伟, 曾子君, 钟广汇 (2748)
玉米淀粉废水短程硝化快速启动及其稳定性	龙北生, 刘迅雷, 刘红波, 杨靖新, 袁树森 (2756)
硝化细菌的培养及包埋固定化中试	杨宏, 胡银龙 (2763)
不同运行策略下厌氧氨氧化的脱氮性能	安芳娇, 彭永臻, 董志龙, 邵兆伟, 赵智超, 黄剑明, 陈永志 (2770)
高含固污泥厌氧消化中蛋白质转化规律	詹瑜, 施万胜, 赵明星, 许之扬, 阮文权, 宋联, 朱葛 (2778)
污泥富磷堆肥前后重金属赋存形态及释放能力变化	李玉, 方文, 祁光霞, 魏勇红, 刘建国, 李润东 (2786)
丝状菌污泥膨胀对脱氮除磷功能菌群的影响	高晨晨, 游佳, 陈轶, 郑兴灿, 尚巍, 张文安 (2794)
同步去除并富集磷酸盐生物膜驯化过程中微生物种群分析	孟璇, 潘杨, 章豪, 廖恒弘, 徐林建, 冯鑫, 单捷 (2802)
四环素对人工粪堆好氧堆肥过程及微生物群落演替的影响	时红蕾, 王晓昌, 李倩, 刘源 (2810)
长期定位有机物还田对关中平原夏玉米-冬小麦轮作土壤 NO 排放的影响	袁梦轩, 王晋峰, 谭跃慧, 魏静, 杨学云, 顾江新 (2819)
菌渣还田量对紫色水稻土净温室气体排放的影响	祁乐, 高明, 周鹏, 王富华, 高泳钦, 陈仕奇, 吴思琪, 邓静霖, 文婷 (2827)
¹³ C 脉冲标记法定量冬小麦光合碳分配及其向地下的输入	孙昭安, 陈清, 韩笑, 吴文良, 孟凡乔 (2837)
西南喀斯特区植被恢复对土壤氮素转化通路的影响	杨怡, 欧阳运东, 陈浩, 肖孔操, 李德军 (2845)
江苏海岸带土壤重金属来源解析及空间分布	吕建树, 何华春 (2853)
黄河下游典型区域土壤重金属来源解析及空间分布	于元赫, 吕建树, 王亚梦 (2865)
典型小城市土壤重金属空间异质性及其风险评价: 以临安市为例	郑晴之, 王楚栋, 王诗涵, 林于也, 赵科理, 吴东涛, 傅伟军 (2875)
西南某铅锌矿区农田土壤重金属空间主成分分析及生态风险评价	周艳, 陈楠, 邓绍坡, 王金忠, 张胜田, 龙涛, 李群, 林玉锁, 吴运金 (2884)
典型山核桃产区土壤重金属空间异质性及其风险评价	张红桔, 赵科理, 叶正钱, 许斌, 赵伟明, 顾晓波, 张华锋 (2893)
生物炭添加对湿地植物生长及氧化应激响应的影响	黄磊, 陈玉成, 赵亚琦, 肖广全, 杨志敏 (2904)
厌氧条件水稻土铁对砷释放的影响	王欣, 钟松雄, 陈志良, 何宏飞, 董家华, 陈晓丽 (2911)
矿业活动影响稻田土壤和稻米中重金属含量及健康风险	田美玲, 钟雪梅, 张云霞, 余元元, 庞瑞, 周浪, 宋波 (2919)
硅酸钙和生物腐殖肥复配对葱生长和镉吸收的影响	刘德玲, 尹光彩, 陈志良, 林亲铁, 刘千钧, 钟松雄, 黄玲, 张建强 (2927)
吉林四平设施土壤和蔬菜中重金属的累积特征	李莲芳, 朱昌雄, 曾希柏, 李红娜, 叶婧, 李峰, 吴翠霞 (2936)
喷施锌肥对油菜镉锌生物可给性的影响	王林, 谷朋磊, 李然, 徐应明, 孙约兵, 梁学峰, 代晶晶 (2944)
贵州草海底栖动物汞分布及其对沉积物汞的响应特征	许议元, 曾玲霞, 何天容, 陈梦瑜, 钱晓莉, 李振吉 (2953)
废旧轮胎翻新过程中多环芳烃排放及健康风险	付建平, 赵波, 黎玉清, 刘沙沙, 尹文华, 黄锦琼, 周长风, 张素坤, 贺德春, 韩静磊 (2963)
县级尺度的重庆市碳排放时空格局动态	孙秀峰, 施开放, 吴健平 (2971)
颗粒尺寸对纳米氧化物环境行为的影响	严玉鹏, 唐亚东, 万彪, 王小明, 刘凡, 冯雄汉 (2982)
防晒剂的海洋环境行为与生物毒性	朱小山, 黄静颖, 吕小慧, 杜永芬, 蔡中华 (2991)
《环境科学》征订启事 (2527)	《环境科学》征稿简则 (2723)
信息 (2826, 2852, 2910)	

亚热带农田和林地大气氮湿沉降与混合沉降比较

朱潇^{1,2,3}, 王杰飞^{1,2,3}, 沈健林^{1,2*}, 肖润林^{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, 北京 100049)

摘要: 本研究在位于我国亚热带区域的湖南省长沙县金井河流域, 设置一个农田监测点和一个林地监测点, 开展了完整的2 a(2011年3月至2013年2月)大气氮素(N)湿沉降和混合沉降(湿沉降+部分干沉降)的监测, 评价两种方法监测的大气氮素沉降的差别, 并建立一种采用氮素混合沉降来估算氮素湿沉降的方法. 结果表明采样点氮素湿沉降和混合沉降以 NH_4^+ -N沉降量最高, 其中农田点大气氮湿沉降、混合沉降量分别为 $26.2 \text{ kg} \cdot (\text{hm}^2 \cdot \text{a})^{-1}$ 、 $28.9 \text{ kg} \cdot (\text{hm}^2 \cdot \text{a})^{-1}$, 湿沉降、混合沉降 NH_4^+ -N、 NO_3^- -N和可溶性有机氮(DON)分别占湿沉降、混合沉降总氮(TN)的49.7%、31.3%、19.0%和48.7%、31.6%、19.7%. 林地点大气氮湿沉降、混合沉降量分别为 $23.6 \text{ kg} \cdot (\text{hm}^2 \cdot \text{a})^{-1}$ 、 $27.8 \text{ kg} \cdot (\text{hm}^2 \cdot \text{a})^{-1}$, 湿沉降、混合沉降 NH_4^+ -N、 NO_3^- -N和DON分别占湿沉降、混合沉降TN的53.9%、34.8%、11.4%和49.6%、31.6%、18.9%. 研究区域降雨量与湿沉降、混合沉降雨水中 NH_4^+ -N、 NO_3^- -N和TN浓度均有极显著负相关关系, 而与沉降量有显著正相关性. 两监测点湿沉降与混合沉降的雨水中N素浓度具有极显著线性相关性(决定系数大于0.82), 根据二者之间建立的回归方程, 农田点采用混合沉降估算湿沉降中 NH_4^+ -N、 NO_3^- -N和TN沉降的系数值分别为0.875、0.774和0.852; 林地点相应的系数值分别为0.859、0.783和0.819, 该系数值主要与监测点的氮素湿沉降量及大气颗粒态氮的污染水平有关. 亚热带区域采用大气氮素混合沉降替代氮素湿沉降, 将导致氮素湿沉降被高估10%~18%, 利用氮素混合沉降和氮素湿沉降之间的回归方程, 可以较好实现采用混合沉降来估算湿沉降.

关键词: 大气活性氮; 氮沉降; 湿沉降; 混合沉降; 农田生态系统; 森林生态系统

中图分类号: X51 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2018)06-2557-09 DOI: 10.13227/j.hjxx.201710127

Comparison Between Atmospheric Wet-only and Bulk Nitrogen Depositions at Two Sites in Subtropical China

ZHU Xiao^{1,2,3}, WANG Jie-fei^{1,2,3}, SHEN Jian-lin^{1,2*}, XIAO Run-lin^{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. University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China)

Abstract: Atmospheric emissions of reactive nitrogen (N) species are at high levels and have caused high N deposition in China in recent years. In this study, atmospheric wet-only and bulk N depositions were monitored simultaneously in a two-year study at an agricultural site (HN) and a forest site (XS) in the Jinjing River catchment in Changsha County, Hunan Province in subtropical China. The differences in concentration and deposition of NH_4^+ -N, NO_3^- -N, DON, and TN between wet-only and bulk N depositions were compared, and the correlation between wet-only and bulk N depositions was analyzed, with the aim of estimating atmospheric wet N deposition based on bulk N deposition. During the monitoring period, NH_4^+ -N was the dominant species in both wet-only and bulk deposition at the sampling sites. The average values of total N (TN) depositions for wet-only and bulk depositions at HN were 26.2 and $28.9 \text{ kg} \cdot (\text{hm}^2 \cdot \text{a})^{-1}$, respectively. The proportions of NH_4^+ -N, NO_3^- -N, and DON in TN in wet-only deposition were 49.7%, 31.3%, and 19.0%, respectively, while the proportions in the bulk deposition were 48.7%, 31.6%, and 19.7%, respectively. The average values of TN depositions for wet-only and bulk depositions at XS were 23.6 and $27.8 \text{ kg} \cdot (\text{hm}^2 \cdot \text{a})^{-1}$, respectively. The proportions of NH_4^+ -N, NO_3^- -N, and DON in TN in wet-only deposition were 53.9%, 34.8%, and 11.4%, respectively, while they were 49.6%, 31.6%, and 18.9%, respectively, for bulk deposition. The concentrations of N species in wet-only and bulk depositions were significantly and negatively correlated with precipitation, while the amount of N deposition was significantly and positively correlated with precipitation. The concentrations of N species in wet-only deposition had a significant linear correlation with those in the bulk deposition at the two sites ($R^2 > 0.82$). According to the regression equation for wet-only and bulk N deposition at

收稿日期: 2017-10-18; 修订日期: 2017-12-18

基金项目: 国家重点研发计划项目(2016YFD0200307, 2017YFD0800104); 国家自然科学基金项目(41371303, 41771336)

作者简介: 朱潇(1993~), 女, 硕士研究生, 主要研究方向为农田活性氮排放与沉降, E-mail: 2455232525@qq.com

* 通信作者, E-mail: jlshen@isa.ac.cn

the monitoring sites, the proportions of $\text{NH}_4^+\text{-N}$, $\text{NO}_3^-\text{-N}$, and TN in wet-only to bulk deposition were 0.875, 0.774, and 0.852, respectively, at HN and 0.859, 0.783, and 0.819, respectively, at XS. These values were mainly related to the amount of wet-only N deposition and the pollution level of atmospheric particulate N species at the monitoring sites. In the subtropical region of China, atmospheric wet N deposition can be overestimated by 10% to 18% when the atmospheric bulk N deposition is used to replace the wet N deposition. Based on the regression equation between atmospheric bulk N deposition and wet N deposition, the atmospheric wet N deposition can be estimated well using the atmospheric bulk N deposition data.

Key words: atmospheric reactive N; N deposition; wet-only deposition; bulk deposition; agro-ecosystem; forest ecosystem

近几十年来,伴随我国经济的快速发展,畜禽养殖数量、化学氮肥使用量以及化肥燃料消耗量不断增加,从而导致排放到大气中的氨气(NH_3)及氮氧化物(NO_x)也呈持续激增的态势^[1].排放到大气中的 NH_3 和 NO_x 及其二次反应的衍生物(如 HNO_3 、颗粒态 NH_4^+ 和 NO_3^-),最终将通过干湿沉降返回到陆地和水生生态系统中,可导致土地、水体酸化和水体富营养化^[2],降低生态系统生产力^[3],并影响农田、森林、草地等生态系统的结构稳定性和功能稳定性^[4],造成生态系统多样性丧失等一系列全球性生态问题^[5].Holland 等^[6]基于观测数据运用模型模拟表明,2006~2008 年美国大陆的氮沉降量为 $3.7 \sim 4.5 \text{ Tg} \cdot \text{a}^{-1}$,西欧的氮沉降量为 $8.4 \sim 10.8 \text{ Tg} \cdot \text{a}^{-1}$,Lu 等^[7]在 2014 年的研究结果表明中国区域总氮沉降量在 21 世纪初为 $18.3 \text{ Tg} \cdot \text{a}^{-1}$.现有结果表明中国地区氮沉降量已超过欧洲与北美地区,成为氮沉降最严重的区域.同时,中国区域氮沉降时空格局模拟研究表明,1961~2010 年的 50 年内,中国陆地大气氮沉降速率由 $0.29 \text{ g} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{a})^{-1}$ 增长到 $2.32 \text{ g} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{a})^{-1}$,增加近 8 倍^[8].这些研究表明,大气氮沉降已成为我国陆地和水生生态系统氮素的重要来源.

大气氮沉降主要包括干沉降和湿沉降^[9].大气氮湿沉降是指在重力作用下,水溶性或颗粒态氮被雨雪溶解或冲刷至地面的过程^[10].大气干沉降是指大气中的气态和颗粒态氮在没有降雨事件情况下,以气体、气溶胶或降尘的形式直接沉降到地表的现象^[11].大气混合沉降是指采用一直敞口的雨量器或雨量筒收集的大气湿沉降,由于在未下雨期间,雨量筒会接收部分干沉降,因此混合沉降即混合有部分干沉降的湿沉降^[12].我国亚热带区域是我国工业、农业和交通运输业均十分发达的区域,在高的活性氮排放下,大气氮沉降量也较高^[13,14].据 Kuang 等^[15]对四川盐亭农田的大气氮沉降研究表明,该地区的大气湿沉降量为 $16.7 \text{ kg} \cdot (\text{hm}^2 \cdot \text{a})^{-1}$,郑祥洲等^[16]对闽西北农田生态系统中氮沉降研究表明该地区的氮素年湿沉降(实为

混合沉降)总量平均值为 $12.7 \text{ kg} \cdot (\text{hm}^2 \cdot \text{a})^{-1}$.孙素琪等^[17]监测到重庆缙云山林地大气湿沉降量为 $11.5 \text{ kg} \cdot (\text{hm}^2 \cdot \text{a})^{-1}$,Fang 等^[18]在广东肇庆森林测得大气湿沉降(实为混合沉降)总量为 $16.2 \sim 38.2 \text{ kg} \cdot (\text{hm}^2 \cdot \text{a})^{-1}$.目前的研究多针对较为单一的生态系统,且都集中在干沉降或湿沉降,甚至有部分学者用混合沉降代替湿沉降,一定程度上造成对研究区域的大气氮湿沉降结果的高估^[19~21].我国虽然从 20 世纪 70 年代末以来就已经陆续开展了氮素沉降的监测工作,但对不同土地利用类型的氮湿沉降与混合沉降进行比较的报道还比较少见,本研究通过对湖南亚热带地区农田与林地大气活性氮湿、混合沉降量的监测,评价两种方法监测的氮素沉降的差别,并建立一种采用混合沉降来估算湿沉降的方法,以期为全国氮沉降状况提供基础数据.

1 材料与方法

1.1 采样点概况

采样点位于湖南省长沙市东北约 70 km 的长沙县金井镇境内的金井河流域内,金井河为湘江支流捞刀河的支流,金井河流域总面积约 135 km^2 ,海拔 43~460 m,地势北高南低,流域内年平均降雨量 1 200~1 500 mm,主要集中在 4~10 月,年平均气温 17.5°C ,年日照时数 1 663 h,无霜期 274 d,是典型亚热带红壤丘陵地貌.流域内主要有稻田、林地、茶园等土地利用方式,分别占流域面积的 26.5%、65.5% 和 2.4%^[22].本研究分别在流域内主要土地方式下的一成片稻田区域(惠农点,HN)和连片林地(西山点,XS)设置湿沉降和混合沉降监测点.稻田面积 20 hm^2 (HN),主要种植双季稻,年施肥量 $360 \text{ kg} \cdot (\text{hm}^2 \cdot \text{a})^{-1}$.林区面积 50 hm^2 (XS),海拔 80~400 m,主要为马尾松次生林.

1.2 样品采集

本研究在 HN 和 XS 开展完整的 2 a(2011 年 3 月至 2013 年 2 月)大气氮湿沉降与混合沉降监测.在两个样地内分别设置湿沉降采样器和混合沉降采样器各一台,固定在距地面 1.5 m 处.稻田采样点

设置在稻区的中心(HN), 林地采样点设置在林区中部一水库边的空地上(XS), 以方便连接交流电. 大气湿沉降降雨收集采用 I-5020 型智能采样器(青岛崂应, 中国), 该仪器采用微电脑控制, 降雨开始后采样器自动打开收集, 雨停立即封盖, 使样品不受干沉降影响. 大气混合沉降雨水收集采用 SDM6 雨量器(天津气象仪器厂, 中国), 收集口与储存瓶之间加设纱网, 避免鸟粪等其他固态颗粒杂质落入污染样品. 于每次降雨后当日或次日 08:00 收集, 记录降雨量, 采集时将雨水摇匀, 取 500 mL 水样装入聚乙烯样品瓶中, 不足 500 mL 的全部带回, 于 -18°C 条件下保存并于两个月内完成化学分析.

1.3 样品分析

样品测定项目包括总氮(TN)、硝态氮(NO_3^- -N)、铵态氮(NH_4^+ -N)和可溶性有机氮(DON). 样品在室温下解冻, 用 $0.45\mu\text{m}$ 的微孔滤膜过滤, NH_4^+ -N、 NO_3^- -N 直接采用流动分析仪测定(Auto Analyzer 3, SEAL Analytical, 德国), TN 经碱性过硫酸钾消解后转化为 NO_3^- -N, 采用流动分析仪测定. 利用 TN 与 NH_4^+ -N、 NO_3^- -N 的差值计算 DON.

1.4 数据处理

通过对原始数据分析整理, 采用 Office 2010、SPSS 和 Origin 软件对数据资料进行分析处理. 降雨中 NH_4^+ -N 和 NO_3^- -N 的月平均浓度则利用每次降雨中的 N 素浓度结合降雨量体积加权平均表示, 湿、混合沉降中 N 的月或年浓度(c)和沉降量(D)分别根据公式(1)和公式(2)计算:

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

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

式中, c_i 为每次降雨中的 N 素浓度($\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$), P_i 为每次降雨的降雨量(mm), n 为对应时段内降雨次数, 100 为换算系数.

2 结果与分析

2.1 监测点降雨量、湿沉降与混合沉降活性氮各组分浓度月变化

2.1.1 监测点降雨量月变化

图 1 为 2011 年 3 月至 2013 年 2 月监测点降雨量月变化. 从中可知, 两监测点的降雨季节分布不

均, HN 点监测期间年平均降雨量 1 456.6 mm, 降雨主要集中在 4 ~ 11 月, 约占年均降雨量的 77.2%, 两年共收集湿沉降和混合沉降降雨样品各 146 个. 月降雨量最大为 375.7 mm(2012 年 5 月), 次大为 313.8 mm(2011 年 6 月); 最小为 17.8 mm(2011 年 12 月), 次小为 19.5 mm(2013 年 1 月). XS 点监测期间年平均降雨量 1 457.8 mm, 降雨主要集中在 3 ~ 8 月, 约占年均降雨量的 72.6%, 两年共收集湿沉降和混合沉降降雨样品各 137 个. 月降雨量最大为 338.1 mm(2012 年 5 月), 次大为 266.3 mm(2011 年 6 月); 最小为 10.5 mm(2013 年 1 月), 次小为 14.9 mm(2012 年 9 月). 两监测点年均降雨量差距较小, 月均降雨量在降雨不集中的月份差异不明显, 但在高峰期差异显著(图 1).

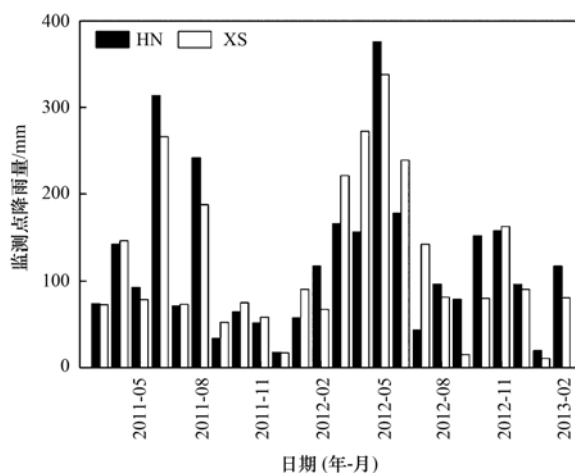


图 1 监测点降雨量月变化

Fig. 1 Monthly variation of precipitation at the two monitoring sites

2.1.2 监测点湿沉降与混合沉降活性氮各组分浓度月变化

监测期 HN 和 XS 湿沉降与混合沉降 NH_4^+ -N、 NO_3^- -N、DON 和 TN 浓度及其变化特征如图 2 所示. 两监测点降雨中无机氮组分以 NH_4^+ -N 为主, HN 湿沉降与混合沉降 NH_4^+ -N 月浓度均呈现明显的季节变化差异, 冬季 NH_4^+ -N 浓度显著高于其它季节[图 2(a)]. 其中 HN 湿沉降 NH_4^+ -N 浓度变化范围为 $0.30 \sim 2.18 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$, 混合沉降 NH_4^+ -N 浓度变化范围为 $0.35 \sim 2.18 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$. XS 湿沉降、混合沉降 NH_4^+ -N 浓度变化范围分别为 $0.12 \sim 2.43 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 和 $0.03 \sim 2.45 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$. 由表 1 可知, HN 和 XS 的湿、混合沉降 NH_4^+ -N 浓度与降雨量均达到极显著负相关关系.

监测点 NO_3^- -N 浓度变化趋势与 NH_4^+ -N 基本同

步, 11 月至次年 3 月的 NO_3^- -N 浓度明显高于其它月份[图 2(b)]. 监测期间 HN 湿沉降 NO_3^- -N 浓度变化范围为 $0.18 \sim 1.68 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$, 混合沉降 NO_3^- -N 浓度变化范围为 $0.21 \sim 1.87 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$. XS 湿沉降、混合沉降 NO_3^- -N 浓度变化范围分别为 $0.05 \sim 2.43 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 和 $0.06 \sim 2.43 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$. 由表 1 可见, 降雨量与两监测点的湿、混合沉降中 NO_3^- -N 浓度均达到极显著负相关关系.

监测点 DON 浓度随时间呈单峰形, HN 湿沉降与混合沉降的 DON 浓度的最大值分别为 1.27

$\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 和 $1.03 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$, XS 湿沉降与混合沉降的 DON 浓度的最大值分别为 $0.74 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 和 $1.53 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ [图 2(c)]. 但两地湿、混合沉降 DON 浓度与降雨量均无明显相关性.

两监测点 TN 月浓度极值与 NH_4^+ -N、 NO_3^- -N 浓度极值出现较为一致[图 2(d)]. 在监测期 HN 湿沉降 TN 浓度于 2011 年 11 月达到最大值 $4.21 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$, 于 2011 年 6 月达到最小值 $0.79 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$, 混合沉降 TN 浓度变化范围为 $0.81 \sim 4.12 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$. XS 湿、混合沉降的 TN 浓度变化范围分别为 0.87

表 1 降雨量与监测点湿沉降及混合沉降雨水中各形态氮浓度的相关系数¹⁾

Table 1 Correlation coefficients between precipitation and concentrations of various nitrogen forms in wet-only deposition and bulk deposition at the two sites

氮素形态	HN-湿沉降	HN-混合沉降	XS-湿沉降	XS-混合沉降
NH_4^+ -N	-0.404 **	-0.430 **	-0.367 **	-0.349 **
NO_3^- -N	-0.456 **	-0.475 **	-0.426 **	-0.397 **
DON	0.066	0.124	0.038	0.287 **
TN	-0.413 **	-0.443 **	-0.417 **	-0.388 **

1) ** 表示相关系数在 0.01% 水平上显著, * 表示 0.05% 水平上显著, 下同

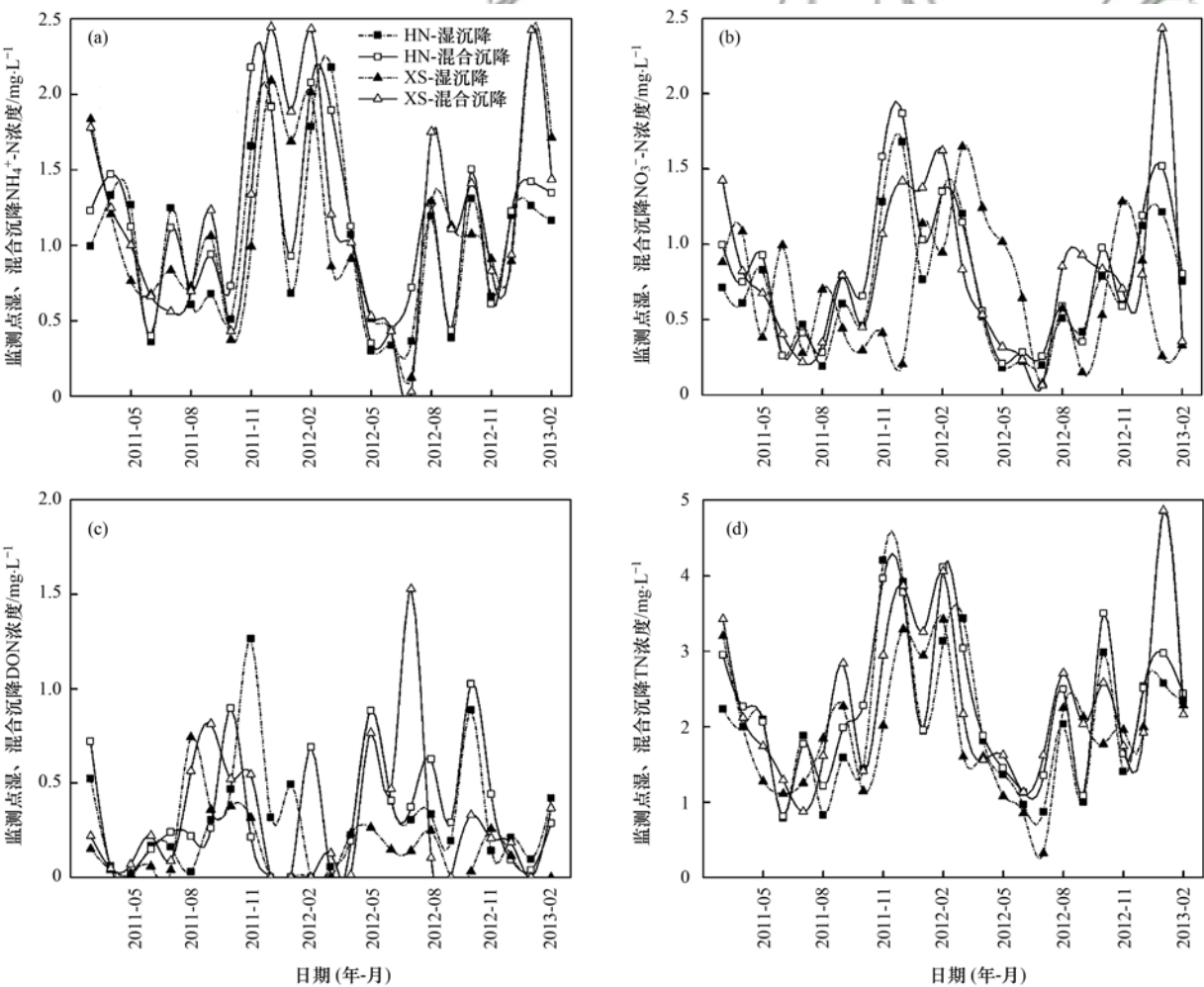


图 2 监测点湿沉降与混合沉降雨水中 NH_4^+ -N、 NO_3^- -N、DON 和总氮浓度月变化

Fig. 2 Monthly variations of concentrations of NH_4^+ -N, NO_3^- -N, DON, and total N in wet-only and bulk depositions at the two sites

~4.86 mg·L⁻¹、0.32 ~ 4.86 mg·L⁻¹。两地湿、混合沉降 TN 浓度与降雨量均达到极显著负相关关系，其 Pearson 相关系数分别为 -0.413^{**}、-0.443^{**}、-0.417^{**}和 -0.388^{**}。

2.2 监测点湿沉降与混合沉降活性氮各组分沉降量月变化

2.2.1 HN 监测点湿沉降与混合沉降活性氮各组分沉降量月变化

由图 3 可知，HN 监测期内大气湿、混合沉降 NH₄⁺-N、NO₃⁻-N 和 TN 通量月变化趋势基本同步，2011 年集中在 3 ~ 6 月，2012 年集中在 1 ~ 5 月和 10 ~ 12 月。其中 NH₄⁺-N 的湿沉降与混合沉降月均沉降量分别为 1.08 kg·(hm²·month)⁻¹ 和 1.17 kg·(hm²·month)⁻¹。NO₃⁻-N 湿、混合沉降月均沉降量分别为 0.68 kg·(hm²·month)⁻¹ 和 0.76 kg·(hm²·month)⁻¹，DON 月均湿、混合沉降量分别为 0.41 kg·(hm²·month)⁻¹ 和 0.48 kg·(hm²·month)⁻¹。湿沉降与混合沉降 TN 月通量变化范围分别为 0.38 ~ 5.71 kg·(hm²·month)⁻¹ 和 0.58 ~ 5.44 kg·(hm²·month)⁻¹，年均湿沉降、混合沉降量分别为 26.2 kg·(hm²·a)⁻¹、28.9 kg·(hm²·a)⁻¹。湿沉降 NH₄⁺-N、NO₃⁻-N 和 DON 分别占湿沉降 TN 的 49.7%、31.3% 和 19.0%。混合沉降 NH₄⁺-N、NO₃⁻-N 和 DON 分别占混合沉降 TN 的 48.7%、31.6% 和 19.7%。

2.2.2 XS 监测点湿沉降与混合沉降活性氮各组分沉降量月变化

XS 监测期内大气湿、混合沉降 NH₄⁺-N、

NO₃⁻-N 和 TN 通量月变化趋势基本同步，且与 HN 监测点的变化趋势较为一致。沉降主要集中在 2011 年 3 ~ 6 月和 2012 年 1 ~ 5 月、10 ~ 12 月。其中 XS 的 NH₄⁺-N 湿沉降与混合沉降月均沉降量分别为 1.06 kg·(hm²·month)⁻¹ 和 1.15 kg·(hm²·month)⁻¹。湿、混合沉降 NO₃⁻-N 月均沉降量分别为 0.68 kg·(hm²·month)⁻¹、0.73 kg·(hm²·month)⁻¹。DON 月均湿、混合沉降量分别为 0.22 kg·(hm²·month)⁻¹、0.44 kg·(hm²·month)⁻¹。XS 湿沉降与混合沉降变化范围分别为 0.32 ~ 4.36 kg·(hm²·month)⁻¹ 和 0.30 ~ 5.47 kg·(hm²·month)⁻¹，年均湿、混合沉降量为 23.6 kg·(hm²·a)⁻¹、27.8 kg·(hm²·a)⁻¹。湿、混合沉降 NH₄⁺-N、NO₃⁻-N 和 DON 分别占湿、混合沉降 TN 的 53.9%、34.8%、11.4% 和 49.6%、31.6%、18.9%。

2.2.3 监测点湿沉降与混合沉降活性氮各组分沉降量与降雨量的相关关系

监测点湿、混合沉降量与降雨量的相关关系由表 2 可知，两监测点湿沉降与混合沉降各形态氮沉降量与降雨量均呈极显著正相关关系，降雨量大的月份，其沉降量也随之增加。监测点湿、混合沉降各形态氮之间的相关关系可见表 3，监测点 NH₄⁺-N 与 NO₃⁻-N 湿、混合沉降量的 Pearson 相关系数均大于 0.839^{**}，达到极显著正相关关系。NH₄⁺-N、NO₃⁻-N 和 DON 与 TN 湿、混合沉降量均达到极显著正相关关系。

表 2 降雨量与监测点湿沉降及混合沉降各形态氮沉降量的相关系数
Table 2 Correlation coefficients between precipitation and deposition of various nitrogen forms in wet-only deposition and bulk deposition at the two sites

氮素形态	HN-湿沉降	HN-混合沉降	XS-湿沉降	XS-混合沉降
NH ₄ ⁺ -N	0.539 ^{**}	0.499 ^{**}	0.486 ^{**}	0.518 ^{**}
NO ₃ ⁻ -N	0.436 ^{**}	0.432 ^{**}	0.385 ^{**}	0.436 ^{**}
DON	0.516 ^{**}	0.539 ^{**}	0.557 ^{**}	0.324 ^{**}
TN	0.624 ^{**}	0.618 ^{**}	0.734 ^{**}	0.584 ^{**}

表 3 监测点湿沉降及混合沉降中各形态氮沉降量的相关系数

Table 3 Correlation coefficient matrix of deposition of various nitrogen forms for both wet-only deposition and bulk deposition at the two sites

氮素形态	HN-湿沉降			HN-混合沉降			XS-湿沉降			XS-混合沉降		
	NO ₃ ⁻	DON	TN	NO ₃ ⁻	DON	TN	NO ₃ ⁻	DON	TN	NO ₃ ⁻	DON	TN
NH ₄ ⁺	0.933 ^{**}	0.187 [*]	0.920 ^{**}	0.916 ^{**}	0.274 ^{**}	0.906 ^{**}	0.839 ^{**}	0.028	0.922 ^{**}	0.879 ^{**}	-0.32	0.716 ^{**}
NO ₃ ⁻		0.187 [*]	0.901 ^{**}		0.276 ^{**}	0.888 ^{**}		-0.011	0.869 ^{**}		-0.62	0.671 ^{**}
DON			0.543 ^{**}			0.693 ^{**}			0.358 ^{**}			0.661 ^{**}

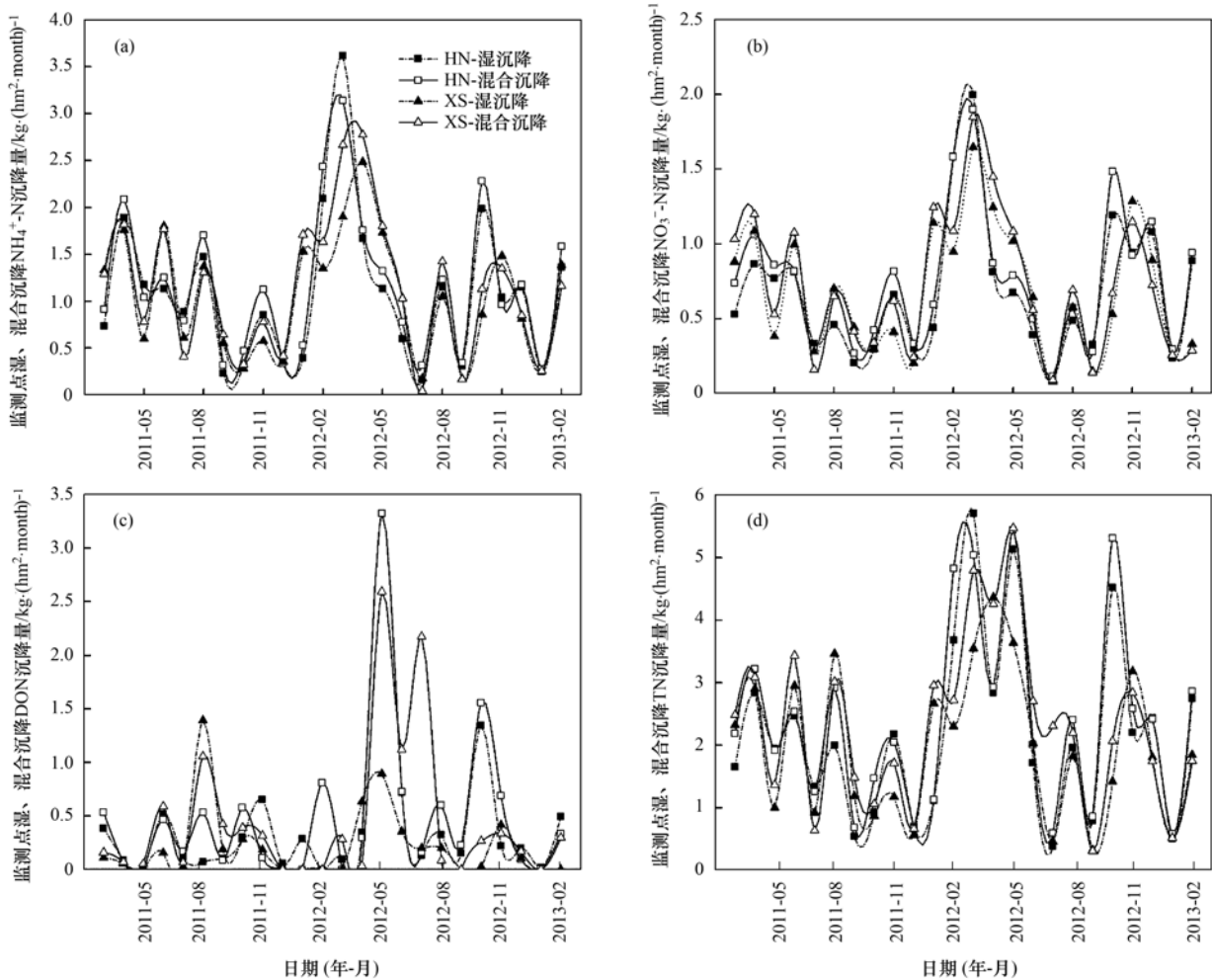


图3 监测点湿沉降与混合沉降雨水中 NH_4^+ -N、 NO_3^- -N、DON和总氮沉降量月变化

Fig. 3 Monthly variations of deposition amounts of NH_4^+ -N, NO_3^- -N, DON, and total N in wet-only and bulk depositions at the two sites

2.3 混合沉降对湿沉降的估算模拟与比较

2.3.1 HN 混合沉降对湿沉降的估算模拟与比较

采样期间, HN 大气氮混合沉降 NH_4^+ -N、 NO_3^- -N、TN 浓度对湿沉降浓度的估算模拟见图 4 (a)~4(c). 各形态氮浓度线性拟合方程式决定系数(R^2)均高于 0.871. 说明农田生态系统混合沉降与湿沉降的 N 营养盐极显著正相关. 混合沉降各形态氮浓度均高于湿沉降. 其中可将 87.5% 的混合沉降 NH_4^+ -N 浓度视为湿沉降浓度; NO_3^- -N 与 TN 湿沉降占混合沉降的比例则为 77.4% 和 85.3%.

2.3.2 XS 混合沉降对湿沉降的估算模拟与比较

XS 大气氮混合沉降各形态氮浓度与湿沉降浓度的估算模拟见图 4 (d)~4(f). 湿沉降 NH_4^+ -N、 NO_3^- -N、TN 浓度分别占混合沉降的 85.9%、78.4% 和 81.9%. 其回归方式的 R^2 均大于 0.822.

3 讨论

本研究结果表明, 亚热带农田和林地点氮素湿沉

降和混合沉降存在极显著的正线性相关, 可以用氮素混合沉降结果来估算氮素湿沉降的结果. 鉴于在野外开展的湿沉降采样, 由于需要接入交流电、易遭受雷击等因素, 往往难以实施或长期连续实施. 而混合沉降监测由于不需要交流电, 通常简单易行. 氮素混合沉降由于包含部分氮素干沉降, 如用其代替氮素湿沉降会导致对湿沉降的高估^[23, 24]. 本研究结果表明, 用氮素混合沉降替代氮素湿沉降, 将导致农田和林地点氮素湿沉降分别被高估 10.3% 和 17.8%. 鉴于此, 建立由混合沉降推算湿沉降的关系式, 可以使得氮素湿沉降监测变得更加简单易行, 也可减少用混合沉降直接代替湿沉降导致的对氮沉降的高估.

本研究在农田点用混合沉降中 NH_4^+ -N、 NO_3^- -N 与 TN 沉降量估算湿沉降中相应组分的沉降量的系数分别是 0.875、0.774 和 0.853, 在林地点相应的系数分别为 0.859、0.784 和 0.819. 两个样点利用

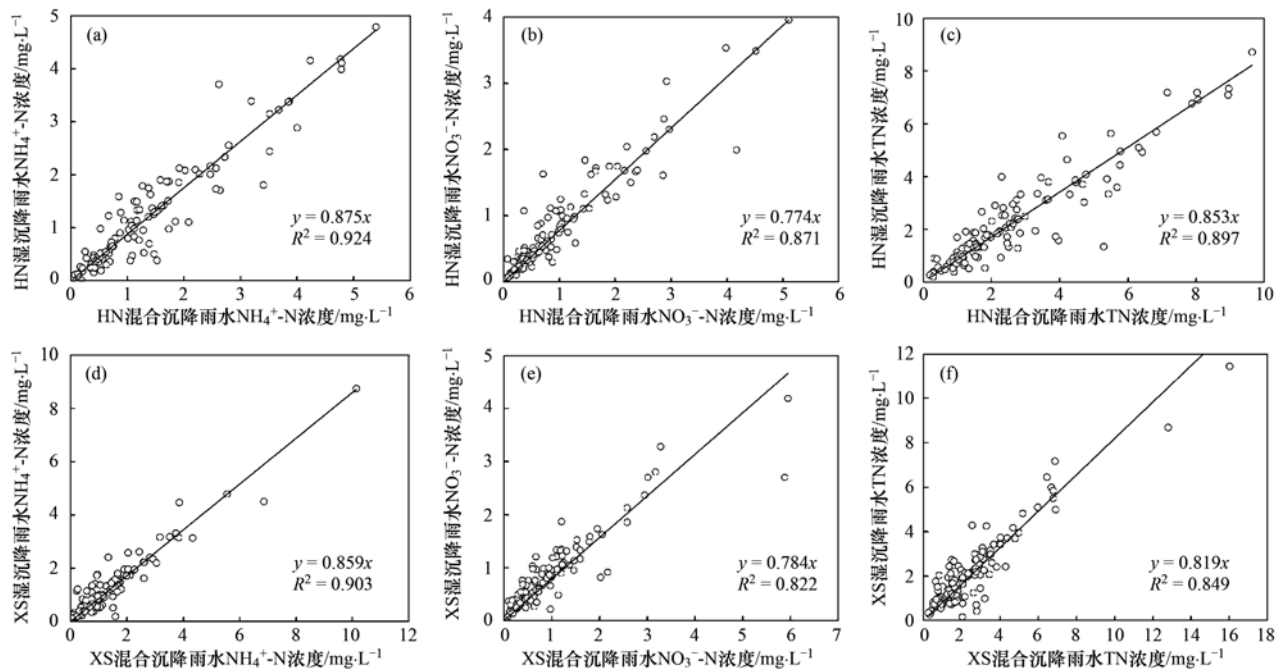


图4 监测点混合沉降与湿沉降雨水中各形态氮浓度的相关性

Fig. 4 Relationship between concentrations of various N forms in wet-only and bulk depositions at the two sites

混合沉降估算湿沉降的不同活性氮组分沉降量的系数比较接近,这可能与两个样点氮素湿沉降量比较接近,以及两个样点气态和气溶胶态活性氮浓度差别不大^[25],以致混合沉降中的干沉降相差不大有关.这也表明,在湿沉降量和大气活性氮浓度稳定的条件下,该系数也具有一定的稳定性.收集混合沉降的雨水量采用不锈钢材质、属惰性材料,由于气态 NH_3 、 NO_2 和 HNO_3 在惰性介质表面难以沉降或沉降后极易再挥发,则在雨量筒上产生干沉降的主要是气溶胶中的 NH_4^+ -N和 NO_3^- -N.根据在2011年3月~2013年2月间在两采样点监测到的颗粒态 NH_4^+ -N和 NO_3^- -N平均浓度分别为 $4.34 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 和 $1.30 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ (HN)以及 $4.53 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 和 $1.70 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ (XS)^[22, 25],颗粒态 NH_4^+ -N和 NO_3^- -N的平均干沉降速率按 $0.12 \text{ cm}\cdot\text{s}^{-1}$ 计^[26],初步估算得到HN点混合沉降中干沉降的 NH_4^+ -N和 NO_3^- -N分别为 $1.64 \text{ kg}\cdot(\text{hm}^2\cdot\text{a})^{-1}$ 和 $0.49 \text{ kg}\cdot(\text{hm}^2\cdot\text{a})^{-1}$,XS点相应值为 $1.71 \text{ kg}\cdot(\text{hm}^2\cdot\text{a})^{-1}$ 和 $0.64 \text{ kg}\cdot(\text{hm}^2\cdot\text{a})^{-1}$.而根据本研究中混合沉降和湿沉降中 NH_4^+ -N及 NO_3^- -N的差值,估算得到HN点混合沉降中的干沉降 NH_4^+ -N和 NO_3^- -N分别为 $1.08 \text{ kg}\cdot(\text{hm}^2\cdot\text{a})^{-1}$ 和 $0.96 \text{ kg}\cdot(\text{hm}^2\cdot\text{a})^{-1}$,XS点相应值为 $1.08 \text{ kg}\cdot(\text{hm}^2\cdot\text{a})^{-1}$ 和 $0.60 \text{ kg}\cdot(\text{hm}^2\cdot\text{a})^{-1}$.采用两种方法所估算得到的混合沉降中 NH_4^+ -N和 NO_3^- -N干沉降比较接近,说明颗粒态含氮组分(包

括 NH_4^+ -N、 NO_3^- -N和DON)的干沉降可能是混合沉降中干沉降的主要来源.我国北方地区由于大气气溶胶污染较严重,大气颗粒态 NH_4^+ -N和 NO_3^- -N浓度较高,以致于在我国北京东北旺观测到混合沉降的氮素输入量比湿沉降高 $5.7 \sim 8.3 \text{ kg}\cdot(\text{hm}^2\cdot\text{a})^{-1}$,氮素湿沉降仅占混合沉降的73%^[23, 24].Shen等^[27]在北京东北旺测定的大气颗粒物 PM_{10} 中的 NH_4^+ -N和 NO_3^- -N浓度分别为 $7.1 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 和 $4.0 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$,初步估算混合沉降中干沉降的 NH_4^+ -N和 NO_3^- -N分别为 $2.7 \text{ kg}\cdot(\text{hm}^2\cdot\text{a})^{-1}$ 和 $1.5 \text{ kg}\cdot(\text{hm}^2\cdot\text{a})^{-1}$.考虑到在我国北方地区空气动力学直径大于 $10 \mu\text{m}$ 的大气颗粒物污染也比较严重(如扬尘等),大气颗粒物的干沉降在北方地区导致较高的氮素混合沉降与湿沉降差值是可能的.因此,采用氮素的混合沉降来估算其湿沉降时,所采用的估算系数可能主要与当地的氮素湿沉降水平以及大气颗粒态氮的污染水平有关.大气颗粒态氮浓度越高,混合沉降中干沉降输入值较大,估算系数值较小;反之,大气颗粒态氮浓度越低,混合沉降中干沉降输入值较小,估算系数值较大并逐渐接近1.

本研究结果表明,氮素湿、混合沉降以 NH_4^+ -N为主,与前人在亚热带区域报道的结果较为一致^[28].本研究中亚热带农田氮素湿、混合沉降量分别为 $26.2 \text{ kg}\cdot(\text{hm}^2\cdot\text{a})^{-1}$ 和 $28.9 \text{ kg}\cdot(\text{hm}^2\cdot\text{a})^{-1}$,林地的相应沉降量分别为 $23.6 \text{ kg}\cdot(\text{hm}^2\cdot\text{a})^{-1}$ 和 27.8

$\text{kg} \cdot (\text{hm}^2 \cdot \text{a})^{-1}$. 该湿沉降值分别与江西千烟洲农田湿沉降^[29] [$23.2 \text{ kg} \cdot (\text{hm}^2 \cdot \text{a})^{-1}$] 和广东鼎湖区烂柯山湿沉降^[18] [$38.2 \text{ kg} \cdot (\text{hm}^2 \cdot \text{a})^{-1}$] 比较接近, 表明当前我国亚热带具有较高的大气氮沉降输入. 对于农田生态系统, 较高的氮沉降输入是一种重要的养分资源, 需要在氮素养分管理中加以考虑, 以减少农田氮素施用. 对于森林生态系统, 以往研究表明森林氮沉降临界负荷在 $10 \sim 20 \text{ kg} \cdot (\text{hm}^2 \cdot \text{a})^{-1}$ 之间^[30, 31], 本研究中亚热带林地仅氮素湿沉降就已超过氮沉降临界负荷值, 氮沉降对林地生态系统的影响不容忽视. 本研究结果也表明, 每月的氮素湿沉降量与降雨量呈极显著正相关. 这表明在亚热带地区大气中活性氮污染物普遍存在, 降雨产生的湿沉降是大气活性氮的重要清除方式. 因此, 要减少亚热带地区的大气氮素湿沉降, 十分有必要减少亚热带地区的大气活性氮排放. 而本研究及亚热带区域的其他研究也表明, 农业源铵氮对湿沉降氮素的贡献要高于工业及交通源硝氮对湿沉降氮素的贡献, 因此, 减少农业源氨排放对减少亚热带地区的氮沉降尤为重要^[32].

4 结论

(1) 在亚热带区典型农田和林地点进行了两年大气氮素湿沉降和混合沉降监测结果表明, 氮素湿沉降以无机氮形态为主, 占到总沉降量的 $81.0\% \sim 88.9\%$; 湿沉降的无机氮以 $\text{NH}_4^+ - \text{N}$ 为主, $\text{NH}_4^+ - \text{N} / \text{NO}_3^- - \text{N}$ 比值为 $1.55 \sim 1.59$, 降雨量与雨水中 $\text{NH}_4^+ - \text{N}$ 、 $\text{NO}_3^- - \text{N}$ 和 TN 浓度均存在显著负相关关系, 而与沉降量有显著正相关性.

(2) 两监测点湿沉降与混合沉降的雨水中 N 素浓度具有极显著线性相关性, 根据二者之间建立的回归方程, 农田点采用混合沉降估算湿沉降中 $\text{NH}_4^+ - \text{N}$ 、 $\text{NO}_3^- - \text{N}$ 和 TN 沉降的系数值分别为 0.875 、 0.774 和 0.852 ; 林地点相应的系数值分别为 0.859 、 0.783 和 0.819 , 该系数值主要与监测点的氮素湿沉降量及大气颗粒态氮的污染水平有关. 亚热带区域采用大气氮素混合沉降替代氮素湿沉降, 将导致氮素湿沉降被高估 $10\% \sim 18\%$.

参考文献:

- [1] Liu X J, Zhang Y, Han W X, *et al.* Enhanced nitrogen deposition over China [J]. *Nature*, 2013, **494** (7438): 459-462.
- [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] Lee J A, Caporn S J M. Ecological effects of atmospheric reactive nitrogen deposition on semi-natural terrestrial ecosystems [J]. *The New Phytologist*, 2010, **139**(1): 127-134.
- [5] Bouwman A F, Lee D S, Asman W A H, *et al.* A global high-resolution emission inventory for ammonia [J]. *Global Biogeochemical Cycles*, 1997, **11**(4): 561-587.
- [6] Holland E A, Dentener F J, Braswell B H, *et al.* Contemporary and pre-industrial global reactive nitrogen budgets [J]. *Biogeochemistry*, 1999, **46**(1-3): 7-43.
- [7] Lu C Q, Tian H Q. Half-century nitrogen deposition increase across China: a gridded time-series data set for regional environmental assessments [J]. *Atmospheric Environment*, 2014, **97**: 68-74.
- [8] 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.
- [9] 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.
- [10] Galloway J N, Aber J D, Erisman J W, *et al.* The nitrogen cascade [J]. *Bioscience*, 2003, **53**(4): 341-356.
- [11] Sirois A, Barrie L A. An estimate of the importance of dry deposition as a pathway of acidic substances from the atmosphere to the biosphere in eastern Canada [J]. *Tellus B*, 1988, **40B**(1): 59-80.
- [12] Fan J L, Hu Z Y, Wang T J, *et al.* Atmospheric inorganic nitrogen deposition to a typical red soil forestland in southeastern China [J]. *Environmental Monitoring and Assessment*, 2009, **159**(1-4): 241-253.
- [13] Zhang W, Mo J M, Zhou G Y, *et al.* Methane uptake responses to nitrogen deposition in three tropical forests in southern China [J]. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 2008, **113**(D11): D11116.
- [14] Lu C Q, Tian H Q, Liu M L, *et al.* Effect of nitrogen deposition on China's terrestrial carbon uptake in the context of multifactor environmental changes [J]. *Ecological Applications*, 2012, **22**(1): 53-75.
- [15] 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.
- [16] 郑祥洲, 张玉树, 丁洪, 等. 闽西北农田生态系统中大气氮湿沉降研究 [J]. *水土保持学报*, 2012, **26**(3): 127-130, 204. Zheng X Z, Zhang Y S, Ding H, *et al.* Nitrogen wet-deposition in agro-ecosystem of Northwestern Fujian province [J]. *Journal of Soil and Water Conservation*, 2012, **26**(3): 127-130, 204.
- [17] 孙素琪, 王云琦, 王玉杰, 等. 缙云山大气氮湿沉降组成及其变化特征 [J]. *北京林业大学学报*, 2013, **35**(4): 47-54. Sun S Q, Wang Y Q, Wang Y J, *et al.* Composition and temporal variation of atmospheric nitrogen wet deposition in Jinyun Mountain, southwestern China [J]. *Journal of Beijing*

- Forestry University, 2013, **35**(4): 47-54.
- [18] Fang Y, Muneoki Y, Keisuke K, *et al.* Nitrogen deposition and forest nitrogen cycling along an urban-rural transect in southern China[J]. *Global Change Biology*, 2011, **17**(2): 872-885.
- [19] 林兰稳, 肖辉林, 刘婷琳, 等. 广州东北郊大气氮湿沉降动态及其与酸雨的关系[J]. *生态环境学报*, 2013, **22**(2): 293-297.
- Lin L W, Xiao H L, Liu T L, *et al.* Dynamics of wet atmospheric nitrogen deposition and the relation to acid rain in the northeast suburb of Guangzhou[J]. *Ecology and Environment Sciences*, 2013, **22**(2): 293-297.
- [20] 王金杰, 张克荣, 吴川, 等. 汉江上游金水河流域氮湿沉降[J]. *环境科学*, 2014, **35**(1): 66-72.
- Wang J J, Zhang K R, Wu C, *et al.* Wet deposition of atmospheric nitrogen of the Jinshui watershed in the upper Hanjiang river[J]. *Environmental Science*, 2014, **35**(1): 66-72.
- [21] 尹兴, 张丽娟, 刘学军, 等. 河北平原城市近郊农田大气氮沉降特征[J]. *中国农业科学*, 2017, **50**(4): 698-710.
- Yin X, Zhang L J, Liu X J, *et al.* Nitrogen deposition in suburban croplands of Hebei plain[J]. *Scientia Agricultura Sinica*, 2017, **50**(4): 698-710.
- [22] 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.
- [23] 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.
- [24] 张颖, 刘学军, 张福锁, 等. 华北平原大气氮素沉降的时空变异[J]. *生态学报*, 2006, **26**(6): 1633-1699.
- Zhang Y, Liu X J, Zhang F S, *et al.* Spatial and temporal variation of atmospheric nitrogen deposition in North China Plain[J]. *Acta Ecologica Sinica*, 2006, **26**(6): 1633-1699.
- [25] Shen J L, Liu J Y, Li Y, *et al.* Contribution of atmospheric nitrogen deposition to diffuse pollution in a typical hilly red soil catchment in southern China[J]. *Journal of Environmental Sciences*, 2014, **26**(9): 1797-1805.
- [26] 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 NitroEurope network[J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2011, **11**(6): 2703-2728.
- [27] Shen J L, Tang A H, Liu X J, *et al.* High concentrations and dry deposition of reactive nitrogen species at two sites in the North China Plain[J]. *Environmental Pollution*, 2009, **157**(11): 3106-3113.
- [28] 王杰飞, 朱潇, 沈健林, 等. 亚热带稻区大气氨/铵态氮污染特征及干湿沉降[J]. *环境科学*, 2017, **38**(6): 2264-2272.
- Wang J F, Zhu X, Shen J L, *et al.* Atmospheric ammonia/ammonium-nitrogen concentrations and wet and dry deposition rates in a double rice region in subtropical China[J]. *Environmental Science*, 2017, **38**(6): 2264-2272.
- [29] 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.
- [30] 肖辉林. 大气氮沉降与森林生态系统的氮动态[J]. *生态学报*, 1996, **16**(1): 90-99.
- Xiao H L. Atmospheric nitrogen deposition and nitrogen dynamics of forest ecosystems[J]. *Acta Ecologica Sinica*, 1996, **16**(1): 90-99.
- [31] 叶雪梅, 郝吉明, 段雷, 等. 中国主要湖泊营养氮沉降临界负荷的研究[J]. *环境污染与防治*, 2002, **24**(1): 54-58.
- Ye X M, Hao J M, Duan L, *et al.* On critical loads of nutrient nitrogen deposition for some major lakes in China[J]. *Environmental Pollution and Control*, 2002, **24**(1): 54-58.
- [32] 许稳, 金鑫, 罗少辉, 等. 西宁近郊大气氮干湿沉降研究[J]. *环境科学*, 2017, **38**(4): 1279-1288.
- Xu W, Jin X, Luo S H, *et al.* Dry and bulk nitrogen deposition in suburbs of Xining city[J]. *Environmental Science*, 2017, **38**(4): 1279-1288.

CONTENTS

Diurnal Variation of SOA Formation Potential from Ambient Air at an Urban Site in Beijing	LIU Jun, CHU Bi-wu, HE Hong (2505)
Characteristics of Key Size Spectrum of PM _{2.5} Affecting Winter Haze Pollution in Taiyuan	YANG Su-ying, YU Xin-yang, ZHAO Xiu-yong, <i>et al.</i> (2512)
Characteristics and Source Apportionment of Water-soluble Ions in PM _{2.5} During Winter in Panjin	ZHANG Lei, JI Ya-qin, WANG Shi-bao, <i>et al.</i> (2521)
Characteristics and Source Apportionment of Volatile Organic Compounds in the Rainy Season of Guangzhou City	GU Ying-gang, YU Xiao-fang, YANG Wen-da, <i>et al.</i> (2528)
Emission Characteristics of Dehydrated Sugar and Acephenanthrylene in Particles from Tropical Forest Burning	JIN Cheng-miao, CUI Min, HAN Yong, <i>et al.</i> (2538)
Construction and Application of Vertical Diffusion Index for Analyzing Weather During Pollution Events in Tianjin	CAI Zi-ying, HAN Su-qin, ZHANG Min, <i>et al.</i> (2548)
Comparison Between Atmospheric Wet-only and Bulk Nitrogen Depositions at Two Sites in Subtropical China	ZHU Xiao, WANG Jie-fei, SHEN Jian-lin, <i>et al.</i> (2557)
Emission Reduction Benefits When Eliminating Yellow-label Vehicles in the Jing-jin-ji Region	LU Ya-ling, ZHOU Jia, CHENG Xi, <i>et al.</i> (2566)
Health Assessment of the Stream Ecosystem in the North Canal River Basin, Beijing, China	GU Xiao-yun, XU Zong-xue, LIU Lin-fei, <i>et al.</i> (2576)
Pollution Characteristics and Source Identification of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons and Phthalic Acid Esters During High Water Level Periods in the Wuhan Section of the Yangtze River, China	DONG Lei, TANG Xian-qiang, LIN Li, <i>et al.</i> (2588)
Characteristics of Antibiotic Resistance Genes in Downstream Areas of the Aojiang River, Fujian Province	ZHANG Dan-dan, GUO Ya-ping, REN Hong-yun, <i>et al.</i> (2600)
Distribution Characteristics and Risk Assessment of Heavy Metals in the Sediments of the Estuary of the Tributaries in the Three Gorges Reservoir, SW China	FANG Zhi-qing, CHEN Qiu-yu, YIN De-liang, <i>et al.</i> (2607)
Assessment of Physico-chemical Properties and Phosphorus Fraction Distribution Characteristics in Sediments after Impounding of the Three Gorges Reservoir to 175 m	PAN Chan-juan, LI Rui, TANG Xian-qiang, <i>et al.</i> (2615)
Source of Nitrate in Surface Water and Shallow Groundwater Around Baiyangdian Lake Area Based on Hydrochemical and Stable Isotopes	KONG Xiao-le, WANG Shi-qin, DING fei, <i>et al.</i> (2624)
Thermal Stratification and Its Impacts on Water Quality in Shahe Reservoir, Liyang, China	SUN Xiang, ZHU Guang-wei, DA Wen-yi, <i>et al.</i> (2632)
Spatial and Temporal Variation Characteristics of Drip Water Hydrogeochemistry in the Xueyu Cave of Chongqing and Its Implications for Environmental Research	ZENG Ze, JIANG Yong-jun, LÜ Xian-fu, <i>et al.</i> (2641)
Distinguishing the Compositions and Sources of the Chromophoric Dissolved Organic Matter in a Typical Karst River During the Dry Season; A Case Study in Bitan River, Jinfo Mountain	LIU Yue, HE Qiu-fang, LIU Ning-kun, <i>et al.</i> (2651)
Environmental Significance of the Stable Isotopes in Precipitation at Different Altitudes in the Tuolai River Basin	LI Yong-ge, LI Zong-xing, GAO Hao-yang, FENG Qi, <i>et al.</i> (2661)
Spatial-Temporal Variations of CO ₂ and CH ₄ Flux Through a Water-air Interface Under the Effect of Primary Productivity in Wulixia Reservoir	PENG Wen-jie, LI Qiang, SONG Ang, <i>et al.</i> (2673)
Spatiotemporal Succession Characteristics of Algal Functional Groups and Its Impact Factors for a Typical Channel-Type Reservoir in a Southwest Mountainous Area	ZHANG Yao-wen, LI Hong, LI Jia, <i>et al.</i> (2680)
Seasonal Succession of Phytoplankton Functional Groups and Their Driving Factors in the Siminghu Reservoir	ZHENG Cheng, LU Kai-hong, XU Zhen, <i>et al.</i> (2688)
Effects of Nutrient Addition on the Growth and Competition of Bloom Forming Cyanobacterium <i>Chrysosporum ovalisporum</i> ; An In-situ Experiment	WANG Meng-meng, ZHANG Wei, ZHANG Jun-yi, <i>et al.</i> (2698)
Purification Effect of Submerged Macrophyte System with Different Plants Combinations and C/N Ratios	LIU Miao, CHEN Kai-ning (2706)
Characteristics of Nitrogen and Phosphorus Concentration Dynamics in Natural Ditches Under an Irrigation-Drainage Unit in the Jiangnan Plain	HUA Ling-ling, ZHANG Fu-lin, ZHAI Li-mei, <i>et al.</i> (2715)
Distribution and Treatment of Antibiotics in Typical WWTPs in Small Towns in China	CHAI Yu-feng, ZHANG Yu-xiu, CHEN Mei-xue, <i>et al.</i> (2724)
Effects and Mechanism of the Combination of Ozone-PAC as a Pretreatment for the Reduction of Membrane Fouling	DONG Bing-zhi, GAO Hao-yang, HU Meng-liu (2732)
Start-up and Process Characteristics of Simultaneous ANAMMOX and Denitrification (SAD) in a Pilot-scale Anaerobic Sequencing Batch Reactor (ASBR)	YU De-shuang, TANG Jia-jia, ZHANG Jun, <i>et al.</i> (2740)
Phosphate Removal on Zirconium Alginate/Poly(<i>N</i> -isopropyl acrylamide) Hydrogel Beads with a Semi-interpenetrating Network	ZENG Xue-yang, LUO Hua-yong, ZHANG Yao-kun, <i>et al.</i> (2748)
Shortcut Nitrification Rapid Start and Stability of Corn Starch Wastewater	LONG Bei-sheng, LIU Xun-lei, LIU Hong-bo, <i>et al.</i> (2756)
Nitrifying Bacteria Culture in Entrapment Immobilization	YANG Hong, HU Yin-long (2763)
Performance of the Removal of Nitrogen During Anaerobic Ammonia Oxidation Using Different Operational Strategies	AN Fang-jiao, PENG Yong-zhen, DONG Zhi-long, <i>et al.</i> (2770)
Transformation of Protein in Sludge During High Solids Anaerobic Digestion	ZHAN Yu, SHI Wan-sheng, ZHAO Ming-xing, <i>et al.</i> (2778)
Changes in Heavy Metal Speciation and Release Behavior Before and After Sludge Composting Under a Phosphate-rich Atmosphere	LI Yu, FANG Wen, QI Guang-xia, <i>et al.</i> (2786)
Effect of Denitrification and Phosphorus Removal Microorganisms in Activated Sludge Bulking Caused by Filamentous Bacteria	GAO Chen-chen, YOU Jia, CHEN Yi, <i>et al.</i> (2794)
Microbial Population Dynamics During Domestication and Cultivation of Biofilm to Remove and Enrich Phosphate	MENG Xuan, PAN Yang, ZHANG Hao, <i>et al.</i> (2802)
Effects of Elevated Tetracycline Concentrations on Aerobic Composting of Human Feces: Composting Behavior and Microbial Community Succession	SHI Hong-lei, WANG Xiao-chang, LI Qian, <i>et al.</i> (2810)
Effect of Long-term Organic Amendments on Nitric Oxide Emissions from the Summer Maize-Winter Wheat Cropping System in Guanzhong Plain	YUAN Meng-xuan, WANG Jin-feng, TAN Yue-hui, <i>et al.</i> (2819)
Effects of Mushroom Residue Application Rates on Net Greenhouse Gas Emissions in the Purple Paddy Soil	QI Le, GAO Ming, ZHOU Peng, <i>et al.</i> (2827)
Estimation of Winter Wheat Photosynthesized Carbon Distribution and Allocation Belowground via ¹³ C Pulse-labeling	SUN Zhao-an, CHEN Qing, HAN Xiao, <i>et al.</i> (2837)
Effects of Vegetation Restoration on Soil Nitrogen Pathways in a Karst Region of Southwest China	YANG Yi, OUYANG Yun-dong, CHEN Hao, <i>et al.</i> (2845)
Identifying the Origins and Spatial Distributions of Heavy Metals in the Soils of the Jiangsu Coast	LÜ Jian-shu, HE Hua-chun (2853)
Source Identification and Spatial Distribution of Heavy Metals in Soils in Typical Areas Around the Lower Yellow River	YU Yuan-he, LÜ Jian-shu, WANG Ya-meng (2865)
Spatial Variation of Soil Heavy Metals in Lin'an City and Its Potential Risk Evaluation	ZHENG Jing-zhi, WANG Chu-dong, WANG Shi-han, <i>et al.</i> (2875)
Principal Component Analysis and Ecological Risk Assessment of Heavy Metals in Farmland Soils around a Pb-Zn Mine in Southwestern China	ZHOU Yan, CHEN Qiang, DENG Shao-po, <i>et al.</i> (2884)
Spatial Variation of Heavy Metals in Soils and Its Ecological Risk Evaluation in a Typical <i>Carya cathayensis</i> Production Area	ZHANG Hong-ju, ZHAO Ke-li, YE Zheng-qian, <i>et al.</i> (2893)
Influence of Biochar Application on Growth and Antioxidative Responses of Macrophytes in Subsurface Flow Constructed Wetlands	HUANG Lei, CHEN Yu-cheng, ZHAO Ya-qi, <i>et al.</i> (2904)
Effect of Iron on the Release of Arsenic in Flooded Paddy Soils	WANG Xin, ZHONG Song-xiong, CHEN Zhi-liang, <i>et al.</i> (2911)
Concentrations and Health Risk Assessments of Heavy Metal Contents in Soil and Rice of Mine Contaminated Areas	TIAN Mei-ling, ZHONG Xue-mei, ZHANG Yun-xia, <i>et al.</i> (2919)
Effect of Calcium Silicate-biological Humus Fertilizer Composite on Uptake of Cd by Shallots from Contaminated Agricultural Soil	LIU De-ling, YIN Guang-cai, CHEN Zhi-liang, <i>et al.</i> (2927)
Accumulation Characteristics of Heavy Metals in Greenhouse Soil and Vegetables in Siping City, Jilin Province	LI Lian-fang, ZHU Chang-xiong, ZENG Xi-hai, <i>et al.</i> (2936)
Effect of Foliar Zinc Application on Bioaccessibility of Cadmium and Zinc in Pakchoi	WANG Lin, GU Peng-lei, LI Ran, <i>et al.</i> (2944)
Mercury Distribution of Benthonic Animals and Response to Mercury in Sediments in Caohai Wetland, Guizhou Province	XU Yi-yuan, ZENG Ling-xia, HE Tian-rong, <i>et al.</i> (2953)
Discussion of Emissions and Health Risk of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons (PAHs) from the Retreading Process of Waste Tires	FU Jian-ping, ZHAO Bo, LI Yu-qing, <i>et al.</i> (2963)
Spatiotemporal Dynamics of CO ₂ Emissions in Chongqing: An Empirical Analysis at the County Level	SUN Xiu-feng, SHI Kai-fang, WU Jian-ping (2971)
Impact of Size on Environmental Behavior of Metal Oxide Nanoparticles	YAN Yu-peng, TANG Ya-dong, WAN Biao, <i>et al.</i> (2982)
Fate and Toxicity of UV Filters in Marine Environments	ZHU Xiao-shan, HUANG Jing-ying, LÜ Xiao-hui, <i>et al.</i> (2991)