

百方知库  
Eco-Environmental  
Knowledge Web

# 环境科学

ENVIRONMENTAL SCIENCE

ISSN 0250-3301 CODEN HCKHDV  
HUANJING KEXUE

- 主办 中国科学院生态环境研究中心
- 出版 科学出版社



2019

Vol.40 No.6  
第40卷 第6期

目次

北京城区大气金属元素干湿沉降特征 ..... 张国忠, 潘月鹏, 田世丽, 王永宏, 熊秋林, 李广, 顾梦娜, 吕雪梅, 倪雪, 何月欣, 黄威, 刘博文, 王跃思 (2493)

北京城郊 PM<sub>2.5</sub> 中金属元素的污染特征及潜在生态风险评价 ..... 徐静, 李杏茹, 张兰, 陈曦, 杨阳, 刘水桥, 赵清 (2501)

上海城区二次气溶胶的形成: 光化学氧化与液相反应对二次气溶胶形成的影响 ..... 高杰, 乔利平, 楼晟荣, 严茹莎, 周敏, 刘瑜存, 冯加良, 黄丹丹 (2510)

天津市 2017 年重污染过程二次无机化学污染特征分析 ..... 徐虹, 肖致美, 陈魁, 李立伟, 杨宁, 高璟赞, 李源, 孔君, 毕温凯, 邓小文 (2519)

典型非金属矿物制造工艺过程源成分谱特征 ..... 赵雪艳, 于高峰, 王信梧, 张向炎, 殷宝辉, 刘盈盈, 王歆华, 杨文, 赵若杰 (2526)

垃圾焚烧厂排放颗粒物组分粒径分布特征 ..... 余卓君, 吴建会, 张裕芬, 张进生, 冯银厂, 李蒲 (2533)

天津市春季样方法道路扬尘碳组分特征及来源分析 ..... 马妍, 姬亚芹, 国纪良, 赵静琦, 李越洋, 王士宝, 张蕾 (2540)

霾天气下城市气溶胶吸湿性的观测 ..... 杨素英, 田芷洁, 张铁凝, 于兴娜, 李艳伟, 安俊琳, 赵秀勇, 李岩, 王梓航, 吴尚 (2546)

宁东能源化工基地大气 PM<sub>2.5</sub> 中硝基多环芳烃污染特征及呼吸暴露风险 ..... 刘攀亮, 剧媛丽, 毛满萱, 黄韬, 高宏, 马建民 (2556)

2014 ~ 2016 年间郑州市控制 PM<sub>10</sub> 和 PM<sub>2.5</sub> 污染的健康效益评估 ..... 韩士杰, 王佳, 燕启社, 杨留明, 赵庆炎, 王申博, 李晨, 张轶舜, 张瑞芹 (2565)

1990 ~ 2017 年中国地区气溶胶光学厚度的时空分布及其主要影响类型 ..... 刘莹, 林爱文, 覃文敏, 何利杰, 李霄 (2572)

北京春季一次霾-沙天气污染特性与成因分析 ..... 王耀庭, 李青春, 郑祚芳, 窦有俊 (2582)

江苏省内河船舶大气污染物排放清单及特征 ..... 徐文文, 殷承启, 许雪记, 张玮 (2595)

亚热带稻区大气 NO<sub>2</sub>、HNO<sub>3</sub> 及硝态氮污染特征及干湿沉降 ..... 欧阳秀琴, 王波, 沈健林, 朱潇, 王杰飞, 李勇, 吴金水 (2607)

长江源区降水氢氧稳定同位素特征及水汽来源 ..... 汪少勇, 王巧丽, 吴锦奎, 何晓波, 丁永建, 王利辉, 胡召富 (2615)

基于高山湖泊沉积记录的贵州北部大气重金属污染历史重建 ..... 梁梦瑶, 刘恩峰, 张恩楼, 纪明, 李小林 (2624)

青岛 4 个海水浴场微塑料的分布特征 ..... 罗雅丹, 林千惠, 贾芳丽, 徐功娣, 李锋民 (2631)

鄱阳湖湿地候鸟栖息地微塑料污染特征 ..... 刘淑丽, 简敏菲, 周隆胤, 李文华, 吴希恩, 饶丹 (2639)

三峡库区消落带土壤溶解性有机质溯源: 基于氮/碳比值的线性双端元源负荷分析 ..... 江韬, Joeri Kaal, 梁俭, 刘江, 张耀玲, 王定勇, 魏世强, 赵铮 (2647)

水生生物光合作用对雪玉洞岩溶水体中 CDOM 的影响 ..... 范佳鑫, 蒋勇军, 贺秋芳, 王家楠, 何瑞亮, 张彩云, 马丽娜, 汪睿容 (2657)

水化学和环境同位素对济南东源饮用水源地地下水演化过程的指示 ..... 张雅, 苏春利, 马燕华, 刘伟江 (2667)

崇左响水地区地下水水质分析及健康风险评价 ..... 周巾枚, 蒋忠诚, 徐光黎, 覃小群, 黄奇波, 张连凯 (2675)

云南荞麦地流域地下水水化学特征及物质来源分析 ..... 张勇, 郭纯青, 朱彦光, 于爽 (2686)

鄱阳湖流域多尺度 C、N 输送通量及其水质参数变化特征 ..... 陆瑶, 高扬, 贾珺杰, 宋贤威, 陈世博, 马明真, 郝卓 (2696)

合流制面源污染传输过程与污染源解析 ..... 房金秀, 谢文霞, 朱玉玺, 沈雷, 马玉坤, 李佳, 姜智绘, 李叙勇, 赵洪涛 (2705)

强化浅基质层干植草沟对道路径流的脱氮效果 ..... 段进凯, 李田, 张佳炜 (2715)

水源水库暴雨径流过程水体锰的迁移及其影响 ..... 邓立凡, 黄廷林, 李楠, 李凯, 吕晓龙, 毛雪静 (2722)

巢湖十五里河沉积物磷吸附潜力及对外源碳的响应 ..... 李如忠, 鲍琴, 张瑞钢, 陈志 (2730)

金盆水库沉积物磷的来源及分布特征 ..... 毛雪静, 黄廷林, 李楠, 徐金兰, 苏露, 吕晓龙, 邓立凡 (2738)

水库水体热分层的水质及细菌群落分布特征 ..... 王禹冰, 王晓燕, 庞树江, 杨晓明, 刘洋 (2745)

不同水温分层水库沉积物间隙水营养盐垂向分布与细菌群落结构的关系 ..... 王慎, 张思思, 许尤, 官卓宇, 杨正健, 刘德富, 马骏 (2753)

表面流人工湿地长期运行后的底泥营养盐累积特征与释放规律 ..... 朱伊梦, 姜翠玲, 朱立琴, 杜观超, 高旭, 陈红卫, 李峰东, 张海阔, 张雪, 秦文凯, 李一平 (2764)

针铁矿改性生物炭对砷吸附性能 ..... 朱司航, 赵晶晶, 尹英杰, 商建英, 陈冲, 瞿婷 (2773)

改性稻壳生物炭对水溶液中甲基橙的吸附效果与机制 ..... 史月月, 单锐, 袁浩然 (2783)

厌氧膜生物反应器处理含盐废水运行效能及膜污染特性 ..... 闫欢沙, 许振钰, 金春姬, 邵梦雨, 郭亮, 赵阳国 (2793)

污水处理厂出水有机磷污染特征及强化去除 ..... 王小东, 王子文, 陈明飞, 王燕, 王硕, 李激 (2800)

碱度对沸石序批式反应器亚硝化的影响 ..... 王瑞鑫, 陈婧, 汪晓军, 胡浩林, Karasuta Chayangkun (2807)

活性污泥物理结构对呼吸过程的影响 ..... 郭耀, 李志华, 杨成建, 王慧娟, 李亚明, 姜阳 (2813)

好氧颗粒污泥处理畜禽养殖沼液污染物的特性 ..... 廖杰, 叶嘉琦, 曾志超, 刘琳, 徐开钦, 刘超翔 (2821)

快速城市化区河流温室气体排放的时空特征及驱动因素 ..... 刘婷婷, 王晓锋, 袁兴中, 龚小杰, 侯春丽 (2827)

生物炭对潜流人工湿地污染物去除及NO<sub>x</sub>排放影响 ..... 邓朝仁, 梁银坤, 黄磊, 方丹丹, 陈玉成, 杜刚 (2840)

曾用抗生素磺胺二甲嘧啶对稻田N<sub>2</sub>O排放的影响及其微生物机制 ..... 吴杰, 李志琳, 徐佳迎, 王珏, 蒋静艳 (2847)

不同施氮水平对紫花苜蓿草地土壤呼吸和土壤生化性质的影响 ..... 胡伟, 张亚红, 李鹏, 张鹏, 李满友, 尤璟涛, 田水泉 (2858)

典型城市化区域土壤重金属污染的空间特征与风险评价 ..... 何博, 赵慧, 王铁宇, 孟晶, 肖荣波, 刘胜然, 周云桥, 史斌 (2869)

西南高镉地质背景区农田土壤与农作物的重金属富集特征 ..... 刘意章, 肖唐付, 熊燕, 宁增平, 双燕, 李航, 马良, 陈海燕 (2877)

基于 GIS 和受体模型的枸杞地土壤重金属空间分布特征及来源解析 ..... 白一茹, 张兴, 赵云鹏, 王幼奇, 钟艳霞 (2885)

喀斯特地区小尺度农业土壤砷的空间分布及污染评价 ..... 汪花, 刘秀明, 刘方, 唐启琳, 王世杰 (2895)

黄土高原不同植被带人工刺槐林土壤团聚体稳定性及其化学计量特征 ..... 瞿晴, 徐红伟, 吴旋, 孟敏, 王国梁, 薛蓁 (2904)

秸秆还田配施氮肥对喀斯特农田微生物群落及有机碳矿化的影响 ..... 徐学池, 苏以荣, 王桂红, 刘坤平, 胡亚军, 陈香碧, 郑小东, 何寻阳 (2912)

生物炭施用及老化对紫色土中抗生素吸附特征的影响 ..... 阴文敏, 关卓, 刘琛, 何杨, 杨飞, 唐翔宇 (2920)

稳定性同位素 DNA-SIP 示踪中性紫色土的氮氧化过程 ..... 刘天琳, 王智慧, 闫小娟, 赵永鹏, 贾仲君, 蒋先军 (2930)

纳米银和银离子对土壤中硝化微生物及其氮氧化速率的影响 ..... 伍玲丽, 张旭, 舒昆慧, 张丽, 司友斌 (2939)

农田沟道土壤中锰氨氧化(Mn-ANAMMOX)过程的探究 ..... 陈焜, 李正魁, 覃云斌, 丁帮琛, 陈志浩 (2948)

污泥四环素含量对蚯蚓堆肥中氨氧化菌群的影响 ..... 吴颖, 黄魁, 夏慧, 陈景阳 (2954)

《环境科学》征订启事(2929) 《环境科学》征稿简则(2947) 信息(2646, 2656, 2857)

# 亚热带稻区大气 NO<sub>2</sub>、HNO<sub>3</sub> 及硝态氮污染特征及干湿沉降

欧阳秀琴<sup>1,2,3</sup>, 王波<sup>1\*</sup>, 沈健林<sup>2,3\*</sup>, 朱潇<sup>2,3</sup>, 王杰飞<sup>2,3</sup>, 李勇<sup>2,3</sup>, 吴金水<sup>2,3</sup>

(1. 苏州大学金螳螂建筑学院, 苏州 215123; 2. 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; 3. 中国科学院长沙农业环境观测研究站, 长沙 410125)

**摘要:** 二氧化氮(NO<sub>2</sub>)和硝酸(HNO<sub>3</sub>)是大气中的酸性含氮污染气体, 是形成气溶胶和雨水硝态氮的重要前体物质, 在高强度的大气氮氧化物排放下, 我国亚热带稻区农业生态系统大气 NO<sub>2</sub>、HNO<sub>3</sub> 气体及气溶胶、雨水硝态氮污染特征及其干湿沉降量尚不清楚. 本研究选取我国亚热带丘陵区一个典型双季稻区, 对大气中 NO<sub>2</sub>-N、HNO<sub>3</sub>-N、气溶胶和雨水硝态氮浓度及相关气象因子进行了同步监测, 旨在明确大气 NO<sub>2</sub>-N、HNO<sub>3</sub>-N 及气溶胶、雨水硝态氮浓度特征及其影响因素, 并定量其干湿沉降量. 结果表明, 大气中 NO<sub>2</sub>-N、HNO<sub>3</sub>-N、大气颗粒物 PM<sub>10</sub> 中 NO<sub>3</sub><sup>-</sup>-N<sub>p</sub>、雨水中 NO<sub>3</sub><sup>-</sup>-N<sub>r</sub> 年均浓度分别为 4.2 μg·m<sup>-3</sup>、0.7 μg·m<sup>-3</sup>、4.0 μg·m<sup>-3</sup> 和 1.0 mg·L<sup>-1</sup>, 年氮沉降量分别为 1.5、3.2、2.3 和 6.1 kg·hm<sup>-2</sup>. NO<sub>2</sub>-N 浓度与气温呈负相关; HNO<sub>3</sub>-N 浓度与风速呈负相关; NO<sub>3</sub><sup>-</sup>-N<sub>p</sub> 浓度与气温呈负相关, 与 NO<sub>2</sub>-N 浓度呈正相关, 与 HNO<sub>3</sub>-N 浓度未显著相关, 表明 NO<sub>2</sub>-N 浓度在本研究区域是形成 NO<sub>3</sub><sup>-</sup>-N<sub>p</sub> 污染的重要限制因子; NO<sub>3</sub><sup>-</sup>-N<sub>r</sub> 浓度与降雨量呈负相关, 与 HNO<sub>3</sub>-N 浓度和 NO<sub>3</sub><sup>-</sup>-N<sub>p</sub> 浓度呈正相关. 本研究区域大气中 NO<sub>2</sub>-N、HNO<sub>3</sub>-N、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>-N<sub>p</sub> 及雨水 NO<sub>3</sub><sup>-</sup>-N<sub>r</sub> 年总干湿沉降量为 13.0 kg·hm<sup>-2</sup>, 是稻田重要的氮素来源, 对稻田及周边生态系统的影响不容忽视.

**关键词:** 二氧化氮; 硝酸; 气溶胶; 雨水; 硝态氮; 干湿沉降; 稻田

中图分类号: X51 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2019)06-2607-08 DOI: 10.13227/j.hjkk.201810252

## Atmospheric Nitrogen Dioxide, Nitric Acid, Nitrate Nitrogen Concentrations, and Wet and Dry Deposition Rates in a Double Rice Region in Subtropical China

OUYANG Xiu-qin<sup>1,2,3</sup>, WANG Bo<sup>1\*</sup>, SHEN Jian-lin<sup>2,3\*</sup>, ZHU Xiao<sup>2,3</sup>, WANG Jie-fei<sup>2,3</sup>, LI Yong<sup>2,3</sup>, WU Jin-shui<sup>2,3</sup>

(1. Gold Mantis School of Architecture, Soochow University, Suzhou 215123, China; 2. Key Laboratory of Agro-ecological Processes in Subtropical Regions, Institute of Subtropical Agriculture, Chinese Academy of Sciences, Changsha 410125, China; 3. Changsha Research Station for Agricultural & Environmental Monitoring, Institute of Subtropical Agriculture, Chinese Academy of Sciences, Changsha 410125, China)

**Abstract:** Nitrogen dioxide (NO<sub>2</sub>) and nitric acid (HNO<sub>3</sub>) are nitrogen-containing acidic gases in the atmosphere, and they are important precursors of nitrate in aerosol and rainwater. The emission intensity of atmospheric nitrogen oxides is high in the subtropical region of China, but the concentrations and deposition rates of atmospheric nitrogen dioxide, nitric acid, particulate nitrate-nitrogen (NO<sub>3</sub><sup>-</sup>-N<sub>p</sub>), and rainwater nitrate-nitrogen (NO<sub>3</sub><sup>-</sup>-N<sub>r</sub>) in a double rice region in subtropical China are still unclear. In this study, the atmosphere concentrations of NO<sub>2</sub>-N, HNO<sub>3</sub>-N, NO<sub>3</sub><sup>-</sup>-N<sub>p</sub> in PM<sub>10</sub>, and NO<sub>3</sub><sup>-</sup>-N<sub>r</sub> and related meteorological parameters were simultaneously monitored in a typical double rice region within a subtropical hilly region of China, with the aim of determining the characteristics and influencing factors of NO<sub>2</sub>-N, HNO<sub>3</sub>-N, NO<sub>3</sub><sup>-</sup>-N<sub>p</sub>, and NO<sub>3</sub><sup>-</sup>-N<sub>r</sub> concentrations and quantifying the wet and dry deposition rates. The results showed that the annual mean concentrations of NO<sub>2</sub>-N, HNO<sub>3</sub>-N, NO<sub>3</sub><sup>-</sup>-N<sub>p</sub>, and NO<sub>3</sub><sup>-</sup>-N<sub>r</sub> were 4.2 μg·m<sup>-3</sup>, 0.7 μg·m<sup>-3</sup>, 4.0 μg·m<sup>-3</sup>, and 1.0 mg·L<sup>-1</sup>, respectively, and the deposition rates were 1.5, 3.2, 2.3, and 6.1 kg·hm<sup>-2</sup>, respectively. The NO<sub>2</sub>-N concentrations were negatively correlated with air temperatures, and the HNO<sub>3</sub>-N concentrations were negatively correlated with wind speeds. The NO<sub>3</sub><sup>-</sup>-N<sub>p</sub> concentrations were negatively correlated with air temperatures, positively correlated with NO<sub>2</sub>-N concentrations, but not significantly correlated with HNO<sub>3</sub>-N concentrations, thus indicating that NO<sub>2</sub>-N concentrations were an important limiting factor for NO<sub>3</sub><sup>-</sup>-N<sub>p</sub> pollution in this study area. The NO<sub>3</sub><sup>-</sup>-N<sub>r</sub> concentrations were negatively correlated with rainfall, as well as the concentrations of HNO<sub>3</sub>-N and NO<sub>3</sub><sup>-</sup>-N<sub>p</sub>. The annual total dry and wet depositions of the atmospheric NO<sub>2</sub>-N, HNO<sub>3</sub>-N, NO<sub>3</sub><sup>-</sup>-N<sub>p</sub>, and NO<sub>3</sub><sup>-</sup>-N<sub>r</sub> were 13.0 kg·hm<sup>-2</sup>, which indicates that these compounds are important sources of nitrogen in paddy fields and may have significant impacts on paddy fields and surrounding ecosystems.

**Key words:** nitrogen dioxide; nitric acid; aerosol; rainwater; nitrate nitrogen; wet and dry deposition; paddy field

收稿日期: 2018-10-30; 修订日期: 2018-12-30

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

作者简介: 欧阳秀琴(1995~), 女, 硕士研究生, 主要研究方向为生态修复设计, E-mail:18862344784@163.com

\* 通信作者, E-mail:wangb@suda.edu.cn; jlshen@isa.ac.cn

二氧化氮( $\text{NO}_2$ )是大气中主要的含氮污染物,主要人为来源是汽车尾气排放、化石燃料燃烧和化肥施用<sup>[1]</sup>。 $\text{NO}_2$ 经氧化反应成为大气中最重要奇氮化合物之一的硝酸( $\text{HNO}_3$ )。大气中的 $\text{HNO}_3$ 溶解或与碱性气体(氨气等)进一步反应生成含有硝酸盐(硝酸铵等)的气溶胶颗粒物,导致酸沉降、城市能见度下降,出现灰霾现象等<sup>[2]</sup>,且能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,地下水硝酸盐污染和水体富营养化,降低生态系统生产力<sup>[3]</sup>,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,造成生态系统多样性丧失等一系列全球性生态问题<sup>[4]</sup>,同时对人体健康产生重要的影响。

近几十年来,我国汽车使用量、化学氮肥使用量以及化石燃料消耗量不断增加,从而导致排放到大气中的 $\text{NO}_2$ 及其二次反应的衍生物(如 $\text{HNO}_3$ 和颗粒态 $\text{NO}_3^-$ )也呈持续激增的态势,中国因此成为全球氮沉降的三大热点地区(中国、西欧和北美)之一<sup>[5]</sup>。有研究表明,1980~2010年期间,氮氧化物的排放量从1.1 Tg增长到6.0 Tg,其中有60%~80%通过干湿沉降返回地表<sup>[6]</sup>。我国亚热带区域发达的工业、农业和交通运输业在一定程度上加剧了当地氮氧化物( $\text{NO}_x$ )的排放量<sup>[7]</sup>,以湖南省为例,2017年全省 $\text{NO}_x$ 的平均排放强度为1986  $\text{kg}\cdot\text{km}^{-2}$ <sup>[8]</sup>。而在此高强度的氮排放量下,我国亚热带区域大气中 $\text{NO}_2$ -N、 $\text{HNO}_3$ -N及硝态氮污染特征及干湿沉降却鲜有报道,大部分研究集中于氮氧化物排放及雨水中不同形态氮的湿沉降,对于气态和气溶胶态硝态氮的研究较少<sup>[9]</sup>。近期有研究表明,位于我国亚热带的江西省泰和县桃源村内雨水硝态氮浓度可达1.3  $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ ,年硝态氮湿沉降量为5.2  $\text{kg}\cdot\text{hm}^{-2}$ <sup>[10]</sup>,这些研究初步表明亚热带区域具有较高的硝态氮湿沉降。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°34'N, 113°19'E),同步监测 $\text{NO}_2$ -N、 $\text{HNO}_3$ -N、气溶胶中硝态氮以及雨水中硝态氮浓度及相关气象因子,通过明确大气 $\text{NO}_2$ -N、 $\text{HNO}_3$ -N及各种硝态氮组分浓度特征及其影响因素,并定量 $\text{NO}_2$ -N、 $\text{HNO}_3$ -N及各种硝态氮的干湿沉降量,以期为大气中氮氧化物及硝态氮浓度控制提供科学依据,并为亚热带双季稻区硝态氮的大气沉降输入提供基础数据。

## 1 材料与方法

### 1.1 采样点概况

本试验选取的采样点位于湖南省长沙市长沙县

金井镇双季稻区(28°34'N, 113°19'E),海拔80 m,地处中亚热带季风气候,常年盛行西北-东南风。2013年6月~2014年5月监测期间,试验点气温变化范围为-6.0~27.8℃,年平均气温为13.3℃;相对湿度变化范围为17.2%~90.2%,年平均湿度为55.2%;一年共降雨75场,降雨量总计1178.8 mm,日降雨量最高达85 mm。本研究中一年四季按春(3~5月)、夏(6~8月)、秋(9~11月)和冬(12月~次年2月)划分,其中春季降雨量占年降雨总量的50%,为591.1 mm<sup>[11]</sup>。稻区土壤类型为花岗岩红壤发育的水稻土,面积约为200  $\text{hm}^2$ ,其中南北方向长为3.3 km,东西方向长为0.4~0.7 km,稻区南部为苗圃和菜地,其余方向均为丘陵,其中东西两侧沿山脚分布有居民区,四周无大型养殖污染和工业污染。稻区80%种植双季稻,其余20%种植一季稻。双季稻年化肥氮施用总量约360  $\text{kg}\cdot\text{hm}^{-2}$ ,施肥时间分别为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)。本试验的采样点布置在稻区中部,种植双季稻,分别距离东南西北四侧边缘0.2、1.7、0.3和1.6 km,以保证所采样品能代表亚热带丘陵区稻区特征。

### 1.2 样品采集

本研究采样时间段为2013年6月~2014年5月。采样点气象因子采用小型气象站(Intelimit Advantage, Dynamax Inc., 美国)进行测定,主要观测指标包括气温、风速、风向、相对湿度和降雨量等。

分别采用被动采样器及环形扩散管采样器(Delta系统)采集大气 $\text{NO}_2$ 和 $\text{HNO}_3$ 气体,采样高度距离地面1.5 m,一次采样周期为1个月。气态 $\text{NO}_2$ 样品的采集使用英国Gradko公司生产的长71.0 mm、内径11.0 mm的被动扩散管,由一个丙烯酸管、两个聚乙烯帽(灰色和白色,分别位于扩散管两端)和两层不锈钢网组成。采样时取下白色聚乙烯帽, $\text{NO}_2$ 吸附在灰色聚乙烯帽的两个不锈钢网片上,吸附剂为30  $\mu\text{L}$  20%的三乙醇胺溶液。Delta系统利用抽气泵进气,使空气以层流状态通过内壁涂有气体吸收剂的扩散管。由1%质量分数 $\text{K}_2\text{CO}_3$ 和1%质量分数的甲醇溶液浸渍扩散收集器,用以吸收气态 $\text{HNO}_3$ 、 $\text{SO}_2$ 和 $\text{HCl}$ 。从2013年6月1日开始,每月1号更换采样系统,详细记录开始与结束时间、进气体积,并及时将采样器带回实验室保存在-18℃于一周内进行分析。采集 $\text{HNO}_3$ 扩散管用10 mL体积分数为0.05%的 $\text{H}_2\text{O}_2$ 溶液浸提,浸提液直接用流动分析仪测定氮浓度(Auto

Analyzer 3, SEAL Analytical, 德国);  $\text{NO}_2$  扩散管用 4.2 mL 磺胺、磷酸、萘乙二胺的混合溶液浸提, 并用仪器公司提供的比色法在 542 nm 波长下比色测定其中的  $\text{NO}_2\text{-N}$  浓度。

颗粒态氮 ( $\text{NO}_3^- \text{-N}_p$ ) 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在) 每隔 2 d 采集一个  $\text{PM}_{10}$  日样品测定, 每月共采集 10 个  $\text{PM}_{10}$  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℃ 和 40%) 条件下平衡 24 h, 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  $-18^\circ\text{C}$  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℃ 和 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  $0.45 \mu\text{m}$  特氟龙滤膜过滤浸提液, 采用流动分析仪测定滤液中  $\text{NO}_3^- \text{-N}$  浓度。

采用自动降雨采集器 (智能 5020, 青岛崂山应用技术研究所在) 收集每天的降雨 (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  $-18^\circ\text{C}$  冷冻保存, 并在一个月测定雨水中硝态氮 ( $\text{NO}_3^- \text{-N}_r$ ) 浓度。样品测定前先用  $0.45 \mu\text{m}$  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  $\text{NO}_3^- \text{-N}_r$  浓度。

### 1.3 数据处理

将每次降雨量与  $\text{NO}_3^- \text{-N}_r$  浓度相乘, 得到每次降雨的铵态氮湿沉降量。将每月、每季度和全年各次湿沉降量累加分别得到每月、每季度和全年的铵态氮湿沉降量。 $\text{NO}_2\text{-N}$  和  $\text{HNO}_3\text{-N}$  的干沉降量为其浓度与其沉降速率的乘积。

采用 Excel 2013 和 SPSS 25.0 进行数据的计算、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; 利用 Origin 2018 绘制相关图形。

## 2 结果与分析

### 2.1 大气中 $\text{NO}_2\text{-N}$ 、 $\text{HNO}_3\text{-N}$ 、颗粒态硝态氮及雨水中硝态氮浓度月变化

采样期间大气中  $\text{NO}_2\text{-N}$ 、 $\text{HNO}_3\text{-N}$ 、 $\text{NO}_3^- \text{-N}_p$  及  $\text{NO}_3^- \text{-N}_r$  月平均浓度及变化趋势如图 1 所示。大气中,  $\text{HNO}_3$  浓度为三者之中最低, 平均值为  $0.7 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ ; 其次为  $\text{NO}_3^- \text{-N}_p$ , 平均值为  $4.0 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ ;  $\text{NO}_2\text{-N}$  浓度最高, 平均值为  $4.2 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ 。 $\text{HNO}_3\text{-N}$  月均浓度变化范围为  $0.4 \sim 1.3 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ , 8、10、12 及次年 1 月浓度相对较高, 平均值为  $1.1 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ ,

其余月份浓度较低, 平均值为  $0.4 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ ;  $\text{NO}_2\text{-N}$  浓度变化范围在  $2.8 \sim 6.0 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ , 10~12 月浓度相对较高, 平均值为  $5.7 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ , 其余月份浓度相对较低, 平均值为  $3.7 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ ;  $\text{NO}_3^- \text{-N}_p$  浓度变化范围在  $0.6 \sim 8.7 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ , 6~9 月浓度较低, 平均值为  $0.9 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ , 10 月~次年 5 月浓度较高, 平均值为  $5.5 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ 。雨水中  $\text{NO}_3^- \text{-N}_r$  浓度平均值为  $1.0 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ , 浓度变化范围在  $0.6 \sim 8.7 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ , 10、12 和次年 1 月浓度较高, 平均值为  $1.7 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ , 其余月份浓度较低。

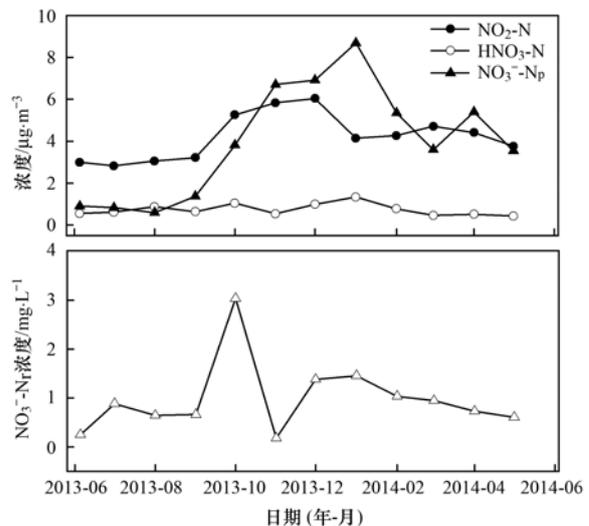


图1 采样期间大气  $\text{NO}_2\text{-N}$ 、 $\text{HNO}_3\text{-N}$  及气溶胶、雨水硝态氮浓度月变化

Fig. 1 Monthly concentrations of  $\text{NO}_2\text{-N}$ ,  $\text{HNO}_3\text{-N}$ ,  $\text{NO}_3^- \text{-N}_p$ , and  $\text{NO}_3^- \text{-N}_r$

### 2.2 大气中 $\text{NO}_2\text{-N}$ 、 $\text{HNO}_3\text{-N}$ 、颗粒态硝态氮及雨水中硝态氮浓度季节变化

采样期间大气中  $\text{NO}_2\text{-N}$ 、 $\text{HNO}_3\text{-N}$ 、 $\text{NO}_3^- \text{-N}_p$  及  $\text{NO}_3^- \text{-N}_r$  平均浓度均存在明显的季节变化 (图 2)。 $\text{NO}_2\text{-N}$  浓度季节变化趋势较明显, 浓度范围为  $3 \sim 4.8 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ , 夏季浓度较低, 为  $3.0 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ , 其余季节均较高;  $\text{HNO}_3\text{-N}$  浓度冬季最高, 为  $1.0 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ , 春季最低, 为  $0.5 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ , 夏季、秋季差别不明显, 均接近  $0.7 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ ;  $\text{NO}_3^- \text{-N}_p$  浓度冬季最高, 为  $7.0 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ , 夏季最低, 为  $0.8 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ , 秋季、冬季和春季  $\text{NO}_3^- \text{-N}_p$  平均浓度分别是夏季的 5.1、9.0、5.4 倍;  $\text{NO}_3^- \text{-N}_r$  浓度秋季和冬季最高, 均为  $1.3 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ , 春季和夏季较低, 分别为  $0.8 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$  和  $0.6 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 。

### 2.3 $\text{NO}_2\text{-N}$ 、 $\text{HNO}_3\text{-N}$ 、不同形态硝态氮月沉降量

图 3 为  $\text{NO}_2\text{-N}$ 、 $\text{HNO}_3\text{-N}$ 、 $\text{NO}_3^- \text{-N}_p$  及  $\text{NO}_3^- \text{-N}_r$  月沉降量。采样期间,  $\text{NO}_2\text{-N}$ 、 $\text{HNO}_3\text{-N}$ 、 $\text{NO}_3^- \text{-N}_p$  及  $\text{NO}_3^- \text{-N}_r$  的一年总干湿沉降量为  $13.0 \text{ kg} \cdot \text{hm}^{-2}$ , 干

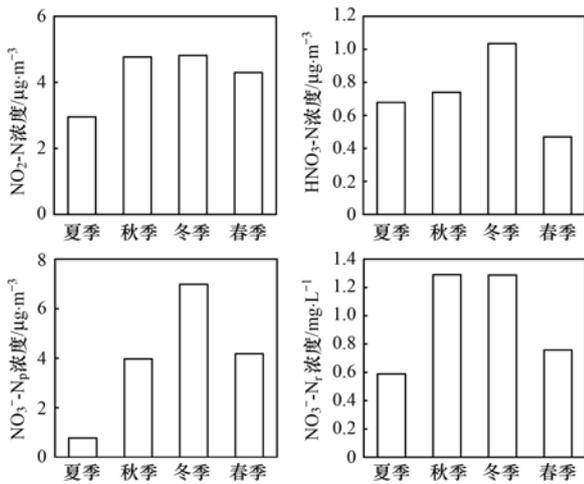


图2 采样期间大气  $\text{NO}_2\text{-N}$ 、 $\text{HNO}_3\text{-N}$  及气溶胶、雨水硝态氮季节平均浓度变化

Fig. 2 Seasonal mean concentrations of  $\text{NO}_2\text{-N}$ ,  $\text{HNO}_3\text{-N}$ ,  $\text{NO}_3^- \text{-N}_p$ , and  $\text{NO}_3^- \text{-N}_r$

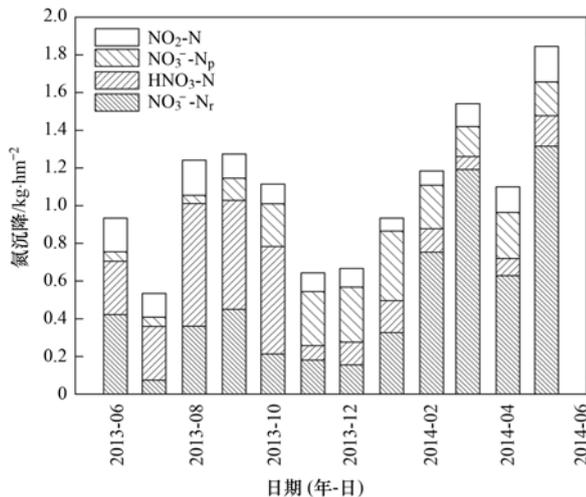


图3  $\text{NO}_2\text{-N}$ 、 $\text{HNO}_3\text{-N}$  及气溶胶、雨水硝态氮月沉降量

Fig. 3 Monthly deposition rates of  $\text{NO}_2\text{-N}$ ,  $\text{HNO}_3\text{-N}$ ,  $\text{NO}_3^- \text{-N}_p$ , and  $\text{NO}_3^- \text{-N}_r$

沉降量略多于湿沉降量. 其中,  $\text{NO}_3^- \text{-N}_r$  一年总的湿沉降量为  $6.1 \text{ kg}\cdot\text{hm}^{-2}$ , 月平均值为  $0.4 \text{ kg}\cdot\text{hm}^{-2}$ , 湿沉降量最多的是 5 月, 沉降量为  $1.3 \text{ kg}\cdot\text{hm}^{-2}$ , 最少的是 7 月, 沉降量为  $0.1 \text{ kg}\cdot\text{hm}^{-2}$ .  $\text{NO}_2\text{-N}$ 、 $\text{HNO}_3\text{-N}$  和  $\text{NO}_3^- \text{-N}_p$  的一年总干沉降量为  $6.9 \text{ kg}\cdot\text{hm}^{-2}$ , 其中  $\text{HNO}_3\text{-N}$  干沉降量最多,  $\text{NO}_3^- \text{-N}_p$  其次,  $\text{NO}_2\text{-N}$  最少.  $\text{NO}_2\text{-N}$  的一年总干沉降量为  $1.5 \text{ kg}\cdot\text{hm}^{-2}$ , 月平均值为  $0.1 \text{ kg}\cdot\text{hm}^{-2}$ , 沉降量最多的是 5 月, 沉降量为  $0.2 \text{ kg}\cdot\text{hm}^{-2}$ , 最少的为 1 月, 沉降量为  $0.1 \text{ kg}\cdot\text{hm}^{-2}$ ;  $\text{HNO}_3\text{-N}$  的一年总干沉降量为  $3.2 \text{ kg}\cdot\text{hm}^{-2}$ , 月平均值为  $0.3 \text{ kg}\cdot\text{hm}^{-2}$ , 沉降量最多的是 8 月, 沉降量为  $0.7 \text{ kg}\cdot\text{hm}^{-2}$ , 最少的为 3 月, 沉降量为  $0.1 \text{ kg}\cdot\text{hm}^{-2}$ ;  $\text{NO}_3^- \text{-N}_p$  的一年总干沉降量为  $2.3 \text{ kg}\cdot\text{hm}^{-2}$ , 月平均值为  $0.2 \text{ kg}\cdot\text{hm}^{-2}$ , 沉

降量最多的是 1 月, 沉降量为  $0.4 \text{ kg}\cdot\text{hm}^{-2}$ , 最少的为 8 月, 沉降量为  $0.04 \text{ kg}\cdot\text{hm}^{-2}$ .

#### 2.4 $\text{NO}_2\text{-N}$ 、 $\text{HNO}_3\text{-N}$ 、不同形态硝态氮季节沉降量

图 4 为  $\text{NO}_2\text{-N}$ 、 $\text{HNO}_3\text{-N}$ 、 $\text{NO}_3^- \text{-N}_p$  及  $\text{NO}_3^- \text{-N}_r$  季节沉降量. 可以看出, 不同季节的主要沉降形式变化明显. 春季以湿沉降为主, 占总干湿沉降的 67.3%. 其余季节以干沉降为主, 占总干湿沉降的 55.6% ~ 72.2%. 其中, 夏季干沉降以  $\text{HNO}_3\text{-N}$  为主, 占总干湿沉降的 45.0%, 其次是  $\text{NO}_2\text{-N}$  (18.1%), 对总干湿沉降贡献最少的是  $\text{NO}_3^- \text{-N}_p$  (5.3%); 秋季干沉降以  $\text{HNO}_3\text{-N}$  为主, 占总干湿沉降的 40.4%,  $\text{NO}_2\text{-N}$  和  $\text{NO}_3^- \text{-N}_p$  对总干湿沉降的贡献分别为 11.0% 和 20.8%; 冬季干沉降以  $\text{NO}_3^- \text{-N}_p$  为主, 占总干湿沉降的 32.1%,  $\text{NO}_2\text{-N}$  和  $\text{HNO}_3\text{-N}$  对总干湿沉降的贡献分别为 8.7% 和 14.9%.

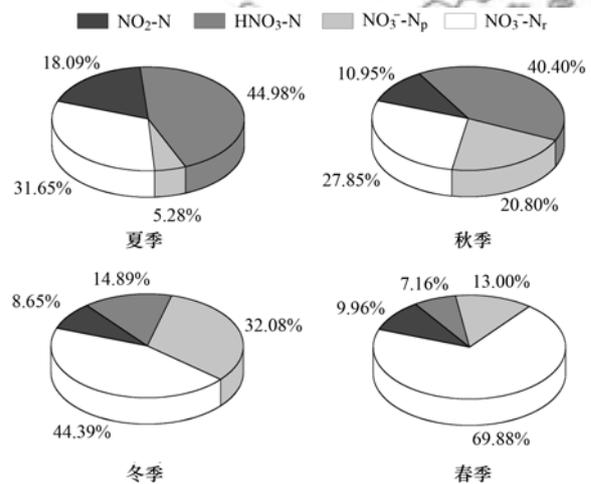


图4  $\text{NO}_2\text{-N}$ 、 $\text{HNO}_3\text{-N}$  及气溶胶、雨水硝态氮季节沉降量

Fig. 4 Monthly deposition rates of  $\text{NO}_2\text{-N}$ ,  $\text{HNO}_3\text{-N}$ ,  $\text{NO}_3^- \text{-N}_p$ , and  $\text{NO}_3^- \text{-N}_r$

#### 2.5 大气 $\text{NO}_2\text{-N}$ 、 $\text{HNO}_3\text{-N}$ 、硝态氮浓度及沉降量的影响因素

表 1 为  $\text{NO}_2\text{-N}$  浓度、 $\text{HNO}_3\text{-N}$  浓度、 $\text{NO}_3^- \text{-N}_p$  浓度、 $\text{NO}_3^- \text{-N}_r$  浓度、 $\text{NO}_3^- \text{-N}_r$  湿沉降量和各气象因子 (降雨量、气温、风速和相对湿度) 之间相关性分析结果. 由表可知, 气象因子中,  $\text{NO}_2\text{-N}$  浓度与气温呈显著 ( $P < 0.05$ ) 负相关关系,  $\text{HNO}_3\text{-N}$  浓度与风速呈显著负相关关系,  $\text{NO}_3^- \text{-N}_p$  浓度与气温呈极显著 ( $P < 0.01$ ) 负相关关系,  $\text{NO}_3^- \text{-N}_r$  浓度与降雨量呈极显著负相关关系,  $\text{NO}_3^- \text{-N}_r$  湿沉降量与降雨量呈极显著正相关关系; 不同氮形态组分之间,  $\text{NO}_2\text{-N}$  浓度与  $\text{NO}_3^- \text{-N}_p$  浓度呈显著正相关关系,  $\text{HNO}_3\text{-N}$  浓度与  $\text{NO}_3^- \text{-N}_r$  呈显著正相关关系,  $\text{NO}_3^- \text{-N}_p$  浓度与  $\text{NO}_3^- \text{-N}_r$  呈显著正相关关系.

表 1 大气 NO<sub>2</sub>-N、HNO<sub>3</sub>-N 及气溶胶、雨水硝态氮浓度及湿沉降量与各气象因子相关性分析<sup>1)</sup>Table 1 Correlation analysis results among NO<sub>2</sub>-N, HNO<sub>3</sub>-N, NO<sub>3</sub><sup>-</sup>-N<sub>p</sub>, NO<sub>3</sub><sup>-</sup>-N<sub>r</sub> concentrations and meteorological parameters

	NO <sub>2</sub> -N	HNO <sub>3</sub> -N	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup> -N <sub>p</sub>	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup> -N <sub>r</sub>	湿沉降量	降雨量	气温	风速	相对湿度
NO <sub>2</sub> -N	1								
HNO <sub>3</sub> -N	0.213	1							
NO <sub>3</sub> <sup>-</sup> -N <sub>p</sub>	0.659*	0.438	1						
NO <sub>3</sub> <sup>-</sup> -N <sub>r</sub>	0.417	0.659*	0.348*	1					
湿沉降量	-0.143	-0.370	0.030	0.049	1				
降雨量	-0.224	-0.350	-0.085	-0.279**	0.413**	1			
气温	-0.624*	-0.443	-0.497**	-0.196	0.145	0.277**	1		
风速	0.031	-0.579*	-0.073	-0.186	-0.015	0.347**	0.197*	1	
相对湿度	0.114	-0.530	0.142	0.050	-0.079	-0.004	0.053	0.244**	1

1) \*\* 表示在 0.01 级别(双尾), 相关性极显著, \* 表示在 0.05 级别(双尾), 相关性显著

### 3 讨论

目前有研究表明, 我国北方大气 NO<sub>2</sub>-N、HNO<sub>3</sub>-N 浓度普遍高于南方, 东部沿海城市高于内陆地区和青藏高原、西南和西北等人类活动较弱的地区, 城市生态系统的浓度远高于其他生态系统<sup>[12]</sup>. 本研究区域中 NO<sub>2</sub>-N 浓度(4.2 μg·m<sup>-3</sup>) 高于西藏林芝地区 NO<sub>2</sub>-N 浓度(3.0 μg·m<sup>-3</sup>)<sup>[13]</sup>, HNO<sub>3</sub>-N 年平均浓度(0.7 μg·m<sup>-3</sup>) 远低于 Xu 等<sup>[14]</sup> 的研究中华北农田生态系统 HNO<sub>3</sub>-N 浓度(1.7 μg·m<sup>-3</sup>). 目前我国许多东部沿海经济发达城市大气颗粒物中 NO<sub>3</sub><sup>-</sup>-N<sub>p</sub> 通常在 7.2 ~ 14.6 μg·m<sup>-3</sup> 左右<sup>[15]</sup>, 本研究中观测的 NO<sub>3</sub><sup>-</sup>-N<sub>p</sub> 浓度(4.0 μg·m<sup>-3</sup>) 相对于前人已报道的农业生态系统监测值<sup>[16]</sup> 较高, 甚至高于部分城市监测点的结果<sup>[17]</sup>. 大气中 NO<sub>2</sub>-N、HNO<sub>3</sub>-N 和 NO<sub>3</sub><sup>-</sup>-N<sub>p</sub> 均来自于 NO<sub>x</sub> 排放, 从全国尺度的 NO<sub>x</sub> 排放清单<sup>[18]</sup> 以及关于 NO<sub>x</sub> 排放的卫星遥感数据<sup>[19]</sup> 来看, 位于亚热带的湖南省 NO<sub>x</sub> 排放处于全国中等水平, 低于华北平原、长三角和珠三角地区等经济发达地区, 但高于云贵高原和青藏高原等人为扰动低的地区. 这表明区域大气中氧化态氮浓度(NO<sub>2</sub>-N、HNO<sub>3</sub>-N 和 NO<sub>3</sub><sup>-</sup>-N<sub>p</sub>) 与区域 NO<sub>x</sub> 排放强度具有较好相关性.

大气 NO<sub>2</sub>-N、HNO<sub>3</sub>-N 和 NO<sub>3</sub><sup>-</sup>-N<sub>p</sub> 浓度在一年的不同时间中也有一定的差异. NO<sub>2</sub>-N 浓度在 10 ~ 12 月浓度最高, 这与前人研究结果类似<sup>[20]</sup>, 其原因为此时间段内当地农户露天焚烧水稻秸秆以及研究区域冬季燃烧煤炭发电和取暖增多, 大气 NO<sub>2</sub> 排放量增多. HNO<sub>3</sub> 主要由 NO 和 NO<sub>2</sub> (统称为 NO<sub>x</sub>) 发生反应生成, 且与气象因子的相关性分析表明其浓度与风速呈显著负相关关系(表 1), 因此 HNO<sub>3</sub>-N 浓度峰值与 NO<sub>2</sub>-N 浓度峰值较为吻合. 而在 NO<sub>2</sub>-N 浓度较高的 11 月 HNO<sub>3</sub>-N 浓度较低可能是因为该月份风速较大, 而 HNO<sub>3</sub> 的沉降速率较大, 高风速

条件下其沉降量也将增加, 从而降低其大气浓度. 本研究中 NO<sub>3</sub><sup>-</sup>-N<sub>p</sub> 浓度与 NO<sub>2</sub>-N 浓度动态变化特征较为一致, 相关性分析表明 NO<sub>3</sub><sup>-</sup>-N<sub>p</sub> 浓度与 NO<sub>2</sub>-N 浓度显著正相关, 这是因为大气 NO<sub>2</sub> 是 NO<sub>3</sub><sup>-</sup>-N<sub>p</sub> 主要前体物质; 同时气温与 NO<sub>3</sub><sup>-</sup>-N<sub>p</sub> 浓度呈极显著负相关, 这是因为低温时受采暖活动的影响, 煤炭燃烧量大, 排放到大气中 NO<sub>2</sub> 增多, 有助于 NO<sub>3</sub><sup>-</sup>-N<sub>p</sub> 的形成.

人类活动对雨水中 NO<sub>3</sub><sup>-</sup>-N<sub>r</sub> 浓度及湿沉降量有重要影响<sup>[21, 22]</sup>. 如闽西北农田生态系统、祁连山海北高寒草甸生态系统、长白山森林生态系统、长江流域农业集水区、山西省太原市旱作农区和四川盆地西缘都江堰森林生态系统 NO<sub>3</sub><sup>-</sup>-N<sub>r</sub> 浓度分别为 0.30<sup>[23]</sup>、0.27<sup>[24]</sup>、0.17<sup>[25]</sup>、1.30<sup>[26]</sup>、3.20<sup>[27]</sup> 和 1.40<sup>[28]</sup> mg·L<sup>-1</sup>. 本研究区域雨水中 NO<sub>3</sub><sup>-</sup>-N<sub>r</sub> 浓度(1.0 mg·L<sup>-1</sup>) 高于受人类活动影响较少的地区, 低于东部沿海和华北地区, 与 Kuang 等<sup>[29]</sup> 和 Cui 等<sup>[30]</sup> 在亚热带区域的研究结果相近. 相关性分析表明, NO<sub>3</sub><sup>-</sup>-N<sub>r</sub> 浓度与 HNO<sub>3</sub>、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>-N<sub>p</sub> 浓度呈正相关, 与降雨量呈负相关(表 1). 在春夏两季 HNO<sub>3</sub>-N 和 NO<sub>3</sub><sup>-</sup>-N<sub>p</sub> 浓度低、降雨量大时 NO<sub>3</sub><sup>-</sup>-N<sub>r</sub> 浓度较低, 秋冬两季 HNO<sub>3</sub>-N 和 NO<sub>3</sub><sup>-</sup>-N<sub>p</sub> 浓度高、降雨量小时 NO<sub>3</sub><sup>-</sup>-N<sub>r</sub> 浓度较高. 雨水中 NO<sub>3</sub><sup>-</sup>-N<sub>r</sub> 来源于大气中 HNO<sub>3</sub>、气溶胶中 NO<sub>3</sub><sup>-</sup>-N<sub>p</sub>, 冬季气温较低时人类采暖活动频繁, 煤炭燃烧量较大, NO<sub>x</sub> 排放量增加, 因此颗粒物浓度高, 云水中将凝聚较多的 NO<sub>3</sub><sup>-</sup>-N<sub>p</sub>, 从而增加 NO<sub>3</sub><sup>-</sup>-N<sub>r</sub> 浓度<sup>[31]</sup>. 当降雨量大时, NO<sub>3</sub><sup>-</sup>-N<sub>r</sub> 浓度被稀释从而降低. 在整个监测期内, 6 月降雨量大且降雨次数较多, 大气中气溶胶粒子得到充分冲洗, 导致其在空气中存留的时间变短, 使得降水中 NO<sub>3</sub><sup>-</sup>-N<sub>r</sub> 浓度变小, 3 月和 5 月由于降雨量大且 NO<sub>3</sub><sup>-</sup>-N<sub>r</sub> 浓度较高, NO<sub>3</sub><sup>-</sup>-N<sub>r</sub> 湿沉降量分别在这两个月出现峰值, 该研究结果与 Yu 等<sup>[32]</sup> 和 Chen 等<sup>[33]</sup> 的结论类似. 而 6 月虽然降雨量高于 3 月、仅次于

5月,但由于 $\text{NO}_3^- - \text{N}_r$ 浓度较低,导致该月沉降量较低,这与重庆缙云山林地<sup>[34]</sup>所监测到的结果一致.10月由于降雨次数及降雨量均为全年最少,降雨对大气中气溶胶颗粒物的清除效率降低,气溶胶粒子在大气中存留的时间较长,在降雨中也容易出现较高的 $\text{NO}_3^- - \text{N}_r$ 浓度值,因此10月 $\text{NO}_3^- - \text{N}_r$ 平均浓度最高,而7月由于降雨量小且 $\text{NO}_3^- - \text{N}_r$ 浓度低,湿沉降量为全年最低.

本研究区域 $\text{NO}_2 - \text{N}$ 、 $\text{HNO}_3 - \text{N}$ 、 $\text{NO}_3^- - \text{N}_p$ 年平均干沉降量和 $\text{NO}_3^- - \text{N}_r$ 年平均湿沉降量分别为 $6.9 \text{ kg} \cdot \text{hm}^{-2}$ 和 $6.1 \text{ kg} \cdot \text{hm}^{-2}$ ,远高于2013年全国平均水平( $3.0 \text{ kg} \cdot \text{hm}^{-2}$ 和 $2.8 \text{ kg} \cdot \text{hm}^{-2}$ )<sup>[35]</sup>,与同处亚热带的江西千烟洲香溪农田流域<sup>[10]</sup>、重庆缙云山林地<sup>[34]</sup>所监测到的结果较为相似,这与我国亚热带区域经济较发达,工业、交通运输业及农业源 $\text{NO}_x$ 排放相对较高有关.本研究区域 $\text{NO}_2 - \text{N}$ 、 $\text{HNO}_3 - \text{N}$ 、 $\text{NO}_3^- - \text{N}_p$ 年平均干沉降量与 $\text{NO}_3^- - \text{N}_r$ 年平均湿沉降量比值接近1:1,高于福建省九龙江流域监测结果(1:2)<sup>[36]</sup>,低于河北平原城市近郊农田监测结果(2:1)<sup>[37]</sup>,这可能是由于我国北方地区集体供暖,化石燃料的燃烧较南方地区高,且北方地区雨水较少,大气中的活性氮组分多以干沉降形式沉降到地面.由于受到大气传输过程、沉降面表面物理化学和生物特性的影响,大气 $\text{NO}_2 - \text{N}$ 、 $\text{HNO}_3 - \text{N}$ 和 $\text{NO}_3^- - \text{N}_p$ 干沉降直接测定较困难,本研究中的大气 $\text{NO}_2 - \text{N}$ 、 $\text{HNO}_3 - \text{N}$ 和 $\text{NO}_3^- - \text{N}_p$ 干沉降速率采用阻力模型模拟计算, $\text{NO}_2 - \text{N}$ 的月平均沉降速率在 $0.06 \sim 0.24 \text{ cm} \cdot \text{s}^{-1}$ 之间,平均值为 $0.13 \text{ cm} \cdot \text{s}^{-1}$ ;  $\text{HNO}_3 - \text{N}$ 的月平均沉降速率在 $0.47 \sim 3.49 \text{ cm} \cdot \text{s}^{-1}$ 之间,平均值为 $1.42 \text{ cm} \cdot \text{s}^{-1}$ ;  $\text{NO}_3^- - \text{N}_p$ 的月平均沉降速率在 $0.16 \sim 0.33 \text{ cm} \cdot \text{s}^{-1}$ 之间,平均值为 $0.21 \text{ cm} \cdot \text{s}^{-1}$ (图5).本研究模拟的干沉降速率与前人报道的农田(花生、水稻、小麦和玉米) $\text{NO}_2 - \text{N}$ 和 $\text{HNO}_3 - \text{N}$ 干沉降速率接近<sup>[38, 39]</sup>,表明模拟计算结果具有一定的可靠性.虽然本研究使用的方法作为干沉降的估算,已被众多学者接受,但为进一步校正模型结果,今后有必要采用微气象学方法,测定实地 $\text{NO}_2 - \text{N}$ 、 $\text{HNO}_3 - \text{N}$ 和 $\text{NO}_3^- - \text{N}_p$ 沉降速率.

氮是植物生长的必需养分之一,对于自然生态系统过多的氮素输入会产生系统生产力降低、生物多样性减少、土壤酸化、温室气体 $\text{N}_2\text{O}$ 排放增加等一系列不利的生态环境效应<sup>[40]</sup>.而农田生态系统过多的氮投入,也将增加土壤酸化、氮素径流损失及土壤 $\text{N}_2\text{O}$ 排放,并可促进农田周边的杂草生长.而大气氮沉降作为一种不可控的外源氮输入,往往

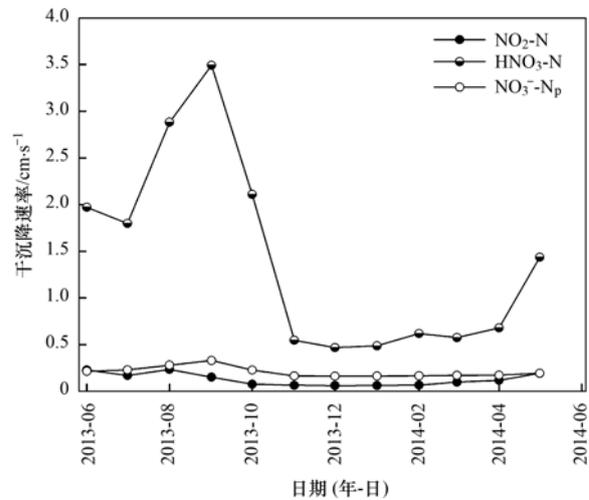


图5 采样期间 $\text{NO}_2 - \text{N}$ 、 $\text{HNO}_3 - \text{N}$ 及颗粒态硝态氮沉降速率

Fig. 5 Monthly mean dry deposition velocities of  $\text{NO}_2 - \text{N}$ ,  $\text{HNO}_3 - \text{N}$ ,  $\text{NO}_3^- - \text{N}_p$ , and  $\text{NO}_3^- - \text{N}_r$  during the sampling period

是导致生态系统(特别是自然生态系统)氮素过量投入的重要原因,其产生的生态环境效应不容忽视<sup>[41]</sup>.本研究中 $\text{NO}_2 - \text{N}$ 、 $\text{HNO}_3 - \text{N}$ 、 $\text{NO}_3^- - \text{N}_p$ 和 $\text{NO}_3^- - \text{N}_r$ 总干湿沉降量达到 $13.0 \text{ kg} \cdot (\text{hm}^2 \cdot \text{a})^{-1}$ ,其沉降量已经接近自然生态系统总活性氮沉降临界负荷值 $[15 \sim 20 \text{ kg} \cdot (\text{hm}^2 \cdot \text{a})^{-1}]$ <sup>[42]</sup>,表明氧化态氮( $\text{NO}_2 - \text{N}$ 、 $\text{HNO}_3 - \text{N}$ 、 $\text{NO}_3^- - \text{N}_p$ 和 $\text{NO}_3^- - \text{N}_r$ 的总称)的大气沉降在亚热带区域不容忽视.考虑到本研究区域还原态氮( $\text{NH}_3 - \text{N}$ 、 $\text{NH}_4^+ - \text{N}_p$ 和 $\text{NH}_4^+ - \text{N}_r$ )<sup>[11]</sup>的大气沉降量已高达 $23 \text{ kg} \cdot (\text{hm}^2 \cdot \text{a})^{-1}$ ,氧化态氮和还原态氮的总沉降量已高达 $36 \text{ kg} \cdot (\text{hm}^2 \cdot \text{a})^{-1}$ ,表明氮沉降已经成为亚热带稻区氮素的重要来源.根据本研究区域双季稻生产中平均年施氮量 $360 \text{ kg} \cdot (\text{hm}^2 \cdot \text{a})^{-1}$ 计,氮沉降输入的氮素已占到肥料氮输入的10%,表明氮沉降在农田氮素管理中不容忽视.过高的氮沉降对农田周边林地、草地、湿地等自然生态系统的影响也值得进一步研究.

#### 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 $\text{NO}_2 - \text{N}$ 、 $\text{HNO}_3 - \text{N}$ 和大气颗粒物 $\text{PM}_{10}$ 中 $\text{NO}_3^- - \text{N}_p$ 及雨水中 $\text{NO}_3^- - \text{N}_r$ 年平均浓度分别为 $4.2 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ 、 $0.7 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ 、 $4.0 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ 和 $1.0 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ .

(2) $\text{NO}_2 - \text{N}$ 浓度与气温呈负相关; $\text{HNO}_3 - \text{N}$ 浓度与风速呈负相关; $\text{NO}_3^- - \text{N}_p$ 浓度与气温呈负相关,与 $\text{NO}_2 - \text{N}$ 浓度呈正相关,与 $\text{HNO}_3 - \text{N}$ 浓度未显著相关,表明 $\text{NO}_2 - \text{N}$ 浓度在本研究区域是形成 $\text{NO}_3^- - \text{N}_p$ 污染的主要限制因子; $\text{NO}_3^- - \text{N}_r$ 浓度与降雨量呈负相关,与 $\text{HNO}_3 - \text{N}$ 浓度和 $\text{NO}_3^- - \text{N}_p$ 浓度呈正相关.

(3) 本研究区域大气中 NO<sub>2</sub>-N、HNO<sub>3</sub>-N、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>-N<sub>p</sub> 及雨水 NO<sub>3</sub><sup>-</sup>-N<sub>r</sub> 年总干湿沉降量为 13.0 kg·hm<sup>-2</sup>, 其中湿沉降量为 6.0 kg·hm<sup>-2</sup>, 总干沉降量为 6.9 kg·hm<sup>-2</sup>, 是稻田重要的氮素来源, 对稻田及周边生态系统的影响不容小视。

#### 参考文献:

- [1] 田世丽, 刘学军, 潘月鹏, 等. 应用扩散管测量霾污染期间大气氮硫化合物浓度的方法[J]. 环境科学, 2017, **38**(9): 3605-3609.  
Tian S L, Liu X J, Pan Y P, *et al.* Observations of reactive nitrogen and sulfur compounds during haze episodes using a denuder-based system [J]. *Environmental Science*, 2017, **38**(9): 3605-3609.
- [2] 冯小琼, 陈军辉, 姜涛, 等. 四川省 2005~2014 年农业源氨排放清单及分布特征[J]. 环境科学, 2017, **38**(7): 2728-2737.  
Feng X Q, Chen J H, Jiang T, *et al.* Agricultural ammonia emission inventory and its spatial distribution in Sichuan Province from 2005 to 2014 [J]. *Environmental Science*, 2017, **38**(7): 2728-2737.
- [3] 王芮, 唐家良, 章熙锋, 等. 亚热带农业小流域暴雨过程硝态氮迁移特征及水文示踪研究[J]. 水利学报, 2016, **47**(8): 996-1004, 1016.  
Wang R, Tang J L, Zhang X F, *et al.* Characteristics of Nitrate-N losses through runoff and hydrological tracing in subtropical agricultural catchments [J]. *Journal of Hydraulic Engineering*, 2016, **47**(8): 996-1004, 1016.
- [4] Shen J L, Chen D L, Bai M, *et al.* Spatial variations in soil and plant nitrogen levels caused by ammonia deposition near a cattle feedlot [J]. *Atmospheric Environment*, 2018, **176**(2018): 120-127.
- [5] 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.
- [6] Liu X J, Zhang Y, Han W X, *et al.* Enhanced nitrogen deposition over China [J]. *Nature*, 2013, **494**(7438): 459-462.
- [7] 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.
- [8] 湖南省统计局. 湖南省统计年鉴-2017 [M]. 北京: 中国统计出版社, 2017.
- [9] 许稳. 中国大气活性氮干湿沉降与大气污染减排效应研究 [D]. 北京: 中国农业大学, 2016. 25-56.
- [10] 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.
- [11] 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.
- [12] 郝卓. 亚热带典型流域大气氮湿沉降特征与环境效应及其同位素源解析 [D]. 重庆: 西南大学, 2016. 1-2.
- [13] 陈宫燕, 德吉白玛, 红梅, 等. 基于气象资料的林芝地区空气质量动态预报方法研究 [J]. 气象科技进展, 2013, **3**(6): 58-61.  
Chen G Y, Deji B M, Hong M, *et al.* Air quality dynamic prediction method based on Nyingchi meteorological data [J]. *Advances in Meteorological Science and Technology*, 2013, **3**(6): 58-61.
- [14] Xu W, Luo X S, Pan Y P, *et al.* Quantifying atmospheric nitrogen deposition in China through a nationwide monitoring network [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2015, **15**: 12345-12360.
- [15] Wu Z J, Hu M, Shao K S, *et al.* Acidic gases, NH<sub>3</sub> and secondary inorganic ions in PM<sub>10</sub> during summertime in Beijing, China and their relation to air mass history [J]. *Chemosphere*, 2009, **76**(8): 1028-1035.
- [16] 庄晓玲, 李凯辉, 王晓丽, 等. 新疆两种不同类型农田生态系统大气氮素干沉降分析 [J]. 干旱区研究, 2017, **34**(6): 1395-1401.  
Zhuang X L, Li K H, Wang X L, *et al.* Atmospheric nitrogen dry deposition in two agroecosystems in Xinjiang [J]. *Arid Zone Research*, 2017, **34**(6): 1395-1401.
- [17] Wang Y, Zhuang G S, Tang A H, *et al.* The ion chemistry and the source of PM<sub>2.5</sub> aerosol in Beijing [J]. *Atmospheric Environment*, 2005, **39**(21): 3771-3784.
- [18] 李倩, 曹国良, 董灿. 基于情景分析的中国大陆 SO<sub>2</sub>、NO<sub>x</sub> 排放清单预测研究 [J]. 环境污染与防治, 2015, **37**(9): 9-15, 19.  
Li Q, Cao G L, Dong C, *et al.* The emission inventories prediction of SO<sub>2</sub> and NO<sub>x</sub> in China mainland based on scenario analysis [J]. *Environmental Pollution & Control*, 2015, **37**(9): 9-15, 19.
- [19] 武卫玲, 薛文博, 王燕丽, 等. 卫星遥感在 NO<sub>x</sub> 总量控制中的应用 [J]. 环境科学, 2017, **38**(10): 3998-4004.  
Wu W L, Xue W B, Wang Y L, *et al.* Application of satellite remote sensing in NO<sub>x</sub> emission control [J]. *Environmental Science*, 2017, **38**(10): 3998-4004.
- [20] 熊新竹, 陶双成, 高硕晗, 等. 北京典型主城区冬季大气污染特征分析 [J]. 生态环境学报, 2017, **26**(7): 1167-1173.  
Xiong X Z, Tao S C, Gao S H, *et al.* Characteristics of air pollution in a typical main urban area of Beijing in winter [J]. *Ecology and Environmental Sciences*, 2017, **26**(7): 1167-1173.
- [21] Jung J Y, Furutani H, Uematsu M. Atmospheric inorganic nitrogen in marine aerosol and precipitation and its deposition to the North and South Pacific Oceans [J]. *Journal of Atmospheric Chemistry*, 2011, **68**(2): 157-181.
- [22] Zhang J, Zhang G S, Bi Y F, *et al.* Nitrogen species in rainwater and aerosols of the Yellow and East China seas: Effects of the East Asian monsoon and anthropogenic emissions and relevance for the NW Pacific Ocean [J]. *Global Biogeochemical Cycles*, 2011, **25**(3): GB3020.
- [23] 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, 2016, **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*, 2016, **26**(3): 127-130, 204.
- [24] 祝景彬, 李红琴, 贺慧丹, 等. 祁连山海北高寒草甸生态系统大气氮湿沉降动态变化特征 [J]. 干旱区资源与环境, 2017, **31**(12): 127-130, 204.

- 2016, **30**(3): 127-132.
- Zhu J B, Li H Q, He H D, *et al.* A dynamic changes of wet deposition of nitrogen at Haibei alpine meadow ecosystem of Qilian Mountains [J]. *Journal of Arid Land Resources and Environment*, 2016, **30**(3): 127-132.
- [25] 周旺明, 郭焱, 朱保坤, 等. 长白山森林生态系统大气氮素湿沉降通量和组成的季节变化特征[J]. *生态学报*, 2015, **35**(1): 158-164.
- Zhou W M, Guo Y, Zhu B K, *et al.* Seasonal variations of nitrogen flux and composition in a wet deposition forest ecosystem on Changbai Mountain [J]. *Acta Ecologica Sinica*, 2015, **35**(1): 158-164.
- [26] Yang R, Hayashi K, Zhu B, *et al.* Atmospheric NH<sub>3</sub> and NO<sub>2</sub> concentration and nitrogen deposition in an agricultural catchment of Eastern China [J]. *Science of the Total Environment*, 2010, **408**(20): 4624-4632.
- [27] 刘平, 刘学军, 刘恩科, 等. 山西省太原市旱作农区大气活性氮干湿沉降年度变化特征[J]. *中国生态农业学报*, 2017, **25**(5): 625-633.
- Liu P, Liu X J, Liu E K, *et al.* Temporal variation of atmospheric wet/dry reactive nitrogen deposition in Taiyuan rainfed farming area of Shanxi Province [J]. *Chinese Journal of Eco-Agriculture*, 2017, **25**(5): 625-633.
- [28] 杨开军, 杨万勤, 庄丽燕, 等. 四川盆地西缘都江堰大气氮素湿沉降特征[J]. *应用与环境生物学报*, 2018, **24**(1): 107-111.
- Yang K J, Yang W Q, Zhuang L Y, *et al.* Characteristics of atmospheric wet nitrogen deposition in Dujiangyan, western edge of Sichuan Basin [J]. *Chinese Journal of Applied & Environmental Biology*, 2018, **24**(1): 107-111.
- [29] 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.
- [30] 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.
- [31] 周静博, 任毅斌, 洪纲, 等. 利用 SPAMS 研究石家庄市冬季连续灰霾天气的污染特征及成因[J]. *环境科学*, 2015, **36**(11): 3972-3980.
- Zhou J B, Ren Y B, Hong G, *et al.* Characteristics and formation mechanism of a multi-day haze in the winter of Shijiazhuang using a Single Particle Aerosol Mass Spectrometer (SPAMS) [J]. *Environmental Science*, 2015, **36**(11): 3972-3980.
- [32] 宇万太, 马强, 张璐, 等. 下辽河平原降雨中氮素的动态变化[J]. *生态学杂志*, 2008, **27**(1): 33-37.
- Yu W T, Ma Q, Zhang L, *et al.* Dynamic changes of nitrogen in precipitation in lower reach of Liaohe River Plain [J]. *Chinese Journal of Ecology*, 2008, **27**(1): 33-37.
- [33] Chen N W, Hong H S, Huang Q J, *et al.* Atmospheric nitrogen deposition and its long-term dynamics in a southeast China coastal area [J]. *Journal of Environmental Management*, 2011, **92**(6): 1663-1667.
- [34] 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 H 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.
- [35] Lü C Q, Tian H Q. Spatial and temporal patterns of nitrogen deposition in China: Synthesis of observational data [J]. *Journal of Geophysical Research*, 2007, **112**(D22): D22S05.
- [36] 陈能汪, 洪华生, 张璐平. 九龙江流域大气氮湿沉降研究[J]. *环境科学*, 2008, **29**(1): 38-46.
- Chen N W, Hong H S, Zhang L P. Wet deposition of atmospheric nitrogen in Jiulong River Watershed [J]. *Environmental Science*, 2008, **29**(1): 38-46.
- [37] 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.
- [38] Luo X S, Liu P, Tang A H, *et al.* An evaluation of atmospheric N<sub>r</sub> pollution and deposition in North China after the Beijing Olympics [J]. *Atmospheric Environment*, 2013, **74**: 209-216.
- [39] 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.
- [40] Stevens C J, David T I, Storkey J, *et al.* Atmospheric nitrogen deposition in terrestrial ecosystems: Its impact on plant communities and consequences across trophic levels [J]. *Functional Ecology*, 2018, **32**(7): 1757-1769.
- [41] 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.
- [42] 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

Concurrent Measurement of Wet and Bulk Deposition of Trace Metals in Urban Beijing .....	ZHANG Guo-zhong, PAN Yue-peng, TIAN Shi-li, <i>et al.</i> (2493)
Concentration and Ecological Risk Assessment of Heavy Metals in PM <sub>2.5</sub> Collected in Urban and Suburban Areas of Beijing .....	XU Jing, LI Xing-ru, ZHANG Lan, <i>et al.</i> (2501)
Secondary Aerosol Formation in Urban Shanghai: Insights into the Roles of Photochemical Oxidation and Aqueous-Phase Reaction .....	GAO Jie, QIAO Li-ping, LOU Sheng-rong, <i>et al.</i> (2510)
Secondary Inorganic Pollution Characteristics During Heavy Pollution Episodes of 2017 in Tianjin .....	XU Hong, XIAO Zhi-mei, CHEN Kui, <i>et al.</i> (2519)
Characterization of PM <sub>10</sub> and PM <sub>2.5</sub> Source Profiles for Emissions from Nonmetal Mineral Products Manufacturing Processes .....	ZHAO Xue-yan, YU Gao-feng, WANG Xin-wu, <i>et al.</i> (2526)
Characteristics of Component Particle Size Distributions of Particulate Matter Emitted from a Waste Incineration Plant .....	YU Zhuo-jun, WU Jian-hui, ZHANG Yu-fen, <i>et al.</i> (2533)
Characteristics and Source Apportionment of Carbon Components in Road Dust PM <sub>2.5</sub> and PM <sub>10</sub> During Spring in Tianjin Derived by Using the Quadrat Sampling Method .....	MA Yan, JI Ya-qin, GUO Ji-liang, <i>et al.</i> (2540)
Urban Aerosol Hygroscopicity During Haze Weather .....	YANG Su-ying, TIAN Zhi-jie, ZHANG Tie-ning, <i>et al.</i> (2546)
Atmospheric Pollution Characteristics and Inhalation Exposure Risk of Nitrated Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in PM <sub>2.5</sub> at the Ningdong Energy and Chemical Industry Base, Northwest China .....	LIU Pan-liang, JU Yuan-li, MAO Xiao-xuan, <i>et al.</i> (2556)
Health Benefit Evaluation for PM <sub>10</sub> and PM <sub>2.5</sub> Pollution Control in Zhengzhou, China, 2014-2016 .....	HAN Shi-jie, WANG Jia, YAN Qi-she, <i>et al.</i> (2565)
Spatial-temporal Distribution of Aerosol Optical Depth and Its Main Influence Types in China During 1990-2017 .....	LIU Ying, LIN Ai-wen, QIN Wen-min, <i>et al.</i> (2572)
Research on the Pollution Characteristics and Causality of Haze-sand Air Pollution in Beijing in Spring .....	WANG Yao-ting, LI Qing-chun, ZHENG Zuo-fang, <i>et al.</i> (2582)
Vessel Emission Inventories and Emission Characteristics for Inland Rivers in Jiangsu Province .....	XU Wen-wen, YIN Cheng-qi, XU Xue-ji, <i>et al.</i> (2595)
Atmospheric Nitrogen Dioxide, Nitric Acid, Nitrate Nitrogen Concentrations, and Wet and Dry Deposition Rates in a Double Rice Region in Subtropical China .....	OUYANG Xiu-qin, WANG Bo, SHEN Jian-lin, <i>et al.</i> (2607)
Characteristics of Stable Isotopes in Precipitation and Moisture Sources in the Headwaters of the Yangtze River .....	WANG Shao-yong, WANG Qiao-li, WU Jin-kui, <i>et al.</i> (2615)
Historical Trends of Atmospheric Trace Metal Pollution in Northern Guizhou Province as Reconstructed from Alpine Lake Sediments .....	LIANG Meng-yao, LIU En-feng, ZHANG En-lou, <i>et al.</i> (2624)
Distribution Characteristics of Microplastics in Qingdao Coastal Beaches .....	LUO Ya-dan, LIN Qian-hui, JIA Fang-li, <i>et al.</i> (2631)
Pollution Characteristics of Microplastics in Migratory Bird Habitats Located Within Poyang Lake Wetlands .....	LIU Shu-li, JIAN Min-fei, ZHOU Long-yin, <i>et al.</i> (2639)
Use of the Nitrogen/Carbon Ratio (N/C) and Two End-Member Sources Mixing Model to Identify the Origins of Dissolved Organic Matter from Soils in the Water-Level Fluctuation Zones of the Three Gorges Reservoir .....	JIANG Tao, JOERI Kaal, LIANG Jian, <i>et al.</i> (2647)
Effects of Photosynthesis of Submerged Aquatic Plants on CDOM in a Karst Water System: A Case Study from Xueyu Cave, Chongqing, China .....	FAN Jia-xin, JIANG Yong-jun, HE Qiu-fang, <i>et al.</i> (2657)
Indicators of Groundwater Evolution Processes Based on Hydrochemistry and Environmental Isotopes: A Case Study of the Dongyuan Drinking Water Source Area in Ji'nan City .....	ZHANG Ya, SU Chun-li, MA Yan-hua, <i>et al.</i> (2667)
Water Quality Analysis and Health Risk Assessment for Groundwater at Xiangshui, Chongzuo .....	ZHOU Jin-mei, JIANG Zhong-cheng, XU Guang-li, <i>et al.</i> (2675)
Chemical Characteristics of Groundwater and Material Sources Analysis in Buckwheat Field, Yunnan Province .....	ZHANG Yong, GUO Chun-qing, ZHU Yan-guang, <i>et al.</i> (2686)
C and N Transport Flux and Associated Changes of Water Quality Parameters from a Multiscale Subtropical Watershed in the Poyang Lake Area .....	LU Yao, GAO Yang, JIA Jun-jie, <i>et al.</i> (2696)
Pollutant Transport Analysis and Source Apportionment of the Entire Non-point Source Pollution Process in Combined Sewer Systems .....	FANG Jin-xiu, XIE Wen-xia, ZHOU Yu-xi, <i>et al.</i> (2705)
Nitrogen Removal Efficiencies from Road Runoff by Dry Grass Swales with a Shallow Substrate Layer .....	DUAN Jin-kai, LI Tian, ZHANG Jia-wei (2715)
Migration Characteristics of Manganese During Rainfall Events and Its Impacts on Water Quality in a Drinking Water Source Reservoir .....	DENG Li-fan, HUANG Ting-lin, LI Nan, <i>et al.</i> (2722)
Potential for Phosphorus Uptake by Bed Sediments and Its Response to Carbon Additions in the Shiwuli River, Chaohu Lake Basin .....	LI Ru-zhong, BAO Qin, ZHANG Rui-gang, <i>et al.</i> (2730)
Sources and Distribution of Phosphorus in Sediments of the Jimpen Reservoir .....	MAO Xue-jing, HUANG Ting-lin, LI Nan, <i>et al.</i> (2738)
Water Quality Characteristics and Distribution of Bacterial Communities During Thermal Stratification in the Miyun Reservoir .....	WANG Yu-bing, WANG Xiao-yan, PANG Shu-jiang, <i>et al.</i> (2745)
Relationship Between the Vertical Distribution of Nutrients and Bacterial Community Structures in Sediment Interstitial Waters of Stratified Reservoirs with Different Water Temperatures .....	WANG Shen, ZHANG Si-si, XU You, <i>et al.</i> (2753)
Accumulation Characteristics and Release Regularity of Nutrients in Sediments of a Surface-flow Constructed Wetland After Long-term Operation .....	ZHU Yi-meng, JIANG Cui-ling, ZHU Li-qin, <i>et al.</i> (2764)
Application of Goethite Modified Biochar for Arsenic Removal from Aqueous Solution .....	ZHU Si-hang, ZHAO Jing-jing, YIN Ying-jie, <i>et al.</i> (2773)
Effects and Mechanisms of Methyl Orange Removal from Aqueous Solutions by Modified Rice Shell Biochar .....	SHI Yue-yue, SHAN Riu, YUAN Hao-ran (2783)
Performance and Membrane Fouling Properties in an Anaerobic Membrane Bioreactor for Salty Wastewater .....	YAN Huan-xi, XU Zhen-yu, JIN Chun-ji, <i>et al.</i> (2793)
Pollution Characteristics and Enhanced Removal of Organic Phosphorus in Effluent from a Wastewater Treatment Plant .....	WANG Xiao-dong, WANG Zi-wen, CHEN Ming-fei, <i>et al.</i> (2800)
Effects of Alkalinity on Partial Nitrification in a Zeolite Sequencing Batch Reactor .....	WANG Rui-xin, CHEN Jing, WANG Xiao-jun, <i>et al.</i> (2807)
Effects of the Physical Structure of Activated Sludge on Respiration Processes .....	GUO Yao, LI Zhi-hua, YANG Cheng-jian, <i>et al.</i> (2813)
Performance of an Aerobic Granular Reactor Treating Biogas Slurry from Pig Farm .....	LIAO Jie, YE Jia-qi, ZENG Zhi-chao, <i>et al.</i> (2821)
Spatial-temporal Characteristics and Driving Factors of Greenhouse Gas Emissions from Rivers in a Rapidly Urbanizing Area .....	LIU Ting-ting, WANG Xiao-feng, YUAN Xing-zhong, <i>et al.</i> (2827)
Influences of Biochar on Pollutant Removal Efficiencies and Nitrous Oxide Emissions in a Subsurface Flow Constructed Wetland .....	DENG Chao-ren, LIANG Yin-kun, HUANG Lei, <i>et al.</i> (2840)
Effects of the Veterinary Antibiotic Sulfamethazine on N <sub>2</sub> O Emissions and the Associated Microbiological Mechanism in a Rice Field .....	WU Jie, LI Zhi-lin, XU Jia-ying, <i>et al.</i> (2847)
Effects of Different Levels of Nitrogen Fertilization on Soil Respiration Rates and Soil Biochemical Properties in an Alfalfa Grassland .....	HU Wei, ZHANG Ya-hong, LI Peng, <i>et al.</i> (2858)
Spatial Distribution and Risk Assessment of Heavy Metals in Soils from a Typical Urbanized Area .....	HE Bo, ZHAO Hui, WANG Tie-yu, <i>et al.</i> (2869)
Accumulation of Heavy Metals in Agricultural Soils and Crops from an Area with a High Geochemical Background of Cadmium, Southwestern China .....	LIU Yi-zhang, XIAO Tang-fu, XIONG Yan, <i>et al.</i> (2877)
Spatial Distribution Characteristics and Source Apportionment of Soil Heavy Metals in Chinese Wolfberry Land Based on GIS and the Receptor Model .....	BAI Yi-ru, ZHANG Xing, ZHAO Yun-peng, <i>et al.</i> (2885)
Spatial Distribution and Pollution Assessment of As at a Small Scale in Agricultural Soils of the Karst Region .....	WANG Hua, LIU Xiu-ming, LIU Fang, <i>et al.</i> (2895)
Soil Aggregate Stability and Its Stoichiometric Characteristics in <i>Robinia pseudoacacia</i> Forest within Different Vegetation Zones on the Loess Plateau, China .....	QU Qing, XU Hong-wei, WU Xuan, <i>et al.</i> (2904)
Straw Returning Plus Nitrogen Fertilizer Affects the Soil Microbial Community and Organic Carbon Mineralization in Karst Farmland .....	XU Xue-chi, SU Yi-rong, WANG Gui-hong, <i>et al.</i> (2912)
Effects of Biochar Application and Ageing on the Adsorption of Antibiotics in Purple Soil .....	YIN Wen-min, GUAN Zhuo, LIU Chen, <i>et al.</i> (2920)
Ammonia Oxidation in a Neutral Purple Soil Measured by the <sup>15</sup> N-DNA-SIP Method .....	LIU Tian-lin, WANG Zhi-hui, YAN Xiao-juan, <i>et al.</i> (2930)
Effects of Silver Nanoparticles and Silver Ions on Soil Nitrification Microorganisms and Ammonification .....	WU Ling-li, ZHANG Xu, SHU Kun-hui, <i>et al.</i> (2939)
Insight into the Process of Mn-ANAMMOX in Soils of Agricultural Drainage Ditches .....	CHEN Shi, LI Zheng-kui, QIN Yun-bin, <i>et al.</i> (2948)
Effects of Different Concentrations of Tetracycline in Sludge on Ammonia Oxidizers During Vermicomposting .....	WU Ying, HUANG Kui, XIA Hui, <i>et al.</i> (2954)