

环境科学

(HUANJING KEXUE)

ENVIRONMENTAL SCIENCE

第39卷 第12期

Vol.39 No.12

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(卷终)

中国燃煤电厂大气污染物排放的健康影响特征 秦雨, 张强, 李鑫, 赵红艳, 同丹, 郑逸璇, 耿冠楠, 贺克斌 (5289)

基于 LUR 模型的中国 PM_{2.5} 时空变化分析 刘炳杰, 彭晓敏, 李继红 (5296)

长三角淳安地区二次颗粒物污染形成机制 黄丹丹, 周敏, 余传冠, 朱书慧, 王裕成, 乔利平, 楼晟荣, 陶士康, 杨强, 李莉 (5308)

春季沙尘过程北京市不同粒径大气气溶胶污染特征及来源分析 杨阳, 李杏茹, 陈曦, 刘水桥, 刘雨思, 徐静, 王莉莉, 陶明辉, 王格慧 (5315)

成都双流夏秋季环境中 VOCs 污染特征 邓媛元, 李晶, 李亚琦, 吴蓉蓉, 谢绍东 (5323)

佛山市典型铝型材行业表面涂装 VOCs 排放组成 李霞, 苏伟健, 黎碧霞, 龙森, 黎丽莉, 张洲, 于跃刚, 王云鹏, 王新明 (5334)

四川省人为源大气污染物排放清单及特征 周子航, 邓也, 谭钦文, 吴柯颖, 杨欣悦, 周小玲 (5344)

炼焦工序颗粒物排放特征 王彦辉, 赵亮, 孙文强, 叶竹, 蔡九菊 (5359)

小流域大气氮干湿沉降特征 王焕晓, 庞树江, 王晓燕, 樊彦波 (5365)

流域氮素主要输出途径及变化特征 李文超, 雷秋良, 翟丽梅, 刘宏斌, 胡万里, 刘申, 任天志 (5375)

生物炭配施缓控释肥对稻田田面水氮素动态变化及径流流失的影响 斯林林, 周静杰, 吴良欢, 胡兆平 (5383)

长江上游农业源溪流雨季中 N₂O 间接排放特征 田琳琳, 王正, 朱波 (5391)

不同氮污染特征河流 NO₃⁻ 浓度、释放通量与排放系数 王森, 李亚峰, 雷坤, 杨丽标 (5400)

多种同位素手段的硝酸盐污染源解析, 以会仙湿地为例 彭聪, 潘晓东, 焦友军, 任坤, 曾洁 (5410)

典型岩溶槽谷区土壤水 δD 和 δ¹⁸O 时空分布特征: 以重庆市中梁山岩溶槽谷为例 吴韦, 蒋勇军, 贾亚男, 彭学义, 段世辉, 刘九缠, 王正雄 (5418)

沁河冲洪积扇地下水水化学特征及成因分析 刘江涛, 蔡五田, 曹月婷, 蔡月梅, 边超, 吕永高, 陈远铭 (5428)

2017 年最大降水对再生水受水河道径流组成的影响 廖安然, 宋献方, 张应华, 杨丽虎, 卜红梅, 马英, 韩冬梅, 秦文婧, 杨胜天 (5440)

周村水库主库区水体热分层形成过程中沉积物间隙水 DOM 的光谱演变特征 周石磊, 张艺冉, 黄廷林, 李再兴, 罗晓 (5451)

三峡库区沉积物中镍污染特征评价 张伟杰, 殷淑华, 徐东昱, 高丽, 高博 (5464)

四面山大洪湖底泥/水界面汞的迁移转化规律 郭攀, 孙涛, 杨光, 马明 (5473)

大兴安岭南麓河湿地类型对土壤中甲基汞分布的影响 周心功, 刘玉荣, 李晶, 周志峰 (5480)

模拟三峡库区消落带土壤有机磷酸酯类水释放特征 杨婷, 何明靖, 杨志豪, 魏世强 (5487)

典型旅游城市河流水体及污水厂出水中全氟烷基酸类化合物的空间分布及其前体物的转化 王世亮, 孙建树, 杨月伟, 张敏 (5494)

4 种不同工况生物滤池净化效能与微生物特性分析 江肖良, 李孟, 张少辉, 张世羊 (5503)

微量元素锰对威氏海链藻生长及叶绿素荧光的影响 王木兰, 姜玥璐 (5514)

广东省水库拟柱孢藻 (*Cylindrospermopsis raciborskii*) 的分布特征及影响因子分析 雷敏婷, 彭亮, 韩博平, 雷腊梅 (5523)

磁性壳聚糖接枝聚丙烯酰胺去除水体中腐殖酸 尤雯, 刘海成, 曹家玮, 沈耀良, 陈卫 (5532)

臭氧-生物活性炭对微污染原水中典型持久性有机物的去除效果 兰亚琼, 刘锐, 马正杰, 陈吕军 (5541)

水解酸化/AO 组合工艺处理印染废水色度去除与脱氮性能 顾梦琪, 尹启东, 刘爱科, 吴光学 (5550)

“异养-硫自养”组合工艺去除高浓度高氯酸盐特性 刘颖男, 陶华强, 宋圆圆, 张春青, 逯彩彩, 韩懿, 李海波, 郭建博 (5558)

静压快速启动亚硝酸盐依赖型甲烷厌氧氧化反应 王一因, 胡振, 茹东云, 姜丽萍, 刘华清 (5565)

多级 AO 耦合流离生化工艺流量分配比优化及脱氮机制 王帆, 李军, 边德军, 聂泽兵, 张莉, 孙艺齐 (5572)

主流条件下两级式 PN-ANAMMOX 工艺的高效能脱氮过程 刘文如, 杨殿海, 沈耀良, 王建芳, 吴鹏, 钱飞跃, 陈重军 (5580)

不同基质浓度对 ANAMMOX 菌短期储存的影响 高雪健, 张杰, 李冬, 曹正美, 郭跃洲, 李帅 (5587)

主流厌氧氨氧化工艺的运行优化及其微生物的群落变迁 付昆明, 付冀, 李慧, 姜姍, 仇付国, 曹秀芹 (5596)

厌氧氨氧化污泥恢复过程中的颗粒特性 陈方敏, 顾澄伟, 胡羽婷, 黄勇, 李祥, 陆明羽, 方文辉, 金润 (5605)

低温反硝化菌——施氏假单胞菌 N3 的筛选及脱氮性能 路俊玲, 陈慧萍, 肖琳 (5612)

复垦工业场地土壤和周边河道沉积物重金属污染及潜在生态风险 吴健, 王敏, 张辉鹏, 黄宇驰, 徐志豪, 李青青, 陈昊, 黄沈发 (5620)

不同土地利用类型土壤重金属生态风险与人体健康风险 李春芳, 曹见飞, 吕建树, 姚磊, 吴泉源 (5628)

某大型神渣场地土壤 As 污染特征及生态风险评价 刘庚, 石瑛, 田海金, 李豪, 张蕾, 牛俊杰, 郭观林, 张朝 (5639)

亚热带典型岩溶水库细菌丰度和细菌生产力及其与环境因子的关系 辛胜林, 梁月明, 彭文杰, 宋昂, 靳振江, 朱美娜, 李强 (5647)

岩溶区典型灌丛植物根系从枝菌根真菌群落结构解析 梁月明, 苏以荣, 何寻阳, 陈香碧 (5657)

模拟氮沉降对干旱半干旱温带草原土壤细菌群落结构的影响 李宗明, 沈菊培, 张丽梅, 刘国平, 白文明, 贺纪正 (5665)

添加磷素对低磷稻田根际土壤固碳自养微生物数量的影响 柏菁, 李奕霏, 刘守龙, 祝贞科, 李科林, 彭佩钦, 吴小红, 葛体达, 吴金水 (5672)

长期不同施肥对稻田土壤有机碳矿化及激发效应的影响 马欣, 魏亮, 唐美玲, 徐福利, 祝贞科, 葛体达, 吴金水 (5680)

黄土丘陵区撂荒恢复过程中植物群落组成与土壤养分及酶活性变化的关系 乔文静, 戴银月, 张伟, 付淑月, 杨改河, 韩新辉, 陈正兴, 高德新, 冯永忠 (5687)

生活垃圾不同填埋阶段的富里酸对五氯苯酚的降解 刘思佳, 何小松, 张慧, 祖国峰, 席北斗, 李丹, 党秋玲 (5699)

CO₂ 倍增条件下不同生育期水稻碳氮磷含量及其计量比特征 唐美玲, 肖谋良, 袁红朝, 王光军, 刘守龙, 祝贞科, 葛体达, 吴金水 (5708)

基于层次分析法的医疗废物处置技术评价 许晓芳, 谭全银, 刘丽丽, 李金惠 (5717)

中国农田畜禽粪尿氮负荷量及其还田潜力 刘晓永, 王秀斌, 李书田 (5723)

《环境科学》第 39 卷(2018 年) 总目录 (5740)

《环境科学》征订启事 (5343) 《环境科学》征稿简则 (5439) 信息 (5595, 5619, 5638)

小流域大气氮干湿沉降特征

王焕晓¹, 庞树江¹, 王晓燕^{1,2*}, 樊彦波¹

(1. 首都师范大学资源环境与旅游学院, 北京 100048; 2. 首都师范大学首都圈水环境研究中心, 北京 100048)

摘要: 大气氮沉降是陆源污染物和营养物质向水生生态系统传输的重要途径之一。在人类活动影响较大的流域, 大量氮素通过大气沉降的形式输入到水体中, 能够对地表水体的营养结构、水生生物的生存环境等造成严重的负面生态效应。本文以密云水库石匣小流域为例, 采集并分析了研究区大气氮沉降(颗粒态干沉降与湿沉降)样品, 探讨了该流域大气氮沉降通量的变化特征及其主要影响因子, 进而明确了大气氮沉降对流域氮输入的贡献程度。结果表明: ① 石匣流域大气氮总沉降(颗粒态干沉降与湿沉降之和)呈现出明显的季节变化特征; 对湿沉降而言, 总氮、氨氮在夏季沉降通量最大, 溶解性有机氮沉降通量在春季最大, 而硝态氮季节变化并不明显; 对颗粒态干沉降而言, 总氮和氨氮的沉降通量在冬季最高; 硝态氮在不同季节变化不明显, 但其沉降趋势与总氮基本一致; 溶解性有机氮在秋季出现最高值。② 该流域氮沉降通量为 $43.14 \text{ kg}\cdot\text{hm}^{-2}$, 其中湿沉降通量占 39.85%, 颗粒态干沉降通量占 60.15%。③ 降雨和风速条件是影响大气氮沉降的重要影响因子, 其中雨量和雨强与氮湿沉降浓度均呈明显的负相关关系; 对颗粒态干沉降而言, 监测期内平均风速是影响颗粒态氮氮干沉降通量的重要因子。④ 大气氮沉降占该流域总的氮素输入量的 15.09%, 是仅次于畜禽养殖和农村生活的重要污染源。本研究结果可为密云水库上游流域氮素综合管理提供科学参考。

关键词: 大气氮沉降; 流域氮输入; 沉降通量; 影响因素; 石匣流域

中图分类号: X144 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2018)12-5365-10 DOI: 10.13227/j.hjxx.201801222

Dry and Wet Deposition of Atmospheric Nitrogen in Small Catchments

WANG Huan-xiao¹, PANG Shu-jiang¹, WANG Xiao-yan^{1,2*}, FAN Yan-bo¹

(1. College of Resources, Environment and Tourism, Capital Normal University, Beijing 100048, China; 2. Research Center of Aquatic Environment in the Capital Region, Capital Normal University, Beijing 100048, China)

Abstract: Atmospheric nitrogen deposition is one of the important pathways for the transmission of terrestrial pollutants and nutrients to aquatic ecosystems. A considerable amount of nitrogen substances is delivered into the surface water environment via atmospheric deposition in the catchments, which are greatly affected by human activities, and have serious negative effects on the nutrient level and aquatic habitat environment. The Shixia Catchment north of the Miyun Reservoir was selected as study area. Samples of particulate dry and wet deposition were collected and tested. Subsequently, the variation of the atmospheric nitrogen deposition flux and factors impacting it were determined; ultimately, the contribution of atmospheric nitrogen deposition to the nitrogen budget of the catchment was estimated. The major results are as follows: ① The total nitrogen deposition flux of particulate dry and wet deposition is characterized by a significant temporary variation. Regarding the total nitrogen, the ammonia nitrogen and wet deposition flux are the highest in summer and dissolved organic nitrogen is the highest in spring. However, the flux of nitrate nitrogen shows no notable seasonal fluctuation. The general trend of the particulate dry deposition flux is supreme in winter, followed by that in autumn and spring. In detail, the total nitrogen and ammonia nitrogen deposition are the largest in winter, while the seasonal variance of nitrate nitrogen appears to be less apparent. The dry deposition flux of dissolved organic nitrogen is the greatest in autumn. ② The total flux of nitrogen deposition is $43.14 \text{ kg}\cdot\text{hm}^{-2}$ in the Shixia Catchment; the wet and dry deposition flux account for 39.85% and 60.15%, respectively. ③ Rainfall and wind speed conditions are important factors impacting the atmospheric nitrogen deposition. The rainfall and rainfall intensity are negatively correlated with the wet nitrogen deposition concentration. With respect to the particulate dry deposition, the average wind speed during the monitoring period is important to ammonia nitrogen. ④ The contribution of atmospheric nitrogen deposition to the total nitrogen input in this catchment is approximately 15.09%, second only to livestock and poultry farming and rural life. The results of this study provide information that is useful for the nitrogen management in the catchment.

Key words: atmospheric nitrogen deposition; catchment nitrogen input; deposition flux; influencing factor; Shixia Catchment

工业革命以来, 工农业活动和化石燃料需求的增加, 导致大气环境中活性氮排放量急剧增加, 全球的氮素沉降通量亦呈现逐年增加的趋势^[1], 而这部分氮素多以沉降的形式返回陆地或水域, 进而影响陆地及水生生态系统的初级生产力、生态系统生物多样性和结构的稳定性等^[2]。另外, 大气氮沉降

收稿日期: 2018-01-24; 修订日期: 2018-05-25

基金项目: 国家自然科学基金项目(41271495); 英国生物技术与生物科学联合会 BBSRCC(BB/N031484/1); 科技创新服务能力建设-基本科研业务费(科研类)(025185305000/149); 北京市自然科学基金委员会-北京市教育委员会联合项目(KZ201810028047)

作者简介: 王焕晓(1992~), 女, 硕士研究生, 主要研究方向为流域非点源污染, E-mail: wanghuanxia08@126.com

* 通信作者, E-mail: wangxy@cnu.edu.cn

也是河流和海湾等水体氮营养元素输入的重要途径之一,进而可能导致地表水体富营养化等问题的发生^[3].因此,针对大气氮沉降及其造成的生态环境影响的研究,已经引起了国内外学者的广泛关注.

作为全球氮沉降的三大热点地区(北美、西欧和东亚)之一,我国的大气氮素沉降定量监测研究工作始于20世纪70年代末^[4,5],此时期主要集中于大气湿沉降的研究;自21世纪以来得以较快发展,并在不同类型的生态系统中开展了一系列的监测和研究工作,例如,农田、林地、水体、城市等生态系统类型^[6-8].目前,最常用的氮素湿沉降的监测方法主要通过雨量器或降雨降尘自动采样器采集样品,而后在实验室进行氮形态、浓度等常规分析;后者可对氮干、湿沉降进行独立收集,因而测量结果更为精确^[9].如王小治等^[10]采用该方法对太湖地区的大气氮沉降进行研究,结果表明氮湿沉降输入以溶解态氮为主,且存在春夏季高于秋冬季的季节变化特征;张颖等^[11]对华北地区大气氮沉降的研究结果显示,大气氮沉降通量在空间上也存在一定差异,表现为北京明显高于河北和山东,且降水中铵态氮浓度明显高于硝态氮;王圣杰等^[12]则是利用该方法对固态降水进行收集,研究西北冰川地区的大气氮沉降,发现大气氮沉降的季节变化与降水之间表现出较好的对应关系.而干沉降的测定主要基于三类方法,即微气象学方法^[13]、推算模型法^[14]、替代面法(如降尘缸法)^[15].其中,微气象学法对下垫面、观测仪器的要求较高,因而在大气氮沉降研究方面应用较少;而骆晓声等^[16]利用推算模型法对雷州半岛农田大气氮沉降的研究表明,氨气在氮干沉降中占主导地位,氮肥施用对氮沉降的贡献较大.但是推算模型法需要精准观测数据来验证其可靠性,替代面法则较容易实现,已被广泛用于氮素干沉降通量的监测和计算研究.例如,陈能汪等^[15]在九龙江流域采用替代面法对大气氮干沉降的研究表明,大气氮干沉降时空上的差异性主要与氮排放量和气象条件有关.

虽然,国内外对大气氮沉降已有深入研究,但是大气氮沉降作为流域非点源污染的重要来源之一,由于其来源复杂、流域气象因素(降雨、风速和风向)存在较大差异,导致大气氮沉降浓度、沉降量等也存在较大差异,使大气氮沉降在时间和空间上也存在明显变化.目前,我国对大气氮沉降的研究主要集中于农田、城市等人类活动密集的地区^[17-20],研究内容包括大气氮沉降的来源、化学

形态特征、沉降过程等,并取得了显著进展.就大气氮沉降的化学形态特征来看主要为无机氮的研究,对有机氮的定量研究较少,另外关于大气氮沉降对流域非点源氮素输入贡献程度的研究亦鲜见报道.基于此,大气氮沉降对不同类型生态系统的生态效应及对非点源氮素输入的贡献程度仍有待于进一步研究.

密云水库作为北京市地表饮用水源地,对首都饮用水安全具有重要意义.已有研究表明,密云水库水体的富营养化程度属中营养型,向富营养化发展的趋势比较明显^[21].近年来,受频繁的社会经济活动的影响,密云水库上游潮河流域的总氮浓度呈不断增加的趋势^[22].目前,围绕密云水库农业非点源污染的研究较多,但缺少流域大气氮素沉降方面的监测研究.因此,本研究通过摸清密云水库小流域大气氮素干、湿沉降特征及对流域氮素输出的贡献,旨在为该流域内环境保护及管理提供科学参考.

1 研究区概况

石匣流域位于密云水库东北部(图1),地理位置为 $117^{\circ}00'54'' \sim 117^{\circ}05'49'' \text{E}$, $40^{\circ}32'42'' \sim 40^{\circ}37'30'' \text{N}$,总面积 33 km^2 ,是潮河流域的下游流域,隶属于密云区高岭镇,辖8个行政村.地势北高南低,地貌以山地丘陵为主,海拔高度为 141.42

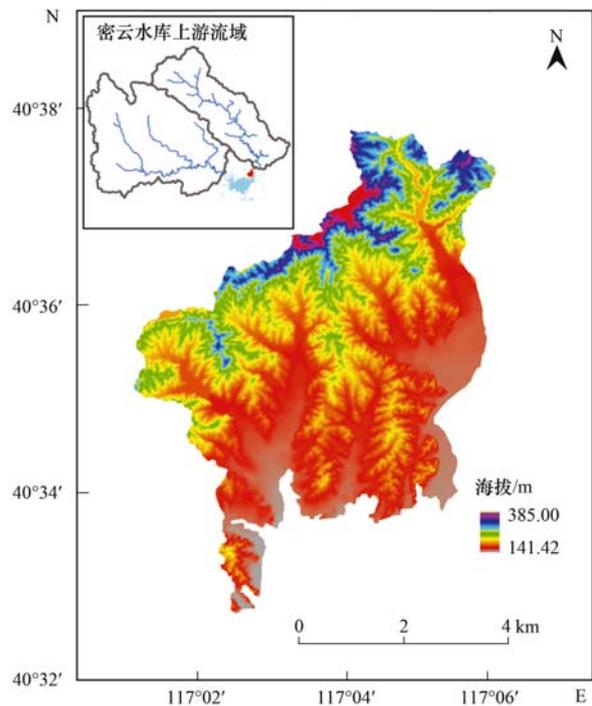


图1 研究区位置示意

Fig. 1 Location of the study area

~385.00 m, 相对高差 243.58 m. 气候类型为暖温带大陆性季风气候, 冬季干燥寒冷, 夏季炎热多雨, 多年平均降水量为 661.80 mm, 降水主要集中在 6~9 月, 占全年降雨量的 80% 左右. 土壤类型以洪冲积物上发育的淋溶褐土为主, 质地为沙质土壤, 易漏水漏肥. 石匣小流域的土地利用以林地和耕地为主, 二者合计占流域总面积的 92.80%. 流域人口共计 6 195 人, 其中农村劳动力 3 125 人, 农业种植业是石匣流域主要的产业部门.

2 材料与方法

2.1 样品收集及分析方法

本研究(2014 年 5 月~2015 年 1 月)于密云水库上游石匣流域收集 25 个大气湿沉降样品, 61 个大气干沉降样品. 其中, 湿沉降的观测设备包括 APS-2B 型降水降尘自动采样仪(湖南长沙湘蓝科学仪器有限公司)和集尘缸(直径 15 cm, 高 30 cm). 降雨后 10 s 内干沉降收集自动停止, 湿沉降收集系统(直径 30 cm)开启, 通过显示面板读取降雨起止时间、时长与降雨量等信息. 颗粒态氮干沉降采用湿法收集, 收集液体积取 2 400 mL, 采样频率每 4 d 一次, 量取剩余收集液的体积, 用 100 mL 超纯水润洗的塑料瓶进行采样, 并冷冻保存. 根据研究区冬季的最低室外温度, 采用浓度为 15%~20% 的酒精作为冬季样品收集液. 干沉降收集液中的铵态氮(NH_4^+)和硝态氮(NO_3^-)均用流动注射进样仪进行测定, 总氮(total nitrogen, TN)采用碱性过硫酸钾氧化紫外分光光度法测定, 溶解性有机氮(dissolved organic nitrogen, DON)为 TN 与 NH_4^+ 和 NO_3^- 的差值, 即 $\text{DON} = \text{TN} - (\text{NH}_4^+ + \text{NO}_3^-)$.

2.2 大气氮沉降通量计算方法

采用式(1)、(2)^[23]计算大气氮湿沉降通量, 氮湿沉降的月均浓度是指每月月底收集的降水中氮浓度, 湿沉降的月(季、年)均浓度是用雨水样品收集期内月(季、年)降雨量进行加权平均来计算; 湿沉降通量是月(季、年)雨量加权平均浓度与该月(季、年)总降雨量的乘积. 采用式(3)计算颗粒态大气氮干沉降通量, 将各个月份相加得出全年(季)的颗粒态大气干沉降通量. 大气氮总沉降通量为湿沉降通量与颗粒态干沉降通量的相加, 采用式(4)计算:

$$c_r = \sum c_i \times H_i / \sum H_i \quad (1)$$

$$F_w = c_r \times R_r / 100 \quad (2)$$

$$F_d = c_R \times V_d \times 1.039 \times 10^{-4} \quad (3)$$

$$F = F_w + F_d \quad (4)$$

式中, c_r 是氮的某组分的月(季、年)均浓度($\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$); c_i 是指第 i 次雨水样品中雨水氮的某组分的浓度($\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$); H_i 是第 i 次雨水样品中的降雨量(mm); F_w 是某组分氮的月(季、年)湿沉降通量($\text{kg} \cdot \text{hm}^{-2}$); R_r 是月(季、年)降雨量(mm); F_d 代表各形态氮颗粒态干沉降通量($\text{kg} \cdot \text{hm}^{-2}$); c_R 是观测月集尘缸收集液中某组分氮浓度($\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$); V_d 代表每次颗粒态干沉降采样剩余收集液体积(mL). 本研究所有数据分析及图表处理均由 Microsoft Excel 2007 和 Origin 9.0 实现.

3 结果与讨论

3.1 氮湿沉降特征及其影响因素

石匣流域氮湿沉降浓度随时间变化趋势如图 2 所示. 总体来看, 湿沉降的浓度时间差异较大. 除 NO_3^- 外, 降水中其它 3 种形态氮的浓度均值呈现出显著的变异特征. 其中, TN 湿沉降浓度值范围介于 1.24~10.42 $\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 间, 监测期浓度均值为 5.08 $\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$, 局部最小值出现在 6 月, 最大值出现在 8 月, 这主要因为监测期 6 月降雨量较大, 降雨过程对 TN 浓度具有强烈的淋洗作用^[24]; 而 8 月是本流域大田玉米第二次追肥的主要时间, 施肥类型以尿素为主, 致使大气中氮素浓度含量升高^[25]; NH_4^+ 和 TN 的月均浓度变化趋势与 DON 基本接近, NH_4^+ 月均浓度在 8 月最大(2.39 $\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$), 6 月最低(0.87 $\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$), 监测期均值为 2.06 $\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$, 且 6~8 月间, NH_4^+ 浓度呈增加趋势. 有研究认为, 降雨中 NH_4^+ 浓度受当地农业生产方式和气温影响较为明显, 即气温越高, NH_4^+ 挥发越明显并迅速溶解到雨水中^[26, 27]. 另外, 刘杰云等^[28]也认为高温是氨气源强增加的重要影响因素, 导致夏季大气中氨气含量较高, 与本研究的结果具有较高的一致性.

逐月 DON 浓度均值为 2.43 $\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$, 最高月均值出现在 8 月(2.68 $\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$); 与 NH_4^+ 、DON 相比, NO_3^- 月平均浓度相对较低, 均值 0.63 $\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$, 且变化幅度较小; NO_3^- 的人为源主要是化石燃料的燃烧与汽车尾气的排放^[29], 而密云水库上游流域 86.30% 的居民以传统的种植业为主要收入来源, 7.80% 以生态旅游及经营农家乐为主要收入来源, 研究区工业化程度相对较低, 化石燃料燃烧与汽车尾气等人为因素所排放 NO_x 较低; NO_3^- 在空

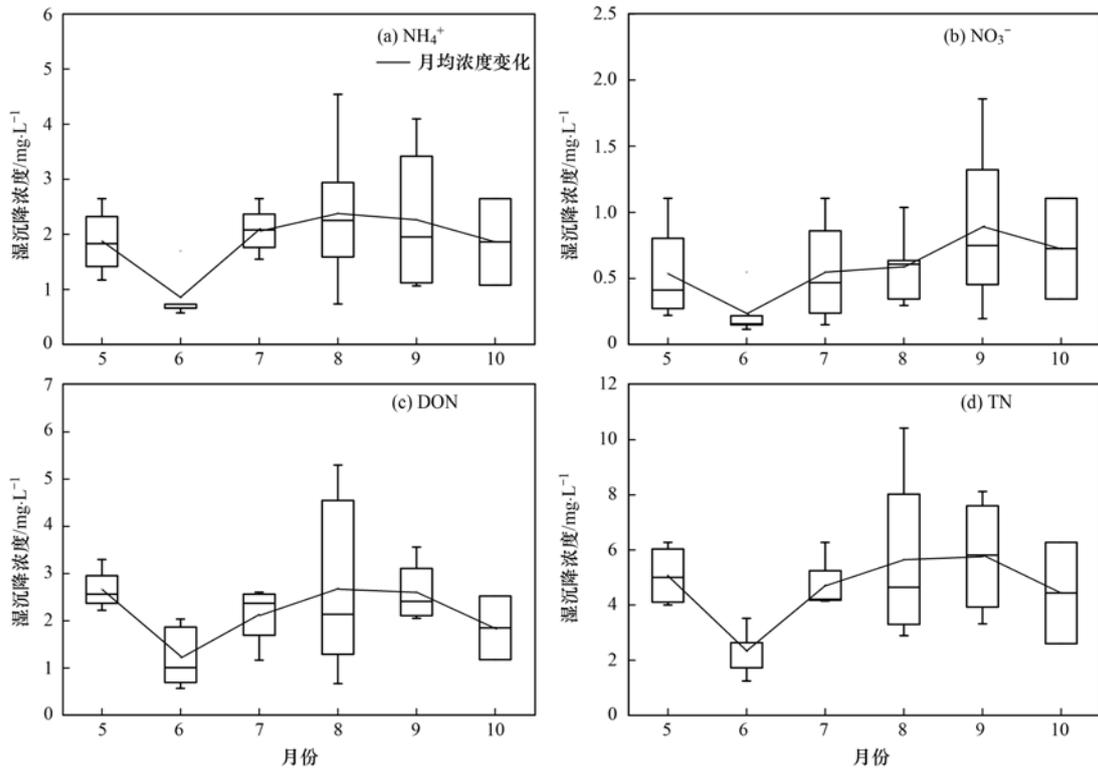


图2 2014年石匣流域湿沉降中不同形态氮的浓度逐月变化动态

Fig. 2 Monthly variation of nitrogen concentrations of wet deposition in the Shixia Catchment

气中迁徙距离大,因此,在一段时间内空气中 NO_3^- 浓度相对稳定.另外,11月到次年1月在观测区内无明显降水事件,这与本研究区冬季干燥少雨的气候条件密切相关.

根据中国气象部门对降雨大小的分类标准(小雨 $0 \sim 10 \text{ mm} \cdot \text{d}^{-1}$;中雨 $10 \sim 25 \text{ mm} \cdot \text{d}^{-1}$;大雨大于 $25 \text{ mm} \cdot \text{d}^{-1}$),将研究期间密云水库上游流域降雨事件共分为小雨13次、中雨10次和大雨2次,相应的累积降雨量分别为57.50、197.70和130.10 mm.不同强度类型的降雨中氮组分浓度表现出明显的差异性,具体表现为随降雨强度的增大氮浓度逐

渐减小的趋势(表1),其中小雨样品中TN平均浓度约为大雨的2.05倍,中雨的1.56倍,高达 $7.55 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$;同样地,小雨样品 NH_4^+ 和 NO_3^- 的平均浓度分别是大雨样品的2.84倍和7.23倍,中雨的1.87倍和1.49倍;小雨样品中DON分别是中雨和大雨的1.40、1.46倍.综上可知,小雨中各形态氮的浓度相对较高,这可能由于小雨水滴较小,与大气接触表面积较中雨、大雨偏大,从而能够黏附、溶解更多的含氮物质气溶胶^[30];此外,一般小雨的降雨历时较长,即对大气的淋洗过程持续时间长,也可能是导致大气中氮素沉降量增加的重要原因.

表1 不同类型降雨的氮浓度

Table 1 Nitrogen concentration of different types of precipitation

降雨类型	平均降雨量/mm	浓度/ $\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$			
		TN	NH_4^+	NO_3^-	DON
小雨(<10 mm)	4.42	7.55	2.90	0.94	3.71
中雨(10~25 mm)	19.67	4.83	1.55	0.63	2.65
大雨(>25 mm)	65.05	3.69	1.02	0.13	2.54

由图3可知,降水量与氮湿沉降浓度呈显著负相关.在湿沉降中, NH_4^+ 、 NO_3^- 、DON和TN浓度随降雨量的增加呈现降低趋势,具有明显的乘幂型负相关关系,其关系可用方程 $y = aX^b$ 拟合.其中, NH_4^+ 、 NO_3^- 、DON和TN浓度与降雨量的相关系数

(R^2)分别为0.16、0.331、0.118和0.265,均达到显著相关性水平($P < 0.05$), NO_3^- 浓度与降雨量的相关系数最高,而DON浓度与降雨量的相关系数最低,表明 NO_3^- 浓度受降雨量影响的程度最大,而DON浓度受降雨量影响程度相对较小.

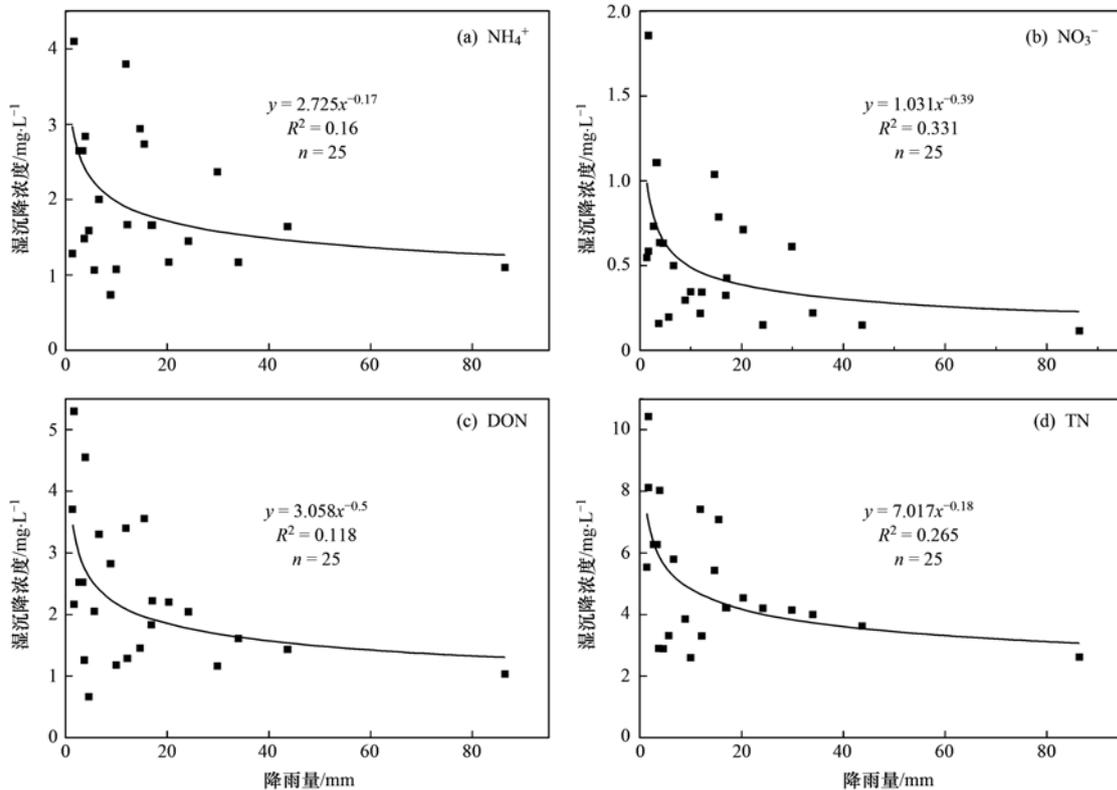


图3 湿沉降浓度与降雨量的相关关系

Fig. 3 Correlation between wet deposition concentration and precipitation

由于受监测条件的限制, 研究时间集中于2014年1月~2015年1月, 将整个监测时间划分为春(5月)、夏(6~8月)、秋(9~11月)、冬(12月~次年1月)这4个季节(其中春季以5月为代表性月份计算春季(3~5月)的大气氮沉降通量, 冬季以12月~次年1月平均值计算冬季(12月~次年2月)的大气氮沉降通量, 并对大气湿沉降通量结果进行季节分析(图4). 石匣流域TN、 NH_4^+ 和DON湿沉降通量呈现明显的季节性变化特征, 表现为夏季TN的湿沉降通量最大, 明显高于秋季和冬季, 是秋季TN湿沉降通量的2.39倍. 这主要是由于本研究区降水主要集中在夏季(占全年降水量的80%以上), 且夏季雷电较多, 由雷电作用产生的氮素也是导致湿沉降含氮量偏高的原因之一^[31]; 而秋冬季较低与本研究区的气候条件和农业生产活动密切相关, 本区秋冬季干燥少雨, 且冬季为休耕期, 人为活动氮排放量水平总体低于夏季. 而夏季与春季TN湿沉降量相差不大, 是因为春季为春耕季节, 化肥施用量大, 当施肥量大且存在一定降雨时, 则这段时间内大气氮的湿沉降通量较大^[20], 也说明大气氮湿沉降通量与化肥施用量存在一定相关性. NH_4^+ 的湿沉降通量表现为夏季最高、春季次之, 秋

季最低, 春季、夏季和秋季分别为1.73、3.04和1.10 $\text{kg}\cdot\text{hm}^{-2}$. 而DON通量表现为春季最高、夏季次之、秋季最低, 春季、夏季和秋季分别为4.27、3.28和1.25 $\text{kg}\cdot\text{hm}^{-2}$. 有研究认为, 大气中的DON主要来源于化石燃烧和植物花粉^[32, 33], 农业种植业是石匣流域重要的生产方式之一, 因此其所产生的植物花粉可能是该流域春季DON沉降的潜在来源之一. NO_3^- 通量仅占TN的9.27%, 不存在明显的季节性变化.

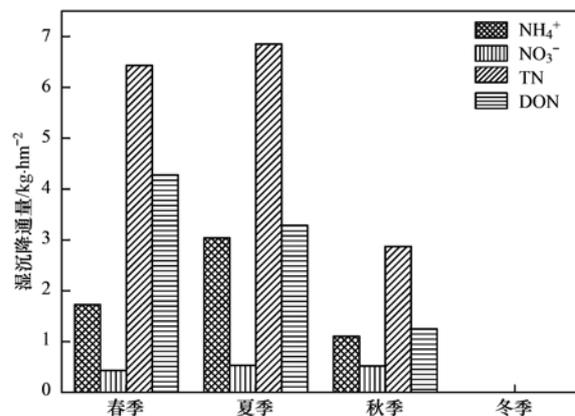


图4 石匣流域湿沉降氮通量的季节变化

Fig. 4 Seasonal variation of the nitrogen flux in the Shixia Catchment

3.2 颗粒态氮干沉降特征及其影响因素

如图 5 所示, 石匣流域氮颗粒态氮干沉降通量各个组分存在明显的季节差异性. 其中, TN 的颗粒态干沉降通量总体上呈现递增趋势; 总体表现为冬季颗粒态干沉降量最高($3.42 \text{ kg}\cdot\text{hm}^{-2}$), 春秋次之, 夏季颗粒态干沉降通量最低($1.82 \text{ kg}\cdot\text{hm}^{-2}$). NH_4^+ 颗粒态干沉降通量呈现冬季明显高于春、夏、秋这 3 个季节的特点, 究其原因可能是春、夏、秋这 3 个季节的降雨量较大, 同期化肥施用与畜禽养殖产生的挥发性 NH_3 较易溶于降水^[34], 使得 NH_4^+ 多以湿沉降形式沉降于地表; NO_3^- 颗粒态干沉降通量趋势与 TN 基本接近, 呈现出秋冬季偏高于春夏季的特征, 这可能与大气颗粒物中首要污染物质变化有关, 北京市环境保护局的监测结果表明从夏季到冬季大气颗粒物中首要污染物由臭氧不断转变为细颗粒物^[35]. 有研究认为, 人为活动是大气中 NO_3^- 重要来源, 如汽车尾气排放、化石燃料燃烧等^[36], 经实地调研发现当地居民冬季多以燃煤取暖为主要供暖方式, 因此煤炭燃烧使得冬季 NO_3^- 沉降通量明显高于春夏两季; 秋季的 DON 颗粒态大气氮干沉降通量偏高于其它季节, 这可能与 DON 的来源及迁移方式有关, 有研究认为大气中的生物质和颗粒态有机氮都可能是 DON 的重要来源^[37], 秋季多风少雨的气象环境导致地表颗粒物扬起作用

的强度有所增加, 这可能是秋季 DON 干沉降通量较高的一个重要原因.

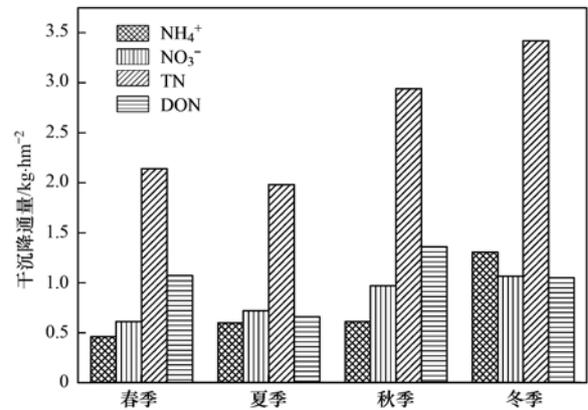


图 5 石匣流域干沉降通量的季节变化特征

Fig. 5 Seasonal variation of the dry deposition flux in the Shixia Catchment

采样日期的平均风速与颗粒态干沉降累积通量之间关系如图 6 所示. 风速与 NH_4^+ 存在线性相关关系 ($R^2 = 0.29$), 随风速的增大颗粒态干沉降累积通量增加, 研究期风速范围在 $0.73 \sim 2.38 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$, 风速微弱, 这与 NH_4^+ 主要来自土壤, 化肥和畜禽粪便中 NH_4^+ -N 的挥发, 迁移距离一般小于 100 km 的特征吻合^[38, 39]; 风速与其他形态氮累积通量并不存在明显的相关关系. 有研究表明, 除与气象因

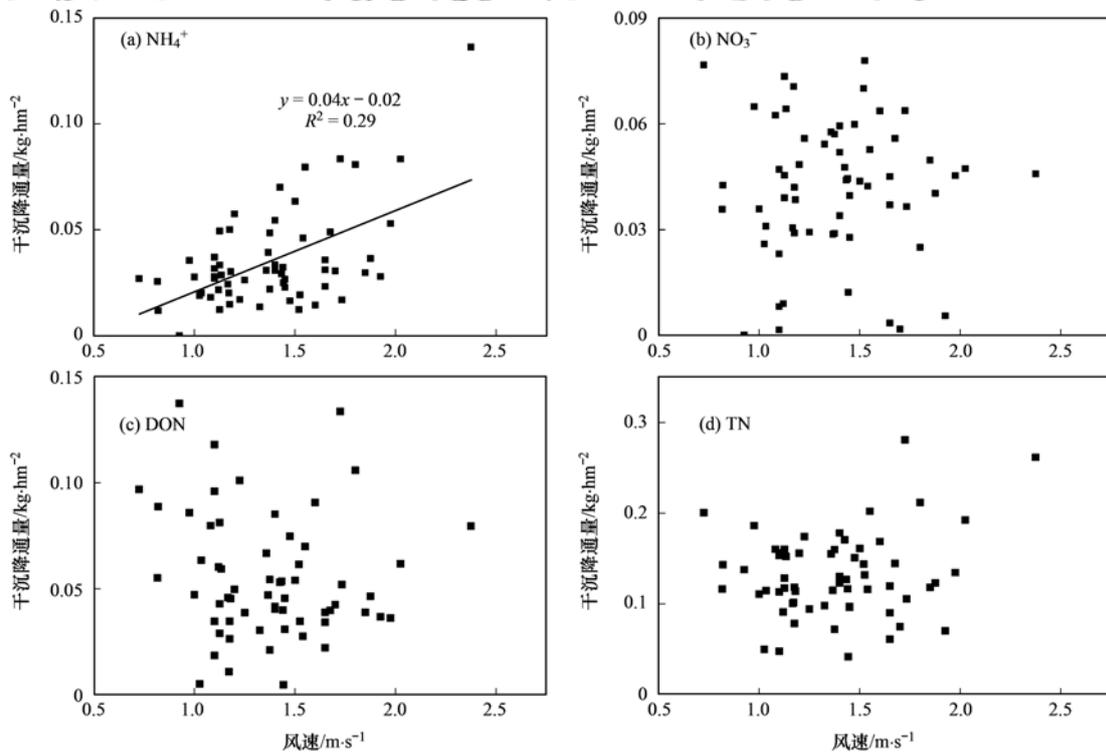


图 6 风速与干沉降通量的关系

Fig. 6 Relation between the wind speed and dry deposition flux

素相关外, 颗粒态大气氮干沉降通量还与当地的社会经济条件有密切联系^[15]. 本研究区的特点为人口密度大、产业结构以农业和旅游业为主, 农业、畜禽养殖业具有一定的规模, 较高强度的人类活动会直接影响颗粒态大气氮干沉降的产生量. 大气颗粒物的粒径大小也会影响沉降量, 在大气颗粒物浓度较高和粒径偏大的地区, 沉降强度也会偏高^[40], 细颗粒物比大颗粒物的滞留时间更长一些^[41]. 该地区春秋两季常伴沙尘天气, 刮风频率较高, 相应地会使颗粒物通量增加, 有助于运移更大粒径的含氮化合物.

3.3 大气氮总沉降通量特征

有研究表明, 除颗粒态的 NH_4^+ 和 NO_3^- 外, 大气中以气态形式存在的 NH_3 、 NO_2 和 HNO_3 也是构成区域氮总沉降量的重要来源^[19]. 鉴于本研究中沉降监测数据未包括气态氮沉降通量, 故可能导致大气总氮沉降通量值偏低. 另外, 已有研究认为北京郊区颗粒态干、湿氮沉降约占总沉降通量的 60.07%^[18] 和 56.81%^[19], 本研究取其平均值 58.44%, 作为石匣流域颗粒态干湿沉降与总氮沉降通量的换算系数, 由此可得石匣流域氮素总沉降通量 $43.14 \text{ kg} \cdot (\text{hm}^2 \cdot \text{a})^{-1}$, 约为全国氮沉降平均水平 ($7.90 \text{ kg} \cdot \text{hm}^{-2}$) 的 5.46 倍, 而略低于京津冀地区沉降水平 $55.70 \text{ kg} \cdot \text{hm}^{-2}$ ^[42], 究其原因可能是本区地处山区, 且全部位于密云水库一级保护区内, 工业排放源分布极少, 能源和资源消耗量偏低于城市地区和平原地区.

从沉降类型上来看, 本研究区干沉降是主要的氮沉降方式, 占总沉降通量的 60.15%, 通量为 $25.95 \text{ kg} \cdot \text{hm}^{-2}$; 湿沉降占 39.85%, 通量为 $17.19 \text{ kg} \cdot \text{hm}^{-2}$. 有研究认为, 对于水体生态系统有利的大气氮沉降通量的临界负荷为 $5 \sim 10 \text{ kg} \cdot (\text{hm}^2 \cdot \text{a})^{-1}$ ^[43]; 促进森林生态系统的稳定的大气氮沉降通量临界负荷为 $10 \sim 20 \text{ kg} \cdot (\text{hm}^2 \cdot \text{a})^{-1}$;

当大气氮沉降通量临界负荷保持在 $35 \sim 55 \text{ kg} \cdot (\text{hm}^2 \cdot \text{a})^{-1}$ 之间时, 则有利于提高农田生态系统的产量^[44]. 在本研究中, 石匣流域大气氮沉降通量 $43.14 \text{ kg} \cdot (\text{hm}^2 \cdot \text{a})^{-1}$, 适量的氮素输入可能会促进农田生态系统良性循环, 但其明显高于水生生态系统的氮沉降临界负荷, 有必要关注与预防氮素输入给流域水生态系统带来的负面效应. 因此, 需要加强农田氮素管理, 减少化学氮肥用量, 提高化肥和有机肥的利用效率; 有效控制流域内畜禽养殖和农村生活源的氮素输出量, 实现畜禽养殖废弃物资源化利用, 以降低氮素输入对水体的负面影响.

表 2 所示, 在整个研究区总沉降 (颗粒态干沉降 + 湿沉降) 中, NH_4^+ 、 NO_3^- 、DON 分别占 TN 沉降通量的 41.97%、15.59%、42.44%. NH_4^+ 在湿沉降中占 49.10%, 颗粒态干沉降中占 26.68%; NO_3^- 在湿沉降中占 8.14%, 颗粒态干沉降中占 31.55%; DON 在湿沉降中占 42.76%, 颗粒态干沉降中占 41.77%. 可见, 湿沉降中不同形态氮的沉降通量以 NH_4^+ 为主, 而颗粒态干沉降中不同形态氮的沉降通量以 DON 为主.

就氮沉降通量的季节变异性而言 (图 7), 石匣流域颗粒态大气氮沉降通量呈现明显的季节变化特征, 夏季最高 ($8.83 \text{ kg} \cdot \text{hm}^{-2}$), 春、秋季次之, 冬季最低 ($3.42 \text{ kg} \cdot \text{hm}^{-2}$). 这是因为本流域夏季高温, 导致大量的 NH_3 挥发到大气中, 致使夏季氮沉降量高于其他季节; 同时作为生长季的夏季, 农业施肥活动规模大, 使得大气中可沉降的氮素较多. 从沉降类型来看, 湿沉降集中于春夏季, 约占全年湿沉降的 42.41%; 颗粒态干沉降以秋冬季为主, 约占全年干沉降的 60.69%. 相关研究表明, 夏季是河北平原大气氮沉降的主要时段, 其沉降量约占全年沉降总量的 51.50%, 且湿沉降集中于夏季, 约占全年湿沉降的 63%^[45], 与本研究结果基本接近. 而颗粒态干沉降量各季节基本上呈递增趋势, 但差异性不大.

表 2 不同类型和形态氮素沉降通量及其比例

Table 2 Different types and forms of nitrogen deposition flux and their proportion

项目	沉降类型	取样次数	降雨量 /mm	沉降通量/ $\text{kg} \cdot (\text{hm}^2 \cdot \text{a})^{-1}$				占 TN 比例/%			
				NH_4^+	NO_3^-	DON	TN	NH_4^+	NO_3^-	DON	TN
颗粒态	湿沉降	20	384.3	8.44	1.40	7.35	17.19	49.10	8.14	42.76	100
颗粒态	干沉降	61	384.3	2.14	2.53	3.35	8.02	26.68	31.55	41.77	100
颗粒态	总沉降	81	384.3	10.58	3.93	10.7	25.21	41.97	15.59	42.44	100

3.4 大气氮沉降对流域氮素输出的贡献

本流域氮素的输出源主要包括土地利用、农村生活、畜禽养殖和大气沉降. 其中, 土地利用、农

村生活和畜禽养殖采用 2014 年密云区社会经济统计年鉴数据. 石匣流域人口 6 195 人; 大牲畜 2 121 头、猪 9 063 头、羊 7 458 只、禽类 42.20 万只; 土地

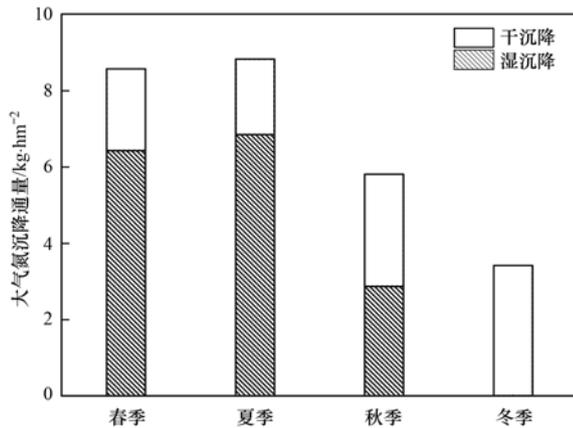


图7 石匣流域大气氮沉降季节变化特征

Fig. 7 Seasonal variation of atmospheric nitrogen deposition in the Shixia Catchment

利用以林地和耕地为主,分别占64%和18%,其它用地类型比重较小.农村生活、畜禽养殖和土地利用氮素输出采用输出系数法.研究区不同污染源输出系数取值采用查阅文献与本课题组在本研究区的研究成果相结合的方式获取,见表3.

表3 不同污染源输出系数取值^[46]

Table 3 Export coefficients value of different pollutant sources

类别	污染源	输出系数
农村生活/kg·(人·a) ⁻¹	人口	2.83
	大牲畜	7.36
	猪	0.41
畜禽养殖/kg·(头或只·a) ⁻¹	羊	1.40
	禽类	0.07
	耕地	2.97
土地利用/kg·(hm ⁻² ·a) ⁻¹	林地	0.24
	草地	1.57
	未利用地	5.00
	居民用地	2.00

大气氮沉降的入河量包括直接进入水体和降入地表后经地表径流汇入水体两个分量,所以大气氮沉降的入河量可以表示为大气氮沉降总量(t)与大气氮沉降入河系数的乘积,参考相关研究结果,本文取大气氮沉降的入河系数为0.10^[47].石匣流域不同氮源对流域氮素输入的贡献率如表4所示.从中可知,非沉降源氮素输入(包括畜禽养殖、农村生活及土地利用)占84.91%,其中畜禽养殖、农村生活及土地利用分别占总氮素污染物的62.92%、18.60%、3.39%;大气氮沉降输入占15.09%,也是石匣流域氮素输出的重要来源之一.由此可见,该流域非点源氮素输入以畜禽养殖为主,农村生活次之,分别是大气氮沉降贡献率的4.17倍和1.23倍,这与耿润哲^[46]对密云水库上游流域非点源污

染负荷估算的研究结果基本一致.另外,由于本研究区土地利用以林地为主(64%),耕地面积相对偏小(18%),这种土地利用格局有利于降低流域氮肥的施用量和抑制氮素流失,进而导致土地利用方式对流域中氮输出贡献率最小.

表4 石匣流域不同氮源输入量

Table 4 Nitrogen inputs from different sources in the Shixia Catchment

项目	畜禽养殖	农村生活	大气沉降	土地利用
输入量/t·a ⁻¹	59.31	17.53	14.22	3.20
贡献率/%	62.92	18.60	15.09	3.39

4 结论

(1)石匣流域大气氮干湿沉降呈现明显的季节性变化特征.对湿沉降而言,总氮夏季湿沉降通量最大,明显高于秋季和冬季,是秋季TN湿沉降通量的2.39倍.NH₄⁺夏季湿沉降通量最高而DON则在春季最高,NO₃⁻季节变化不明显.

(2)颗粒态干沉降的季节变化表现为,TN的颗粒态干沉降通量排序为冬季最高,春秋次之,夏季最低;冬季沉降通量明显高于其他季节,在不同季节变化不明显,但其沉降趋势与TN基本一致,DON颗粒态干沉降量在秋季出现最高值.

(3)石匣流域氮素总沉降通量为43.14 kg·hm⁻²,其中干沉降通量占60.15%,湿沉降通量占39.85%.

(4)气象因子是影响大气氮沉降的重要因素,降雨量和雨强均与氮湿沉降浓度呈现明显的负相关关系;风速是监测期内影响颗粒态NH₄⁺干沉降通量大小的因子,与其它组分颗粒态干沉降不存在明显的相关性.

(5)大气氮沉降是石匣流域仅次于畜禽养殖和农村生活的氮素的重要来源之一,在流域各氮源氮素输入中占比达15.09%.

参考文献:

- [1] 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.
- [2] Van Breemen N. Nitrogen cycle: natural organic tendency [J]. *Nature*, 2002, **415**(6870): 381-382.
- [3] Paerl H W, Xu H, Mccarthy M J, *et al.* Controlling harmful cyanobacterial blooms in a hyper-eutrophic lake (Lake Taihu, China): the need for a dual nutrient (N & P) management strategy [J]. *Water Research*, 2011, **45**(5): 1973-1983.
- [4] 刘崇群,曹淑卿,陈国安.我国南亚热带闽、滇地区降雨中养分含量的研究 [J]. *土壤学报*, 1984, **21**(4): 438-442.
Liu C Q, Cao S Q, Chen G A. Contents of nutrient elements in precipitation of Fujian and Yunnan provinces [J]. *Acta Pedologica Sinica*, 1984, **21**(4): 438-442.

- [5] 鲁如坤, 史陶钧. 金华地区降雨中养分含量的初步研究[J]. 土壤学报, 1979, **16**(1): 81-84.
Lu R K, Shi T J. The content of plant nutrients of precipitation in Jin-Hua district of Zhejiang province [J]. Acta Pedologica Sinica, 1979, **16**(1): 81-84.
- [6] 苏成国, 尹斌, 朱兆良, 等. 农田氮素的气态损失与大气氮湿沉降及其环境效应[J]. 土壤, 2005, **37**(2): 113-120.
Su C G, Yin B, Zhu Z L, *et al.* Gaseous loss of nitrogen from fields and wet deposition of atmospheric nitrogen and their environmental effects[J]. Soils, 2005, **37**(2): 113-120.
- [7] 余辉, 张璐璐, 燕妹雯, 等. 太湖氮磷营养盐大气湿沉降特征及入湖贡献率[J]. 环境科学研究, 2011, **24**(11): 1210-1219.
Yu H, Zhang L L, Yan S W, *et al.* Atmospheric wet deposition characteristics of nitrogen and phosphorus nutrients in Taihu Lake and contributions to the lake [J]. Research of Environmental Sciences, 2011, **24**(11): 1210-1219.
- [8] 颜文娟, 史崧. 大连市大气氮湿沉降研究[J]. 生态环境学报, 2013, **22**(3): 517-522.
Yan W J, Shi K. Program on the nitrogen concentrations in rain water in Dalian city [J]. Ecology and Environmental Sciences, 2013, **22**(3): 517-522.
- [9] 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.
- [10] 王小治, 尹微琴, 单玉华, 等. 太湖地区湿沉降中氮磷输入量——以常熟生态站为例[J]. 应用生态学报, 2009, **20**(10): 2487-2492.
Wang X Z, Yin W Q, Shan Y H, *et al.* Nitrogen and phosphorus input from wet deposition in Taihu Lake region: a case study in Changshu agro-ecological experimental station [J]. Chinese Journal of Applied Ecology, 2009, **20**(10): 2487-2492.
- [11] 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): 1633-1639.
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): 1633-1639.
- [12] 王圣杰, 张明军, 王飞腾, 等. 中国西北典型冰川区大气氮素沉降量的估算——以天山乌鲁木齐河源 1 号冰川为例[J]. 生态学报, 2012, **32**(3): 777-785.
Wang S J, Zhang M J, Wang F T, *et al.* Atmospheric nitrogen deposition in the glacier regions of Northwest China: a case study of Glacier No. 1 at the headwaters of Urumqi River, Tianshan Mountains [J]. Acta Ecologica Sinica, 2012, **32**(3): 777-785.
- [13] Hong B, Swaney D P, McCrackin M, *et al.* Advances in NANI and NAPI accounting for the Baltic drainage basin: spatial and temporal trends and relationships to watershed TN and TP fluxes [J]. Biogeochemistry, 2017, **133**(3): 245-261.
- [14] Shen J L, Li Y, Liu X J, *et al.* Atmospheric dry and wet nitrogen deposition on three contrasting land use types of an agricultural catchment in subtropical central China [J]. Atmospheric Environment, 2013, **67**: 415-424.
- [15] 陈能汪, 洪华生, 肖健, 等. 九龙江流域大气氮干沉降[J]. 生态学报, 2006, **26**(8): 2602-2607.
Chen N W, Hong H S, Xiao J, *et al.* Dry deposition of atmospheric nitrogen to Jiulong River watershed in southeast China [J]. Acta Ecologica Sinica, 2006, **26**(8): 2602-2607.
- [16] 骆晓声, 石伟琦, 鲁丽, 等. 我国雷州半岛典型农田大气氮沉降[J]. 生态学报, 2014, **34**(19): 5541-5548.
Luo X S, Shi W Q, Lu L, *et al.* Nitrogen deposition in typical cropland in the Leizhou Peninsula, China [J]. Acta Ecologica Sinica, 2014, **34**(19): 5541-5548.
- [17] 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.
- [18] Pan Y P, Wang Y S, Tang G Q, *et al.* Wet and dry deposition of atmospheric nitrogen at ten sites in northern China [J]. Atmospheric Chemistry and Physics Discussions, 2012, **12**(1): 753-785.
- [19] 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.
- [20] 贺成武, 任玉芬, 王效科, 等. 北京城区大气氮湿沉降特征研究[J]. 环境科学, 2014, **35**(2): 490-494.
He C W, Ren Y F, Wang X K, *et al.* Characteristics of atmospheric nitrogen wet deposition in Beijing urban area [J]. Environmental Science, 2014, **35**(2): 490-494.
- [21] 欧洋, 王晓燕, 耿润哲. 密云水库上游流域不同尺度景观特征对水质的影响[J]. 环境科学学报, 2012, **32**(5): 1219-1226.
Ou Y, Wang X Y, Geng R Z. The influences of different landscape characteristics on water quality in the upper watershed of Miyun Reservoir [J]. Acta Scientiae Circumstantiae, 2012, **32**(5): 1219-1226.
- [22] 李东青, 梁籍, 张立燕, 等. 密云库区 1991~2011 年水质变化趋势研究[J]. 中国环境科学, 2015, **35**(6): 1675-1685.
Li D Q, Liang J, Zhang L Y, *et al.* The research of water quality trend in the Miyun reservoir from 1991 to 2011 [J]. China Environmental Science, 2015, **35**(6): 1675-1685.
- [23] Ma Z, Ma M J, Baskin J M, *et al.* Responses of alpine meadow seed bank and vegetation to nine consecutive years of soil fertilization [J]. Ecological Engineering, 2014, **70**: 92-101.
- [24] 贾钧彦, 张颖, 蔡晓布, 等. 藏东南大气氮湿沉降动态变化——以林芝观测点为例[J]. 生态学报, 2009, **29**(4): 1907-1913.
Jia J Y, Zhang Y, Cai X B, *et al.* A dynamic changes of wet deposition of nitrogen in southeast Tibet: taking Linzhi experiment station as an example [J]. Acta Ecologica Sinica, 2009, **29**(4): 1907-1913.
- [25] 沈健林, 刘学军, 张福锁. 北京近郊农田大气 NH₃ 与 NO₂ 干沉降研究[J]. 土壤学报, 2008, **45**(1): 165-169.
Shen J L, Liu X J, Zhang F S. Atmospheric dry depositions of ammonia and nitrogen dioxide to agricultural fields in perisuburbs of Beijing [J]. Acta Pedologica Sinica, 2008, **45**(1): 165-169.
- [26] Kim J Y, Ghim Y S, Lee S B, *et al.* Atmospheric deposition of nitrogen and sulfur in the yellow sea region: significance of long-range transport in East Asia [J]. Water, Air, and Soil Pollution, 2010, **205**(1-4): 259-272.
- [27] Xu W, Wu Q H, Liu X J, *et al.* Characteristics of ammonia,

- acid gases, and PM_{2.5} for three typical land-use types in the North China Plain [J]. *Environmental Science and Pollution Research*, 2016, **23**(2): 1158-1172.
- [28] 刘杰云, 况福虹, 唐傲寒, 等. 不同排放源周边大气环境中 NH₃ 浓度动态[J]. *生态学报*, 2013, **33**(23): 7537-7544.
Liu J Y, Kuang F H, Tang A H, *et al.* Dynamics of atmospheric ammonia concentrations near different emission sources[J]. *Acta Ecologica Sinica*, 2013, **33**(23): 7537-7544.
- [29] Streets D G, Bond T C, Carmichael G R, *et al.* An inventory of gaseous and primary aerosol emissions in Asia in the year 2000 [J]. *Journal of Geophysical Research*, 2013, **108** (D21): 8809.
- [30] 王江飞, 周柯锦, 汪小泉, 等. 杭嘉湖地区大气氮、磷沉降特征研究[J]. *中国环境科学*, 2015, **35**(9): 2754-2763.
Wang J F, Zhou K J, Wang X Q, *et al.* Atmospheric nitrogen and phosphorous deposition in Hangjiahua area [J]. *China Environmental Science*, 2015, **35**(9): 2754-2763.
- [31] Kinzig A P, Socolow R H. Human impacts on the nitrogen cycle [J]. *Physics Today*, 1994, **47**(11): 24-31.
- [32] Cornell S E, Jickells T D, Cape J N, *et al.* Organic nitrogen deposition on land and coastal environments: a review of methods and data[J]. *Atmospheric Environment*, 2003, **37**(16): 2173-2191.
- [33] Neff J C, Holland E A, Dentener F J, *et al.* The Origin, Composition and rates of organic nitrogen deposition: a missing piece of the nitrogen cycle? [J]. *Biogeochemistry*, 2002, **57**(1): 99-136.
- [34] Clarisse L, Clerbaux C, Dentener F, *et al.* First global ammonia distributions from infrared satellite observation [J]. *Nature Geoscience*, 2009, **2**(7): 479-483.
- [35] 栾桂杰, 殷鹏, 周脉耕. 2001—2012年北京市 API 变化趋势分析[J]. *环境卫生学杂志*, 2015, **5**(4): 397-400.
Luan G J, Yin P, Zhou M G. Analysis on trend of API in Beijing in 2001-2012[J]. *Journal of Environmental Hygiene*, 2015, **5**(4): 397-400.
- [36] 周薇, 王兵, 李钢铁. 大气氮沉降对森林生态系统影响的研究进展[J]. *中央民族大学学报(自然科学版)*, 2010, **19**(1): 34-40.
Zhou W, Wang B, Li G T. Progress on the impact of atmospheric nitrogen deposition on forest ecosystems [J]. *Journal of MUC (Natural Sciences Edition)*, 2010, **19**(1): 34-40.
- [37] 郑利霞, 刘学军, 张福锁. 大气有机氮沉降研究进展[J]. *生态学报*, 2007, **27**(9): 3828-3834.
Zheng L X, Liu X J, Zhang F S. Atmospheric deposition of organic nitrogen; a review[J]. *Acta Ecologica Sinica*, 2007, **27**(9): 3828-3834.
- [38] Sanz M J, Carratalá A, Gimeno C, *et al.* Atmospheric nitrogen deposition on the east coast of Spain: relevance of dry deposition in semi-arid Mediterranean regions[J]. *Environmental Pollution*, 2002, **118**(2): 259-272.
- [39] Aneja V P, Roelle P A, Murray G C, *et al.* Atmospheric nitrogen compounds II: emissions, transport, transformation, deposition and assessment[J]. *Atmospheric Environment*, 2001, **35**(11): 1903-1911.
- [40] Shahin U, Yi S M, Paode R D, *et al.* Long-term elemental dry deposition fluxes measured around Lake Michigan with an automated dry deposition sampler[J]. *Environmental Science & Technology*, 2000, **34**(10): 1887-1892.
- [41] Fang G C, Chang C N, Wu Y S, *et al.* The study of fine and coarse particles, and metallic elements for the daytime and nighttime in a suburban area of central Taiwan, Taichung [J]. *Chemosphere*, 2000, **41**(5): 639-644.
- [42] 郑丹楠, 王雪松, 谢绍东, 等. 2010年中国大气氮沉降特征分析[J]. *中国环境科学*, 2014, **34**(5): 1089-1097.
Zheng D N, Wang X S, Xie S D, *et al.* Simulation of atmospheric nitrogen deposition in China in 2010 [J]. *China Environmental Science*, 2014, **34**(5): 1089-1097.
- [43] Krupa S V. Effects of atmospheric ammonia (NH₃) on terrestrial vegetation: a review [J]. *Environmental Pollution*, 2003, **124**(2): 179-221.
- [44] 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.
- [45] 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.
- [46] 耿润哲, 王晓燕, 焦帅, 等. 密云水库流域非点源污染负荷估算及特征分析[J]. *环境科学学报*, 2013, **33**(5): 1484-1492.
Geng R Z, Wang X Y, Jiao X, *et al.* Application of improved export coefficient model in estimating non-point source nutrient load from Miyun reservoir watersheds [J]. *Acta Scientiarum Circumstantiae*, 2013, **33**(5): 1484-1492.
- [47] 赵婷婷, 李秋艳, 陆丽巧, 等. 漕桥河小流域平原河网地区水环境污染分析[J]. *农业工程学报*, 2011, **27**(S2): 170-175.
Zhao T T, Li Q Y, Lu L Q, *et al.* Analysis of water environmental pollution in plain river network region in small watershed of Caoqiao River [J]. *Transactions of the CSAE*, 2011, **27**(S2): 170-175.

CONTENTS

Patterns of Mortality from Air Pollutant Emissions in China's Coal-fired Power Plants	QIN Yu, ZHANG Qiang, LI Xin, <i>et al.</i> (5289)
Analysis of the Temporal and Spatial Variation of PM _{2.5} in China Based on the LUR Model	LIU Bing-jie, PENG Xiao-min, LI Ji-hong (5296)
Physicochemical Properties of the Aerosol Particles and Their Impacts on Secondary Aerosol Formation at the Background Site of the Yangtze River Delta HUANG Dan-dan, ZHOU Min, YU Chuan-guan, <i>et al.</i> (5308)
Analysis of Different Particle Sizes, Pollution Characteristics, and Sources of Atmospheric Aerosols During the Spring Dust Period in Beijing	YANG Yang, LI Xing-ru, CHEN Xi, <i>et al.</i> (5315)
Characteristics of Ambient VOCs at the Shuangliu Site in Chengdu, China, During Summer and Autumn	DENG Yuan-yuan, LI Jing, LI Ya-qi, <i>et al.</i> (5323)
Source Profiles and Chemical Reactivity of Volatile Organic Compounds from Surface Coating of Aluminum Products in Foshan, China	LI Xia, SU Wei-jian, LI Bi-xia, <i>et al.</i> (5334)
Emission Inventory and Characteristics of Anthropogenic Air Pollutant Sources in the Sichuan Province	ZHOU Zi-hang, DENG Ye, TAN Qin-wen, <i>et al.</i> (5344)
Characteristics of Particulate Matter Emissions from the Coking Process	WANG Yan-hui, ZHAO Liang, SUN Wen-qiang, <i>et al.</i> (5359)
Dry and Wet Deposition of Atmospheric Nitrogen in Small Catchments	WANG Huan-xiao, PANG Shu-jiang, WANG Xiao-yan, <i>et al.</i> (5365)
Seasonal Changes of the Pathways of Nitrogen Export from an Agricultural Watershed in China	LI Wen-chao, LEI Qiu-liang, ZHAI Li-mei, <i>et al.</i> (5375)
Dynamics and Runoff Losses of Nitrogen in Paddy Field Surface Water Under Combined Application of Biochar and Slow/Controlled-Release Fertilizer SI Lin-lin, ZHOU Jing-jie, WU Liang-huan, <i>et al.</i> (5383)
Indirect Nitrous Oxide Emissions from an Agricultural Headwater Stream During the Rainy Season in the Upper Reach of the Yangtze River	TIAN Lin-lin, WANG Zheng, ZHU Bo (5391)
Concentration, Flux, and Emission Factor of N ₂ O in Rivers with Different Nitrogen Pollution Features	WANG Miao, LI Ya-feng, LEI Kun, <i>et al.</i> (5400)
Identification of Nitrate Pollution Sources Through Various Isotopic Methods: A Case Study of the Huixian Wetland	PENG Cong, PAN Xiao-dong, JIAO You-jun, <i>et al.</i> (5410)
Temporal and Spatial Distribution of the Soil Water δD and δ ¹⁸ O in a Typical Karst Valley: A Case Study of the Zhongliang Mountains, Chongqing City WU Wei, JIANG Yong-jun, JIA Ya-nan, <i>et al.</i> (5418)
Hydrochemical Characteristics of Groundwater and the Origin in Alluvial-proluvial Fan of Qinhe River	LIU Jiang-tao, CAI Wu-tian, CAO Yue-ting, <i>et al.</i> (5428)
Impact of Maximum Precipitation in 2017 on the Runoff Component of Reclaimed Water-Intaking River	LIAO An-ran, SONG Xian-fang, ZHANG Ying-hua, <i>et al.</i> (5440)
Spectral Evolution Characteristics of DOM in Sediment Interstitial Water During the Formation Stage of Thermal Stratification in the Main Reservoir Area of the Zhoucun Reservoir ZHOU Shi-lei, ZHANG Yi-ran, HUANG Ting-lin, <i>et al.</i> (5451)
Pollution Characteristic of Ni in Sediments in the Three Gorges Reservoir	ZHANG Wei-jie, YIN Shu-hua, XU Dong-yu, <i>et al.</i> (5464)
Migration and Transformation of Mercury at Sediment-Water Interface of the Dahong Lake Reservoir in the Simian Mountains	GUO Pan, SUN Tao, YANG Guang, <i>et al.</i> (5473)
Effects of Wetland Types on Distribution of Soil Methylmercury Based on the Region of Nanweng River in the Greater Xing'an Mountains	ZHOU Xin-quan, LIU Yu-rong, LI Jing, <i>et al.</i> (5480)
Simulation of the Migration and Release Characteristics of Organophosphate Esters in Fluctuation Zone Soil of the Three Gorges Reservoir During Flooding YANG Ting, HE Ming-jing, YANG Zhi-hao, <i>et al.</i> (5487)
Spatial Distribution of Perfluoroalkyl Acids and Transformation of Their Precursors in River Water Samples and Effluents of Wastewater Treatment Plants in a Typical Tourism City WANG Shi-liang, SUN Jian-shu, YANG Yue-wei, <i>et al.</i> (5494)
Purification Efficiency and Microbial Characteristics of Four Biofilters Operated Under Different Conditions	JIANG Xiao-liang, LI Meng, ZHANG Shao-hui, <i>et al.</i> (5503)
Effects of Manganese on the Growth and Fluorescence Induction Kinetics of <i>Conticribra weisflogii</i>	WANG Mu-lan, JIANG Yue-lu (5514)
Distribution and Factors Affecting <i>Cylindrospermopsis raciborskii</i> in Guangdong Reservoirs	LEI Min-ting, PENG Liang, HAN Bo-ping, <i>et al.</i> (5523)
Removal of Humic Acid from Water by Magnetic Chitosan-Grafted Polyacrylamide	YOU Wen, LIU Hai-cheng, CAO Jia-wei, <i>et al.</i> (5532)
Ozone-Biological Activated Carbon for Advanced Removal of Typical Persistent Organic Pollutants from Micro-Polluted Source Water in the Yangtze Delta Region LAN Ya-qiong, LIU Rui, MA Zheng-jie, <i>et al.</i> (5541)
Color and Nitrogen Removal from Synthetic Dye Wastewater in an Integrated Hydrolysis/Acidification and Anoxic/Aerobic Process	GU Meng-qi, YIN Qi-dong, LIU Ai-ke, <i>et al.</i> (5550)
Removal Characteristics of High Concentrations of Perchlorate Using a "Heterotrophic Sulfur Autotrophic" Combination Process	LIU Ying-nan, TAO Hua-qiang, SONG Yuan-yuan, <i>et al.</i> (5558)
Rapid Start-up of a Nitrite-Dependent Methane Anaerobic Oxidation Reaction Under Static Pressure Conditions	WANG Yi-nan, HU Zhen, RU Dong-yun, <i>et al.</i> (5565)
Optimization of the Flow Distribution Ratio and Mechanism of Nitrogen Removal in a Multi-level AO Coupled Flow Biochemical Process	WANG Fan, LI Jun, BIAN De-jun, <i>et al.</i> (5572)
High-rate Nitrogen Removal in a Two-stage Partial Nitrification-ANAMMOX Process Under Mainstream Conditions	LIU Wen-ru, YANG Dian-hai, SHEN Yao-liang, <i>et al.</i> (5580)
Effects of Different Substrate Concentrations on the Short-term Storage of ANAMMOX Bacteria	GAO Xue-jian, ZHANG Jie, LI Dong, <i>et al.</i> (5587)
Optimization of the Mainstream Anaerobic Ammonia Oxidation Process and Its Changes of the Microbial Community	FU Kun-ming, FU Chao, LI Hui, <i>et al.</i> (5596)
Granular Characteristics of Anaerobic Ammonia Oxidation Sludge During the Recovery Process	CHEN Fang-min, GU Cheng-wei, HU Yu-ting, <i>et al.</i> (5605)
Characterization of a Newly Isolated Strain <i>Pseudomonas</i> sp. N3 for Denitrification at Low Temperature	LU Jun-ling, CHEN Hui-ping, XIAO Lin (5612)
Heavy Metal Pollution and Potential Ecological Risk of Soil from Reclaimed Industrial Sites and Surrounding River Sediments	WU Jian, WANG Min, ZHANG Hui-peng, <i>et al.</i> (5620)
Ecological Risk Assessment of Soil Heavy Metals for Different Types of Land Use and Evaluation of Human Health	LI Chun-fang, CAO Jian-fei, LÜ Jian-shu, <i>et al.</i> (5628)
Soil Pollution Characteristics and Ecological Risk Assessment of As at a Large-scale Arsenic Slag-contaminated Site	LIU Geng, SHI Ying, TIAN Hai-jin, <i>et al.</i> (5639)
Relationship Between the Bacterial Abundance and Production with Environmental Factors in a Subtropical Karst Reservoir	XIN Sheng-lin, LIANG Yue-ming, PENG Wen-jie, <i>et al.</i> (5647)
Structure Analysis of Arbuscular Mycorrhizal in Roots from Different Shrubs in Karst Regions	LIANG Yue-ming, SU Yi-rong, HE Xun-yang, <i>et al.</i> (5657)
Effects of Stimulated Nitrogen Deposition on the Bacterial Community Structure of Semiarid Temperate Grassland	LI Zong-ming, SHEN Ju-pei, ZHANG Li-mei, <i>et al.</i> (5665)
Effect of Phosphorus Addition on the Abundance of Autotrophic CO ₂ -Fixation Microorganisms in Rhizospheric Soil from a Phosphorus-Limited Paddy Field BAI Jing, LI Yi-fei, LIU Shou-long, <i>et al.</i> (5672)
Effects of Varying Long-term Fertilization on Organic Carbon Mineralization and Priming Effect of Paddy Soil	MA Xin, WEI Liang, TANG Mei-liang, <i>et al.</i> (5680)
Relationship Between the Vegetation Community and Soil Nutrient and Enzyme Activity During the Restoration of Abandoned Land in the Loess Hilly Region QIAO Wen-jing, DAI Yin-yue, ZHANG Wei, <i>et al.</i> (5687)
Degradation of Pentachlorophenol by Fulvic Acid in a Municipal Solid Waste Landfill	LIU Si-jia, HE Xiao-song, ZHANG Hui, <i>et al.</i> (5699)
Effect of CO ₂ Doubling and Different Plant Growth Stages on Rice Carbon, Nitrogen, and Phosphorus and Their Stoichiometric Ratios TANG Mei-ling, XIAO Mou-liang, YUAN Hong-zhao, <i>et al.</i> (5708)
Assessment of Medical Waste Disposal Technologies Based on the AHP	XU Xiao-fang, TAN Quan-yin, LIU Li-li, <i>et al.</i> (5717)
Livestock and Poultry Faeces Nitrogen Loading Rate and Its Potential Return to Farmland in China	LIU Xiao-yong, WANG Xiu-bin, LI Shu-tian (5723)