

DOI: 10.5846/stxb201307011808

刘冬碧, 张小勇, 巴瑞先, 刘毅, 范先鹏, 张富林, 熊桂云. 鄂西北丹江口库区大气氮沉降. 生态学报, 2015, 35(10): 3419-3427.

Liu D B, Zhang X Y, Ba R X, Liu Y, Fan X P, Zhang F L, Xiong G Y. Atmospheric nitrogen deposition in Danjiangkou Reservoir area of Northwest Hubei. Acta Ecologica Sinica, 2015, 35(10): 3419-3427.

## 鄂西北丹江口库区大气氮沉降

刘冬碧<sup>1</sup>, 张小勇<sup>2</sup>, 巴瑞先<sup>1</sup>, 刘毅<sup>3</sup>, 范先鹏<sup>1</sup>, 张富林<sup>1</sup>, 熊桂云<sup>1,\*</sup>

1 湖北省农业科学院植保土肥研究所, 武汉 430064

2 湖北省烟草公司襄阳市公司, 襄阳 441003

3 中国科学院武汉植物园, 武汉 430074

**摘要:** 利用雨量器在鄂西北丹江口库区连续 3a 采集降雨样品, 研究了大气氮沉降的变化动态。结果表明: 2009—2011 年月均总氮(TN)浓度为 3.70—10.36 mg/L, 与当月降雨量呈极显著线性负相关( $R = -0.592^{**}$ ,  $n = 32$ ), 季均 TN 浓度为冬季(8.21 mg/L) > 春季(3.94 mg/L) > 秋季(3.23 mg/L) > 夏季(2.70 mg/L), 年均 TN 浓度为 3.70 mg/L。大气氮素年均干湿总沉降量为 26.53 kg/hm<sup>2</sup>, 其中干沉降为 7.80 kg/hm<sup>2</sup>, 占总沉降量的 29.4%; 湿沉降为 18.73 kg/hm<sup>2</sup>, 占总沉降量的 70.6%。干沉降中铵态氮(NH<sub>4</sub><sup>+</sup>-N)、硝态氮(NO<sub>3</sub><sup>-</sup>-N)、可溶性有机氮(DON)和颗粒态氮(PN)分别占 TN 的 22.1%、16.8%、37.2%和 23.9%, 湿沉降中它们分别为 TN 的 36.6%、34.4%、12.9%和 16.1%。

**关键词:** 大气氮沉降; 干沉降; 湿沉降; 氮形态; 丹江口库区

## Atmospheric nitrogen deposition in Danjiangkou Reservoir area of Northwest Hubei

LIU Dongbi<sup>1</sup>, ZHANG Xiaoyong<sup>2</sup>, BA Ruixian<sup>1</sup>, LIU Yi<sup>3</sup>, FAN Xianpeng<sup>1</sup>, ZHANG Fulin<sup>1</sup>, XIONG Guiyun<sup>1,\*</sup>

1 Plant Protection and Fertilizer Science Institute, Hubei Academy of Agricultural Sciences, Wuhan 430064, China

2 Xiangyang Branch Company of Hubei Tobacco Corporation, Xiangyang 441003, China

3 Wuhan Botanical Garden, Chinese Academy of Sciences, Wuhan 430074, China

**Abstract:** Atmospheric nitrogen (N) deposition includes wet and dry deposition of both inorganic and organic, or dissoluble and particle N forms. For agricultural ecosystem, atmospheric N deposition is an important way by which the lost N from the soil-plant system goes back to the agricultural fields. Whereas increasing atmospheric N deposition may not only affect human and ecosystem health, greenhouse gas balance and biodiversity, but also become one of the important causes of surface water eutrophication. Since the beginning of this century, the atmospheric N deposition and its effects on agricultural land, forestry, grasslands, watershed and city ecosystems were all conducted in China. However, information on the magnitude and environmental impact of N deposition in China is still limited. Danjiangkou Reservoir, which locates where the Hubei and Henan provinces meet and has a drainage area of 95200 km<sup>2</sup>, is the source of water for the Middle Route Project which is part of the South-to-North Water Transfer Scheme. Recent monitored results showed that, high concentration of total N in some branch catchment rivers is one of the main water environment problems facing Danjiangkou Reservoir. However, the atmospheric N deposition and its effects on water quality in this area are not clear. In this study, the atmospheric N deposition in Danjiangkou Reservoir area of northwest Hubei province from 2009 to 2011 was monitored. Results showed that, the monthly averaged concentration of total nitrogen (TN) in bulk atmospheric deposition ranged from

基金项目: 国家科技支撑计划课题(2012BAD15B01); 湖北省农业科学院青年基金(2011NKYJJ09); 湖北省自然科学基金(2011CBD119)

收稿日期: 2013-07-01; 网络出版日期: 2014-05-30

\* 通讯作者 Corresponding author. E-mail: xiongyy@sina.com

( $3.70 \pm 0.89$ ) mg/L to ( $10.36 \pm 10.68$ ) mg/L, which was significantly negatively correlated to the corresponding monthly rainfall ( $R = -0.592^{**}$ ,  $n = 32$ ). The seasonal averaged concentration of TN was ordered as: Winter ( $(8.21 \pm 2.71)$  mg/L) > Spring ( $(3.94 \pm 1.99)$  mg/L) > Autumn ( $(3.23 \pm 1.52)$  mg/L) > Summer ( $(2.70 \pm 0.72)$  mg/L). The annual averaged concentration of TN was ( $3.70 \pm 0.93$ ) mg/L. The bulk atmospheric TN deposition rates from 2009 to 2011 averaged ( $26.53 \pm 5.44$ ) kg/hm<sup>2</sup>, among which the dry deposition rate was ( $7.80 \pm 1.23$ ) kg/hm<sup>2</sup> or 29.4%, and the wet deposition rate was ( $18.73 \pm 4.20$ ) kg/hm<sup>2</sup> or 70.6%. The seasonal percentage of TN in bulk deposition was ordered as: Summer ( $(31.2 \pm 6.2)\%$ ) > Autumn ( $(29.9 \pm 12.3)\%$ ) > Spring ( $(28.5 \pm 11.6)\%$ ) >> Winter ( $(10.4 \pm 4.2)\%$ ). In the atmospheric dry deposition, NH<sub>4</sub><sup>+</sup>-N, NO<sub>3</sub><sup>-</sup>-N, dissoluble organic nitrogen (DON) and particle nitrogen (PN) in TN accounted for 22.1%, 16.8%, 37.2% and 23.9%, respectively. In the atmospheric wet deposition, NH<sub>4</sub><sup>+</sup>-N, NO<sub>3</sub><sup>-</sup>-N, DON and PN in TN was 36.6%, 34.4%, 12.9% and 16.1%, respectively. The above results may serve as a scientific basis for agricultural field fertilization, ecosystem environment treatment and water resource protection in Danjiangkou Reservoir area, as well as for the study on spatial and temporal variations of atmospheric N deposition in China.

**Key Words:** atmospheric nitrogen deposition; dry deposition; wet deposition; nitrogen forms; Danjiangkou Reservoir area

大气氮沉降通常包括干沉降和湿沉降<sup>[1, 2]</sup>。对于农田生态系统来说,大气氮沉降是土壤-作物系统中损失的氮素再次回到农田的重要途径<sup>[3]</sup>,但是对海洋、江河、湖泊、水库等大型水体来说,大气氮沉降过高可能成为地表水体富营养化的重要原因之一<sup>[4-6]</sup>。作为全球变化的重要现象与氮素生物地球化学循环的主要环节,大气氮沉降的增加可能影响人类和生态系统健康、温室气体的平衡、以及生物多样性<sup>[2, 7-9]</sup>。已有监测结果表明,我国太湖流域大气氮沉降通量呈逐年增加的态势<sup>[10-13]</sup>,大气干湿沉降已成为太湖营养盐输入的重要来源之一<sup>[13]</sup>。我国从 20 世纪 70 年代末 80 年代初开始了大气氮素沉降(雨水)的收集与定量监测<sup>[14-15]</sup>, 21 世纪 10 余年来得到了较快的发展,并在农田、林地、草地、水域、城市等各类生态系统中均开展了一定的监测和研究<sup>[3, 6, 10-13, 16-31]</sup>,但总体来说大气氮沉降通量及其环境影响方面的研究还比较有限,全国范围内的基础数据仍然缺乏<sup>[32]</sup>。

丹江口水库是我国南水北调 3 条调水线中唯一向京津冀豫等沿线城市提供饮用水的水源水库,是我国水质最好的大型水库之一<sup>[33]</sup>。本世纪以来多次连续监测结果表明,丹江口水库少数区域总氮浓度为 1.48—1.60 mg/L,超过国家地表水环境质量标准 IV 类<sup>[34]</sup>;近期监测结果显示,丹江口水库的部分汇水支流总氮超标是当前面临的主要水环境问题之一<sup>[35]</sup>。近几年来,丹江口库区农业面源污染现状及其防治技术方面的研究较多<sup>[36-39]</sup>,但关于该区域大气氮素沉降方面的监测未见报道。本研究旨在摸清丹江口库区大气氮素周年干、湿沉降现状,为丹江口库区农田生态系统施肥、生态环境治理和水资源保护提供科学依据,同时也为研究全国范围内大气污染物的时空分布及其长期变化趋势提供基础数据。

## 1 材料与方法

### 1.1 研究区域概况

监测点选在南水北调中线工程调水源头——丹江口水库汉库的北岸:丹江口市习家店镇小茯苓流域(图 1),位于北纬 32°45.9',东经 111°9.9',海拔约 300 m,以低山和丘陵为主,属北亚热带半湿润季风气候,年均气温 15.9℃,年均降雨量约 800 mm,四季分明,雨热同季。习家店镇是以农业为主的乡镇,农耕地主产玉米、水稻、小麦、油菜和甘薯等,园地主产柑桔、茶叶等,种植业中氮肥以碳铵和尿素为主;养殖业以分散养殖为主,主要为猪和鸡。

### 1.2 样品采集

在小茯苓村办公楼 3 楼楼顶上(距离地面高度约 10 m),安装 2 个天津气象仪器厂生产的 SDM6 型雨量器,于 2009 年 1 月—2011 年 12 月连续不间断地收集雨水样品,其中一个雨量器为长期打开状态,用来收集大

气干湿总沉降,另一个平时用2层干净塑料袋罩住,只在降雨开始之前打开,仅收集大气湿沉降,大气干沉降即为两者之差。雨量器四周(30 m×30 m)无遮挡雨、雪、风的高大树木或建筑物,也无烟囱、大的交通道路等点、线污染源。每次降雨结束后,于次日9:00左右先记录降雨量,然后采集混合均匀的雨水样品,冰冻保存分析备用,同时将储水瓶洗净放回圆筒内。降雨量不足5 mm时,不单独采集样品,只记录降雨量,并将之计算到本月的上一次或下一次降雨量中去。

### 1.3 样品分析与数据处理

样品分析采用GB11894-89方法:总氮(TN)用碱性过硫酸钾氧化-紫外分光光度法,可溶性总氮(DTN)由水样经过滤后,方法与TN相同,铵态氮(NH<sub>4</sub><sup>+</sup>-N)用靛酚蓝比色法测定,硝态氮(NO<sub>3</sub><sup>-</sup>-N)直接用紫外分光光度法测定,可溶性有机氮(Dissoluble organic nitrogen, DON)=DTN-可溶性无机氮(DIN),即DON=DTN-(NH<sub>4</sub><sup>+</sup>-N+NO<sub>3</sub><sup>-</sup>-N),颗粒态氮(PN)=TN-DTN。用环保部标准样品研究所提供的标样控制分析质量,当回收率在95%—105%范围则视为通过。

降水中不同形态氮的月(季、年)平均浓度均根据公式(1),用加权平均浓度表示。氮素沉降量用实际收集的降水的浓度与相应降雨量的乘积累加求得。

$$c = \frac{\sum_{i=1}^n c_i \times P_i}{\sum_{i=1}^n P_i} \quad (1)$$

式中, $c$ 为月(季、年)平均浓度; $i$ 为降水次数; $c_i$ 为第 $i$ 次降水中氮的浓度; $P_i$ 为第 $i$ 次降水的降雨量。

数据分析及图表处理采用Microsoft Excel 2003。

## 2 结果与分析

### 2.1 研究区域的降雨量

图2中数据为研究区域2009—2011年的每月降雨量,以及最近30年(1980—2009年)丹江口市城区每月降雨量的平均值。结果表明,丹江口市城区最近30年年降雨量在522—1127 mm之间,年均降雨量为785 mm,研究区域2009—2011年降雨量为656—854 mm,属正常降雨年份。从降雨量的月际间分配来看,全年降雨量主要分布在5—9月,其间降雨量占全年降雨总量的68%—75%,冬季(1—2月和12月)降雨量较少,不到全年总降雨量的8%。

### 2.2 大气干湿总沉降中总氮浓度变化动态

图3中结果表明,除了2009年3月和2010年2月之外,大气干湿总沉降中TN月均浓度一般在10 mg/L以内,2009—2011年3年TN月均浓度在(3.70±0.89)—(10.36±10.68) mg/L之间(2010年的12月和每年的1月均没有降雨样品),其中4—9月TN月均浓度较小,在5 mg/L以下。在不同年份间的相同月份,2—5月TN月均浓度变异较大,6—12月的变异较小。相关分析结果表明,干湿总沉降中TN月均浓度与当月降雨量呈极

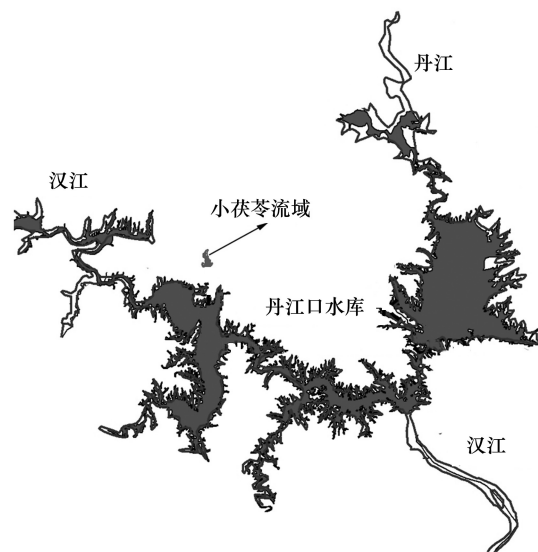


图1 研究区域所处地理位置

Fig.1 Location of the study area

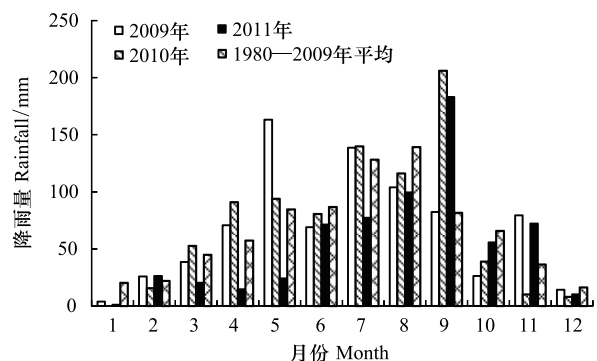


图2 不同年度降雨量月变化动态

Fig.2 Monthly dynamics of rainfall in different years

显著线性负相关( $R=-0.592^{**}$ ,  $n=32$ ),表明降雨对大气具有清洗作用。从季节性变化趋势看,干湿总沉降中 TN 季均浓度为:冬季( $(8.21\pm 2.71)$  mg/L) > 春季( $(3.94\pm 1.99)$  mg/L) > 秋季( $(3.23\pm 1.52)$  mg/L) > 夏季( $(2.70\pm 0.72)$  mg/L),且夏季的年度间变异较小(图 4)。2009—2011 年大气干湿总沉降中 TN 年均浓度为( $3.70\pm 0.93$ ) mg/L。

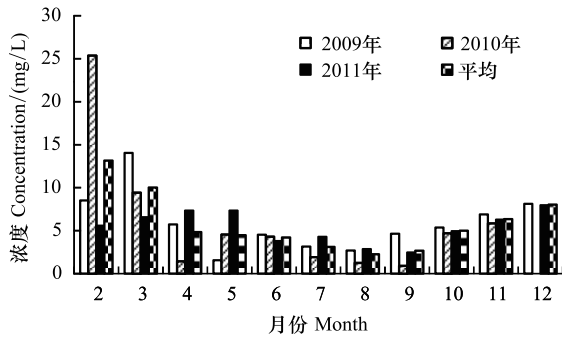


图 3 大气干湿总沉降中总氮浓度的月变化动态

Fig.3 Monthly dynamics of total N concentration in wet and dry deposition

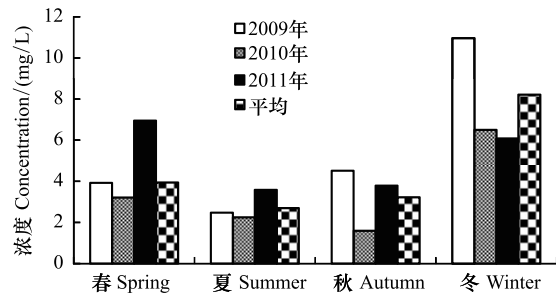


图 4 大气干湿总沉降中总氮浓度的季节变化动态

Fig.4 Seasonal dynamics of total N concentration in bulk deposition

## 2.3 大气氮素沉降量

### 2.3.1 大气氮素干湿总沉降量变化动态

图 5 中结果表明,2009—2011 年从每年 2 月到 12 月,大气氮素月均干湿总沉降量为( $1.27\pm 0.42$ )—( $3.25\pm 1.32$ ) kg/hm<sup>2</sup>,其中 2 月、4 月和 10 月的总沉降量相对较小(低于 1.8 kg/hm<sup>2</sup>),其它月份的较大。不同年度间的相同月份,2 月和 5—10 月沉降量的变异较小,其它月份沉降量变异较大。大气氮素年均干湿总沉降量为( $26.53\pm 5.44$ ) kg/hm<sup>2</sup>(表 1),其季节性分配比例大小顺序为:夏季( $(31.2\pm 6.2)\%$ ) > 秋季( $(29.9\pm 12.3)\%$ ) > 春季( $(28.5\pm 11.6)\%$ ) >> 冬季( $(10.4\pm 4.2)\%$ ),且夏季所占的份额比较稳定(图 6)。

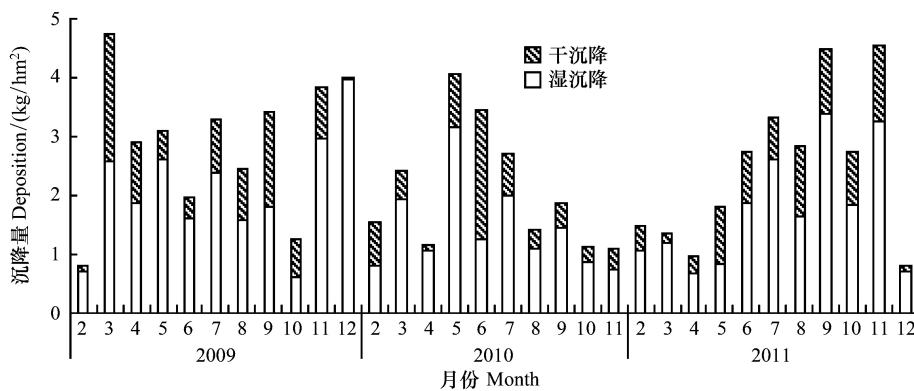


图 5 每月总氮湿沉降量和干沉降量

Fig.5 Monthly rate of total N in wet and dry deposition

### 2.3.2 不同类型和形态氮素干、湿沉降量

在大气氮素干湿总沉降中,干沉降为( $7.80\pm 1.23$ ) kg/hm<sup>2</sup>,占总沉降量的 29.4%;湿沉降为( $18.73\pm 4.20$ ) kg/hm<sup>2</sup>,占总沉降量的 70.6%(表 1)。因此,研究区域大气氮沉降以湿沉降为主。事实上,由于降雨形成过程和样品采集方法的原因,湿沉降中也包括少部分干沉降,本研究中干沉降的比例可能被低估。

表 1 中结果还表明,2009—2011 年度干湿总沉降中,NH<sub>4</sub><sup>+</sup>-N、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>-N、DON 和 PN 平均分别占 TN 沉降量的( $32.3\pm 2.3$ )%、( $29.3\pm 4.0$ )%、( $20.0\pm 4.1$ )%和( $18.4\pm 5.7$ )%,干沉降中它们分别为 TN 沉降量的( $22.1\pm 4.1$ )%、( $16.8\pm 3.5$ )%、( $37.2\pm 8.9$ )%和( $23.9\pm 9.7$ )%,湿沉降中它们分别为 TN 沉降量的( $36.6\pm 3.5$ )%、

(34.4±5.6)%、(12.9±2.5)%和(16.1±4.8)%。由此可见,湿沉降中不同形态氮的沉降量大小顺序为 NH<sub>4</sub><sup>+</sup>-N>NO<sub>3</sub><sup>-</sup>-N>PN>DON, TN 沉降量中 DTN 的比例达 83.9%,且 DTN 中又以 DIN 即 NH<sub>4</sub><sup>+</sup>-N+NO<sub>3</sub><sup>-</sup>-N 为主;干沉降中不同形态氮的沉降量大小顺序为 DON>PN>NH<sub>4</sub><sup>+</sup>-N>NO<sub>3</sub><sup>-</sup>-N,沉降形态仍以 DTN 为主(76.1%),但与湿沉降比较,DTN 中以 DON 所占比例较高,且 PN 在干沉降中所占比例比其在湿沉降中所占比例高出 7.8 个百分点;此外,无论是在湿沉降或是干沉降中,不同形态氮沉降量在 TN 中所占比例的年度变异,其大小顺序均为 PN>DON>NO<sub>3</sub><sup>-</sup>-N>NH<sub>4</sub><sup>+</sup>-N。上述结果表明决定 PN 和 DON 沉降量的条件更容易受到各种因素的影响。

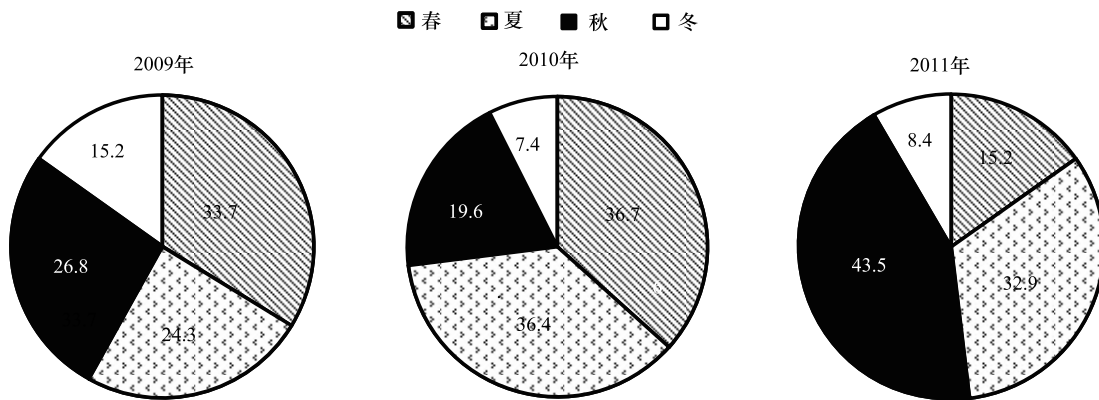


图 6 不同年度大气氮素干湿总沉降量的季节分配 (%)  
Fig.6 Seasonal distribution of total N in bulk deposition (%)

表 1 不同类型和形态氮素沉降量及其比例

Table 1 Rate and the ratio of atmospheric N deposition from different type and form

年份 Year	沉降类型 Deposition type	取样次数 No. of Sampling	年降雨量 Annual rainfall/mm	沉降量/(kg/hm <sup>2</sup> ) Deposition rate					占总氮比例/% Percentage in TN				
				TN	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup> -N	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup> -N	DON	PN	TN	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup> -N	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup> -N	DON	PN
2009	总	25	815.8	31.68	10.49	8.74	5.79	6.66	100	33.1	27.6	18.3	21.0
	干			8.96	1.59	1.17	3.29	2.91	100	17.7	13.1	36.7	32.5
	湿			22.72	8.90	7.57	2.50	3.75	100	39.2	33.3	11.0	16.5
2010	总	26	854.1	20.85	7.12	5.51	3.58	4.64	100	34.1	26.4	17.2	22.2
	干			6.51	1.67	1.30	1.86	1.68	100	25.7	20.0	28.5	25.9
	湿			14.34	5.45	4.21	1.73	2.95	100	38.0	29.4	12.0	20.6
2011	总	32	655.5	27.07	8.06	9.14	6.68	3.19	100	29.8	33.8	24.7	11.8
	干			7.94	1.83	1.39	3.67	1.06	100	23.0	17.5	46.3	13.4
	湿			19.13	6.23	7.75	3.01	2.13	100	32.6	40.5	15.7	11.1
平均 Mean	总	28	775.1	26.53	8.56	7.80	5.35	4.83	100	32.3	29.3	20.0	18.4
	干			7.80	1.70	1.29	2.94	1.88	100	22.1	16.8	37.2	23.9
	湿			18.73	6.86	6.51	2.41	2.95	100	36.6	34.4	12.9	16.1

TN: Total nitrogen, DON: Dissoluble organic nitrogen, PN: Particle nitrogen

### 3 问题讨论

#### 3.1 大气氮素干、湿沉降构成及国内不同区域沉降量比较

干沉降通常是指在非雨天情况下,气态或固态的含氮污染物通过沉降或吸附的方式停留在下垫面或植物枝叶上,其成分主要是气态氮(NO, N<sub>2</sub>O, NH<sub>3</sub>等)或含氮颗粒;湿沉降主要是在降雨(雪)时发生,大部分是 HNO<sub>3</sub>,还有一些 NH<sub>4</sub><sup>+</sup>-N 和可溶性有机氮<sup>[2,10,40]</sup>。干沉降实际上还包括了部分云雾等“隐性沉降”<sup>[23]</sup>,由于降雨形成过程的原因,湿沉降中实际上也包含少量干沉降,因此干、湿沉降的区分主要是针对氮的载体而言,而且是相对的、比较粗略的。本研究及其它多数监测结果证实,大气干湿总沉降中以湿沉降为主,湿沉降约占总

沉降量的 60.1%—73.0%<sup>[13, 24, 27, 30]</sup>, 也有研究表明, 大气氮的干、湿沉降量大致相等<sup>[16]</sup>, 甚至比湿沉降量大<sup>[41]</sup>。张颖等<sup>[30]</sup>研究表明, 华北平原氮素湿沉降所占的比例受降雨量的影响显著, 在降水较为集中的 7—8 月份, 湿沉降所占的比例较高, 而在降雨量较低的月份, 湿沉降所占的比例明显下降, 尤其在春季干旱且多沙尘的月份, 干沉降占了很大比例。在本研究中, 反而是丰水期湿沉降所占比例相对较低(5—6 月和 8—10 月平均为 66.1%), 2—4 月、7 月和 11—12 月的平均值为 77.3%, 12 月湿沉降所占比例高达 93.8%, 可能与研究区域干沉降的来源与华北平原不同有关, 有待开展长期的观察与监测, 并进行深入探讨。

为了方便比较, 将国内部分学者在大气氮沉降方面的监测结果列于表 2。结果表明: 无论是同一区域的不同生态系统、不同区域的相同生态系统, 还是同一区域同一生态系统的不同时段, 大气氮沉降量均存在较大差异。从全国范围看, 以中东部和沿海等经济较发达地区高于内陆地区, 内陆地区又高于西藏、西北和东北等人类活动较弱的地区, 城市生态系统又明显高于其它生态系统。此外, 21 世纪最近 10 年, 太湖水域的大气氮湿沉降量已由 2002 年的 28.1 kg/hm<sup>2</sup> 增加到 2011 年的 56.2 kg/hm<sup>2</sup><sup>[11, 13]</sup>, 刚好翻了一番, 大气干湿沉降已成为太湖营养盐输入的重要来源之一<sup>[13]</sup>。根据最新统计结果<sup>[32]</sup>, 中国各地区之间氮沉降变异较大, 从全国范围看, 大气氮混合沉降量随时间呈显著增加的趋势, 从 1980 年—2010 年的 30 年间, 氮混合沉降量平均每年增加 0.41 kg/hm<sup>2</sup>; 在 20 世纪 80 年代全国年均氮混合沉降量为 13.2 kg/hm<sup>2</sup>, 21 世纪初上升到 21.1 kg/hm<sup>2</sup>, 增加了 8 kg/hm<sup>2</sup> (60%)。在过去 30 年中, 同一个区域降雨量的变化相对比较稳定, 所以氮混合沉降量的增加主要是由雨水中氮的浓度增加引起的<sup>[32]</sup>。

表 2 本研究和全国部分地区大气氮沉降量比较

Table 2 Comparison of atmospheric nitrogen deposition among some regions over China

地点 Location	监测时段 Monitoring period	生态系统类型 Ecosystem type	年均大气氮沉降量/(kg/hm <sup>2</sup> ) Annual mean atmospheric nitrogen deposition			资料来源 Reference
			干沉降 Dry dep.	湿沉降 Wet dep.	总沉降 Bulk dep.	
鄂西北丹江口库区	2009.1.—2011.12.	农牧林	7.80	18.73	26.53	本研究
太湖地区常熟生态站	2001-06—2003-05	农田		27.0		[10]
太湖水域	2002-07—2003-06	湖泊		28.1		[11]
太湖水域	2009-08—2010-07	湖泊		46.5		[12]
太湖水域	2011-01—2011-11	湖泊	33.5	56.2	89.7	[13]
江西贛潭	2004-12—2005-11	农田	31.9	30.7	62.6	[16]
广州东北郊	2011-04—2012-03	农林		23.85		[18]
三江平原	2004-07—2005-06	湿地		7.57		[22]
华北平原	2003-01—2004-12	乡村/远郊/城市			28.0	[30]
北京东北旺	2003-01—2004-12	远郊		19.2	26.3	[30]
大连市区	2009-01—2010-12	城市		32.3		[25]
青岛市城阳区	2007-01—2010-12	不详		25.2		[29]
上海	1998-01—2003-12	湿地		58.1		[6]
上海	2007-11—2008-10	市区/市郊/远郊		78.42		[28]
南京市郊	2005-06—2006-05	城郊结合部	43.9	66.0	109.9	[27]
福建西北	2008-12—2011-11	农田		12.7		[17]
福建九龙江流域	2004-01—2004-12	农业	3.41—7.63	9.90		[23, 24]
福建漳州市区域	2004-02—2005-01	城市/酸雨区		53.0		[31]
西藏东南	2005-06—2006-12	农牧林		2.36		[21]
重庆	不详	近郊/远郊/林区		40.1—51.9		[26]

### 3.2 大气氮沉降中的不同形态组成

大气沉降中 NH<sub>4</sub><sup>+</sup>-N 主要来自农业活动, 如土壤、肥料和人畜粪便中 NH<sub>3</sub> 的挥发, 微生物对动植物残体和土壤有机物的分解, 以及石化燃料的燃烧等<sup>[1, 42]</sup>, 受本地 NH<sub>3</sub> 排放影响较大<sup>[23]</sup>, 迁移距离较小

(<100 km)<sup>[40, 43]</sup>;NO<sub>3</sub>-N 主要来自于闪电、土壤微生物的反硝化作用、生物及石化燃料尤其是汽车尾气等<sup>[1, 10, 26]</sup>,且迁移距离较大,可达几千公里以上<sup>[40]</sup>;大气中的有机氮有很大一部分是尿素,直接来自于土壤、水面、肥料和人畜排泄物的挥发作用<sup>[26, 42]</sup>,生物本身也可通过直接或间接的方式向大气排放有机氮<sup>[44]</sup>。颗粒态氮来源于大气沉降中的细小颗粒悬浮物,本研究干沉降中的比例较高(23.9%),湿沉降中较低(16.1%),对其中氮形态区分目前仍缺乏研究。

王小治等<sup>[10]</sup>的研究表明,太湖农田生态系统湿沉降中 NH<sub>4</sub><sup>+</sup>-N、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>-N 和 DON 的比例分别为 47.6%、35.1%和 17.4%,其中 NH<sub>4</sub><sup>+</sup>-N 主要来自当地农田的氨挥发;闽西北农田生态系统湿沉降输入氮中,NH<sub>4</sub><sup>+</sup>-N、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>-N 和 DON 占 TN 的比例分别为 43.77%、24.78%和 31.45%<sup>[17]</sup>;重庆湿沉降中 NH<sub>4</sub><sup>+</sup>-N、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>-N 和 DON 占 TN 比例分别为 44.9%、27.4%和 27.5%<sup>[26]</sup>;在不考虑 DON 情况下,三江平原湿地生态系统湿沉降 TN 的组成以无机态总氮(TIN)为主(51.38%—98.96%),TIN 又以 NH<sub>4</sub><sup>+</sup>-N 和 NO<sub>3</sub><sup>-</sup>-N 特别是 NH<sub>4</sub><sup>+</sup>-N 为主<sup>[22]</sup>。国外有研究表明<sup>[42]</sup>,不同区域湿沉降中 DON 占 DTN 的比例为 11%—56%,因此,如果仅考虑 NH<sub>4</sub><sup>+</sup>-N 和 NO<sub>3</sub><sup>-</sup>-N(NO<sub>2</sub><sup>-</sup>-N 比例较小,常忽略不计),氮湿沉降量将被低估。福建九龙江流域大气氮干沉降的 3 种主要形态为 NH<sub>4</sub><sup>+</sup>-N、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>-N 和 DON,分别占总沉降量的 31%、24%和 45%<sup>[23]</sup>。江西红壤农田生态系统 DON 占 TN 的 12.6%<sup>[16]</sup>;而南京市郊城市生态系统大气氮沉降中 DON 占总量的 54.0%<sup>[27]</sup>。

本研究区域为典型的集种植和分散养殖为一体的混合型农业生态系统(还有部分林地),周围农田(稻田和坡耕地)氮肥主要为碳酸氢铵和尿素,且碳酸氢铵用量较高,附近又无大量石化燃料的燃烧,所以大气沉降产生的 NH<sub>4</sub><sup>+</sup>-N 主要来自当地的农业活动。在不考虑 PN 的条件下,大气湿沉降中 NH<sub>4</sub><sup>+</sup>-N、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>-N 和 DON 的比例分别为 43.6%、41.0%和 15.4%,与太湖农田生态系统湿沉降组成一致<sup>[10]</sup>;大气干沉降中 NH<sub>4</sub><sup>+</sup>-N、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>-N 和 DON 的比例分别为 29.0%、22.1%和 48.9%,与福建九龙江流域农业生态系统干沉降组成也比较接近<sup>[23]</sup>;大气干湿总沉降中 DON 占 TN 的比例为 24.5%,大约是江西红壤农田生态系统的 2 倍<sup>[16]</sup>,而远远低于南京市郊城市生态系统<sup>[27]</sup>。上述结果表明,农田(或农业)生态系统大气氮沉降中的形态组成大致相似,它既反映了大气沉降的来源,也在一定程度上反映了大气的质量状况。

### 3.3 大气氮沉降的植物营养学意义和生态环境效应

从植物营养学角度看,大气氮沉降有着重要的积极意义,它既是补偿农田生态系统氮素损失的重要途径之一<sup>[3, 10]</sup>,也是土壤-作物系统继施肥之后的重要氮素来源。降水中无机氮的沉降均为有效态氮,很容易被植物吸收利用。此外,氮沉降还能增加土壤氮的矿化和土壤无机氮浓度,刺激作物生长<sup>[2]</sup>。本研究中,年均大气氮素沉降量为 26.53 kg/hm<sup>2</sup>,相当于在农田中施用了 57.67 kg/hm<sup>2</sup> 尿素,在我国其它区域的一些农田生态系统,大气氮沉降量远高于本项研究数值,如太湖流域<sup>[10]</sup>、江西鹰潭红壤地区<sup>[16]</sup>,因此,充分利用大气氮素沉降、并适当减少农田生态系统施氮量是一个值得重视的问题。

与此同时,我们更应注意到,研究区域降雨中的年均 TN 浓度(2.64—4.33 mg/L),已明显超过国家标准地表水环境质量标准(GB3838—2002)中的集中式生活饮用水地表水源地二级保护区标准(1.0 mg/L),研究区域年均氮干沉降量与福建九龙江流域相近,湿沉降量几乎为九龙江流域的 2 倍<sup>[23-24]</sup>,因此大气氮沉降对丹江口水库水质富营养化趋势的贡献值得重视和深入研究。要从根本上解决水体富营养化问题,除了减少工业废水、养殖和生活污水、农田径流等各种氮磷污染源向水体的直接排放以外,还要针对大气中氮的来源,采取相应措施降低雨水中氮的浓度,从而最终减少水体的氮素输入。

## 4 结论

丹江口库区大气氮沉降中,2009—2011 年月均 TN 浓度为(3.70±0.89)—(10.36±10.68) mg/L,与当月降雨量呈极显著线性负相关( $R = -0.592^{**}$ ,  $n = 32$ );季均 TN 浓度为冬季((8.21±2.71) mg/L) > 春季((3.94±1.99) mg/L) > 秋季((3.23±1.52) mg/L) > 夏季((2.70±0.72) mg/L);年均 TN 浓度为(3.70±0.93) mg/L。

大气氮素年均干湿总沉降量为(26.53±5.44) kg/hm<sup>2</sup>,其中干沉降为(7.80±1.23) kg/hm<sup>2</sup>,占总沉降量的

29.4%;湿沉降为 $(18.73 \pm 4.20) \text{ kg/hm}^2$ , 占总沉降量的 70.6%。氮干湿总沉降量的季节分配比例为夏季(31.2%)>秋季(29.9%)>春季(28.5%)>>冬季(10.4%)。干沉降中 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 、 $\text{NO}_3^-\text{-N}$ 、DON 和 PN 分别占 TN 的 $(22.1 \pm 4.1)\%$ 、 $(16.8 \pm 3.5)\%$ 、 $(37.2 \pm 8.9)\%$ 和 $(23.9 \pm 9.7)\%$ ;湿沉降中它们分别为 TN 的 $(36.6 \pm 3.5)\%$ 、 $(34.4 \pm 5.6)\%$ 、 $(12.9 \pm 2.5)\%$ 和 $(16.1 \pm 4.8)\%$ 。

#### 参考文献(References):

- [1] Jenkinson D S. An introduction to the global nitrogen cycles. *Soil Use and Management*, 1990, 6(2): 56-61.
- [2] 周晓兵, 张元明. 干旱半干旱区氮沉降生态效应研究进展. *生态学报*, 2009, 29(7): 3835-3845.
- [3] 苏成国, 尹斌, 朱兆良, 沈其荣. 农田氮素的气态损失与大气氮湿沉降及其环境效应. *土壤*, 2005, 37(2): 113-120.
- [4] Paerl H W. Coastal eutrophication in relation to atmospheric nitrogen deposition: Current perspectives. *Ophelia*, 1995, 41: 237-259.
- [5] Kim T W, Lee K, Naiiar R G, Jeong H D, Jeong H J. Increasing N abundance in the Northwestern Pacific Ocean due to atmospheric nitrogen deposition. *Science*, 2011, 334(6055): 505-509.
- [6] 张修峰. 上海地区大气氮湿沉降及其对湿地水环境的影响. *应用生态学报*, 2006, 17(6): 1099-1102.
- [7] Vitousek P M, Aber J D, Howarth R W, Likens G E, Matson P A, Schindler D W, Schlesinger W H, Tilman D G. Human alteration of the global nitrogen cycle: sources and consequences. *Ecological Applications*, 1997, 7(3): 737-750.
- [8] Matson P, Lohse K A, Hall S J. The globalization of nitrogen deposition: consequences for terrestrial ecosystems. *Ambio*, 2002, 31(2): 113-119.
- [9] Clark C M, Tilman D. Loss of plant species after chronic low-level nitrogen deposition to prairie grasslands. *Nature*, 2008, 451(7179): 712-715.
- [10] 王小治, 朱建国, 高人, 宝川靖和. 太湖地区氮素湿沉降动态及生态学意义: 以常熟生态站为例. *应用生态学报*, 2004, 15(9): 1616-1620.
- [11] 宋玉芝, 秦伯强, 杨龙元, 胡维平, 罗淑葱. 大气湿沉降向太湖水生生态系统输送氮的初步估算. *湖泊科学*, 2005, 17(3): 226-230.
- [12] 余辉, 张璐璐, 燕姝雯, 李焕利, 徐军. 太湖氮磷营养盐大气湿沉降特征及入湖贡献率. *环境科学研究*, 2011, 24(11): 1210-1219.
- [13] 刘涛, 杨柳燕, 胡志新, 孙一宁. 太湖氮磷大气干湿沉降时空特征. *环境监测管理与技术*, 2012, 24(6): 20-24, 42-42.
- [14] 鲁如坤, 史陶钧. 金华地区降雨中养分含量的初步研究. *土壤学报*, 1979, 16(1): 81-84.
- [15] 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. *土壤学报*, 1984, 21(4): 438-442.
- [16] 王体健, 刘倩, 赵恒, 周静, 樊建凌. 江西红壤地区农田生态系统大气氮沉降通量的研究. *土壤学报*, 2008, 45(2): 280-287.
- [17] 郑祥洲, 张玉树, 丁洪, 陈静蕊. 闽西北农田生态系统中大气氮湿沉降研究. *水土保持学报*, 2012, 26(3): 127-130, 204-204.
- [18] 林兰稳, 肖辉林, 刘婷琳, 黄美艳, 刘成枝, 陈沃坤, 刘文超, 黎艳明, 钟继洪, 余炜敏, 詹振寿, 谭军. 广州东北郊大气氮湿沉降动态及其与酸雨的关系. *生态环境学报*, 2013, 22(2): 293-297.
- [19] 樊后保, 苏兵强, 林德喜, 陈世品. 杉木人工林生态系统的生物地球化学循环 II: 氮素沉降动态. *应用与环境生物学报*, 2000, 6(2): 133-137.
- [20] 李玉中, 祝廷成, 姜世成. 羊草草地生态系统干湿沉降氮输入量的动态变化. *中国草地*, 2000, 22(2): 24-27.
- [21] 贾钧彦, 张颖, 蔡晓布, 刘学军. 藏东南大气氮湿沉降动态变化: 以林芝观测点为例. *生态学报*, 2009, 29(4): 1907-1913.
- [22] 孙志高, 刘景双, 王金达. 三江平原典型湿地系统大气湿沉降中氮素动态及其生态效应. *水科学进展*, 2007, 18(2): 182-192.
- [23] 陈能汪, 洪华生, 肖健, 张路平, 王吉莘. 九龙江流域大气氮干沉降. *生态学报*, 2006, 26(8): 2602-2607.
- [24] 陈能汪, 洪华生, 张路平. 九龙江流域大气氮湿沉降研究. *环境科学*, 2008, 29(1): 38-46.
- [25] 颜文娟, 史锟. 大连市大气氮湿沉降研究. *生态环境学报*, 2013, 22(3): 517-522.
- [26] 袁玲, 周鑫斌, 辜夕容, 黄建国. 重庆典型地区大气湿沉降氮的时空变化. *生态学报*, 2009, 29(11): 6095-6101.
- [27] 邓君俊, 王体健, 李树, 谢旻, 樊建凌. 南京郊区大气氮氧化物浓度和氮沉降通量的研究. *气象科学*, 2009, 29(1): 25-30.
- [28] 周婕成, 史贵涛, 陈振楼, 毕春娟, 许世远. 上海大气氮湿沉降的污染特征. *环境污染与防治*, 2009, 31(11): 30-34.
- [29] 房增国, 赵秀芬. 青岛大气氮湿沉降动态变化. *水土保持学报*, 2013, 27(1): 263-266.
- [30] 张颖, 刘学军, 张福锁, 巨晓棠, 邹国元, 胡克林. 华北平原大气氮素沉降的时空变异. *生态学报*, 2006, 26(6): 1633-1639.
- [31] 肖健. 漳州市氮湿沉降量异常的形成及危害. *能源与环境*, 2005, (2): 59-61.
- [32] Liu X J, Zhang Y, Han W X, Tang A H, Shen J L, Cui Z L, Vitousek P, Erisman J W, Goulding K, Christie P, Fangmeier A, Zhang F S. Enhanced nitrogen deposition over China. *Nature*, 2013, 494(7438): 459-462.
- [33] 万咸涛. 汉江流域及丹江口库区水环境质量现状分析. *江苏环境科技*, 2001, 14(2): 17-18.
- [34] 高红莉, 周文宗, 陈阳. 南水北调中线丹江口库区水环境现状. *长江流域资源与环境*, 2007, 16(Z2): 113-117.
- [35] 艾鹰, 毕永红, 胡征宇, 张琪, 余博识, 张琴. 丹江口水库水环境及其与农业面源污染的关系 // 刘宝存, 赵同科. 农业面源污染综合防控技术研究进展. 北京: 中国农业科学技术出版社, 2010: 46-53.
- [36] 张小勇, 范先鹏, 刘冬碧, 徐芳森, 甘小泽, 范修远, 董文忠. 丹江口库区湖北水源区农业面源污染现状调查与评价. *湖北农业科学*, 2012, 51(16): 3460-3464.



- [37] 刘冬碧,巴瑞先,熊桂云,范先鹏,段小丽,李端波.丹江口库区坡耕地氮磷流失规律及其影响因素的初步研究 // 刘宝存,赵同科.农业面源污染综合防控技术研究进展.北京:中国农业科学技术出版社,2010:70-75.
- [38] 毕磊,谭启玲,胡承孝,李端波.丹江口库区橘园施肥技术与氮磷流失关系研究 // 刘宝存,赵同科.农业面源污染综合防控技术研究进展.北京:中国农业科学技术出版社,2010:326-331.
- [39] Liu Y, Tao Y, Wan K Y, Zhang G S, Liu D B, Xiong G Y, Chen F. Runoff and nutrient losses in citrus orchards on sloping land subjected to different surface mulching practices in the Danjiangkou Reservoir area of China. *Agricultural Water Management*, 2012, 110: 34-40.
- [40] Aneja V P, Roelle P A, Murray G C, Southerland J, Erisman J W, Fowler D, Asman W A H, Patni N. Atmospheric nitrogen compounds II: Emissions, transport, transformation, deposition and assessment. *Atmospheric Environment*, 2001, 35(11): 1903-1911.
- [41] Tarnay L, Gertler A W, Blank R R, Taylor Jr G E. Preliminary measurements of summer nitric acid and ammonia concentrations in the Lake Tahoe Basin air-shed: implications for dry deposition of atmospheric nitrogen. *Environmental Pollution*, 2001, 113(2): 145-153.
- [42] Cornell S E, Jickells T D, Cape J N, Rowland A P, Duce R A. Organic nitrogen deposition on land and coastal environments: a review of methods and data. *Atmospheric Environment*, 2003, 37(16): 2173-2191.
- [43] Asman W A H, Van Jaarsveld J A. A variable resolution transport model applied for NH<sub>x</sub> in Europe. *Atmospheric Environment*, 1992, 26: 445-464.
- [44] 郑利霞,刘学军,张福锁.大气有机氮沉降研究进展.生态学报,2007,27(9):3828-3834.