

DOI: 10.5846/stxb201502120342

刘平, 刘学军, 骆晓声. 山西北部农村区域大气活性氮沉降特征. 生态学报, 2016, 36(17): - .

Liu P, Liu X J, Luo X S. Study on the atmospheric deposition characteristics of reactive nitrogen (Nr) species in Shuozhou area. Acta Ecologica Sinica, 2016, 36(17): - .

山西北部农村区域大气活性氮沉降特征

刘平¹, 刘学军², 骆晓声^{2,4}, 吴庆华², 刘恩科³, 韩彦龙³, 李丽君¹, 白光洁¹, 武文丽¹, 张强^{1,*}

1 山西省农业科学院农业环境与资源研究所, 山西省土壤环境与养分资源重点实验室, 太原 030031

2 中国农业大学资源与环境学院, 北京 100193

3 山西省农业科学院旱地农业研究中心, 太原 030031

4 河南省农业科学院植物营养与资源环境研究所, 郑州 450002

摘要: 利用 DELTA 系统、被动采样器和雨量器在山西省北部生态脆弱区朔州的一个监测点通过一整年的监测试验, 研究了该地区农村区域大气氮素干湿沉降的月际变化。结果表明: 2011 年该地区大气氮素湿沉降为 $12.43 \text{ kg N hm}^{-2} \text{ a}^{-1}$, 远低于华北平原大气氮素混合沉降的平均值 $28.0 \text{ kg N hm}^{-2} \text{ a}^{-1}$, 降水中铵态氮、硝态氮和有机氮平均分别为 1.24 mg N/L 、 1.27 mg N/L 、 1.26 mg N/L 。大气氮素湿沉降的年内分布不均, 60% 的沉降集中在降水较丰沛的 4—10 月份。本试验区干沉降以氧化态氮 (HNO_3 , NO_2 和 pNO_3^-) 的沉降为主, 氧化态氮的干沉降量是还原态氮 (NH_3 和 pNH_4^+) 的 1.37 倍, 大气氮素干沉降总量为 $35.43 \text{ kg N hm}^{-2} \text{ a}^{-1}$ 。总体来看, 作为典型的干旱区, 该地区氮的干沉降是湿沉降的 3 倍, 氮素干湿沉降总量达到 $47.86 \text{ kg N hm}^{-2} \text{ a}^{-1}$ 。此外, 硝态氮和铵态氮在雨水中呈线性相关, 而在 PM_{10} 颗粒物中乘幂正相关; 雨水中总碳和总氮呈线性正相关, 而 PM_{10} 颗粒物中二者呈二次多项式关系。鉴于朔州地区古城镇较高的氮沉降数量, 应该对该地区输入农田的氮素环境养分引起足够重视。

关键词: 活性氮; 干沉降; 湿沉降; 朔州地区

Study on the atmospheric deposition characteristics of reactive nitrogen (Nr) species in Shuozhou area

LIU Ping¹, LIU Xuejun², LUO Xiaosheng^{2,4}, WU Qinghua², LIU Enke³, HAN Yanlong³, LI Lijun¹, BAI Guangjie¹, WU Wenli¹, Zhang Qiang^{1,*}

1 Shanxi Academy of Agricultural Sciences, Institute of Agricultural Environment and Resources, Provincial Key Laboratory of Soil Environment and Nutrient Resources, Taiyuan 030031, China

2 China Agricultural University, College of Resources and Environmental Sciences, Beijing 100193, China

3 Shanxi Academy of Agricultural Sciences, Institute of Dryland Farming, Taiyuan 030031, China

4 Henan Academy of Agricultural Sciences, Institute of Plant Nutrition, Resources and Environmental Sciences, Zhengzhou 450002, China

Abstract: Reactive nitrogen (Nr) emissions and nitrogen deposition have increased rapidly and will continue to increase with the increasing fossil fuel combustion and application of N fertilizer since the industrial revolution. Nitrogen deposition has led to a series of negative effects on ecosystems such as soil acidification, water eutrophication, and loss of biodiversity in grasslands and forests. Therefore, atmospheric Nr pollution and deposition induced by excessive anthropogenic Nr have become an environmental concern worldwide. However, little is known about N deposition in Shanxi Province. The temporal variation of atmospheric N deposition was quantified using DELTA system, passive samplers, and particulate samplers at Gu

基金项目: 山西省科技厅攻关项目 (20120311008-3); 山西省财政支农项目 (2015ZZCX-13)

收稿日期: 2015-02-12; 网络出版日期: 2015-00-00

* 通讯作者 Corresponding author. E-mail: sxsnkytfs@163.com

Cheng, Shanxi Province, in a one year study. Results showed total wet N precipitation was up to $12.43 \text{ kg N hm}^{-2} \text{ a}^{-1}$ in this area, which was far below the average value ($28.0 \text{ kg N hm}^{-2} \text{ a}^{-1}$) in the North China Plain. During wet precipitation, the concentration of $\text{NO}_3^- \text{-N}$, $\text{NH}_4^+ \text{-N}$, and dissolved organic N averaged 1.24 mg N/L , 1.27 mg N/L , and 1.26 mg N/L , respectively. In a year, wet precipitation of N showed a distinguished monthly variation due to different monthly rainfall, and 60% of wet deposition occurred from April to October. The major form of dry deposition was $\text{NO}_3^- \text{-N}$, the rate of which was 1.12 times that of $\text{NH}_4^+ \text{-N}$. As a typical dry land, the rate of dry deposition was 3 times that of wet deposition. The total amount of nitrogen deposition was up to $47.86 \text{ kg N hm}^{-2} \text{ a}^{-1}$. There was a positive line correlation between $\text{NO}_3^- \text{-N}$ and $\text{NH}_4^+ \text{-N}$ in rainwater, and that was a power correlation in PM_{10} particulates. However, dissolved C and N showed a positive line correlation in rainwater and a quadratic polynomial correlation in PM_{10} particulates. All these relationships can provide a way to determine one of them through another. Such high deposition rates of N species in the Shuozhou area indicated a serious pollution from anthropogenic sources and significant atmospheric N input to croplands.

Key Words: Reactive nitrogen; Dry deposition; Wet deposition; Shuozhou area

化石燃料的使用和含氮化肥的施用导致大气活性氮排放的不断增加^[1]。而大气活性氮如 NH_3 和 NO_x 含氮气体的排放促进了大气中微小颗粒的形成,不仅降低空气质量而且损害人体健康^[2]。从长期效果来看,大气活性氮的增加将导致地面氮的干、湿沉降加大,从而导致对生态系统一系列负面影响,比如损害草地和森林生物多样性的^[3,4,5,6,7],作为间接源增加 N_2O 的排放等^[6]。因此过量的人为氮排放导致大气活性氮的污染和沉降已经成为世界范围内关注的问题^[9]。

刘学军等^[10]的研究认为大气活性氮沉降具有典型养分资源特征和区域分布差异,因此应根据其特点采取分区域管理的应对策略。在整个冬小麦-夏玉米轮作系统氮素沉降的总量变幅为 $80\text{--}90 \text{ kg N/hm}^2$,而当季植物可以直接利用氮素沉降约 50 kg N/hm^2 ^[11]。因此,量化氮的沉降对提高氮肥在农业中的利用率和减少它对敏感生态区的负面影响都有重要意义。煤炭是中国重要的能源类型,其在能源消费中达到中国总能源消费结构的 70%,其对 SO_2 、 NO_x 的排放及空气污染的形成均有重要的贡献^[12]。山西省煤炭的生产与消耗居全国前列,其大气活性氮的排放也引人关注,但是至今鲜有这方面的报道。因此本研究选取山西省北部朔州地区的山阴县古城镇典型采样点,使用 DELTA 系统、中流量颗粒物采样器、雨量器综合研究采样点大气活性氮污染状况及其对干湿沉降的贡献。一方面了解山西北部偏远山区的大气活性氮状况,量化当地农田氮素的干、湿沉降输入,另一方面初步明确活性氮组分之间的关系,从而为估算和预测当地农业中氮的输入提供基础数据。

1 材料和方法

1.1 采样点

选取山西省山阴县古城镇盐碱地周边作为采样点 ($39^\circ 26' \text{ N}$, $112^\circ 55' \text{ E}$),用来采集和计算大气 N 干、湿沉降。采样期从 2010 年 4 月至 2011 年 3 月,干沉降每月收集一次。该采样点位于中国北部的靠北端,年均气温为 7°C ,降雨量在 360 mm 左右(低于以往年平均降雨量),周围有小规模的养牛场,由于当地是典型的苏打盐化土区域,农业上施肥投入并不大。

1.2 干沉降采样器

干沉降采样器包括 DELTA 系统、中流量颗粒物采样器及被动采样器。其中 DELTA 系统采集活性氮气体 NH_3 、 HNO_3 及颗粒态 NH_4^+ 和 NO_3^- ,被动采样器是用于活性氮气体 NO_2 浓度的采集,所采集的五种活性氮用于计算各形态及总的氮干沉降量。中流量颗粒物采样器采集大气 PM_{10} 颗粒物,不参与氮干沉降量的计算,仅用于分析颗粒物中所含 $\text{NH}_4^+ \text{-N}$ 、 $\text{NO}_3^- \text{-N}$ 、可溶性总碳、总氮,并与前一方法收集物中所含相应成分进行比对。

1.2.1 DELTA 系统

DELTA 系统是英国爱丁堡生态与水文中心(Centre for Ecology and Hydrology, CEH)开发了利用扩散管与滤膜组联用法长期监测 NH_3 、 HNO_3 、颗粒态 NH_4^+ 和 NO_3^- 浓度的监测系统。DELTA 系统实现了大气中气态 NH_3 和 HNO_3 与气溶胶的分开采集,有效地减少了滤膜组测定法的误差。由于该系统价格相对低廉,目前已在英国和欧洲的环境监测中得到了广泛应用^[2]。在系统中配置一个小型的泵采集大气的速率为 0.3–0.4 L/min。当层状空气流通过用碱液或酸液浸泡过的管内壁时硝酸和氨气被碱液或酸液吸收,同时气溶胶中颗粒物沉积于管内的滤纸,关于 DELTA 系统的详细信息见参考文献^[2]。采样高度高于地面 1.6 米。由于中国空气污染严重本试验采用 37mm 的滤膜来收集 NO_3^- 和 NH_4^+ 颗粒物,这个滤膜要大于欧洲监测所采用的 25mm 的滤膜。

样品的采样周期为一个月,即从一个月的月初到月末。样品从采样点采集后立即在 4℃ 下保存,且在一个月分析完。 HNO_3 和 NO_3^- -N 颗粒物用 10 毫升 0.05% H_2O_2 浸提, NH_3 和 NH_4^+ 颗粒物用 10 毫升高纯水浸提,溶解之后 NO_3^- 和 NH_4^+ 在 AA3 连续流动分析仪上测定(Bran+Luebbe GmbH, Norderstedt, Germany)。

1.2.2 中流量颗粒物采样器

采用武汉天虹的中流量颗粒物采样器采集大气 PM_{10} 。一次采样时间为 24 小时,采样速率为 100L min^{-1} ,每个月在采样点可得到 5 个日 PM_{10} 样品。颗粒物收集滤膜为石英纤维滤膜,滤膜在采样前后在恒温恒湿条件下(气温:22℃,相对湿度:50%)平衡 24 小时,之后用百万分之一电子天平称重。将称重后的样品滤膜加超纯水 25 mL,超声振荡 30 min,提取液用配有 47 mm Whatman GF/F 滤膜的针筒式过滤器过滤。滤液储存于 4℃,并于 1 个月内进行化学成分测定,溶解之后 NO_3^- 和 NH_4^+ 在 AA3 连续流动分析仪上测定(Bran+Luebbe GmbH, Norderstedt, Germany)

1.2.3 用于大气 NO_2 收集的被动采样器

大气中 NO_2 采用英国环境变化网络(ECN)所用的标准方法即被动采样器来采集, NO_2 被动采样器内部浸渍有 20% 的三乙醇胺吸附剂用于吸附 NO_2 气体,该采样器安置于距地面 2 m,采样时间为 10—14 d,时间与其它采样器同步进行,该采样器在采样点采集两周后收回在 4℃ 下保存,采用 ECN(www.ecn.ac.uk)。在线网站所描述的标准方法-比色法测定收集到的 NO_2 浓度。

1.2.4 大气氮干沉降的计算

大气氮素干沉降的计算采用推断模型法,一定时间段内的大气氮干沉降量等于一段时间采集的大气活性氮浓度与沉降速率的乘积(参考文献附后),公式表示为:

$$F = C \times V_d$$

式中, F 表示一定时段的大气氮干沉降量, C 表示一段时间的大气活性氮浓度, V_d 表示不同活性氮种类的沉降速率。

大气氮干沉降速率通常由大气沉降速率阻力模型获得,不同的活性氮气体之间,及气体和颗粒物均存在较大的差别。本研究没有具体的气象参数及模型对沉降速率进行估算,因此采用文献报道的沉降速率^[13]计算大气氮干沉降量, HNO_3 、 NO_2 、 NH_3 的沉降速率为月动态沉降速率如表 1,颗粒物 pNO_3^- 、 pNH_4^+ 的沉降速率取固定值 0.24 cm/s。

表 1 各形态活性氮月沉降速率(cm/s)

Table 1 Monthly dry deposition velocities for NH_3 , HNO_3 and NO_2

活性氮月沉降速率 Monthly N_x deposition velocities	2011- Jan	2011- Feb	2011- Mar	2011- Apr	2011- May	2011- Jun	2011- Jul	2011- Aug	2011- Sep	2011- Oct	2011- Dec	2011- Nov
HNO_3	0.55	0.73	1.15	1.55	1.51	1.54	1.43	1.22	1.3	1.02	0.65	0.55
NH_3	0.35	0.42	0.53	0.61	0.6	0.61	0.59	0.55	0.56	0.51	0.4	0.35
NO_2	0.4	0.48	0.63	0.73	0.72	0.73	0.71	0.66	0.68	0.6	0.45	0.4

1.3 湿沉降采集

雨水样品用雨量器(SDM6,天津产的气象设备)在每次降雨事件后采集。雨量器放在宽阔平坦的地方,收集好的雨水冷冻保存并在一个月内分析完。 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 和 $\text{NO}_3^-\text{-N}$ 用上面提到的方法测定。湿沉降的无机氮根据湿沉降中 N 的浓度和量来计算^[11]

N 湿沉降的计算方法

$$N_{wd}(\text{gN}/\text{hm}^2) = P(\text{mm}) \times C_N(\text{mg} \cdot \text{N}/\text{L}) \times 10$$

N_{wd} 表示每次降雨氮湿沉降量, P 表示每次降雨的毫米数, C_N 表示 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 或 $\text{NO}_3^-\text{-N}$ 含量, 10 是单位换算系数。

$$N_{m,y}(\text{kg N}/\text{hm}^2) = \sum_1^n N_{wd}(\text{gN}/\text{hm}^2) \times 10^{-3}$$

$N_{m,y}$ 表示一月或一年的氮湿沉降量, 即一月或一年内所有次降雨中氮湿沉降量和。

2 结果与讨论

2.1 大气氮干沉降中各活性氮的估算

大气氮干沉降的计算需要大气活性氮浓度和沉降速率计算获得, 本研究选取骆晓声等对华北地区氮沉降研究所发表的该地区沉降速率^[13], 其余形态活性氮月沉降速率如表 1。图 1 显示, 大气 NH_3 、 HNO_3 、 NO_2 、 pNO_3^- 、 pNH_4^+ 的年沉降量分别为 13.26、3.43、15.89、1.16、1.68 $\text{kg N hm}^{-2} \text{a}^{-1}$, 大气氮素干沉降总量为 35.43 $\text{kg N hm}^{-2} \text{a}^{-1}$ 。该值虽低于华北平原的平均值 58 $\text{kg N}/\text{hm}^2$, 但已高于一些地区的监测值, 如乌鲁木齐的干沉降通量为 28.68 $\text{kg N hm}^{-2} \text{a}^{-1}$ ^[14]。从月份看, 除冬季的三个月氮干沉降量较小外, 其它月份氮干沉降的数量差别较小。7 月份氮干沉降总量最大, 主要原因是二氧化氮和氨气的峰值均出现在 7 月。二氧化氮和氨气在干沉降中的比例最大, 其中 4 月到 9 月半年时间二者干沉降量之和占总氮干沉降量的比例大于 50%。另外, 一般典型农区 NH_3 的沉降量大于 NO_2 的, 该试验区的 NO_2 的沉降量略大于 NH_3 的, 且从表 2 的各活性氮月平均浓度与全国其他地区相应值对比来看, 该采样点氮的沉降特征介于农村和城市之间。

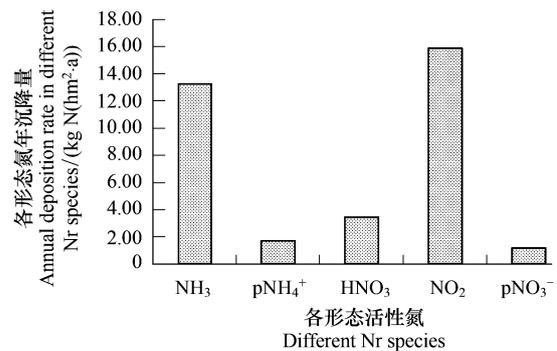


图 1 各形态氮年沉降量

Fig.1 Annual deposition rate in different Nr species ($\text{kg N hm}^{-2} \text{a}^{-1}$)

氮和氨气的峰值均出现在 7 月。二氧化氮和氨气在干沉降中的比例最大, 其中 4 月到 9 月半年时间二者干沉降量之和占总氮干沉降量的比例大于 50%。另外, 一般典型农区 NH_3 的沉降量大于 NO_2 的, 该试验区的 NO_2 的沉降量略大于 NH_3 的, 且从表 2 的各活性氮月平均浓度与全国其他地区相应值对比来看, 该采样点氮的沉降特征介于农村和城市之间。

表 2 古城和全国其他地区的各形态活性氮平均浓度^[15]

Table 2 Average concentration of different Nr species at Gucheng and other areas in China ($\mu\text{g N}/\text{m}^3$)^[15]

区域/各活性氮浓度 / ($\mu\text{g N}/\text{m}^3$) Region/ different Nr species concentration	NH_3	pNH_4^+	HNO_3	pNO_3^-	NO_2
沿海 Coastal area	3.79	4.67	1	2.2	5.06
农村 Rural area	7.93	6.32	1.04	2.11	4.99
郊区 Suburbs	11.28	9.61	1.93	3.4	8.89
城市 City	9.35	9.82	7.79	6.22	13.8
古城 Gucheng	8.08	2.25	1.03	1.55	8.16

2.2 大气湿沉降及其降雨中无机氮浓度变化

湿沉降与降雨密切相关, 不同年份之间差别较大。2010 年 4—12 月, 采样点降雨量共 349.2 mm, 略高于本地区正常的降雨量。夏季(7, 8)月降雨量最多, 达到 195.5 mm, 超过全年降水量的 50%。采样期内, 雨水中 NO_3^- 、 NH_4^+ 和有机氮的平均浓度分别为 1.24、1.27、1.26 $\text{mg N}/\text{L}$ 。降雨中 NO_3^- 和 NH_4^+ 浓度的峰值出现在 5、

6月温度相对高但降雨量比较低的天气条件下。降雨量高时无机氮浓度较低,主要是较高的降雨量对大气中活性氮冲刷以后稀释作用比较明显。大气湿沉降总量为 $12.43 \text{ kg N hm}^{-2} \text{ a}^{-1}$ (图3),其中 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 和 $\text{NO}_3^-\text{-N}$ 及可溶性有机氮(DON)的年沉降量分别为 4.17 、 4.03 、 $4.16 \text{ kg N hm}^{-2} \text{ a}^{-1}$ 。一年中湿沉降主要发生在4到10月份降雨量比较集中的季节,其它月份降水较少可忽略。与国内的一些研究结果相比,本研究大气湿沉降低于华北地平原湿沉降中无机态氮和有机态氮的年通量 $27 \text{ kg N hm}^{-2} \text{ a}^{-1}$ 和 $5 \text{ kg N hm}^{-2} \text{ a}^{-1}$ [16-17],但是降雨中无机氮浓度高于东部及南部的一些研究结果,如广州大气降雨无机氮 $\text{NO}_3^-\text{-N}$ 和 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 的浓度分别为 0.97 和 1.20 mg N/L [18]。统计数字显示,我国南方地区大气氮素混合沉降量在 $6.6\text{--}23.1 \text{ kg N hm}^{-2} \text{ a}^{-1}$ 之间 [19-22],北方地区(华北、东北、西北地区)降雨输入到农田系统中的氮量多数在 $5.1\text{--}25.4 \text{ kg N hm}^{-2} \text{ a}^{-1}$ 之间 [23-27]。根据刘学军等对氮湿沉降等级的划分,本研究区属于低沉降区 ($<15 \text{ kg N hm}^{-2} \text{ a}^{-1}$ [10])。

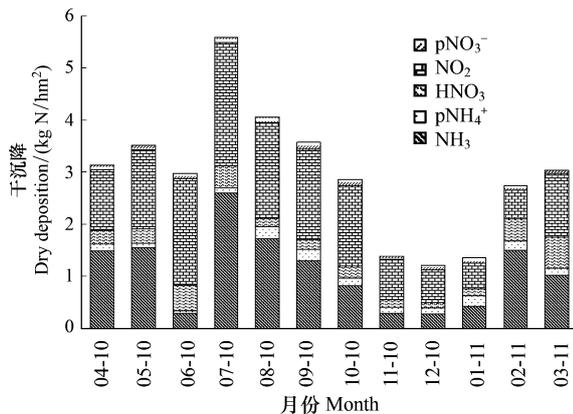


图2 大气氮干沉降月变化

Fig.2 Monthly distribution of dry nitrogen deposition

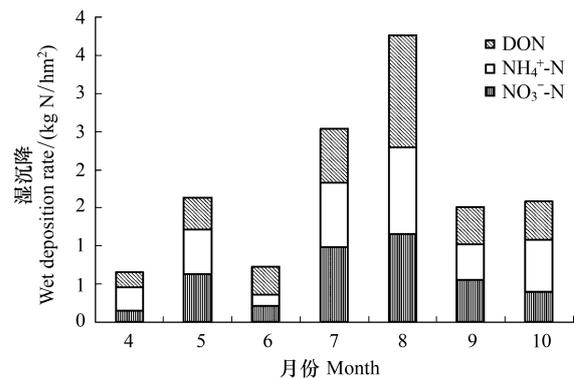


图3 采样点各形态氮月湿沉降量

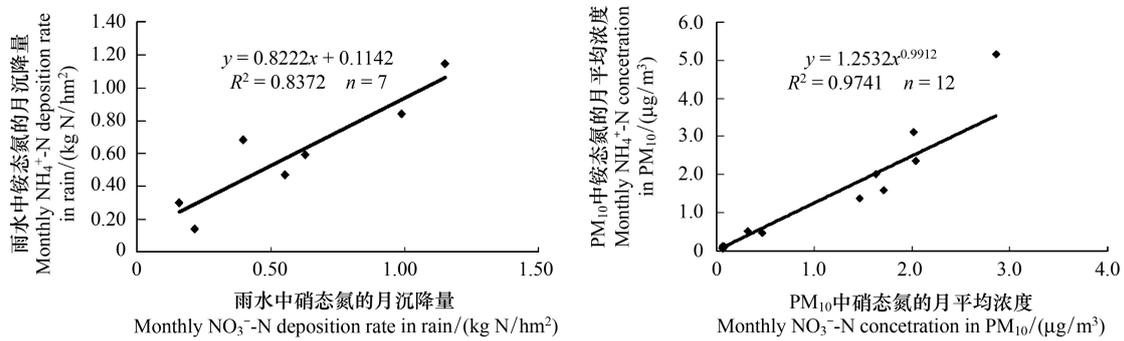
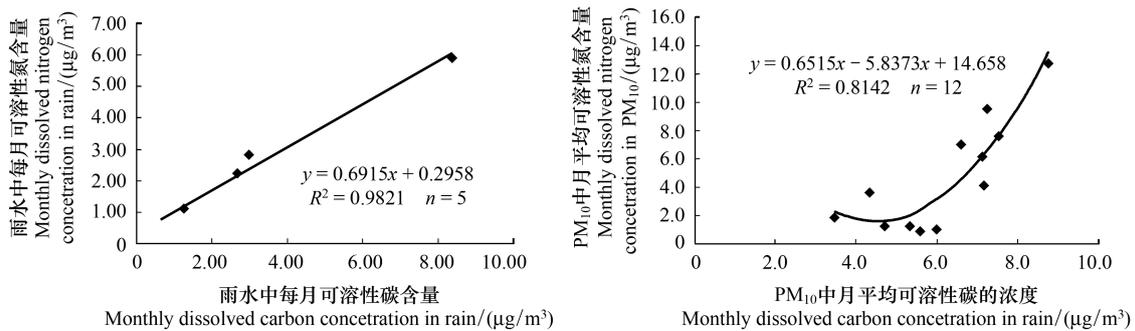
Fig.3 Monthly wet nitrogen deposition rate

2.3 雨水与 PM₁₀ 颗粒物中 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 和 $\text{NO}_3^-\text{-N}$ 相关关系

无机离子在雨水和颗粒物组成中占有重要部分,因此本研究对 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 和 $\text{NO}_3^-\text{-N}$ 两种主要无机离子进行了分析。降雨量的多少影响着 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 和 $\text{NO}_3^-\text{-N}$ 的沉降量,有的研究表明降雨量和 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 或 $\text{NO}_3^-\text{-N}$ 浓度之间是负的指数相关关系 [11],而降雨量和 N 湿沉降输入量之间是乘幂型正相关 [11,28],雨水中 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 和 $\text{NO}_3^-\text{-N}$ 之间是显著的线性正相关 [29]。骆晓声等对沿海六个采样点的研究以及沈健林等对华北六个试验点的结果均表明 PM₁₀ 颗粒物中 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 和 $\text{NO}_3^-\text{-N}$ 之间存在显著或极显著的线性正相关 [31,32],PM_{2.5} 颗粒物中 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 和 $\text{NO}_3^-\text{-N}$ 之间的相关系数达 0.86 [33]。本试验结果(图3)表明雨水(降雨量较多的5个月)中 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 和 $\text{NO}_3^-\text{-N}$ 呈线性正相关,而 PM₁₀ 颗粒物中颗粒态 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 和颗粒态 $\text{NO}_3^-\text{-N}$ 之间是乘幂正相关的关系,且均达到显著相关水平。说明 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 和 $\text{NO}_3^-\text{-N}$ 不论在雨水还是 PM₁₀ 颗粒物中可能以某种结合紧密的化合物形式存在,其他研究中也有相似的结论 [32,33]。

2.4 雨水与 PM₁₀ 颗粒物中可溶性总碳、总氮相关关系

除了 N 和 S,雨水与 PM₁₀ 颗粒物中含的较多的元素是 C,有监测表明每天大气中 PM₁₀ 颗粒物中有机 C 和元素 C 平均浓度分别为 21.2 和 $7.3 \mu\text{gC/m}^3$,且各自对 PM₁₀ 颗粒物的贡献分别为 15% 和 5%,而二次有机碳气溶胶(SOC)对 PM₁₀ 颗粒物贡献高达 53% [34]。本试验前面的结果也显示雨水中可溶性有机氮浓度和沉降量均超过硝态氮和铵态氮的。因此,对 C 和 N 在雨水和 PM₁₀ 颗粒物中的关系进行分析。图4显示,雨水可溶性碳和氮呈显著的线性正相关,PM₁₀ 颗粒物中可溶性碳和氮呈显著的二次多项式正相关,且雨水中 C 和 N 的相关性更高些。由此可知 C 和 N 以某种稳定化合物存在于湿沉降和大气 PM₁₀ 颗粒物中,这种关系便于通过其中之一来推测或估算另一种元素。

图4 雨水与 PM₁₀ 颗粒物所含硝态氮和铵态氮的关系Fig.4 Relationship between NO₃⁻-N and NH₄⁺-N in rain and PM₁₀ particulates图5 雨水与 PM₁₀ 颗粒物可溶性碳和氮的关系Fig.5 Relationship between dissolved carbon and nitrogen in rain and PM₁₀ particulates

3 结语

通过一年时间对朔州地区古城镇大气氮输入的系统研究,该采样点附近虽然有一定规模的畜牧养殖活动,大气 NH₃ 浓度及沉降却并不是很高,可能与该地区的刮风天气较多有关。硝态氮和可溶性有机氮各自在氮干沉降所占比重超过铵态氮,这与以前华北地区的研究结果有较大差异。魏祥等对榆林和洛川农区的研究中湿沉降分别占 95.1% 和 90.4%,干沉降分别占 4.9% 和 9.6%,两个地区氮沉降均以湿沉降为主^[25]。而本研究区作为干旱区,干沉降占主导地位,干沉降量几乎是湿沉降的 3 倍。并且一年内通过大气干、湿沉降输入的总氮达到 47.86 kg N/ha,相当于每公顷投入 120 kg 尿素。另外,本研究大气氮素干沉降速率存在一定的不确定性,需要在今后的工作中加强研究。雨水和 PM₁₀ 颗粒物中硝态氮和铵态氮分别呈线性和乘幂正相关,可溶性碳和氮分别呈线性和二次多项式正相关,这些关系便于通过其中之一来推测或估算另一种离子浓度。有研究已表明,大气氮沉降超过 10 kg N hm⁻² a⁻¹,就会降低森林的物种多样性^[14],而超过 30 kg N hm⁻² a⁻¹会对农田生态系统养分循环产生影响^[12],因此通过大气沉降输入到农田的这部分氮源应该引起足够的重视。

参考文献 (References):

- [1] Galloway J N, Townsend A R, Erisman J W, Bekunda M, Cai Z C, Freney J R, Martinelli L A, Seitzinger S P, Sutton M A. Transformation of the nitrogen cycle: Recent trends, questions, and potential solutions. *Science*, 2008, 320(5878): 889-892.
- [2] Tainio M, Sofiev M, Hujo M, Tuomisto J T, Loh M, Jantunen M J, Karppinen A, Kangas L, Karvosenoja N, Kupiainen K, Porvari P, Kukkonen J. Evaluation of the European population intake fractions for European and Finnish anthropogenic primary fine particulate matter emissions. *Atmospheric Environment*, 2009, 43(19): 3052-3059.
- [3] Stevens C J, Dise N B, Mountford J O, Gowing D J. Impact of nitrogen deposition on the species richness of grasslands. *Science*, 2004, 303(5665): 1876-1879.
- [4] Clark C M, Tilman D. Loss of plant species after chronic low-level nitrogen deposition to prairie grasslands. *Nature*, 2008, 451(7179): 712-715.

- [5] Rattray G, Sievering H. Dry deposition of ammonia, nitric acid, ammonium, and nitrate to alpine tundra at Niwot Ridge, Colorado. *Atmospheric Environment*, 2001, 35(6): 1105-1109.
- [6] Lu X K, Mo J M, Gilliam F S, Zhou G Y, Fang Y T. Effects of experimental nitrogen additions on plant diversity in an old-growth tropical forest. *Global Change Biology*, 2010, 16(10): 2688-2700.
- [7] Bobbink R, Hicks K, Galloway J, Spranger T, Alkemade R, Ashmore M, Bustamante M, Cinderby S, Davidson E, Dentener F, Emmett B, Erismann J W, Fenn M, Gilliam F, Nordin A, Pardo L, De Vries W. Global assessment of nitrogen deposition effects on terrestrial plant diversity: a synthesis. *Ecological Applications*, 2010, 20(1): 30-59.
- [8] Eickenscheidt N, Brumme R, Veldkamp E. Direct contribution of nitrogen deposition to nitrous oxide emissions in a temperate beech and spruce forest - a ¹⁵N tracer study. *Biogeosciences*, 2011, 8(3): 621-635.
- [9] Compton J E, Harrison J A, Dennis R L, Greaver T L, Hill B H, Jordan S J, Walker H, Campbell H V. Ecosystem services altered by human changes in the nitrogen cycle: a new perspective for US decision making. *Ecology Letters*, 2011, 14(8): 804-815.
- [10] Liu X J, Song L, He C E, Zhang F S. Nitrogen deposition as an important nutrient from the environment and its impact on ecosystems in China. *Journal of Arid Land*, 2010, 2(2): 137-143.
- [11] Liu X J, Ju X T, Zhang Y, He C E, Kopsch J, Zhang F S. Nitrogen deposition in agro-ecosystems in the Beijing area. *Agriculture, Ecosystems and Environment*, 2006, 113(1-4): 370-377.
- [12] Chan C K, Yao X H. Air pollution in mega cities in China. *Atmospheric Environment*, 2008, 42(1): 1-42.
- [13] Luo X S, Liu P, Tang A H, Liu J Y, Zong X Y, Zhang Q, Kou C L, Zhang L J, Fowler D, Fangmeier A, Christie P, Zhang F S, Liu X J. An evaluation of atmospheric N_r pollution and deposition in North China after the Beijing Olympics. *Atmospheric Environment*, 2013, 74: 209-216.
- [14] 张伟, 刘学军, 胡玉昆, 李凯辉, 沈健林, 骆晓声, 宋韦. 乌鲁木齐市市区大气氮素干沉降的输入性分析. *干旱区研究*, 2011, 28(4): 710-716.
- [15] 骆晓声. 中国不同地区大气活性氮监测及其干沉降研究[D]. 2013.
- [16] Zhang Y, Liu X J, Fangmeier A, Goulding K T W, Zhang F S. Nitrogen inputs and isotopes in precipitation in the North China Plain. *Atmospheric Environment*, 2008, 42(7): 1436-1448.
- [17] Zhang Y, Zheng L X, Liu X J, Jickells T, Cape J N, Goulding K, Fangmeier A, Zhang F S. Evidence for organic N deposition and its anthropogenic sources in China. *Atmospheric Environment*, 2008, 42(5): 1035-1041.
- [18] Yang R, Hayashi K, Zhu B, Li F Y, Yan X Y. Atmospheric NH₃ and NO₂ concentration and nitrogen deposition in an agricultural catchment of Eastern China. *Science of the Total Environment*, 2010, 408(20): 4624-4632.
- [19] Lu R K, Shi T J. The content of plant nutrients of precipitation in Jinhua district of Zhejiang Province. *Acta Pedologica Sinica*, 1979, 16(1): 81-84.
- [20] Liu C Q, Cao S Q, Chen G A. Contents of nutrient elements in precipitation of Fujian and Yunnan provinces. *Acta Pedologica Sinica*, 1984, 21(4): 438-442.
- [21] Zhang X P, Gong Z T. Geochemistry features of rainwater, surface water and underground water in South regions of China//Special Issue of Soil No. 41, 1987: 169-181.
- [22] Zhu Z L. Nitrogen balance and cycling in agroecosystems of China // Nitrogen in Soils of China. Netherlands: Springer, 1997: 323-338.
- [23] Li S X, Cun D G, Gao Y J, He H X, Li S Q. Mineral nitrogen introduced into soil by precipitation on Loess dryland. *Agricultural Research in the Arid Areas*, 1993, 11(Supplement): 83-91.
- [24] Wu G, Feng Z W, Wang X K, et al. Nitrogen, P and K recyclings in an agro-forestry ecosystem of Huanghuaihai Plain; with Paulownia elongate-intercropped wheat and maize as an example. *Chinese Journal of Applied Ecology*, 1993, 4: 141-145.
- [25] Luo L G, Wen D Z, Shen S M. Nutrient balance in rice field ecosystem of northern China. *Chinese Journal of Applied Ecology*, 1999, 10(3): 301-304.
- [26] Li S Q, Li S X. Nitrogen added to ecosystems by wet deposition in Guanzhong Area in Shaanxi. *Agro-Environmental Protection*, 1999, 18(3): 97-101.
- [27] Shen J L, Tang A H, Liu X J, Fangmeier A, Goulding K T W, Zhang F S. High concentrations and dry deposition of reactive nitrogen species at two sites in the North China Plain. *Environmental Pollution*, 2009, 157(11): 3106-3113.
- [28] 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.
- [29] 魏祥, 同延安, 段敏, 乔丽, 田红卫, 雷小鹰, 马文娟. 陕北典型农区大气干湿氮沉降季节变化. *应用生态学报*, 2010, 21(1): 255-259.
- [30] Cui J, Zhou J, Peng Y, He Y Q, Yang H, Mao J D, Zhang M G, Wang Y H, Wang S W. Atmospheric wet deposition of nitrogen and sulfur in the agroecosystem in developing and developed areas of Southeastern China. *Atmospheric Environment*, 2014, 89: 102-108.
- [31] Luo X S, Tang A H, Shi K, Wu L H, Li W Q, Shi W Q, Shi X K, Erismann J W, Zhang F S, Liu X J. Chinese coastal seas are facing heavy atmospheric nitrogen deposition. *Environmental Research Letters*, 2014, 9(9): 095007.
- [32] Shen J L, Liu X j, Zhang Y, Fangmeier A, Goulding K, Zhang F S. Atmospheric ammonia and particulate ammonium from agricultural sources in the North China Plain. *Atmospheric Environment*, 2011, 45(28): 5033-5041.
- [33] Duan F K, He K B, Ma Y L, Yang F M, Yu X C, Cadle S H, Chan T, Mulaw P A. Concentration and chemical characteristics of PM_{2.5} in Beijing, China: 2001 - 2002. *Science of the Total Environment*, 2006, 355(1/3): 264-275.
- [34] Duan F K, He K B, Ma Y L, Jia Y T, Yang F M, Lei Y, Tanaka S, Okuta T. Characteristics of carbonaceous aerosols in Beijing, China. *Chemosphere*, 2005, 60(3): 355-364.