

DOI: 10.13476/j.cnki.nsbdtqk.2018.0132

赵宪伟, 李橙, 杨晶, 等. 岗南水库上游流域大气氮干湿沉降研究[J]. 南水北调与水利科技, 2018, 16(5): 115-121. ZHAO X W, LI C, YANG J, et al. Dry and wet deposition of nitrogen in the upstream basin of Gangnan Reservoir[J]. South to North Water Transfers and Water Science & Technology, 2018, 16(5): 115-121. (in Chinese)

# 岗南水库上游流域大气氮干湿沉降研究

赵宪伟<sup>1</sup>, 李橙<sup>2,3</sup>, 杨晶<sup>2,3</sup>, 马雄飞<sup>2,3</sup>, 王月锋<sup>2,3</sup>, 吴亦红<sup>2</sup>, 田在锋<sup>2</sup>

(1. 北京师范大学水科学研究院, 北京 100875; 2. 河北省环境科学研究院, 石家庄 050037;  
3. 河北正奇环境科技有限公司, 石家庄 050037)

**摘要:**以岗南水库上游流域为研究对象,在岗南水库及其控制流域设置5个采样点位,分析2015年7月至2016年6月流域大气氮素干、湿沉降通量时空分布特征。结果表明,岗南水库流域总氮干、湿沉降通量范围分别为17.7~134.7 kg/(km<sup>2</sup>·月)和9.9~386.8 kg/(km<sup>2</sup>·月)。大气干沉降以硝态氮和有机氮为主,春、夏季较高;湿沉降中氮素形态以氨态氮和硝态氮为主,夏季最高,春季次高,秋冬季较低。空间分布上,呈现出由西北向东南不断增加的趋势。利用大气氮素总沉降量、流域面积以及水库水面面积计算得到全流域大气总氮沉降入河负荷量为3 674 t/a,直接沉降入库负荷量为105.16 t/a。

**关键词:** 岗南水库; 氮; 干沉降; 湿沉降

中图分类号: X52 文献标志码: A 文章编号: 1672-1683(2018)05-0115-07

## Dry and wet deposition of nitrogen in the upstream basin of Gangnan Reservoir

ZHAO Xianwei<sup>1</sup>, LI Cheng<sup>2,3</sup>, YANG Jing<sup>2,3</sup>, MA Xiongfei<sup>2,3</sup>, WANG Yuefeng<sup>2,3</sup>, WU Yihong<sup>2</sup>, TIAN Zaifeng<sup>2</sup>

(1. College of Water Sciences, Beijing Normal University, Beijing 100875, China;

2. Hebei Academy of Environmental Sciences, Shijiazhuang 050037, China;

3. Zhengqi Environmental Technology Co Ltd of Hebei, Shijiazhuang 050037, China)

**Abstract:** In this study, we chose five sampling points in Gangnan reservoir basin to monitor nitrogen depositions. We analyzed the spatial and temporal distribution characteristics of dry and wet deposition fluxes of atmospheric nitrogen from July 2015 to June 2016. The results showed that dry and wet deposition fluxes of total nitrogen were 17.7-134.7 kg/(km<sup>2</sup>·month) and 9.9-386.8 kg/(km<sup>2</sup>·month) respectively. The nitrate and organic nitrogen were the dominant contributors to atmospheric dry deposition flux. Their amount was higher in spring and summer. The nitrogen forms in wet deposition were mainly ammonia nitrogen and nitrate nitrogen, the amount of which was higher in summer and spring and lower in fall and winter. In terms of spatial distribution, there was an increasing trend from the northwest to the southeast. Based on the total amount of atmospheric nitrogen deposition, watershed area, and reservoir surface area, we calculated the total atmospheric nitrogen deposition into river for the whole basin, which was 3 674 t/a. The direct nitrogen deposition into the Gangnan reservoir was 105.16 t/a.

**Key words:** Gangnan Reservoir; nitrogen; dry deposition; wet deposition

氮素循环是自然界中重要的物质循环之一, 20世纪以来, 全球人口迅速增长, 过量施用合成化肥以

及畜禽养殖的发展, 使得地球生态系统氮负荷超载, 大气中含氮物质的浓度快速增加, 最终过量的氮通

收稿日期: 2018-01-08 修回日期: 2018-08-06 网络出版时间: 2018-08-19

网络出版地址: <http://kns.cnki.net/kcms/detail/13.1334.TV.20180816.1821.002.html>

作者简介: 赵宪伟(1974), 男, 河北保定人, 博士(后), 主要从事水污染防治和水资源保护方面研究。E-mail: zhaoxianwei2005@163.com

通讯作者: 李橙(1985), 女, 河北石家庄人, 工程师, 主要从事水环境污染治理与修复方面研究。E-mail: licheng20121122@163.com

过大气沉降进入水体和土壤。研究表明, 55% ~ 60% 的人为活性氮以  $\text{NO}_x$  和  $\text{NH}_3$  这两种形式释放到大气中, 其中 70% ~ 80% 的成分继而又以大气干、湿沉降的方式返回到陆地系统和水体<sup>[1,2]</sup>。过量的氮沉降会引发土壤酸化、水生态系统富营养化等负面效应<sup>[3,4]</sup>。发达国家开展天气沉降的研究较早, 目前主要集中在网络化、系统化方向, 应用模型模拟不同生态系统的氮沉降量和沉降负荷<sup>[5]</sup>。中国氮沉降研究起步于 20 世纪 70 年代<sup>[6]</sup>。近些年的研究主要集中在不同生态系统大气氮素沉降的时空分布规律及影响方面<sup>[7-10]</sup>。研究表明, 华北平原属于高氮沉降区, 干沉降是该地区大气氮素沉降的主要部分<sup>[11]</sup>。河北平原城市近郊农田大气氮沉降量受周边地区工业与当地农田施氮量共同影响且由干湿沉降共同决定<sup>[12]</sup>。太原市旱作农区不同年份间总沉降数量较高, 远超出氮沉降对陆地生态系统影响警戒线<sup>[13]</sup>。另外, 大气氮素干湿沉降对区域水体的氮贡献也不可忽视, 在部分地区已成为水体重要污染源。杨龙元等<sup>[14]</sup>研究结果表明, 大气 TN 的年沉降负荷占入湖河流等点污染源输入氮总负荷的 48.8%, 以湿沉降为主。太湖北部梅梁湾区域大气氮素年沉降量高达 6 958 t, 远超过太湖湖泊生态系统理论允许的总氮年沉降量<sup>[15]</sup>。

岗南水库为石家庄市的水源地, 属海河流域子牙河水系。多年环境监测数据显示, 岗南水库上游流域和岗南水库库区水体总氮含量超过应执行的《地表水环境质量标准》(GB 3838-2002) Ⅲ类标准要求。作为地表水体氮素输入源之一, 大气氮素干、湿沉降对本流域水系生态影响的研究尚未开展。因此, 本文研究目标为: (1) 通过 2015-2016 年对岗南水库流域内 5 个站点的大气氮干湿沉降的实地观测, 揭示大气氮干湿沉降时空分布特征; (2) 定量估算岗南水库流域大气氮干湿沉降通量, 为预测干湿沉降对水库等淡水生态系统的影响提供基础数据。

## 1 流域概况

岗南水库上游流域面积 15 900  $\text{km}^2$ , 山区面积约占流域面积的 66%。流域内主要有山西省的繁峙、代县、原平、忻州、定襄、五台、盂县及河北省的平山等 8 县(市), 人口约有 210 多万人。流域地处半湿润半干旱地区, 多年平均降雨量 485 mm, 且 80% 以上集中在汛期 6 月-9 月。岗南水库上游流域横跨河北和山西两个重要的煤炭能源基地, 其对大气中  $\text{SO}_2$ 、 $\text{NO}_x$  的排放及空气污染的形成均有重要的贡献<sup>[16]</sup>。流域内耕地面积占总土地面积的 40%, 且化肥施用量大, 研究表明<sup>[17]</sup>, 化肥的挥发是影响大气沉降污染成分占比的重要因素之一。同时, 近年来京津冀范围内灰霾频发, 大气中活性氮含量增加, 势必会对流域内大气氮素的沉降情况带来影响。

## 2 材料与方法

### 2.1 采样点的布设

为了全面了解流域内大气氮干湿沉降时空特征, 并合理估算大气氮干湿沉降通量, 结合流域地形地貌、水系特征, 人类活动及采样便利性等因素, 兼顾空间位置 and 不同经济发展类型, 在岗南水库流域选择 5 个具有代表性的县城或乡镇作为采样点(见图 1 和表 1)。

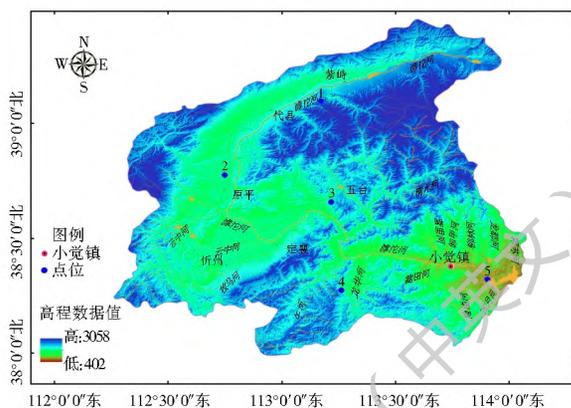


图 1 大气干湿沉降采样点位

Fig. 1 Sampling locations of dry and wet deposition in Gangnan reservoir basin

表 1 大气干湿沉降采样点特征

Tab. 1 Characteristics of sampling locations

采样点	点位代码	采样时间(年-月)	采样点位置	周围环境(5 km)描述
1 代县 DX	点位 1	2015 7- 2016 7	乡村	滹沱河源头, 南北东三面环山, 无化工厂
2 原平 YP	点位 2	2015 7- 2016 7	城市	平原, 地势平坦, 风量, 无化工厂
3 耿镇 GZ	点位 3	2015 7- 2016 7	乡村	流域中心, 清水河发源地, 山区, 无化工厂
4 盂县 YX	点位 4	2015 7- 2016 7	乡村	流域南部, 农业生产区, 无化工厂
5 下槐 XH	点位 5	2015 7- 2016 7	远郊	岗南水库库区, 交通要塞, 无化工厂

注: 参照《环境空气降尘的测定(重量法)》(GB/T 15265-94)和《大气降水样品的采集与保存》(GB 13580 2-92)<sup>[18-19]</sup> 两项国家大气环境监测标准。采样设备需要布设在远离局部污染源, 四周无遮挡雨、雪的高大树木或建筑物上, 本研究中采样设备全部被安置于距地面 3 m 左右房顶。

## 2.2 样品的收集与测试

样品采集: 借鉴已有研究的样品收集方法<sup>[20-21]</sup>, 参照国家大气环境监测规范, 所有干湿沉降样品由全自动干湿沉降采样仪(APS-3A, 长沙湘蓝科学仪器有限公司)进行收集。仪器分湿沉降采样通道和干沉降采样缸两个部分, 降雨开始 10 s 内干沉降采集自动停止, 封盖, 雨停 5 min 后自动开始。干沉降桶中铺 PUF 膜, 以其代表面采集样品; 雨水样收集于高密度聚乙烯塑料瓶, 在仪器自带冰箱中低温保存。采样频率以一个月为周期, PUF 膜用洁净的聚乙烯塑料袋包装, 密封, 标号, 带回实验室后室温下自然风干, 随后放入恒温恒湿器中干燥后冷冻保存。

干沉降样品处理过程: 首先将 PUF 膜分成 10~20 等份, 从中选取一定量的样品膜, 浸泡后用 Milli-Q 水超声波提取 1 h, 将提取液用 0.45 μm 的醋酸纤维膜进行过滤, 使用连续流动分析仪(德国 Seal AA3)测定滤液中的总氮、氨氮、硝态氮、亚硝态氮。

湿沉降样品处理过程: 样品用 0.45 μm 的醋酸纤维膜进行过滤后, 先测定 pH 值, 然后利用连续流动分析仪(德国 Seal AA3)测定溶解性营养盐浓度, 包括总氮、氨氮、硝态氮、亚硝态氮。

## 2.3 数据分析方法

根据 2015 年 7 月到 2016 年 5 月对各个站点采集干湿沉降样品实验测试所得数据, 利用公式(1)和(2)计算, 得出流域大气氮干湿沉降通量。前期运用 Excel 进行采样记录和实验室原始测试数据的统计, 数据处理采用 SPSS 软件进行平均值和方差分析等, 最终时间和空间层面的数据比较和展示采用 Origin 8.5 和 ArcGIS。

干沉降通量计算见公式(1):

$$F_d = \frac{C \times V}{f \times S} \quad (1)$$

式中:  $F_d$  为大气氮沉降通量( $\text{kg}/(\text{km}^2 \cdot \text{月})$ );  $C$  为试验中所测得氮组分浓度( $\text{mg}/\text{L}$ );  $V$  为提取液的体积( $\text{L}$ );  $S$  为 PUF 膜的面积( $0.015 \text{ m}^2$ );  $f$  为采样时间系数(每月)。

湿沉降通量计算见公式(2):

$$F_w = H \sum_{i=1}^n h_i c_i / \sum_{i=1}^n h_i \quad (2)$$

式中:  $F_w$  为大气湿沉降通量( $\text{kg}/(\text{km}^2 \cdot \text{月})$ );  $c_i$  为当月第  $i$  次湿沉降样品的氮组分浓度( $\text{mg}/\text{L}$ );  $h_i$  为第  $i$  次湿沉降采样时的降雨量( $\text{mm}$ );  $H$  为湿沉降采样当月的总降雨量( $\text{mm}$ )。

总沉降通量计算见公式(3):

$$F_T = F_d + F_w \quad (3)$$

式中:  $F_T$  为大气总沉降通量( $\text{kg}/(\text{km}^2 \cdot \text{月})$ )。

## 3 结果与讨论

### 3.1 大气总氮干、湿沉降通量

根据 5 个采样点 11 个月总氮干、湿沉降监测分析, 得到流域总氮沉降通量统计结果(见表 2)。干沉降通量范围为 17.7~134.7  $\text{kg}/(\text{km}^2 \cdot \text{月})$ , 平均值为 65.6  $\text{kg}/(\text{km}^2 \cdot \text{月})$ 。湿沉降通量范围 9.9~386.8  $\text{kg}/(\text{km}^2 \cdot \text{月})$ , 平均值为 127.0  $\text{kg}/(\text{km}^2 \cdot \text{月})$ 。各月大气总氮干沉降通量变异系数为 0.38, 湿沉降通量变异系数为 0.81。由此可见, 大气总氮湿沉降受年内降水分配不均匀影响, 变异特征较为显著。与我国其他区域对比, 岗南水库流域大气氮干、湿沉降通量均高于福建九龙江流域<sup>[22-23]</sup>结果。虽然不同的研究方法和测定方案对数据的可比性有一定影响, 但是本研究结果足以说明岗南水库流域的大气氮沉降量非常可观, 由此引起的生态环境效应问题不容小觑。

表 2 大气氮干湿沉降通量和总沉降通量统计结果

月份	总氮通量 $\text{kg}/(\text{km}^2 \cdot \text{月})$		
	干沉降	湿沉降	总沉降
最大值	134.7	386.8	465.5
最小值	17.7	9.9	25.1
平均值	65.6	127.0	163.6
标准差	25.1	103.1	116.3
变异系数	0.38	0.81	0.71

### 3.2 大气总氮干、湿沉降通量变化特征

#### 3.2.1 总氮沉降时间变化趋势

岗南水库流域大气氮干、湿沉降通量随时间变化曲线见图 2, 其中 2016 年 1 月、2 月降雨量极少, 因此无湿沉降数据。从图中可以看出, 春(2 月-5 月)、夏(6 月-9 月)两季总氮沉降通量偏高, 秋(10 月-12 月)冬(12 月-次年 2 月)两季沉降通量偏低。存在的原因有: (1) 研究流域降雨量年内极不均匀, 年降水 70%~80% 集中在汛期(春、夏两季), 多以暴雨形式出现<sup>[24]</sup>, 暴雨有利于大气氮沉降进入土壤或水体, 导致氮沉降量偏大; (2) 采样点多分布于农村, 春、夏两季含氮化肥、农药的使用量增高; (3) 由于受到春夏两季高温的影响, 畜禽粪便中氮素容易挥发, 上述原因均会导致大气中氨氮升高, 进而影响大气中氮素沉降量<sup>[25-26]</sup>。

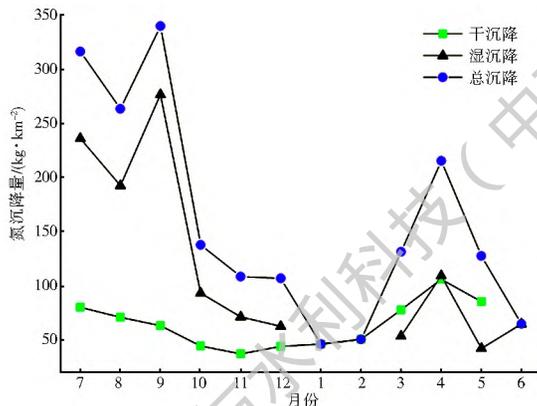


图 2 总氮干沉降通量季节变化趋势

Fig. 2 Seasonal variation trends of atmospheric nitrogen deposition

从逐月大气总氮干、湿沉降通量比例关系可以看出(图 3), 春季大气总氮沉降以干沉降为主, 占总沉降通量的 49.23% ~ 100%; 夏、秋两季主要为湿沉降, 占总沉降通量的 58.71% ~ 81.39%。春季风沙天气较多且湿度小, 干沉降偏高; 夏秋两季降雨量较大, 湿沉降量也较多, 说明干湿程度直接决定干湿沉降量比例。

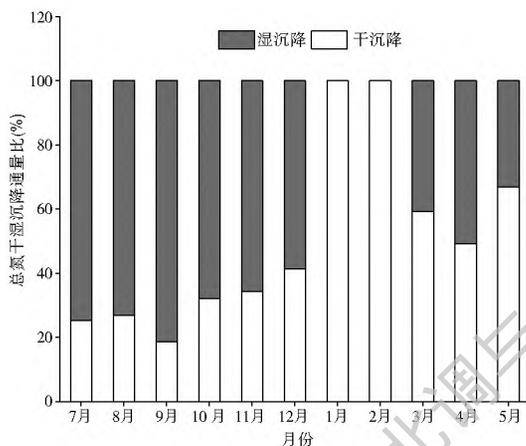


图 3 大气总氮干、湿沉降通量比例

Fig. 3 Ratio of dry and wet deposition of atmospheric nitrogen

### 3.2.2 总氮沉降空间变化趋势

研究区总氮干、湿沉降通量空间变化见图 4。可以看出无论干沉降还是湿沉降, 其氮输入量均呈现出由西北向东南不断增加的趋势。总体反映出农业生产区(化肥施用强度大)、交通要塞, 氮挥发强烈, 因此氮沉降量较大的规律。干、湿沉降量最高值均出现在下槐镇(点位 5), 分析其原因有以下几种。(1) 从表 3 可以看出, 下槐镇降尘量和降雨量均处于较高水平。降尘量和降雨量直接决定干、湿沉降量。(2) 与其他点位相比, 此地地势开阔, 海拔较低, 气象扩散条件较差, 利于颗粒沉降。(3) 从图 4 可以看出, 该点位干沉降中硝酸盐氮占比也明显高于其他采样点, 硝酸盐氮是汽车尾气的主要成分, 该区域位于交通枢纽, 是连接河北和山西两省的运煤要道, 运输车辆尾气排放及运输过程中煤粉产生大量扬尘, 导致该点位大气氮沉降量较大。

表 3 大气降尘量和降雨量统计

Tab. 3 The amounts of atmospheric dustfall and rainfall

点位	降尘量/(万 kg·km <sup>2</sup> )	降雨量/mm
原平	1.05	257
代县	1.33	237
下槐	1.50	375
孟县	0.74	394
耿镇	0.83	369

注: 降尘量为 11 个月的降尘量之和; 降雨量为 11 个月的降雨量之和。

### 3.3 大气干、湿沉降中氮素形态及来源分析

#### 3.3.1 氮素各成分比例变化趋势

干沉降中不同形态氮素组分占比见图 5。研究区干沉降中氨态氮平均占总氮比例的 23%, 硝态氮

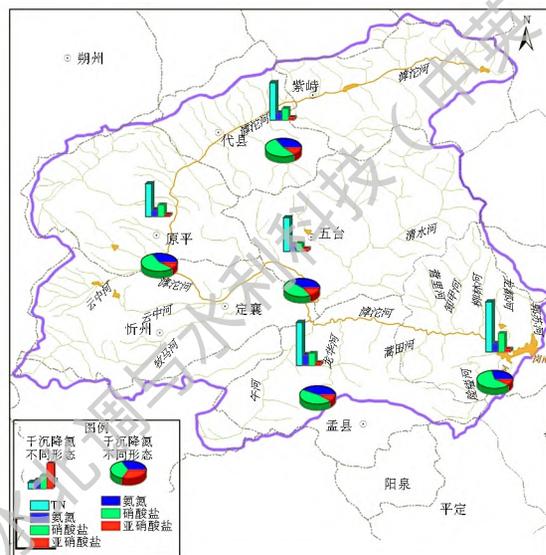
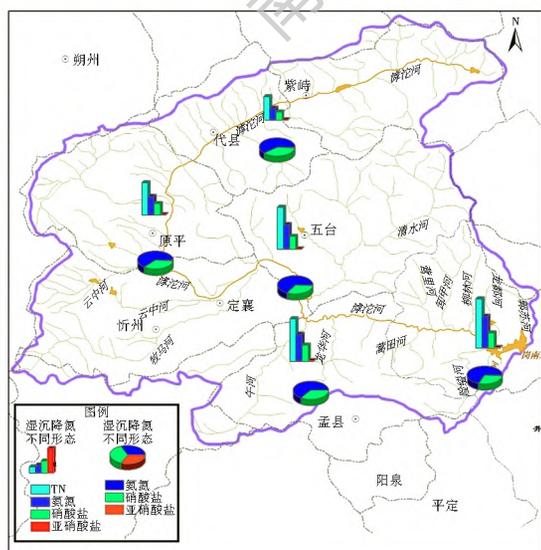


图 4 大气总氮干、湿沉降通量空间变化及氮素形态比例

Fig. 4 Spatial variation of dry and wet deposition of atmospheric nitrogen and proportion of nitrogen forms

平均占总氮的 31.26%, 有机氮平均占 38.1%, 区域氮素干沉降以硝态氮和有机氮为主。

湿沉降中氨态氮平均占总氮为 56.33%, 硝态氮

平均占总氮的 36.52%, 均大于干沉降比例, 而有机氮含量比例大幅度下降, 平均仅占 5.98%。因此, 研究区湿沉降氮素形态比例以氨态氮和硝态氮为主。

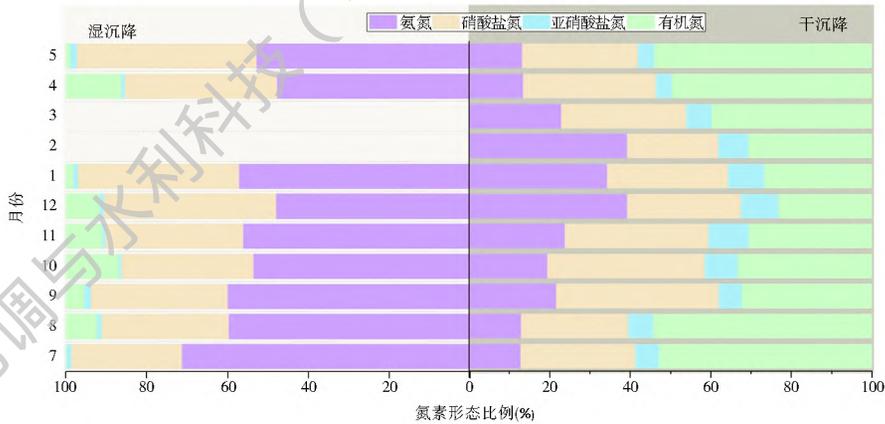


图 5 大气干、湿沉降中氮素形态比例

Fig.5 Proportion of nitrogen forms in dry and wet deposition

### 3.3.2 氮素形态组成季节变化趋势

不同形态氮素干、湿沉降通量也表现出一定的时间分布差异(见图 6)。其中氨态氮、硝态氮和有机氮干沉降平均通量分别为 13.39 kg/(km<sup>2</sup>·月)、19.97 kg/(km<sup>2</sup>·月)、26.88 kg/(km<sup>2</sup>·月)。夏季(7月-9月)各组分干沉降量呈现下降趋势, 这源自夏季多雨, 空气中颗粒物含量减少。10月以后各组分干沉降量继续下降, 至 11 月氨态氮和硝态氮达到最低值, 12 月-次年 2 月有缓慢增加的趋势, 而有机氮沉降量继续保持下降。这是由于本文研究区域处于农业生产活跃区, 大气中有机氮主要以还原态形式存在<sup>[24]</sup>, 存留时间短, 在冬季条件下易被氧化为氨态氮和硝态氮; 另外由于北方冬季燃煤取暖也会导致大气沉降中硝态氮含量的增加。3 月-5 月所有组分均呈现增加趋势, 有机氮增量明显, 可能与

研究区域靠近内蒙, 春季大风天气引起的土壤再悬浮也可以将其中所含的腐殖质和细菌等带入大气造成了所采集的沙尘气溶胶中有机氮的浓度增高。氨态氮主要来源于土壤中施用的有机氮肥和无机氮肥的铵释放。

氨态氮、硝态氮和有机氮湿沉降平均通量分别为 71.71 kg/(km<sup>2</sup>·月)、40.43 kg/(km<sup>2</sup>·月)、6.80 kg/(km<sup>2</sup>·月)。7 月-9 月气温较高加速畜禽粪便氨挥发, 进入大气, 随后在强降雨作用下沉降 to 地面, 导致氨态氮、硝态氮湿沉降量达到最大值, 之后逐渐下降至秋季最小。进入春季后, 由于农业活动频繁, 沉降量又有所回升。因此, 岗南水库上游流域氨态氮、硝态氮和有机氮的大气湿沉降通量在夏季最高, 春季次高, 秋冬季较低, 主要是受到区域气候特点和农业活动的影响。

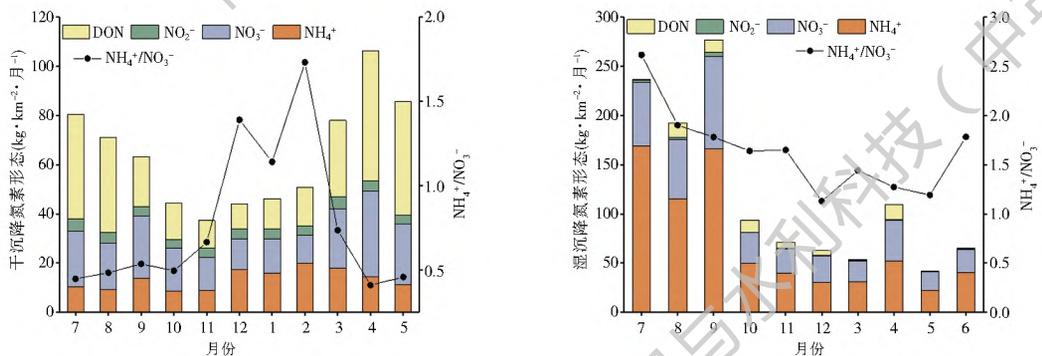


图 6 大气干、湿沉降中不同形态氮素季节变化趋势

Fig.6 Seasonal variation trends of different nitrogen forms in dry and wet deposition

### 3.4 大气总氮干、湿沉降对岗南水库流域及库区氮负荷贡献

通过岗南水库上游流域大气总氮干、湿年均沉降通量 65.6 kg/(km<sup>2</sup>·月) 和 127.0 kg/(km<sup>2</sup>·月)

以及流域面积 15 900 km<sup>2</sup>, 计算获得研究区大气总氮总沉降量。相关研究表明, 大气氮素中只有约 11%~12% 沉降到水体中<sup>[26,27]</sup>, 岗南水库上游流域位于山区, 植被覆盖良好, 因此确定本研究流域大气

氮素入河量占总沉降量的 10%，计算确定全流域 2015 年 7 月–2016 年 6 月大气总氮沉降入河量为 3 674 t/a。采用研究区下游下槐镇(点位 5)总氮沉降结果,结合岗南水库水面面积<sup>[26]</sup>,估算大气总氮通过直接沉降入库污染负荷量为 105.16 t/a。

## 4 结论

(1) 受半湿润半干旱地区气候特征影响,研究区内大气总氮干沉降通量范围为 17.7~134.7 kg/(km<sup>2</sup>·月)、总氮湿沉降通量范围 9.9~386.8 kg/(km<sup>2</sup>·月)。全流域在监测时间段内大气总氮沉降入河负荷量为 3 674 t/a,大气总氮通过直接沉降入库负荷量约为 105 t/a。

(2) 大气总氮沉降时空变异特征较为显著,主要是受年内降水分不均的影响。1 月–5 月大气总氮总沉降通量以干沉降为主,7 月–12 月大气总氮沉降以湿沉降为主,符合流域半湿润半干旱气候特点。在空间上,大气总氮干、湿沉降通量最高值均出现在下槐镇(点位 5),分别为 81.55 kg/km<sup>2</sup> 和 164.68 kg/km<sup>2</sup>。

(3) 流域大气干沉降以硝态氮和有机氮为主,湿沉降氮素形态以氨态氮和硝态氮为主,且均大于干沉降比例。从总体来看,研究区大气氮干、湿沉降量比较可观,由此引起的生态环境效应问题不容忽视。

受经费及大气沉降样品收集较为困难的限制,本文仅在流域内选择有限的 5 个采样点进行监测,加之大气氮沉降过程会受到大气物理、化学、生物、生态等多种因素的综合影响,使本研究在探讨大气氮干湿沉降空间分布特征和估算流域总沉降量时受到一定限制,不能对造成大气氮干湿沉降时空差异的影响因素进行深入的探讨。但是,本研究仍可为进一步深入开展小流域及水库大气氮沉降及其生态环境效应研究奠定基础。

### 参考文献(References):

[1] GALLOWAY J N, DENTENER F J, CAPONE D G, et al. Nitrogen cycles: past, present, and future[J]. *Biogeochemistry*, 2004, 70(2): 153–226. DOI: 10.1007/S.10533-004-0370-0.

[2] 谢迎新,张淑利,冯伟等.大气氮素沉降研究进展[J].*中国生态农业学报*, 2010, 18(4): 897–904. (XIE Y X, ZHANG S L, FENG W, et al. Review of atmospheric nitrogen deposition research[J]. *Chinese Journal of Eco Agriculture*, 2010, 18(4): 897–904. (in Chinese)) DOI: 10.3724/SP. J. 1011. 2010. 00897.

[3] STEVENS C J, DISE N B, MOUNTFORD J O, et al. Impact of nitrogen deposition on the species richness of grasslands[J]. *Science*, 2004, 303(5665): 1876–1879. DOI: 10.1126/science.

1094678.

[4] LIU X J, ZHANG Y, HAN W X, et al. Enhanced nitrogen deposition over China[J]. *Nature*, 2013, 494(7438): 459–462. DOI: 10.1038/nature11917.

[5] HELLSTEN S, DRAGOSITS U, PLACE C J, et al. Modelling the spatial distribution of ammonia emissions in the UK[J]. *Environmental Pollution*, 2008, 154(3): 370–379. DOI: 10.1016/s0269-7491(04)00104-6.

[6] 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 Y. The content of plant nutrients of precipitation in Jinhua District of Zhejiang Province[J]. *Acta Pedologica Sinica*, 1979, 16(1): 81–84. (in Chinese))

[7] 晏维金,章申,王嘉慧.长江流域氮的生物地球化学循环及其对输送无机氮的影响[J].*地理学报*, 2001, 56(5): 505–514. (YAN W J, ZHANG S, WANG J H, et al. Nitrogen biogeochemical cycling in the Changjiang Drainage Basin and its effect on Changjiang River dissolved inorganic nitrogen[J]. *Acta Geographica Sinica*, 2001, 56(5): 505–514. (in Chinese))

[8] 樊建凌,胡正义,庄舜尧,等.林地大气氮沉降的观测研究[J].*中国环境科学*, 2007, 27(1): 7–9. (FAN J L, HU Z Y, ZHUANG S Y, et al. Observation of atmospheric nitrogen deposition into forestland[J]. *China Environmental Science*, 2007, 27(1): 7–9. (in Chinese)) DOI: 10.3321/j.issn:1006-6923.2007.01.003.

[9] 王茜,王雪梅,林文实,等.鼎湖山无机氮湿沉降来源研究[J].*环境科学研究*, 2008, 21(6): 156–160. (WANG Q, WANG X M, LIN W S, et al. Study on sources of inorganic nitrogen in wet deposition in Dinghushan Mountain[J]. *Research of Environmental Sciences*, 2008, 21(6): 156–160. (in Chinese)) DOI: 10.13198/j.res.2008.06.158.wangx.035.

[10] ZHANG Y, DORE A, et al. Agricultural ammonia emissions inventory and spatial distribution in the North China Plain[J]. *Environmental pollution*, 2010, 158(2): 490–501. <https://doi.org/10.1016/j.envpol.2009.08.033>.

[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 FU S, et al. Spatial and temporal variation of atmospheric nitrogen deposition in North China Plain[J]. *Acta Ecologica Sinica*, 2006, 26(6): 1633–1639. (in Chinese)) DOI: 10.3321/j.issn:1000-0933.2006.06.001.

[12] 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, 04(50), 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, 04(50), 698–710. (in Chinese)) DOI: 10.3864/j.issn.0578-1752.2017.04.010.

[13] 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. (in Chi

- nese)) DOI: 10.13930/j.cnki.cjea.161024.
- [14] 杨龙元, 秦伯强, 胡维平, 等. 太湖大气氮、磷营养元素干湿沉降率研究. 海洋与湖沼[J]. 2007, 38(2): 104-110. (YANG L Y, QIN B Q, HU W P, et al. The atmospheric deposition of nitrogen and phosphorus nutrients in Taihu lake. *Oceanologia et Limnologia Sinica*[J]. 2007, 38(2): 104-110. (in Chinese)) DOI: 10.3321/j.issn:0029-814X.2007.02.002.
- [15] 翟水晶, 杨龙元, 胡维平, 等. 太湖北部藻类生长旺盛期大气氮、磷沉降特征. 环境污染与防治[J]. 2009, 31(4): 5-10. (ZHAI SJ, YANG L Y, HU W P, et al. Atmospheric nitrogen and phosphorus deposition during optimal algal growth period in northern Lake Taihu. *Environmental Pollution & Control* [J]. 2009, 31(4): 5-10. (in Chinese)) DOI: 10.15985/j.cnki.1001-3865.2009.04.005.
- [16] CHAN C K, YAQ X H. Air pollution in mega cities in China [J]. *Atmospheric Environment*, 2008, 42(1): 142. DOI: 10.1016/j.atmosenv.2007.09.003.
- [17] 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. The environmental effects of gaseous losses of nitrogen in farmland and atmospheric nitrogen wet deposition[J]. *Soil*. 2005, 37(2): 113-120.
- [18] GB/T 15265-94. 环境空气降尘的测定(重量法)[S]. (GB/T 15265-94. Determination of Ambient air Dustfall (gravimetric method)[S]. (in Chinese))
- [19] GB 13580.2-92. 大气降水样品的采集与保存[S]. GB13580.2-92. Precipitation Samples Collection and Preservation[S]. (in Chinese)
- [20] 潘月鹏, 王跃思, 杨勇杰, 等. 区域大气颗粒物干沉降采集及金属元素分析方法[J]. 环境科学, 2010, 31(3): 553-559. (PAN Y P, WANG Y S, YANG Y J, et al. Determination of trace metals in atmospheric dry deposition with a heavy matrix of puf by inductively coupled plasma mass spectroscopy after microwave digestion[J]. *Environmental Science*, 2010, 31(3): 553-559. (in Chinese)) DOI: 10.13227/j.hjxx.2010.03.012.
- [21] PAN Y P, WANG Y S, et al. (2012) Wet and dry deposition of atmospheric nitrogen at ten sites in Northern China. *atmospheric chemistry and physics* 12, 6515-6535. DOI: 10.5194/acpd-12-753-2012.
- [22] 陈能汪, 洪华生, 等. 九龙江流域大气氮干沉降[J]. 生态学报. 2006, 26(8): 2602-2607. (CHEN Neng wang, HONG Huar sheng, et al. Dry deposition of atmospheric nitrogen to Jiulong River watershed in southeast China[J]. *Acta Ecologica Sinica*, 2006, 26(8): 2602-2607. (in Chinese)) DOI: 10.3321/j.issn:1000-0933.2006.08.024.
- [23] 陈能汪, 洪华生, 肖建, 等. 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, XIAO J, et al. Wet deposition of atmospheric nitrogen in Jiulong River Watershed[J]. *Environmental Science*, 2008, 29(1): 38-46. (in Chinese)) DOI: 10.13227/j.hjxx.2008.01.035.
- [24] 郑利霞, 刘学军, 张福锁, 等. 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, et al. Atmospheric deposition of organic nitrogen: a review[J]. *Acta Ecologica Sinica*, 2007, 27(9): 3828-3834. (in Chinese)) DOI: 10.3321/j.issn:1000-0933.2007.09.034.
- [25] CLARK H, KREMER J N. Estimating direct and episodic atmospheric nitrogen deposition to a coastal waterbody[J]. *Marine Environmental Research*, 2005, 59(4): 349. DOI: 10.1016/j.marenvres.2004.06.001.
- [26] MESSAGER M L, LEHNER B, GRILL G, et al. Estimating the volume and age of water stored in global lakes using a geostatistical approach[J]. *Nature Communications*, 2016, 7: 13603. DOI: 10.1038/ncomms13603.
- [27] PAERL H W, DENNIS R L, WHITALL D R, et al. Atmospheric deposition of nitrogen: Implications for nutrient over enrichment of coastal waters[J]. *Estuaries*, 2002, 25(4): 677-693. DOI: 10.1007/bf02804899.

(上接第107页)

- [21] 田宇, 周兰, 吴燕. 改良 Fenton 体系对疏浚底泥脱水性能的影响[J]. 南水北调与水利科技, 2015, 13(3): 502-505, 567. (TIAN Y, ZHOU L, WU Y. Effect of improved Fenton system on dredged sludge dehydration[J]. *South to North Water Transfer and Water Science & Technology*, 2015, 13(03): 502-505, 567 (in Chinese)) DOI: 10.13476/j.cnki.nsbdkq.2015.03.022.
- [22] 吴桐. 电动修复铬污染高岭土及铬渣污染土试验研究[D]. 北京: 中国地质大学(北京), 2013. (WU T. Study of electrokinetic remediation of soils of Kaolin and chromium contaminated sites[D]. Beijing: China University of Geosciences (Beijing), 2016 (in Chinese))
- [23] WANG J, HU H, GUAN W, et al. Electrokinetic experimental study on saturated rock samples: zeta potential and surface conductance[J]. *Geophysical Journal International*, 2015, 201(2): 869-877.
- [24] 马晋, 罗海宁, 付融冰, 等. 可渗透反应复合电极法对土壤重金属的电动去除[J]. 环境污染与防治, 2012, 34(5): 17-23. (MA J, LUO H N, FU R B, et al. Electrokinetic removal of heavy metal in contaminated soil using permeable reactive composite electrodes[J]. *Environmental Pollution & Control*, 2012, 34(5): 17-23. (in Chinese)) DOI: 10.15985/j.cnki.1001-3865.2012.05.010.
- [25] 博克里斯, 德拉齐克. 电化学科学[M]. 北京: 人民教育出版社, 1980. (BOCRIS J O' M, DRAZIC D M. *Electrochemical Science* [M]. People's Education Press, 1980. 55, 61-79 (in Chinese))
- [26] 巴德, 福克纳. 电化学方法[M]. 北京: 化学工业出版社, 1986. (BARD A J, FAULKNER L R. *Electrochemical Methods* [M]. Chemical Industry Press, 1986. 9-11 (in Chinese))