

田 帅,单旭东,程启鹏,等. 巢湖流域典型稻麦轮作区大气氮磷沉降及对巢湖影响的分析[J].江苏农业学报,2022,38(4):958-966.  
doi:10.3969/j.issn.1000-4440.2022.04.012

## 巢湖流域典型稻麦轮作区大气氮磷沉降及对巢湖影响的分析

田 帅<sup>1</sup>, 单旭东<sup>1</sup>, 程启鹏<sup>1</sup>, 徐 刚<sup>1</sup>, 郅红建<sup>1</sup>, 华 胜<sup>2</sup>, 高时凤<sup>3</sup>

(1.安徽农业大学资源与环境学院/农田生态保育与污染防治安徽省重点实验室,安徽 合肥 230036; 2.安徽喜洋洋农业科技有限公司,安徽 庐江 230088; 3.庐江县白山镇农业技术推广服务站,安徽 庐江 231531)

**摘要:** 为研究巢湖流域典型稻麦轮作区大气氮磷沉降特征及其生态环境效应,选择巢湖流域典型稻麦轮作区布设大气氮磷沉降监测点,收集大气沉降样品进行氮磷质量浓度、沉降通量及输入特征分析。结果表明,监测期内大气总氮(TN)、总磷(TP)年沉降通量分别为 98.22 kg/hm<sup>2</sup>、3.27 kg/hm<sup>2</sup>,其中 TN 沉降以可溶性有机氮(DON)为主,占 TN 沉降总量的 49.56%,而可溶性无机氮(DIN)则以 NH<sub>4</sub><sup>+</sup>-N(14.48 kg/hm<sup>2</sup>)为主,NO<sub>3</sub><sup>-</sup>-N 含量相对较低(5.85 kg/hm<sup>2</sup>)。TP 沉降以可溶性无机磷(DIP)(2.36 kg/hm<sup>2</sup>)为主,可溶性有机磷(DOP)含量较低。水稻季(6-10月)、小麦季(11月至次年5月)大气 TN 沉降通量分别为 45.84 kg/hm<sup>2</sup>、52.38 kg/hm<sup>2</sup>,分别相当于当季氮肥施用量的 20%、23%。据此估算,巢湖湖面大气 TN 和 TP 年沉降量分别为 7 661.16 t 和 255.06 t,分别占巢湖主要河流入湖负荷的 48.41% 和 32.57%。综上所述,巢湖流域典型稻麦轮作区大气氮磷沉降是农田生态系统和巢湖水体氮磷输入的重要来源。

**关键词:** 巢湖流域; 稻麦轮作; 氮磷沉降; 农田生态系统; 巢湖水体

**中图分类号:** X529 **文献标识码:** A **文章编号:** 1000-4440(2022)04-0958-09

## Analysis of atmospheric nitrogen and phosphorus deposition and its impact on Chao Lake in typical rice-wheat rotation area of Chao Lake basin

TIAN Shuai<sup>1</sup>, SHAN Xu-dong<sup>1</sup>, CHENG Qi-peng<sup>1</sup>, XU Gang<sup>1</sup>, GAO Hong-jian<sup>1</sup>, HUA Sheng<sup>2</sup>, GAO Shi-feng<sup>3</sup>

(1.School of Resources and Environment, Anhui Agricultural University/Anhui Provincial Key Laboratory of Farmland Ecological Conservation and Pollution Prevention, Hefei 230036, China; 2.Anhui Xiyangyang Agricultural Science and Technology Co., Ltd., Lujiang 230088, China; 3.Agricultural Technology Extension Service Station of Baishan Town of Lujiang County, Lujiang 231531, China)

**Abstract:** To study the characteristics of atmospheric nitrogen and phosphorus deposition and its effects on ecological environment in typical rice-wheat rotation area of Chao Lake basin, monitoring and testing sites for atmosphere nitrogen and phosphorus deposition were laid in the area to collect atmospheric deposition samples to analyze the mass concentration, deposition fluxes and input characteristics of nitrogen and phosphorus. The results showed that, annual deposition fluxes of total nitrogen (TN) and total phosphorus (TP) in the monitoring period were 98.22 kg/hm<sup>2</sup> and 3.27 kg/hm<sup>2</sup>, respectively.

Atmospheric TN deposition was dominated by dissolved organic nitrogen (DON), which accounted for 49.56% of the total TN deposition, while dissolved inorganic nitrogen (DIN) was dominated by NH<sub>4</sub><sup>+</sup>-N (14.48 kg/hm<sup>2</sup>), and content of NO<sub>3</sub><sup>-</sup>-N was relatively low (5.85 kg/hm<sup>2</sup>). Atmospheric TP deposition was dominated by dissolved inor-

收稿日期:2021-11-12

基金项目:国家自然科学基金项目(41877099);安徽省科技重大专项(18030701188)

作者简介:田 帅(1993-),男,安徽蚌埠人,硕士研究生,主要从事养分资源综合管理研究。(E-mail) 1395010608@qq.com

通讯作者:郅红建,(E-mail) hjgao@ahau.edu.cn

ganic phosphorus (DIP) ( $2.36 \text{ kg/hm}^2$ ), and content of dissolved organic phosphorus (DOP) was low. The TN deposition fluxes in rice season (from June to October) and wheat season (from November to May in the next year) were  $45.84 \text{ kg/hm}^2$  and  $52.38 \text{ kg/hm}^2$ , respectively, which accounted for 20% and 23% respectively of the total nitrogen fertilizer application in the current season. It was estimated that, the annual atmospheric TN deposition and TP deposition on the Chao Lake surface were 7 661.16 t and 255.06 t, respectively, which accounted for 48.41% and 32.57% of TN and TP inputs from main rivers entry to the lake. It can be seen that, nitrogen and phosphorus deposition in typical rice-wheat rotation area of Chao Lake basin is the important source of nitrogen and phosphorus input to the farmland ecosystem and the water body of Chao Lake.

**Key words:** Chao Lake basin; rice-wheat rotation; nitrogen and phosphorus deposition; farmland ecosystem; Chao Lake water body

大气氮磷沉降是生物地球化学循环的重要组成部分,包括干沉降和湿沉降2种途径。干沉降是指通过布朗运动、碰撞组合和自重力或下垫面截流产生的沉降,而湿沉降主要包括云内富集以及云下降水中气体或颗粒物溶解、悬浮并被带到地表时的沉降。随着化石燃料与肥料施用量的增加,氮氧化物和氨排放量也呈增长趋势,导致氮沉降量日益升高<sup>[1]</sup>。大气沉降不仅是农田生态系统重要的氮素来源<sup>[2]</sup>,也是湖泊生态系统氮磷输入的重要途径<sup>[3]</sup>,但过量的氮沉降容易导致土壤酸化<sup>[4]</sup>、生物多样性减少<sup>[5]</sup>,并与磷沉降共同引发水体富营养化<sup>[6-7]</sup>等一系列生态环境问题。He等<sup>[8]</sup>利用 $^{15}\text{N}$ 示踪法研究发现,华北平原小麦玉米轮作系统的年大气总氮输入量为 $99\sim 117 \text{ kg/hm}^2$ ,其中可被玉米和小麦直接吸收利用的氮沉降量为 $52 \text{ kg/hm}^2$ ,约占总氮沉降量的50%或作物氮吸收总量的31%。Wang等<sup>[9]</sup>发现,在全国尺度上,氮沉降对水稻的增产产量相当于水稻总产量的0.60%,而较高的施氮水平使水稻仅能吸收利用2%的氮沉降。从湖泊水质角度考虑,洞庭湖直接和间接大气氮沉降对洞庭湖氮负荷的贡献率达到了67%~94%<sup>[10]</sup>。氮沉降同样是太湖地区水体富营养化和稻麦作物营养的重要来源<sup>[11]</sup>,而北方沙源区水库大气总磷沉降也已成为水库磷营养盐输入的重要途径<sup>[12]</sup>。因此,评估区域大气氮磷沉降对农田和水域生态系统的影响具有重要意义。

巢湖流域位于长江中下游,稻麦轮作是该地的主要种植模式。2019年,环巢湖流域主要县(市)的水稻、小麦种植面积为 $4.9\times 10^5 \text{ hm}^2$ ,占农作物总播种面积的72%,粮食产量达 $3.01\times 10^6 \text{ t}$ ,其中水稻、小麦产量分别为 $2.34\times 10^6 \text{ t}$ 和 $5.4\times 10^5 \text{ t}$ ,氮磷肥消耗达 $1.09\times 10^5 \text{ t}$ <sup>[13]</sup>。目前在巢湖流域氮磷面源污染方面已有一

些研究,而有关大气氮磷沉降却鲜有报道。此前仅有魏东霞等<sup>[14]</sup>研究了巢湖流域城市位点的大气总氮、总磷沉降特征,而对于巢湖流域稻麦轮作农业区大气氮磷沉降规律及其对巢湖水体的可能影响尚不清楚。本研究于2019年1-12月在巢湖流域典型稻麦轮作区布置大气沉降观测站点,进行为期1年的静态监测试验,分析不同月份与作物生长季节氮磷沉降质量浓度变化特征及其沉降通量,解析大气氮磷沉降对农田生态系统氮磷输入的贡献,并对巢湖大气氮磷沉降输入进行评估,以期对巢湖流域稻麦轮作区作物氮磷养分管理和巢湖面源污染防治提供科学参考。

## 1 材料与方法

### 1.1 研究区域概况

巢湖流域土地利用类型以耕地为主,农业规模化经营、机械化程度较高,稻麦轮作是主要种植模式,大气沉降监测点位于安徽农业大学庐江皖中综合试验站( $31^\circ 49' \text{N}$ ,  $117^\circ 23' \text{E}$ )典型稻麦轮作农田,3个静态监测点相距约1 km,距离巢湖水域约10 km。庐江县属于亚热带湿润季风气候区,雨水充沛,光照充分,热量条件较好,无霜期长,四季分明。区域土壤肥沃,地势平坦,常年平均气温 $16^\circ \text{C}$ ,年平均降雨量1 200 mm左右,年均日照时长约2 100 h。水稻季一般在6、7月份施基肥、插秧,之后追施分蘖肥,小麦季一般11月份播种施基肥,次年2月开始追肥。年施氮量约 $450 \text{ kg/hm}^2$ ,施磷量约 $180 \text{ kg/hm}^2$ 。

### 1.2 样品收集

大气沉降收集装置由长1.5 m、内径20 cm的聚氯乙烯(PVC)管下接5 L收集桶构成,整体固定在特制铁质采样架中,管口安设网罩以防止鸟粪、树枝等干扰。每月末采集沉降样品1次,送回实验室冻存并及时测定。不考虑收集桶内可能发生的各种

物理、化学、生物过程。样品混合均匀后测定总氮(TN)、总磷(TP)质量浓度,用 0.45  $\mu\text{m}$  微孔滤膜过滤后测定可溶性总氮(DTN)、可溶性总磷(DTP)、铵态氮( $\text{NH}_4^+\text{-N}$ )、硝态氮( $\text{NO}_3^-\text{-N}$ )、可溶性无机磷(DIP)质量浓度。

### 1.3 样品测定与数据分析

样品室温解冻后用碱性过硫酸钾分光光度法(HJ 636-2012《水质 总氮的测定 碱性过硫酸钾消解紫外分光光度法》)进行前处理,采用连续流动分析仪(SAN++, SKALAR, 荷兰)测定样品中 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 、 $\text{NO}_3^-\text{-N}$ 、TN、DTN 的质量浓度,可溶性无机氮(DIN)质量浓度为 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 和 $\text{NO}_3^-\text{-N}$ 质量浓度之和,可溶性有机氮(DON)质量浓度为 DTN 与 DIN 质量浓度的差值。采用钼酸铵分光光度法(GB 11893-1989《水质 总磷的测定 钼酸铵分光光度法》)测定 TP、DTP、DIP 质量浓度,可溶性有机磷(DOP)质量浓度为 DTP 与 DIP 质量浓度的差值,单位均为 mg/L。监测点每月末沉降装置收集桶中收集的液体(收集液)中的氮磷质量浓度即为当月氮磷沉降质量浓度,而月沉降通量则为月沉降质量浓度与月收集液降雨体积的乘积。将 3 个采样点每月氮磷沉降质量浓度和通量的算术平均值作为该区域月氮磷沉降质量浓度和沉降通量。采用单因素方差分析(ANOVA)对不同季节沉降通量进行统计分析,用  $R_N$  代表铵态氮与硝态氮沉降通量的比值。

大气沉降通量采用大气湿沉降通量的计算公式:

$$D = \frac{C \times L}{S \times 100}$$

式中: $D$  为沉降通量( $\text{kg}/\text{hm}^2$ ), $C$  为沉降质量浓度(mg/L), $L$  为收集液降雨体积(L), $S$  为沉降采集器横截面积( $\text{m}^2$ ),100 为公式中单位转换系数。

数据处理、绘图与统计分析用 Microsoft Excel 2019、Origin 8.1 和 SPSS 19.0 完成。

## 2 结果与分析

### 2.1 研究区降雨量变化

2019 年 1-12 月,巢湖流域稻麦轮作区年降雨量为 751.50 mm(图 1),较往年(2009-2018)年降雨量平均值(1 200 mm)偏低,属于较早年份,但降雨量月变化趋势与往年总体一致,即从 5 月份开始降雨量大幅增加,8 月份以后降雨量逐渐降低并在 10

月份以后稳定在较低水平。不同的是,往年平均降雨量峰值出现在 7 月,而 2019 年降雨量最大值出现在 6 月,但降雨量均主要集中在 5-8 月份,占年降雨量的 55%左右。其中 2019 年 6 月份降雨量达到最高值,为 176 mm,占年降雨量的 23.42%,9 月份降雨量最低,仅有 7.60 mm。2019 年水稻季(6-10 月)降雨量为 370.80 mm,小麦季(11 月-次年 5 月)降雨量为 380.70 mm,分别占总降雨量的 49.34%和 50.66%。

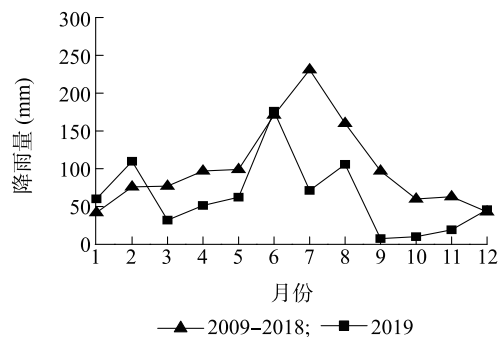


图 1 巢湖流域降雨量月变化

Fig.1 Monthly variation of rainfall in Chao Lake basin

### 2.2 巢湖流域稻麦轮作区氮磷沉降浓度及形态变化特征

2019 年 1-12 月,巢湖流域稻麦轮作区大气沉降 TN 与 DIN 质量浓度均大致呈现先升后降,又升再降的“M”形变化趋势(图 2)。大气沉降中 TN 质量浓度变化范围为 8.47~21.77 mg/L,年平均值为 14.22 mg/L,且在 2 月和 8 月出现 2 个低值,分别为 10.47 mg/L、8.47 mg/L,在 5 月和 10 月达到 2 个高值,分别为 20.81 mg/L、21.77 mg/L。DIN 质量浓度变化范围为 0.23~7.78 mg/L,年平均值为 3.03 mg/L。大气沉降中 DON 质量浓度除 10 月份出现极值以外,其他月份相对稳定,其质量浓度变化范围为 3.08~14.64 mg/L,年平均值为 7.46 mg/L。巢湖流域稻麦轮作区大气沉降磷质量浓度与氮质量浓度变化趋势一致。TP 和 DIP 质量浓度变化范围分别为 0.04~3.17 mg/L 和 0~2.15 mg/L,年平均值分别为 0.68 mg/L 和 0.48 mg/L。TP 沉降质量浓度在 2 月和 8 月出现 2 个低值,分别为 0.04 mg/L、0.06 mg/L,在 5 月和 10 月达到 2 个高值,分别为 1.72 mg/L、3.17 mg/L。DOP 质量浓度变化范围为 0~0.54 mg/L,年平均值为 0.07 mg/L,DOP 质量浓度除 10 月份出现极值以外,其他月份质量浓度较低。

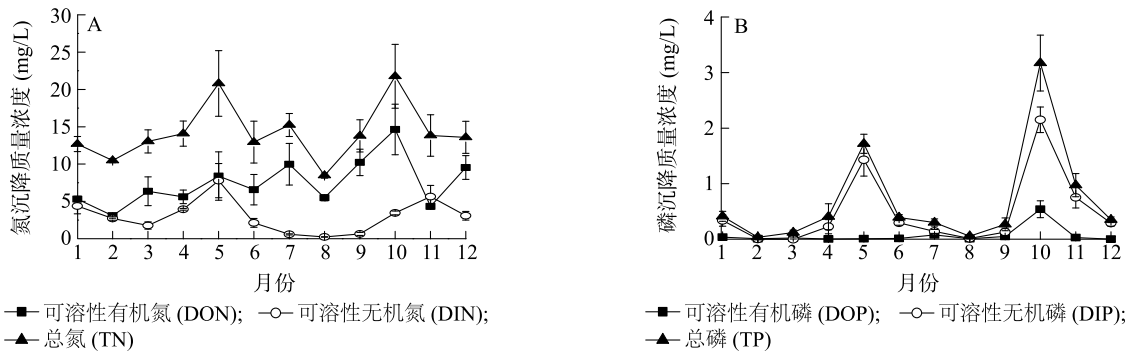


图2 2019年巢湖流域稻麦轮作区不同形态大气氮磷沉降浓度月际动态变化

Fig.2 Monthly dynamic changes of atmospheric nitrogen and phosphorus deposition concentrations of different forms in rice-wheat rotation region of Chao Lake basin in 2019

### 2.3 巢湖流域稻麦轮作区氮磷沉降通量及形态变化特征

由图3A可以看出,2019年,巢湖流域稻麦轮作区年TN沉降通量为 $98.22 \text{ kg/hm}^2$ ,其中DIN、DON沉降通量分别为 $20.33 \text{ kg/hm}^2$ 、 $48.68 \text{ kg/hm}^2$ ,分别约占TN沉降通量的20.70%、49.56%,DON是大气氮沉降的主要形式。大气TN沉降主要集中在5-7

月,约占全年TN沉降通量的47%。

由图3B可以看出,2019年,巢湖流域稻麦轮作区年TP沉降通量为 $3.27 \text{ kg/hm}^2$ ,远小于TN沉降通量,其中DIP、DOP沉降通量分别为 $2.36 \text{ kg/hm}^2$ 、 $0.21 \text{ kg/hm}^2$ ,分别约占TP沉降通量的72.17%、6.42%,DIP是大气磷沉降的主要形式。大气TP沉降通量主要集中在5、6月,约占全年TP沉降通量的54%。

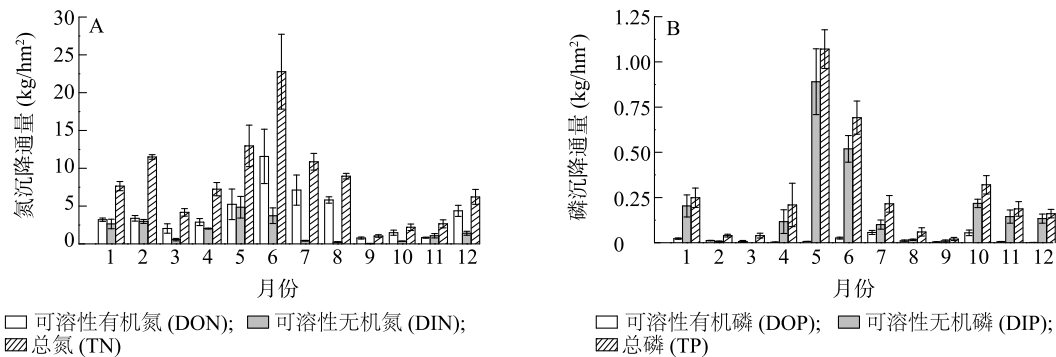


图3 2019年巢湖流域稻麦轮作区不同形态大气氮磷沉降通量月际动态变化

Fig.3 Monthly dynamic changes of atmospheric nitrogen and phosphorus deposition fluxes of different forms in rice-wheat rotation region of Chao Lake basin in 2019

2019年,巢湖流域稻麦轮作区不同形态氮沉降通量呈现明显的季节性变化(表1),表现为春夏两季的TN沉降通量是秋冬两季TN沉降通量的2.14倍,占全年TN沉降通量的68%。在TN沉降通量中,DIN的主要成分为 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ ,占DIN总通量的71.22%。 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 沉降通量表现为春季>夏季>冬季>秋季的规律,沉降通量分别为 $5.88 \text{ kg/hm}^2$ 、 $4.06 \text{ kg/hm}^2$ 、 $3.46 \text{ kg/hm}^2$ 、 $1.08 \text{ kg/hm}^2$ ,而 $\text{NO}_3^-\text{-N}$ 的沉降通量主要集中在春、冬两季,分别为 $1.56 \text{ kg/hm}^2$ 、 $3.56 \text{ kg/hm}^2$ ,其中冬季 $\text{NO}_3^-\text{-N}$ 沉降通量显著高于其

他季节( $P < 0.05$ ),占 $\text{NO}_3^-\text{-N}$ 年沉降通量的60.85%。 $R_N$ 值为大气沉降中 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 与 $\text{NO}_3^-\text{-N}$ 的比值, $R_N$ 值除冬季小于1以外,其余各个季节均大于1。DON在春、夏、秋、冬季的沉降通量分别为 $10.15 \text{ kg/hm}^2$ 、 $24.49 \text{ kg/hm}^2$ 、 $3.09 \text{ kg/hm}^2$ 、 $10.95 \text{ kg/hm}^2$ ,其中夏季沉降通量显著高于其他季节( $P < 0.05$ ),占全年DON沉降通量的50.31%,在秋季最低,春冬两季接近。

由表1还可以看出,2019年,巢湖流域稻麦轮作区不同形态磷沉降通量在各个季节间均无显著差



异( $P>0.05$ )。TP、DIP 沉降主要集中在春夏两季,分别占全年 TP 和 DIP 沉降通量的 70.03% 和 69.92%。DOP 沉降通量则在各个季节均处于较低水平。

表 1 2019 年巢湖流域稻麦轮作区不同形态大气氮磷沉降通量的季节变化

Table 1 Seasonal variation of deposition fluxes of different forms of atmospheric nitrogen and phosphorus in rice-wheat rotation region of Chao Lake basin in 2019

季节	降雨量 (mm)	沉降通量(kg/hm <sup>2</sup> )								
		TN	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup> -N	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup> -N	DON	DIN	R <sub>N</sub>	TP	DIP	DOP
春季	145.70b	24.37ab	5.88a	1.56b	10.15b	7.44a	3.77a	1.32a	1.01a	0.02a
夏季	353.10a	42.60a	4.06a	0.33b	24.49a	4.39a	12.30a	0.97a	0.64a	0.09a
秋季	36.90b	5.90b	1.08a	0.40b	3.09b	1.48a	2.70a	0.53a	0.37a	0.06a
冬季	215.80ab	25.35ab	3.46a	3.56a	10.95b	7.02a	0.97a	0.45a	0.34a	0.04a
全年	751.50	98.22	14.48	5.85	48.68	20.33	2.48	3.27	2.36	0.21

TN: 总氮; NH<sub>4</sub><sup>+</sup>-N: 铵态氮; NO<sub>3</sub><sup>-</sup>-N: 硝态氮; DON: 可溶性有机氮; DIN: 可溶性无机氮; R<sub>N</sub>: NH<sub>4</sub><sup>+</sup>-N/NO<sub>3</sub><sup>-</sup>-N 比值; TP: 总磷; DIP: 可溶性无机磷; DOP: 可溶性有机磷。同列不同字母表示在 0.05 水平上差异显著。

### 3 讨论

#### 3.1 巢湖流域稻麦轮作区与国内典型区域大气氮磷沉降通量比较

本研究收集的大气氮磷沉降属于混合沉降,国内外研究者将其归类为“bulk”沉降,包括湿沉降和部分干沉降。朱潇等<sup>[15]</sup>的研究结果表明,亚热带农田湿沉降和混合沉降存在极显著的线性正相关,可以用氮素混合沉降结果来估算氮素湿沉降的结果。而在长江流域,“bulk”沉降与湿沉降的差异不大<sup>[16]</sup>。在不考虑采样方法差异的情况下,将国内部分学者大气氮磷湿沉降或总沉降的监测结果<sup>[10,12,14-15,17-24]</sup>与本研究结果进行汇总对比,发现同一区域不同生态系统、不同区域同一生态系统、同一生态系统不同监测时段的氮沉降存在一定差异,而磷沉降通量均远低于氮沉降通量。

巢湖流域稻麦轮作区农田生态系统氮沉降量(98.22 kg/hm<sup>2</sup>)高于合肥科学岛城市生态系统(38 kg/hm<sup>2</sup>)<sup>[14]</sup>,可能与农业生产区域施氮带来的高氮挥发量有关,农业氮源排放量增强,带来了更高的氮沉降量,但是二者在氮磷沉降特征方面接近,虽然监测年份、土地利用类型不同,却表现出较一致的规律。杭嘉湖城市地区氮沉降量(51.9 kg/hm<sup>2</sup>)<sup>[22]</sup>高于合肥科学岛,这可能与杭嘉湖地区经济较为发达,人为活动导致氮的排放量高有关。刘文竹等<sup>[25]</sup>认为,经济发达地区通常工业相对发达,人为活性氮的增加往往导致高的氮沉降量。沿海等经济较发达地区的氮沉降量高于内陆地区,也可能与人为活动增

强有关<sup>[26]</sup>。巢湖流域稻麦轮作区 TN 年沉降通量与江西省红壤区农田氮沉降量(62.6 kg/hm<sup>2</sup>)<sup>[23]</sup>接近,高于湖南省金井河流域(28.9 kg/hm<sup>2</sup>)<sup>[15]</sup>、吉林省中部(湿沉降量 18.3 kg/hm<sup>2</sup>)<sup>[24]</sup>农田生态系统。湖南省金井河流域监测点虽然位于农田区域,但是流域土地利用方式总体以林地为主,且农田年施氮量为 360 kg/hm<sup>2</sup>,相对较少,导致氮沉降量较低。东北地区半湿润气候,降雨量和平均气温较低可能也是导致氮沉降量低的原因。

以巢湖流域稻麦轮作区氮沉降估算巢湖湖面氮沉降量,发现 2019 年巢湖湖面 TN 沉降通量与 2011 年太湖湖面 TN 沉降通量(89.72 kg/hm<sup>2</sup>)<sup>[20]</sup>相当,而高于其 2014 至 2016 年 TN 沉降通量的平均值(64.8 kg/hm<sup>2</sup>)<sup>[21]</sup>。中国主要淡水湖泊的 TN 沉降通量呈现出巢湖>洞庭湖(75 kg/hm<sup>2</sup>)<sup>[10]</sup>>太湖>滇池(湿沉降 13.63 kg/hm<sup>2</sup>)<sup>[18]</sup>的顺序。本研究中 TP 年沉降通量与太湖流域相当,高于滇池、杭嘉湖、合肥科学岛等地区,表明巢湖流域稻麦轮作区 TP 沉降量也处于较高水平。

#### 3.2 巢湖流域稻麦轮作区氮磷沉降月、季动态变化

巢湖流域稻麦轮作区大气沉降中氮磷质量浓度与降雨量无显著相关性( $P>0.05$ ),但氮磷沉降质量浓度总体随降雨量的增加而降低,这可能与降雨对大气中氮磷成分的清除、稀释有关。研究区 6-10 月份为水稻生长季节,一般 6 月上中旬开始插秧施基肥,6 月底或 7 月初追施分蘖肥,而小麦生长季节为 11 月到次年 5 月,一般在 11 月份播种、施基肥,次年 2 月开始追肥。5 月与 10 月分别是小麦和水

稻收获季节,此时正值作物大规模机械化收割期,机械扬尘的增加可能是这一时期氮磷沉降质量浓度增加的重要原因。同时,10月份处于降雨量次低值,降水的稀释作用较弱,可能也是大气氮沉降质量浓度增高的原因。通过分析其他月份氮沉降质量浓度的变化发现,氮肥施用与氮沉降质量浓度密切相关。例如,虽然3到5月份降雨量逐渐增加,氮沉降质量浓度却也在递增,这正与小麦追施氮肥时期吻合,而在6月份降雨量达到峰值,大气氮沉降质量浓度却并不是最低值,可能由于水稻基肥和分蘖肥施用的氮素因气温上升等原因增强排放,提高了大气氮沉降质量浓度。

2019年巢湖流域稻麦轮作区大气TN沉降通量与降雨量呈极显著正相关关系( $P < 0.001$ ,  $R^2 = 0.87$ ),表明降雨量对氮沉降通量具有显著影响。TN沉降通量总体呈现单峰形变化规律,在6月达到峰值,这与Ti等<sup>[21]</sup>在太湖流域的研究结果一致。Sun等<sup>[27]</sup>发现,稻麦轮作条件下, $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 沉降主要受降雨和氨挥发通量影响,随着氨挥发的增强,氮沉降量也相应增加。朱小红等<sup>[28]</sup>对巢湖流域单季稻进行氨挥发试验的结果表明,基肥和分蘖期氮肥施用3d内氨挥发量即达到峰值,并可持续1周,这一阶段的氨挥发量可达当季氨挥发总量的95%。巢湖流域麦茬稻一般在6月上中旬开始插秧施基肥,6月底或7月初追施分蘖肥,而这一时期降雨量集中,约占水稻季降雨量的67%,此时TN沉降通量则达到水稻季TN沉降通量的73%,即在高氨挥发和高降雨量共同作用下TN沉降通量在6月达到峰值。这些结果表明,农业生产活动周期与TN沉降通量在时间上较为一致,反映了农业源氮排放对TN沉降有重要影响。

前人研究结果表明,降雨中的 $\text{NH}_4^+$ 主要来源于人畜粪便和农业氮肥挥发, $\text{NO}_3^-$ 则主要来源于化石燃料、生物质燃烧、交通排放等。 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 与 $\text{NO}_3^-\text{-N}$ 比值( $R_N$ 值)的季节变化可以指示大气沉降的氮是来自农业活动还是化石燃料的燃烧<sup>[29]</sup>。当 $R_N$ 值 $>1$ 时,说明氮沉降主要来自农业,反之则来自工业或交通。本研究区域 $R_N$ 值的季度平均比值为4.9,表明农业生产活动在该区域氮沉降中起主导作用。 $R_N$ 值除冬季 $<1$ 以外,其余各个季节均 $>1$ ,且冬季 $\text{NO}_3^-\text{-N}$ 沉降通量显著高于其他季节( $P < 0.05$ ),占 $\text{NO}_3^-\text{-N}$ 年沉降通量的60.85%。这可能是因为,冬季

农业生产活动较弱,气温低,氨挥发减少,降低了 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 沉降的质量浓度,同时冬季燃煤供电供暖等工业活动增强,导致氮氧化物质量浓度升高,增加了大气中 $\text{NO}_3^-\text{-N}$ 的质量浓度,这也反映了巢湖流域稻麦轮作区氮沉降受工业源和农业源的共同影响。

TN沉降中,DIN与DON沉降通量的季度平均比值约为0.5,DON占TN沉降的比例为49.56%,高于中国有机氮占总氮沉降28%的平均占比<sup>[30]</sup>。由于监测点周边均无大型工厂或养殖场,推测高DON通量可能与无机氮的二次转化有关。本研究中,夏季DON沉降通量显著高于其他季节( $P < 0.05$ ),达到全年总DON沉降通量的50.31%。Solinger等<sup>[31]</sup>研究结果也表明,降水中DON质量浓度与温度呈正相关,而羰基和氨的反应也是有机氮形成的重要方式<sup>[32]</sup>,夏季高温多雨,氨挥发强烈,有助于有机氮沉降的形成。大气中的氮氧化物(包括 $\text{NO}_3$ 自由基)和碳氢化合物产生的化学反应也是有机氮形成的主要途径之一<sup>[33]</sup>, $\text{NO}_3^-\text{-N}$ 具有较长距离迁移的特性<sup>[34]</sup>,一些有机硝酸盐在低温条件下可以较频繁地进行远距离传输<sup>[35]</sup>,可能也是该区域冬季DON沉降量处于较高水平的原因。本研究中,DON沉降质量浓度月变化保持相对稳定,这与Yu等<sup>[36]</sup>人研究结果一致,推测DON可能主要在云内形成富集,由于雨水本身含有较高的氮质量浓度,使得DON质量浓度不易随降水量的变化发生显著性改变,而云内DON可能源自生物质燃烧。此外,尿素也可以进入大气成为有机氮的潜在来源<sup>[37]</sup>。

TP沉降则以DIP为主,DOP与DIP沉降通量季度平均比值仅为0.11。TP沉降通量与降雨量无显著相关性( $P > 0.05$ ),这与王江飞等<sup>[22]</sup>在杭嘉湖地区的研究结果一致,可能因为磷酸钙等正磷酸盐和磷酸氢盐溶度积较小,难溶于水<sup>[18]</sup>,降雨对大气中磷的去除作用弱。TP沉降通量峰值在5月,与TN沉降峰值并不重合,表明这一时期大气磷形成可能有其他途径,5月份小麦大规模机械收割,扬尘的增加可能是这一时期大气磷的重要来源。

### 3.3 巢湖流域稻麦轮作区氮磷沉降的生态环境效应

2019年,环巢湖流域主要县(市)稻麦种植面积 $4.9 \times 10^5 \text{ hm}^2$ ,DIN作为易被作物吸收的有效态氮,估算年沉降量为 $20.33 \text{ kg/hm}^2$ ,相当于 $43.56 \text{ kg/hm}^2$ 尿素。假设沉降的DIN全部被作物利用,每年将可

以减少 $2.1 \times 10^4$  t 的尿素投入。从纯氮投入角度考虑,水稻(6–10 月)、小麦(11 月至次年 5 月)季 TN 沉降通量分别为  $45.84 \text{ kg/hm}^2$ 、 $52.38 \text{ kg/hm}^2$ ,按照巢湖流域农户水稻和小麦常规纯氮投入  $225 \text{ kg/hm}^2$  计算,则水稻和小麦季氮肥将分别有 20% 和 23% 的减少潜力。这表明,氮沉降是巢湖流域稻麦轮作体系重要的养分输入来源,需要在氮素养分管理中加以考虑,以减少农田氮素施用。相对氮沉降而言,磷沉降量较少,不到常规施肥年施磷量的 2%。

巢湖流域稻麦轮作区 TN 沉降月最低质量浓度已达  $8.47 \text{ mg/L}$ ,远超  $0.20 \text{ mg/L}$  的水体富营养化阈值<sup>[38]</sup>。TN 和 TP 沉降质量浓度年均值分别为  $14.22 \text{ mg/L}$  和  $0.68 \text{ mg/L}$ ,分别超过了  $2 \text{ mg/L}$  和  $0.40 \text{ mg/L}$  的国家水质标准,属于劣 V 类水质,对巢湖水体富营养化造成严重威胁。需要注意的是,由于未考虑沉降收集液的蒸发,尤其对于夏季高温时段,氮磷沉降质量浓度可能会有所高估。根据巢湖健康状况报告(2018 年),巢湖主要河流 TN 和 TP 入湖负荷量分别为  $15\,825 \text{ t}$  和  $783 \text{ t}$ 。巢湖面积为  $780 \text{ km}^2$ ,以稻麦轮作区氮磷沉降估算巢湖湖面大气沉降,则巢湖年 TN 和 TP 的沉降量分别为  $7\,661.16 \text{ t}$  和  $255.06 \text{ t}$ ,分别占河流入湖负荷的 48.41% 和 32.57%。滇池大气沉降中 TN 和 TP 的沉降量分别为河流入湖负荷的 6.14% 和 12.76%<sup>[18]</sup>,对滇池水体的贡献较小,而太湖 TN 沉降量约占入湖 TN 负荷的 33%<sup>[21]</sup>,与本研究结果接近。Kong 等<sup>[39]</sup>对巢湖长期(1953–2012 年)营养负荷收支的估算结果表明,巢湖从浑浊状态恢复成清澈状态的年 TP 输入阈值为  $(546.00 \pm 319.80) \text{ t}$ 。本研究结果显示,巢湖水体估算年 TP 沉降通量加上主要河流入湖 TP,总负荷为  $1\,038 \text{ t}$ ,已经超过湖泊由浑浊状态恢复到清澈状态所允许的年 TP 输入阈值上限( $865.80 \text{ t}$ ),大气磷沉降约占总负荷的 24.57%,污染负荷不容忽视。这表明,氮磷沉降可能是巢湖水体氮磷的重要来源。

已有研究结果表明,巢湖水华发生前均有明显降水或连续性阴雨天气,阴雨过后伴随着光照的增加,巢湖发生水华的概率最大<sup>[40]</sup>,推测大气氮磷沉降随降雨进入水体可能对巢湖水华产生有重要影响。巢湖蓝藻的优势种为微囊藻,微囊藻常集中出现在高温的夏季,并主要受磷浓度的调控,其生物量与总磷浓度呈现明显的正相关关系<sup>[41]</sup>。微囊藻不

仅能以多聚磷的形式快速吸收无机磷,也可利用有机磷进行生长<sup>[42–43]</sup>。大气磷沉降为微囊藻提供了较丰富的磷源,促进了微囊藻的生长和繁殖,可能会增加蓝藻水华的面积和持续时间。

农业区氮沉降来源较广且包括气态、颗粒态及其他多种形态<sup>[44–45]</sup>,而磷难以挥发,常以颗粒态的形式存在于大气中<sup>[46]</sup>,这可能是氮沉降通量往往远高于磷沉降通量的原因。氮沉降在农业生态系统氮输入中具有重要作用,其中无机氮沉降可以被作物有效吸收利用,而有机氮沉降的可利用性可能与无机氮沉降同等重要<sup>[30,47]</sup>,同时氮沉降又可以通过陆地氮迁移等间接或直接大气沉降的方式对湖泊生态系统产生重要影响<sup>[48]</sup>。磷沉降则在湖泊生态系统磷输入中具有重要作用,可能是大气向湖泊生态系统输送养分的重要驱动因素<sup>[7]</sup>,而农业施肥土壤磷尘可能是重要的湖泊磷沉降来源<sup>[49]</sup>。未来的研究需要对氮磷沉降不同组分来源作进一步解析,以深化对流域氮磷沉降地球化学循环机理的理解。大气氮磷沉降对流域农田和水体生态环境产生显著影响,可通过环湖区域“退田还湖”构建环湖湿地,利用水生植物吸收富集湿地水体氮磷元素以净化水体,降低氮磷入湖污染负荷。同时,推进流域氮肥磷肥减量替代,推广缓释、增效等新型氮肥,减少氮素挥发损失,有助于削减区域大气氮磷沉降。巢湖沿岸具有较广泛的稻麦轮作种植区域,大气氮磷沉降与农业生产活动密切相关,巢湖流域稻麦轮作区大气氮磷沉降对巢湖水质的影响,有待于多点多年监测,进一步揭示其长期规律与效应。

## 4 结 论

(1)巢湖流域稻麦轮作区大气氮磷沉降与农业活动密切相关,TN 年沉降通量为  $98.22 \text{ kg/hm}^2$ ,TN 沉降以 DON 为主,占 TN 沉降通量的 49.56%,而 DIN 以  $\text{NH}_4^+\text{-N}$  为主要成分。TP 年沉降通量为  $3.27 \text{ kg/hm}^2$ ,DIP 是大气 TP 沉降的主要形式,占 TP 沉降通量的 72.17%。

(2)巢湖流域稻麦轮作区水稻季(6–10 月)和小麦季(11 月至次年 5 月)的 TN 沉降通量分别为  $45.84 \text{ kg/hm}^2$ 、 $52.38 \text{ kg/hm}^2$ ,分别约占当季农户常规施氮量的 20%、23%,减肥潜力较大。而 TP 沉降通量养分输入贡献小,不到农户常规施肥年施磷量的 2%。估算巢湖大气 TN 和 TP 的沉降量分别约占



主要河流入湖负荷的 48.41% 和 32.57%, 在巢湖面源污染防治过程中应予以足够重视。

## 参考文献:

- [1] GALLOWAY J N, TOWNSEND A R, ERISMAN J W, et al. Transformation of the nitrogen cycle: recent trends, questions, and potential solutions[J]. *Science*, 2008, 320(5878): 889-892.
- [2] JU X T, XING G X, CHEN X P, Reducing environmental risk by improving N management in intensive Chinese agricultural systems[J]. *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America*, 2009, 106(9): 3041-3046.
- [3] GAO Y, JIA Y, YU G, et al. Anthropogenic reactive nitrogen deposition and associated nutrient limitation effect on gross primary productivity in inland water of China[J]. *Journal of Cleaner Production*, 2019, 208: 530-540.
- [4] JIAN C, ZHOU J, PENG Y, et al. Atmospheric wet deposition of nitrogen and sulfur to a typical red soil agroecosystem in Southeast China during the ten-year monsoon seasons (2003 - 2012)[J]. *Atmospheric Environment*, 2014, 82: 121-129.
- [5] CLARK C M, TILMAN D. Loss of plant species after chronic low-level nitrogen deposition to prairie grasslands[J]. *Nature*, 2008, 451(7179): 712-715.
- [6] MEUNIER C L, GUNDALE M J, SANCHEZ I S, et al. Impact of nitrogen deposition on forest and lake food webs in nitrogen - limited environments[J]. *Global Change Biology*, 2016, 22(1): 164-179.
- [7] GAO Y, HAO Z, YANG T T, et al. Effects of atmospheric reactive phosphorus deposition on phosphorus transport in a subtropical watershed: a Chinese case study[J]. *Environmental Pollution*, 2017, 226: 69-78.
- [8] HE C E, WANG X, LIU X, et al. Nitrogen deposition and its contribution to nutrient inputs to intensively managed agricultural ecosystems[J]. *Ecological Applications*, 2010, 20(1): 80-90.
- [9] WANG Z, ZHANG X Y, LIU L, et al. Evaluating the effects of nitrogen deposition on rice ecosystems across China[J]. *Agriculture, Ecosystems & Environment*, 2019, 285: 106617.
- [10] ZHANG Y, LIU C, LIU X J, et al. Atmospheric nitrogen deposition around the Dongting Lake, China[J]. *Atmospheric Environment*, 2019, 207: 197-204.
- [11] XIE Y X, XIONG Z Q, XING G X, et al. Source of nitrogen in wet deposition to a rice agroecosystem at Tai lake region[J]. *Atmospheric Environment*, 2008, 42(21): 5182-5192.
- [12] 卢俊平, 马太玲, 张晓晶, 等. 典型沙源区水库大气氮干、湿沉降污染特征研究[J]. *农业环境科学学报*, 2015, 34(12): 2357-2363.
- [13] 安徽省统计局. 安徽统计年鉴 2020[M]. 北京: 中国统计出版社, 2020.
- [14] 魏东霞, 李 璇, 赵禹恒, 等. 合肥科学岛大气氮磷沉降及对巢湖影响的分析[J]. *合肥工业大学学报(自然科学版)*, 2018, 41(9): 1259-1266.
- [15] 朱 潇, 王杰飞, 沈健林, 等. 亚热带农田和林地大气氮湿沉降与混合沉降比较[J]. *环境科学*, 2018, 39(6): 2557-2565.
- [16] XU W, ZHAO Y H, LIU X J, et al. Atmospheric nitrogen deposition in the Yangtze River basin: spatial pattern and source attribution[J]. *Environmental Pollution*, 2018, 232: 546-555.
- [17] 刘冬碧, 张小勇, 巴瑞先, 等. 鄂西北丹江口库区大气氮沉降[J]. *生态学报*, 2015, 35(10): 3419-3427.
- [18] 任加国, 贾海斌, 焦立新, 等. 滇池大气沉降氮磷形态特征及其入湖负荷贡献[J]. *环境科学*, 2019, 40(2): 582-589.
- [19] 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[J]. *海洋与湖沼*, 2007(2): 104-110.
- [20] 刘 涛, 杨柳燕, 胡志新, 等. 太湖氮磷大气干湿沉降时空特征[J]. *环境监测管理和技术*, 2012, 24(6): 20-24.
- [21] TI C P, GAO B, LUO Y X, et al. Dry deposition of N has a major impact on surface water quality in the Taihu Lake region in south-east China[J]. *Atmospheric Environment*, 2018, 190: 1-9.
- [22] 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.
- [23] 王体健, 刘 倩, 赵 恒, 等. 江西红壤地区农田生态系统大气氮沉降通量的研究[J]. *土壤学报*, 2008, 45(2): 280-287.
- [24] 彭 畅, 牛红红, 李 强, 等. 吉林省中部农田生态系统降雨湿沉降氮特征[J]. *土壤通报*, 2015, 46(4): 955-961.
- [25] 刘文竹, 王晓燕, 樊彦波. 大气氮沉降及其对水体氮负荷估算的研究进展[J]. *环境污染与防治*, 2014, 36(5): 88-93.
- [26] 郑祥洲, 张玉树, 丁 洪, 等. 闽西北农田生态系统中大气氮湿沉降研究[J]. *水土保持学报*, 2012, 26(3): 127-130.
- [27] SUN L Y, WU Z, MA Y C, et al. Ammonia volatilization and atmospheric N deposition following straw and urea application from a rice-wheat rotation in southeastern China[J]. *Atmospheric Environment*, 2018, 181: 97-105.
- [28] 朱小红, 马中文, 马友华, 等. 施肥对巢湖流域稻季氨挥发损失的影响[J]. *生态学报*, 2012, 32(7): 2119-2126.
- [29] LIU X J, JU X T, ZHANG Y, et al. Nitrogen deposition in agroecosystems in the Beijing area[J]. *Agriculture, Ecosystems and Environment*, 2006, 113(1): 370-377.
- [30] ZHANG Y, SONG L, LIU X J, et al. Atmospheric organic nitrogen deposition in China[J]. *Atmospheric Environment*, 2012, 46: 195-204.
- [31] SOLINGER S, MATZNER K E. Controls on the dynamics of dissolved organic carbon and nitrogen in a Central European deciduous forest[J]. *Biogeochemistry*, 2001, 55(3): 327-349.
- [32] GALLOWAY M M, CHHABRA P S, CHAN A W H, et al. Glyoxal uptake on ammonium sulphate seed aerosol: reaction products and reversibility of uptake under dark and irradiated conditions[J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2009, 9(169): 3331-3345.
- [33] PERRING A E, PUSEDE S E, COHEN R C. An observational perspective on the atmospheric impacts of alkyl and multifunction-



- al nitrates on ozone and secondary organic aerosol[J]. Chemical reviews, 2013, 113(8): 5848-5870.
- [34] 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.
- [35] 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.
- [36] YU X, LI D J, LI D, et al. Enhanced wet deposition of water-soluble organic nitrogen during the harvest season: influence of biomass burning and in-cloud scavenging[J]. Journal of Geophysical Research: Atmospheres, 2020, 125(18): e2020JD032699.
- [37] CORNELL S E. Atmospheric nitrogen deposition: revisiting the question of the importance of the organic component[J]. Environmental Pollution, 2011, 159(10): 2214-2222.
- [38] 叶雪梅, 郝吉明, 段雷, 等. 中国主要湖泊营养氮沉降临界负荷的研究[J]. 环境污染与防治, 2002(1): 54-58.
- [39] KONG X Z, DONG L, HE W, et al. Estimation of the long-term nutrient budget and thresholds of regime shift for a large shallow lake in China[J]. Ecological Indicators, 2015, 52: 231-244.
- [40] 祁国华, 马晓双, 何诗瑜, 等. 基于多源遥感数据的巢湖水华长时序时空变化(2009—2018年)分析与发生概率预测[J]. 湖泊科学, 2021, 33(2): 414-427.
- [41] 张民, 史小丽, 阳振, 等. 太湖和巢湖中微囊藻(*Microcystis*)与长孢藻(*Dolichospermum*)的长时序变化及其驱动因子[J]. 湖泊科学, 2021, 33(4): 1051-1061.
- [42] WAN L L, CHEN X Y, DENG Q H, et al. Phosphorus strategy in bloom-forming cyanobacteria (*Dolichospermum* and *Microcystis*) and its role in their succession[J]. Harmful Algae, 2019, 84: 46-55.
- [43] 钱善勤, 孔繁翔, 张民, 等. 铜绿微囊藻和蛋白核小球藻对不同形态有机磷的利用及其生长[J]. 湖泊科学, 2010, 22(3): 411-415.
- [44] 王锦旗, 宋玉芝, 黄进. 大气氮沉降对流域总贡献量估算方法研究[J]. 江苏农业科学, 2020, 48(11): 246-250.
- [45] 张晓曦, 胡嘉伟, 王丽洁, 等. 不同林龄刺槐林地凋落物分解及养分释放对氮沉降的响应差异[J]. 植物资源与环境学报, 2021, 30(6): 10-18.
- [46] LI W, LI B G, TAO S, et al. Source identification of particulate phosphorus in the atmosphere in Beijing[J]. Science of The Total Environment, 2020, 762: 143174.
- [47] NASHOLM T, KIELLAND K, GANETEG U. Uptake of organic nitrogen by plants[J]. The New Phytologist, 2009, 182(1): 31-48.
- [48] GAO Y, ZHOU F, CIAIS P, et al. Human activities aggravate nitrogen-deposition pollution to inland water over China[J]. National Science Review, 2020, 7(2): 430-440.
- [49] GROSS A, NISHRI A, ANGERT A. Use of phosphate oxygen isotopes for identifying atmospheric-P sources: a case study at Lake Kinneret[J]. Environmental Science & Technology, 2013, 47(6): 2721-2727.

(责任编辑:张震林)