

王茜, 王雪梅, 钟流举, 等. 2009. 珠江口无机氮湿沉降规律及大气输送的研究 [J]. 环境科学学报, 29(6): 1156-1163

Wang Q, Wang X M, Zhong L J *et al*. 2009. Wet deposition of inorganic nitrogen and atmospheric transport at the estuary of the Pearl River [J]. *Acta Scientiae Circumstantiae* 29(6): 1156-1163

# 珠江口无机氮湿沉降规律及大气输送的研究

王茜<sup>1</sup>, 王雪梅<sup>2\*</sup>, 钟流举<sup>3</sup>, 林文实<sup>2</sup>

1. 上海市环境监测中心, 上海 200030

2. 中山大学环境科学与工程学院, 广州 510275

3. 广东省环境监测中心, 广州 510045

收稿日期: 2008-08-31 修回日期: 2008-12-16 录用日期: 2009-04-09

**摘要:** 针对 2007 年 3~11 月广东中山市横门站的降水资料, 分析了珠江口氮湿沉降特征及其来源. 结果显示: 研究期间横门降水中  $\text{NH}_4^+ - \text{N}$  和  $\text{NO}_3^- - \text{N}$  的降雨量加权平均浓度分别为 0.62 和 0.41  $\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$ ; 其季节变化规律表现为秋季最高, 其次是春季, 夏季最低. 降水  $\text{NH}_4^+ - \text{N}$  和  $\text{NO}_3^- - \text{N}$  的浓度呈显著正相关, 与降水 pH 值呈负相关. 利用气团轨迹后推以及天气形势得出, 横门陆地性降水氮浓度最高, 海洋性降水氮沉降通量最高. 云下气团分类结果表明, 海洋性 NE 类气团对横门无机氮湿沉降的输送负荷最大.

**关键词:** 珠江口; 无机氮; 湿沉降; 后向轨迹

文章编号: 0253-2468(2009)06-1156-08 中图分类号: X51 文献标识码: A

## Wet deposition of inorganic nitrogen and atmospheric transport at the estuary of the Pearl River

WANG Qian<sup>1</sup>, WANG Xuemei<sup>2\*</sup>, ZHONG Liuju<sup>3</sup>, LIN Wenshi<sup>2</sup>

1. Shanghai Environmental Monitoring Center, Shanghai 200030

2. School of Environmental Science and Engineering, Sun Yat-sen University, Guangzhou 510275

3. Environmental Protection Monitoring Centre of Guangdong Province, Guangzhou 510045

Received 31 August 2008 received in revised form 16 December 2008 accepted 9 April 2009

**Abstract** Precipitation data from March to November 2007 obtained at the Hengmen station, Guangdong were analyzed to study the origin and characteristics of inorganic nitrogen deposition at the estuary of the Pearl River. The results show that the weighted averages of rainfall ammonium and nitrate concentrations for this period were 0.62 and 0.41  $\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$ , respectively. Their concentrations have prominent seasonal variations with highest values in autumn, followed by a second maximum in spring, and lowest values in summer. The nitrate concentration during rainfall is positively correlated to that of ammonium, and both concentrations are negatively correlated with rainfall pH. According to the analysis of backward trajectory and synoptic weather patterns, the continental precipitation has the highest amount of  $\text{NO}_3^- - \text{N}$  and  $\text{NH}_4^+ - \text{N}$ , while the deposition flux of  $\text{NO}_3^- - \text{N}$  and  $\text{NH}_4^+ - \text{N}$  is highest for oceanic precipitation. Further analyses using backward trajectory were conducted to characterize air masses below clouds for both oceanic and continental precipitation events, and the results show that air masses from NE in the oceanic precipitation has the largest contribution to the deposition flux of inorganic nitrogen.

**Keywords** Pearl River; inorganic nitrogen; wet deposition; backward trajectory

### 1 引言 (Introduction)

近 20 年的研究表明, 大气氮沉降是造成水体富营养化极为重要的外源性因素 (Zhang *et al*,

1994; Paerl and Whitall, 1999; Spokes and Jickells, 2005). 研究大气氮沉降对水生生态系统影响最直接的方法是动态地监测含氮化合物的干、湿沉降, 计算其所占负荷, 分析其环境影响及重要性. 目前

基金项目: 国家自然科学基金项目 (No. 40875076); NSFC-广东联合基金重点项目 (No. U0833001)

Supported by the National Natural Science Foundation of China (No. 40875076) and the Joint Key Program of the Natural Science Foundation of China and Guangdong Province (No. U0833001)

作者简介: 王茜 (1983-), 女; \* 通讯作者 (责任作者), E-mail: eeswxm@mail.sysu.edu.cn

**Biography:** WANG Qian (1983-), female; \* Corresponding author. E-mail: eeswxm@mail.sysu.edu.cn

对氮素来源的研究主要是在直接测量的基础上,借助于数值方法模拟大气氮在空间的分布与沉降,考虑大气氮素来源综合的效果。除了区域数值模式外,气团后向轨迹追踪模式也是研究氮素来源的一种有效方法(Naman *et al.*, 2002),利用后向轨迹模式单纯的考虑过去几天影响监测点的气团轨迹,可以针对源-接受点的关系,分析污染物的可能来源。在我国的大气沉降研究中,对降水化学和大气输送的研究较多(Lee *et al.*, 2000; Seto *et al.*, 2002; 王自发等, 1998; 吴玉霞等, 1998; 吴甫成等, 2000; 苏福庆等, 2004; 林雨霏等, 2005),且较着重于对硫沉降的研究(王雪梅等, 2000; 胡正义等, 2001),涉及大气氮沉降的问题则较少;而近几年的监测数据显示,珠江口及毗邻海域例行监测的6个市段水质均超过海水二类标准,其中氮为最主要污染指标,珠江口水域氮则普遍超过海水四类标准,但大气氮沉降对珠江口酸雨贡献的大小、对其水质的影响尚未得到足够的重视和研究。因此,本文利用气团后向轨迹模式,结合2007年3~11月在中山横门站收集的湿沉降中无机氮数据,对珠江口氮素的来源作初步的研究,旨在为大气氮沉降对珠江口赤潮频发的影响提供科学依据。

## 2 方法(Methods)

### 2.1 研究地区及时间

珠江口横门观测点(E113°28', N22°23')位于广东省中山市,如图1所示。该地年平均气温21.8℃,年平均相对湿度为83%;全年多北风,频率为11%,年内静风频率高达25%;年降雨量为1747.4mm,主要集中于5~9月,占全年降雨量的74%;属亚热带季风性气候。采样点设在中山港横门水文站的监测

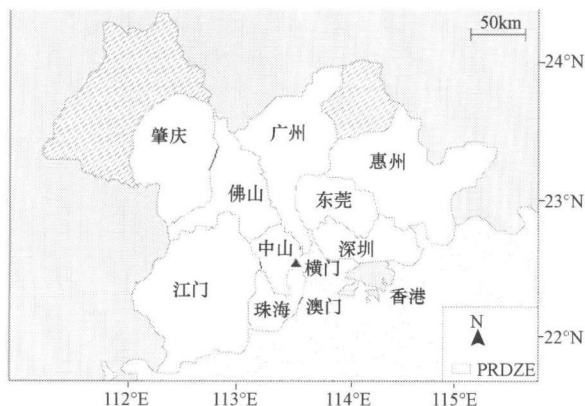


图1 横门监测点示意图

Fig. 1 Location of rainfall observation sites in Hengmen

场内,坐落于珠江河口,周围视野宽阔,在优化布点时充分考虑了此站点的代表性。采样时间为2007年3月~11月。

### 2.2 采样方法

降雨接收装置为自主研发的干湿沉降自动采集仪,可将干湿沉降自动分离采集,避免了干湿沉降的相互影响。沉降缸不定期用稀盐酸、蒸馏水清洗。每天早上9点收集湿沉降样品,降水量 $\leq 2$ mm,则丢弃;降雨量 $> 2$ mm,则装入预先经过处理的聚乙烯瓶,取一部分样品现场测定pH值、电导率,剩余样品放入冰箱于4℃冷藏贮存,并尽快完成测定。2007年3~11月在横门站共采集31个雨样。

### 2.3 测定方法

$\text{NO}_3^-$ -N和 $\text{NH}_4^+$ -N用瑞士万通公司生产的DX-100型离子色谱仪测定,测定过程均实施质量控制(国家环保总局, 2005),所有实验在广东省环境保护控制与修复重点实验室完成。

### 2.4 气团后向轨迹

本研究利用混合型单粒子拉格朗日综合轨迹(HYSPLIT)模式(Draxler *et al.*, 1997)和GDAS气象数据计算所需的气团后向轨迹。每次降雨相对应的湿沉降气团轨迹的起始时间尽可能选择靠近该次湿沉降过程的时间中间点,即尽可能选择湿沉降强度最大的时刻作为气团轨迹的起始时间,每隔6h计算1次,每个气团轨迹的后推时间为120h(即5d);高度分别为500m和3000m,用以反映云下输送过程和水汽输送过程气团的来源,利用后向轨迹对降雨云团以及云下输送气团进行分类。

## 3 结果(Results)

### 3.1 降水中氮浓度

采样期间2007年3~11月共采集31次降水样品,其中11月无降水。图2给出了研究期间2007年3~11月横门站31次降水中 $\text{NH}_4^+$ -N和 $\text{NO}_3^-$ -N的浓度变化。可以看出降水中 $\text{NH}_4^+$ -N和 $\text{NO}_3^-$ -N的浓度变化趋势大致相同,对两者的浓度关系进行相关分析,两者相关系数 $r$ 为0.76,以0.01的显著性水平进行检验,其概率 $p$ 值为0,达显著水平。从图2还可以看出,当 $\text{NH}_4^+$ -N和 $\text{NO}_3^-$ -N整体浓度水平偏低时,两者变化却呈相反趋势这与刘昌岭等(2003)在黄海的研究结论相似;如果在液相样品中有充足的O和 $\text{O}_3$ , $\text{NH}_4^+$ 会被氧化成亚硝酸盐和硝酸盐,有些细菌也会将 $\text{NH}_4^+$ 转化成 $\text{NH}_3$ 或 $\text{NO}_3^-$ (王明星,

1999), 因此, 降水中  $\text{NH}_4^+$  与  $\text{NO}_3^-$  有很好的相关性.

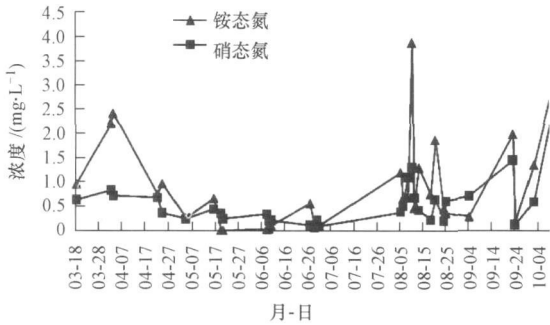


图 2 2007年 3~ 11月横门降水中  $\text{NH}_4^+$  和  $\text{NO}_3^-$  的浓度变化

Fig 2 Concentrations of nitrate and ammonium in precipitation samples collected at Hengmen Station from March 2007 to November 2007

研究期间, 横门降水中  $\text{NH}_4^+$ -N 和  $\text{NO}_3^-$ -N 的浓度变化范围分别为  $0.01 \sim 3.87 \text{ mg L}^{-1}$ 、 $0.09 \sim 3.19 \text{ mg L}^{-1}$ , 降水中  $\text{NH}_4^+$ -N 和  $\text{NO}_3^-$ -N 的算术平均浓度分别为  $0.91$ 、 $0.57 \text{ mg L}^{-1}$ , 降雨量加权平均浓度分别为  $0.62$  和  $0.41 \text{ mg L}^{-1}$ , 均低于其算术平均浓度, 表明了降雨对气态污染物和气溶胶的冲刷作用 (Beverland *et al.*, 1998). 将横门降水中  $\text{NH}_4^+$ -N 和

$\text{NO}_3^-$ -N 浓度与其它相似下垫面进行比较分析 (表 1), 横门降水中  $\text{NH}_4^+$ -N 和  $\text{NO}_3^-$ -N 浓度仅低于太湖和黄海, 但比长江口以及美国的 Barnegat Bay 和 Chesapeake Bay 都高 (张国森等, 2003; Russell *et al.*, 1998; Gao, 2002). 太湖属于内陆湖泊, 受人为活动影响很大, 因此其降水中  $\text{NH}_4^+$ -N、 $\text{NO}_3^-$ -N 浓度均处于较高水平 (宋玉芝等, 2005); 黄海海域作为半封闭海, 受内陆影响也较大, 特别是黄海处于西风带向北太平洋输送尘埃的下方, 受中国大陆北方黄土、沙漠的影响较大, 此外千里岩岛较高的降水中氮浓度还与北方的多风、干燥、植被覆盖率低引起土壤中营养元素较高的排放率有关 (刘昌岭等, 2003); 而东海是开阔的陆架海, 受陆地影响小, 降水中  $\text{NH}_4^+$ -N、 $\text{NO}_3^-$ -N 浓度也偏低; 相对而言, 横门所处的珠江口属于近海, 靠近城市, 受内陆人为活动影响也较大, 因此降水中  $\text{NH}_4^+$ -N、 $\text{NO}_3^-$ -N 浓度处于中等偏高水平. 另外,  $\text{NH}_4^+$ -N、 $\text{NO}_3^-$ -N 浓度的差别还与降雨量有关; 有研究表明, 元素浓度与降雨量基本呈负相关, 东海海域的年降水量几乎为黄海海域的 2 倍, 因此, 东海营养盐浓度较低 (万小芳等, 2002).

表 1 横门与其他相近下垫面降水中氮的浓度

Table 1 Concentration of nitrogen in precipitation samples in Hengmen and other similar landuse types

研究区域	$\text{NH}_4^+$ -N / ( $\text{mg L}^{-1}$ )	$\text{NO}_3^-$ -N / ( $\text{mg L}^{-1}$ )	研究时间	参考文献
横门	0.62	0.41	2007	本研究
太湖	1.44	0.76	2002~ 2003	宋玉芝等, 2005
黄海 (千里岩岛)	0.95	0.93	2000~ 2001	刘昌岭等, 2003
黑潮海域, 东海	0.13	0.13	2000~ 2001	万小芳等, 2002
长江口 (嵊泗群岛, 东海)	0.42	0.28	2000~ 2002	张国森等, 2003
Barnegat Bay NJ USA	0.26	0.41	1999~ 2001	Gao <i>et al.</i> , 1999
Chesapeake Bay, USA	0.19	0.30	1993~ 1994	Russell <i>et al.</i> , 1998

从氮浓度的季节变化来看, 横门降水中  $\text{NH}_4^+$ -N、 $\text{NO}_3^-$ -N 浓度均以秋季 (9~ 11月) 最高, 其次是春季 (3~ 5月), 夏季 (6~ 8月) 最小, 此规律与在东海、黄海等地 (张国森等, 2003) 的研究结论相似, 但与太湖的情况有所不同, 太湖水域降水中  $\text{NH}_4^+$ -N、 $\text{NO}_3^-$ -N 浓度以春季最高, 明显大于年平均浓度, 这主要是春季污染物较大的排放量以及气温回升的共同作用的结果 (王雪梅等, 2006). 而在横门, 如图 3 所示, 降雨量大, 则降水氮浓度低; 降雨量小, 则降水氮浓度高. 这是因为夏季降雨次数多且降雨量大, 对大气中气溶胶粒子的清除效率较高, 污染物在大气中存留的时间短, 故降水中  $\text{NH}_4^+$ -N、

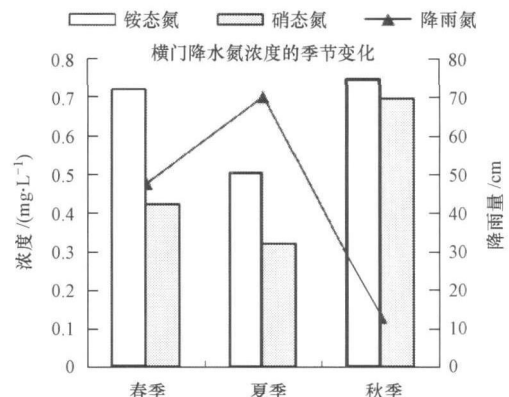


图 3 横门降水氮浓度的季节变化

Fig 3 Seasonal variations of nitrogen concentration of wet deposition at Hengmen

NO<sub>3</sub><sup>-</sup>-N 浓度较低; 而秋季降雨频率低, 降雨量小, 降水对大气中污染物的清除效率较低, 所以污染物在大气中存留的时间较长, 在降水中容易出现较高的浓度值. 图 4 给出了中山市各月风频图. 由图可以看出, 夏季主要吹偏南风, 由海洋吹向陆地, 受海洋的

影响较大; 秋季则以偏北风为主, 受陆地的影响较大; 春季则受偏北风和东南风的共同作用. 这说明, 横门降水中氮浓度不仅与降雨量有关, 还与测站的地理位置以及当地的气象条件有关.

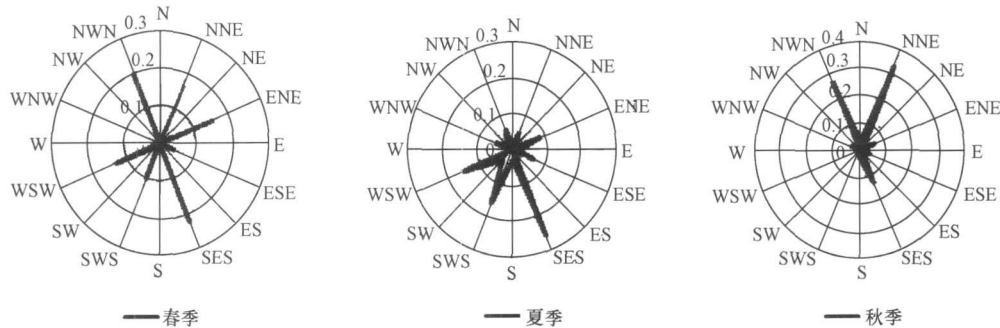


图 4 中山市各季节风频图

Fig 4 Frequency of winds in Zhongshan

将研究期间横门降水 pH 值与降雨量加权, 求得 pH 平均值是 4.41, 变化范围为 3.83~6.14. 程新金等 (1998) 针对降水的酸碱性以及酸性程度分类的界定, 根据 pH 值提出了 3 个界限值, 分别为 5.60, 5.00, 4.50. 按此分类, 研究期间横门 31 次降水中, 会对环境酸化造成明显影响的酸雨频率 (pH < 5.0) 为 74%, 会对环境酸化造成严重影响的重酸雨频率 (pH < 4.5) 为 43%, 而对环境酸化不会造成影响的湿沉降 (pH ≥ 5.6) 仅出现 4 次. 这表明横门酸沉降状况较为严重. 国内许多研究表明, 我国北方城市大气气溶胶浓度高、粒径大, 多为碱性, 对酸性降水具有很强的缓冲能力, 碱性气溶胶可与吸附在浮尘表面的致酸物及浮尘发生化学反应, 增高大气降水的 pH 值; 而南方城市大气气溶胶呈一定酸性, 对雨水酸化的缓冲能力较差, 会加重当地的酸雨危害 (吴兑, 2001; 2006). 同时, 南方的气候特点和大范围的酸性土壤也有利于酸雨的形成, 横门土壤 pH 值一般在 4.0~5.5 左右, 酸性较强, 酸性扬尘降低了大气气溶胶的碱性, 而大气颗粒物和 NH<sub>3</sub> 对致酸过程的缓冲中和作用较弱 (全文哲, 1992); 这可能是导致横门多酸雨且酸化严重的原因之一, 与吴兑 (1996, 2000, 2005) 多年来在广州、南岭等华南地区的研究结论也相似. 另外, 横门降水中 NH<sub>4</sub><sup>+</sup>、NO<sub>3</sub><sup>-</sup> 浓度随降水 pH 值减小而增大, 说明氮沉降对该地酸雨的形成有一定的贡献. 这种远离城市及工业区域的高氮酸沉降状况在美国东部海岸区域也同样存在 (Parel *et al.*, 1994). Paerl

等 (1985) 还指出, 相对于中性降雨而言, 伴随着高氮浓度的酸性降雨可以刺激初级生产力的增长, 从而可能给水生生态系统带来负面效应, 这可能是引起水域富营养化的重要原因之一.

### 3.2 无机氮湿沉降通量

根据横门降水中 NH<sub>4</sub><sup>+</sup>-N 和 NO<sub>3</sub><sup>-</sup>-N 的浓度及对应的降雨量, 可求得无机氮湿沉降通量. 2007 年 3 月~11 月期间横门降水中 NH<sub>4</sub><sup>+</sup>-N 和 NO<sub>3</sub><sup>-</sup>-N 总沉降通量分别为 5.72 和 4.20 kg·hm<sup>-2</sup>, 估算可得横门降水中总无机氮的年均输入量为 13.23 kg·hm<sup>-2</sup>. 图 5 给出了横门降水中 NH<sub>4</sub><sup>+</sup>-N 和 NO<sub>3</sub><sup>-</sup>-N 沉降通量的月变化, NH<sub>4</sub><sup>+</sup>-N 月沉降通量的变化范围为 0.07~2.05 kg·hm<sup>-2</sup>, 其中夏季 NH<sub>4</sub><sup>+</sup>-N 月均沉降通量为

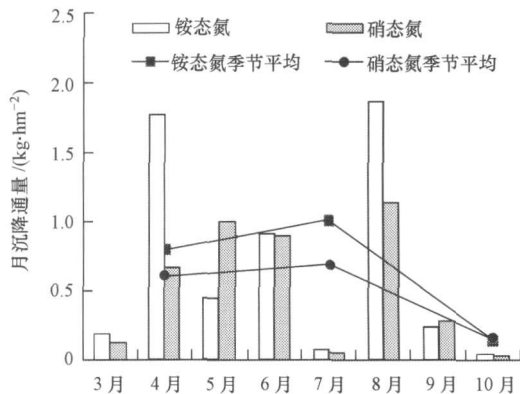


图 5 横门降水氮沉降通量的月变化

Fig 5 Seasonal variations of wet deposition nitrogen fluxes in Hengmen

1.01 kg hm<sup>-2</sup>, 约为秋季相应值 (0.14 kg hm<sup>-2</sup>) 的 7 倍, NO<sub>3</sub><sup>-</sup>-N 月沉降通量的变化范围为 0.03~1.14 kg hm<sup>-2</sup>. 也以夏季的月均沉降量 (0.69 kg hm<sup>-2</sup>) 最大, 约为秋季的 4.4 倍. 这与美国 Bamegat Bay, Delaware Bay 及 Chesapeake Bay 等地的研究结论一致 (Gao, 2002; Scudlark and Church, 1993; Russell *et al.*, 1998). 夏季氮的高沉降通量不仅与排放源的强度有关, 还与污染物的清除机制有关. 一般在暖季, NO<sub>x</sub> 和 NH<sub>3</sub> 的排放量较大, 而且降雨量大、降雨频率高, 空气中的污染物主要以降水的形式得以清除, 因此, 夏季氮的湿沉降通量处于较高水平.

总体而言, 横门降水氮沉降通量的季节变化规律表现为春夏季高、秋季低, 太湖 NH<sub>4</sub><sup>+</sup>-N 和 NO<sub>3</sub><sup>-</sup>-N 的湿沉降通量也具有相似的季节性分布 (宋玉芝, 2005), 而在长江口, 降水氮沉降通量秋冬大于春夏 (张国森等, 2003), 与珠江口的结论刚好相反. 长江口的降雨虽然也主要集中在夏季 (刘昌岭, 2003), 但受风向及不同的污染物来源和降水量等因素影响, 造成秋冬季沉降通量较大; 由此可以看出, 与长江口相比, 珠江口降水氮沉降通量的季节变化受降雨量的影响比较大, 而长江口受外来源输入的影响较大.

### 3.3 大气输送对珠江口无机氮湿沉降的影响

大气输送过程决定了气团的来源路径, 而气团的来源路径会对氮沉降产生影响, Gallway (1983)、Avila (1999) 和 Harrison (2000) 等的研究结果均表明, 陆地来源的气团通常会导致高氮沉降. 为了对珠江口氮湿沉降来源进行追踪, 利用后向轨迹模式计算横门站 3~11 月中 31 次降雨过程 3000m 内 5d

的后向轨迹, 每 6h 计算 1 次, 并将气团按其运动轨迹分类, 如图 6 所示.

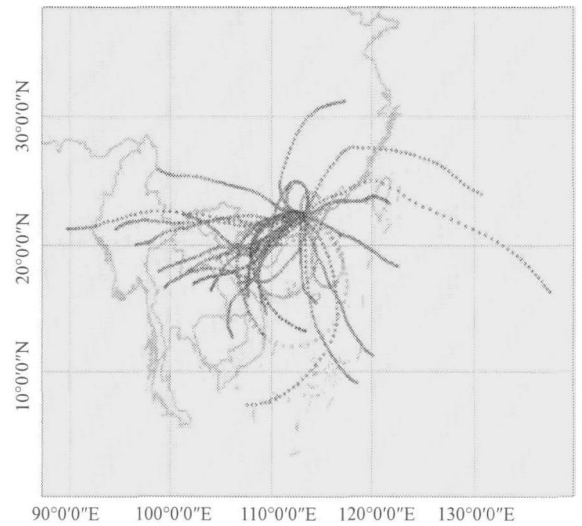


图 6 横门降水后向轨迹模拟

Fig. 6 Back trajectory simulations of air masses

对各类降水平均氮浓度与氮沉降通量进行计算, 如表 2 所示. 由表 2 可见, 研究期间, 影响横门降水的云团可分为 3 类: 来自西、北方向的陆地性降雨云团, 来自西南、东南方向的海洋性降雨云团, 以及传输过程中发生了强气旋或反气旋现象的 C/AC 类降雨云团 (Cyclone/Anticyclone). 其中海洋性降雨总降雨量为 396mm, 降雨频率占总降雨场次的 64.5%; 陆地性降雨总降雨量为 122.5mm, 降雨频率为 19.4%; C/AC 类总降雨量为 59.5mm, 降雨频率为 16.1%.

表 2 横门各类降水平均氮浓度与氮沉降通量

Table 2 Average nitrogen concentration and deposition flux of three kinds of precipitation

地点	气团类型	平均浓度 / (mg L <sup>-1</sup> )		沉降通量 / (kg hm <sup>-2</sup> )		降雨量 /mm	降水 pH 值
		NH <sub>4</sub> <sup>+</sup> -N	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup> -N	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup> -N	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup> -N		
横门	海洋性	0.40	0.36	1.59	1.41	396.0	4.50
	陆地性	1.17	0.52	1.43	0.64	122.5	4.36
	C/AC	0.91	0.51	0.54	0.30	59.5	4.19

3 类降水中 C/AC 类降水 pH 值最低, 为 4.19, 其次是陆地性降水, 为 4.36, 海洋性降水最高, 为 4.50. 这与泰山的情况有所不同 (王艳等, 2006), 泰山不同类型降水气团中, 来自西北方向的气团离子浓度高, 但降水酸性较弱, 主要是由于北方土壤呈碱性, 大气中携带的大量碱性物质, 中和了降水中的酸性物质, 但珠江口所处的华南地区, 土壤呈酸

性, 且气溶胶也偏酸性, 对降水酸度的中和作用较弱 (吴兑等, 2006), 因此该地区陆地性降水酸度较强, 而 C/AC 类降水 pH 值低主要是由气旋和反气旋自身运动特点所决定的, 气团携带的污染物在气旋或反气旋的旋转作用下, 不易沉降到地面, 当降水形成时则被冲刷下来导致降水酸性强.

由各类降水中平均氮浓度的计算结果可知, 陆

地性降水平均氮浓度最高, 其  $\text{NH}_4^+ - \text{N}$  和  $\text{NO}_3^- - \text{N}$  的平均浓度分别为  $1.17$  和  $0.52 \text{ mg L}^{-1}$ , 分别为海洋性降水的  $2.93$  倍和  $1.44$  倍; 其次是 C/AC 类降水, 其  $\text{NH}_4^+ - \text{N}$  和  $\text{NO}_3^- - \text{N}$  的平均浓度分别为  $0.91$  和  $0.51 \text{ mg L}^{-1}$ , 分别为海洋性降水的  $2.28$  倍和  $1.42$  倍; 海洋性降水中氮浓度最低. 而由于在观测期间, 横门降水以海洋性居多, 降雨频率为  $64.5\%$ , 总降雨量为  $396 \text{ mm}$ , 因此, 氮沉降通量最大的为海洋性降水, 其  $\text{NH}_4^+ - \text{N}$  和  $\text{NO}_3^- - \text{N}$  的沉降通量分别为  $1.59$  和  $1.41 \text{ kg hm}^{-2}$ ; 其次是陆地性降水,  $\text{NH}_4^+ - \text{N}$  和  $\text{NO}_3^- - \text{N}$  的沉降通量分别为  $1.43$  和  $0.64 \text{ kg hm}^{-2}$ ; C/AC 类降水由于降雨量小, 其降水氮沉降通量也最小. 由此可知, 横门氮湿沉降中, 贡献最大的是海洋性降水, 其次为陆地性降水, C/AC 类降水贡献较小. 但是, 由于在观测期间, 横门降水以海洋性居多, 降雨频率为  $64.5\%$ , 总降雨量为  $396 \text{ mm}$ , 而陆地性降水的总降雨量不大, 因此陆地性降水对横门氮沉降负荷并不起最主要作用, 其  $\text{NH}_4^+ - \text{N}$  和  $\text{NO}_3^- - \text{N}$  的沉降通量分别为  $1.43$  和  $0.64 \text{ kg hm}^{-2}$ ; 氮沉降通量最大的为海洋性降水, 其  $\text{NH}_4^+ - \text{N}$  和  $\text{NO}_3^- - \text{N}$  的沉降通量分别为  $1.59$  和  $1.41 \text{ kg hm}^{-2}$ ; C/AC 类降水由于降雨量小, 其对横门氮湿沉降的贡献较小. 综上所述可知, 横门氮湿沉降中, 贡献最大的是海洋性降水, 其次为陆地性降水, C/AC 类降水贡献较小. 陆地性降水与 C/AC 类降水虽然对珠江口降水氮沉降负荷的贡献并不大, 然而由于其在降水中浓度高, 对当地生态系统的危害不容忽视. 将研究期间分成春季 ( $3 \sim 5$  月)、夏季 ( $6 \sim 8$  月) 和秋季 ( $9 \sim 11$  月) 进行研究, 如图 7 所示, 横门降水春、夏季以海洋性降水为主, 秋季则以 C/AC 类降水为主.

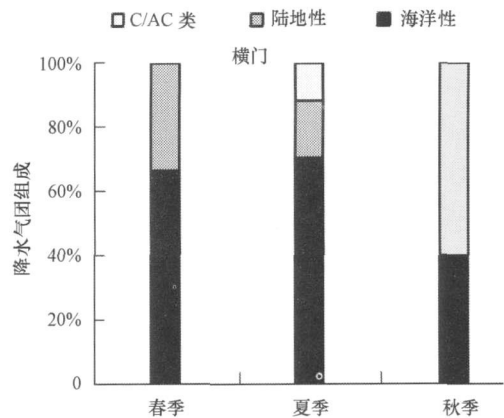


图 7 各类降水气团组成的季节性变化

Fig. 7 Seasonal variations of compositions of precipitation types

### 3.4 云下气团输送及降雨中无机氮的来源分析

上述根据高空气流后向轨迹分析了不同云团迁移过程对横门降水氮的影响, 由于横门所在的珠江口属亚热带季风湿润型气候, 夏半年对流层中上层西南气流和西北气流较弱, 对对流层下层气流的引导作用不强, 因此, 有时会造成对流层下层气流轨迹与对流层中上层不同的现象. 一般对流层以上盛行东北风, 近地层盛行偏南风. 珠江口降水受季风的支配, 大多数降雨均为中小雨, 且降雨频率高、降雨时间长, 这样的降雨特点增加了云下冲刷效率. 据前文分析, 研究期间横门海洋性降水对氮湿沉降影响较大, 为了进一步研究降水对不同云下气团的冲刷作用, 针对各类降水, 绘出其  $500 \text{ m}$  高度的气流后向轨迹, 以表征云下气流的输送. 将云下气团的输送分为 2 类: 来自 NE 方向的输送 (NE 类) 和来自 SW 方向的输送 (SW 类), 由此计算出这 2 类云下气团输送降雨离子平均浓度及总沉降量, 如表 3 所示.

表 3 横门各类型云下气团平均氮浓度与氮沉降通量

Table 3 Average nitrogen concentration and deposition fluxes of two types of air masses in three kinds of precipitation

地点	气团类型	云下气团	平均浓度 / ( $\text{mg L}^{-1}$ )		沉降通量 / ( $\text{kg hm}^{-2}$ )		降雨量 / $\text{mm}$
			$\text{NH}_4^+ - \text{N}$	$\text{NO}_3^- - \text{N}$	$\text{NH}_4^+ - \text{N}$	$\text{NO}_3^- - \text{N}$	
横门	海洋性	NE	0.73	0.55	1.07	0.82	147.5
		SW	0.21	0.24	0.52	0.60	248.5
	陆地性	NE	1.48	0.55	0.97	0.36	65.5
		SW	0.82	0.48	0.47	0.27	57.0
	C/AC 类	NE	1.90	1.10	0.38	0.22	20.0
		SW	0.41	0.22	0.16	0.08	39.5

由表 3 可见, 无论是哪一类降水气团, 其 NE 类云下气团中  $\text{NO}_3^- - \text{N}$  和  $\text{NH}_4^+ - \text{N}$  的沉降浓度及沉降通

量都远大于 SW 类, 降水中  $\text{NH}_4^+ - \text{N}$  和  $\text{NO}_3^- - \text{N}$  的浓度均以 C/AC 性 NE 类最大, 分别为  $1.90$  和  $1.10$

$\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$ ; 降水中  $\text{NH}_4^+-\text{N}$  浓度最小的为海洋性 SW 类,  $\text{NO}_3^--\text{N}$  浓度最小的是 C/AC 性 SW 类。这说明, 横门降水  $\text{NO}_3^--\text{N}$  与  $\text{NH}_4^+-\text{N}$  的高浓度同样受到外源输送的影响, 特别是气旋/反气旋条件下, 易将周边城市污染物携带至横门, 经降水冲刷, 导致该类降水中氮浓度最高。

从沉降通量来看, 海洋性 NE 类气团对横门无机氮沉降负荷贡献最大,  $\text{NH}_4^+-\text{N}$  和  $\text{NO}_3^--\text{N}$  的沉降通量分别占总沉降量的 30.1% 和 34.7%, 而 C/AC 性 SW 类负荷最小, 占总沉降负荷的 4.5% 和 3.6%。

#### 4 结论 (Conclusions)

1) 通过对 2007 年 3~11 月横门站降雨中无机氮分析, 研究期间横门  $\text{NH}_4^+-\text{N}$  和  $\text{NO}_3^--\text{N}$  的降雨量加权平均浓度分别为  $0.91$  和  $0.57 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ ; 对  $\text{NH}_4^+-\text{N}$  和  $\text{NO}_3^--\text{N}$  的浓度关系进行拟合, 两者呈显著正相关; 从氮浓度的季节变化来看, 以秋季最高, 其次是春季, 夏季最低。

2) 研究期间横门降水  $\text{NH}_4^+-\text{N}$  和  $\text{NO}_3^--\text{N}$  总沉降通量分别为  $5.72$  和  $4.20 \text{ kg} \cdot \text{km}^{-2}$ , 其季节变化规律均表现为春夏季高, 秋冬季低。

3) 利用气团后向轨迹以及天气形势将横门的降水分为 3 类, 陆地性降水、海洋性降水和 C/AC (气旋/反气旋) 类; 其中陆地性降水氮浓度最高, 海洋性降水氮沉降通量最高。

4) 无论是哪一类降水气团, 其 NE 类云下气团中  $\text{NH}_4^+-\text{N}$  和  $\text{NO}_3^--\text{N}$  的沉降浓度及沉降通量都远大于 SW 类, 其中海洋性 NE 类气团对横门无机氮湿沉降负荷贡献最大,  $\text{NH}_4^+-\text{N}$  和  $\text{NO}_3^--\text{N}$  的沉降通量分别占总沉降量的 30.1% 和 34.7%, 而 C/AC 性 SW 类负荷最小, 占总沉降负荷的 4.5% 和 3.6%。

责任作者简介: 王雪梅 (1969—), 女, 副教授, 博士, 主要从事大气污染物输送与扩散, 大气光化学污染研究, E-mail: eeswxm@mail.sysu.edu.cn

#### 参考文献 (References):

- Avila A, Añón M. 1999 Relationship between precipitation chemistry and meteorological situations at a rural site in NE Spain [J]. *Atmospheric Environment* 33: 1663—1677
- Beverland IJ, Crowther JM, Srinivas SN, et al. 1998. The influence of meteorology and atmospheric transport patterns on the chemical composition of rainfall in south-east England [J]. *Atmospheric Environment* 32: 1039—1048
- 程新金, 黄美元. 1998 降水化学特性的一种分类分析方法 [J]. *气候与环境研究*, 3(1): 82—88
- Chen X J, Huang M Y. 1998 A classification method to analyze the chemical characteristics of precipitation [J]. *Climatic and Environmental Research*, 3(1): 82—88 (in Chinese)
- Daxler R R, Hess G D. Description of the HYSPLIT\_4 modeling system [EB/OL]. Maryland NOAA Technical Memorandum ERL ARL-224, December 1997 (Revised August 1998). <http://www.villanunta.it/pdf/arl-224.pdf>
- Galloway J N, Knap A H, Church T M. 1983. The composition of Western Atlantic precipitation using shipboard collectors [J]. *Journal of Geophysical Research*, 88: 10859—10864
- Gao Y. 2002 Atmospheric nitrogen deposition to Bamegat Bay [J]. *Atmospheric Environment* 36: 5783—5794
- 国家环保总局. 2005. HJ/T165-2004 中华人民共和国环境保护行业标准: 酸沉降技术规范 [S]. 北京: 中国环境科学出版社
- State Environmental Protection Administration of China. 2005. HJ/T165-2004, Environmental Protection Occupation Standards of China Technical Specifications for acid deposition monitoring [S]. Beijing: China Environmental Science Press (in Chinese)
- Harrison R M, Grenfell J L, Peak J D, et al. 2000 Influence of air mass back trajectory upon nitrogen compound composition [J]. *Atmospheric Environment* 34: 1519—1527
- 胡正义, 王体健, 曹志洪, 等. 2001 大气干沉降向农田生态系统输入硫素通量定位观测研究 [J]. *土壤学报*, 38(3): 357—364
- Hu Z Y, Wang T J, Cao Z H, et al. 2001. Study on S input via atmospheric dry deposition into agroecosystem [J]. *Journal of Soil* 38(3): 357—364 (in Chinese)
- 林雨霏, 刘素美, 纪雷, 等. 2005. 舟山群岛降水中阴离子及 pH 值的特征分析 [J]. *环境科学*, 26(5): 49—54
- Lin Y F, Liu S M, Ji L, et al. 2005. Characteristic Analysis on the Anions and pH Profiles of Rainwater of Zhoushan Archipelago [J]. *Environmental Science* 26(5): 49—54 (in Chinese)
- 刘昌岭, 陈洪涛, 任宏波, 等. 2003 黄海及东海海域大气湿沉降 (降水) 中的营养元素 [J]. *海洋环境科学*, 22(3): 26—30
- Liu C L, Chen H T, Ren H B, et al. 2003. Nutrient elements in wet deposition (precipitation) from the Yellow Sea and the East China Sea regions [J]. *Marine Environmental Science*, 22(3): 26—30 (in Chinese)
- Lee B K, Hong S H, Lee D S. 2000. Chemical composition of precipitation and wet deposition of anions on the Korean peninsula [J]. *Atmospheric Environment* 34(4): 563—575
- Noman M, Das S N, Plakia G, et al. 2002. Influence of air mass trajectory on the chemical composition of precipitation in India [J]. *Atmos Environ* 35: 4223—4235
- Parell H W. 1985. Enhancement of marine primary production by nitrogen enriched acid rain [J]. *Nature*, 315: 747—749
- Parell H W, Fogel M L. 1994. Isotopic characterization of atmospheric nitrogen inputs as sources of enhanced primary production in coastal Atlantic Ocean waters [J]. *Marine Biology*, 119: 635—645
- Parell H W, Whitall D R. 1999. Anthropogenically-derived atmospheric nitrogen deposition, marine eutrophication and harmful algal bloom expansion: is there a link? [J]. *Ambio*, 28: 307—311
- 全文哲, 冯少英, 陆小安. 1992 广州市酸雨现状与发展趋势研究

- [J]. 上海环境科学, 11(1): 20—23
- Quan W Z, Feng S, Lu X A. 1992. Study on the status and trend of acid Rain in Guangzhou [J]. Shanghai Environmental Science, 11(1): 20—23 (in Chinese)
- Russell K M, Galloway J N, Macko S A, *et al*. 1998. Sources of nitrogen in wet deposition to the Chesapeake Bay region [J]. Atmospheric Environment, 32: 2453—2465
- Scudlark J R, Church T M. 1993. Atmospheric input of inorganic nitrogen to Delaware bay [J]. Estuaries, 16: 747—759
- Seto S, Nakamura A, Noguchi J *et al*. 2002. Annual and seasonal trends in chemical composition of precipitation in Japan during 1989—1998 [J]. Atmospheric Environment, 36(21): 3505—3517
- 宋玉芝, 秦伯强, 杨龙元, 等. 2005. 大气湿沉降向太湖水生生态系统输送氮的初步估算 [J]. 湖泊科学, 17(3): 226—230
- Song Y Z, Qin B Q, Yang L Y, *et al*. 2005. Primary estimation of atmospheric wet deposition of nitrogen to aquatic ecosystem of Lake Taihu [J]. Journal of Lake Science, 17(3): 226—230 (in Chinese)
- Spokes L J, Jickells T D. 2005. Is the atmosphere really an important source of reactive nitrogen to coastal waters [J]. Continental Shelf Research, 25: 2022—2035
- 苏福庆, 任阵海, 高庆先, 等. 2004. 北京及华北平原边界层大气中污染物的汇集系统——边界层输送汇 [J]. 环境科学研究, 17(1): 21—25
- Su F Q, Ren Z H, Gao Q X, *et al*. 2004. Convergence system of air contamination in boundary layer above Beijing and North China transportation convergence in boundary layer [J]. Research of Environmental Sciences, 17(1): 21—25 (in Chinese)
- 王明星. 1999. 大气化学 [M]. 北京: 气象出版社, 408—409
- Wang M X. 1999. Atmospheric Chemistry [M]. Beijing Meteorological Press, 408—409 (in Chinese)
- 王雪梅, 韩志伟. 2000. 重庆市不同天气型下地面  $\text{SO}_2$  浓度分布 [J]. 中山大学学报(自然科学版), 39(5): 91—96
- Wang X M, Han Z W. 2000. Surface  $\text{SO}_2$  Concentration distribution of Chongqing in different weather types [J]. Acta Scientiarum Naturalium Universitatis Sunyatseni, 39(5): 91—96 (in Chinese)
- 王雪梅, 杨龙元, 秦伯强, 等. 2006. 春季太湖水域无机氮湿沉降来源初探 [J]. 中山大学学报(自然科学版), 45(4): 93—97
- Wang X M, Yang L Y, Qing B Q, *et al*. 2006. Sources of inorganic nitrogen in wet deposition in Taihu Lake in Spring [J]. Acta Scientiarum Naturalium Universitatis Sunyatseni, 45(4): 93—97 (in Chinese)
- 王艳, 葛福玲, 刘晓环, 等. 2006. 泰山降水化学及大气传输的研究 [J]. 环境科学学报, 26(7): 1187—1194
- Wang Y, Ge F L, Liu X H, *et al*. 2006. Study on the precipitation chemistry and atmospheric transport at the Mount Taishan [J]. Acta Scientiae Circumstantiae, 26(7): 1187—1194 (in Chinese)
- 王自发, 黄美元, 高会旺, 等. 1998. 关于我国和东亚酸性物质的输送研究 II. 硫化物浓度空间分布特征及季节变化 [J]. 大气科学, 22(5): 693—700
- Wang Z F, Huang M Y, Gao H W, *et al*. 1998. Studies on transport of acid substance in China and east asia part II spatial distribution of sulfur and its seasonal variation [J]. Scientia Atmospherica Sinica, 22(5): 693—700 (in Chinese)
- 万小芳, 吴增茂, 常志清, 等. 2002. 南黄海和东海海域营养盐等物质的大气入海通量的再分析 [J]. 海洋环境科学, 21(4): 14—18
- Wan X F, Wu Z M, Chang Z Q, *et al*. 2002. Reanalysis of atmospheric flux of nutrients to the South Yellow Sea and the East China Sea [J]. Marine Environmental Science, 21(4): 14—18 (in Chinese)
- 吴兑, 邓雪娇, 范绍佳, 等. 2005. 南岭大瑶山雾区锋面降水的雨水化学成分研究 [J]. 中山大学学报, 44(6): 105—109
- Wu D, Deng X J, Fan S J, *et al*. 2005. Rain-water chemical composition of frontal rainfall in fog-sector at Dayaoshan of the Nanling Mountains [J]. Acta Scientiarum Naturalium Universitatis Sunyatseni, 44(6): 105—109 (in Chinese)
- 吴兑, 邓雪娇, 黄浩辉. 2000. 广州地区 1994 年 6 月洪涝期间降水的物理化学特征 [J]. 大气科学, 22(2): 228—234
- Wu D, Deng X J, Huang H H. 2000. The physical and chemical features of heavy rain over Guangzhou area in June 1994 [J]. Scientia Atmospherica Sinica, 22(2): 228—234 (in Chinese)
- 吴兑, 邓雪娇, 叶燕翔, 等. 2006. 岭南山地气溶胶物理化学特征研究 [J]. 高原气象, 25(5): 877—885
- Wu D, Deng X J, Huang H H, *et al*. 2006. A study on the physical and chemical features of aerosols in the area South of the Nanling Mountains [J]. Plateau Meteorology, 25(5): 877—885 (in Chinese)
- 吴兑, 黄浩辉, 邓雪娇. 2001. 广州黄埔工业区近地层气溶胶分级水溶性成分的物理化学特征 [J]. 气象学报, 59(2): 213—219
- Wu D, Huang H H, Deng X J. 2001. The physical and chemical features of water-soluble composition of graded aerosols in the surface-layer over Huangpu industrial area in Guangzhou [J]. Acta Meteorologica Sinica, 59(2): 213—219 (in Chinese)
- 吴兑, 游积平, 陈位超, 等. 1996. 广州春季锋面降水的物理化学特征 [J]. 气象学报, 54(2): 175—184
- Wu D, You J P, Chen W C, *et al*. 1996. The Physical and chemical characteristics of a spring frontal rainfall in Guangzhou [J]. Acta Meteorologica Sinica, 54(2): 175—184 (in Chinese)
- 吴甫成, 吴君维, 王晓燕, 等. 2000. 湖南酸雨污染特征 [J]. 环境科学学报, 20(6): 807—809
- Wu F C, Wu J W, Wang X Y, *et al*. 2000. Study on acid rain pollution in Hunan Province [J]. Acta Scientiae Circumstantiae, 20(6): 807—809 (in Chinese)
- 吴玉霞, 沈志来, 黄美元. 1998. 东海海域春季降水的化学特征 [J]. 环境科学学报, 18(4): 363—366
- Wu Y X, Shen Z L, Huang M Y. 1998. Chemical character of spring precipitation over the east sea region [J]. Acta Scientiae Circumstantiae, 18(4): 363—366 (in Chinese)
- 张国森, 陈洪涛, 张经, 等. 2003. 长江口地区大气湿沉降中营养盐的初步研究 [J]. 应用生态学报, 14(7): 1107—1111
- Zhang G S, Chen H T, Zhang J, *et al*. 2003. Nutrient elements in the atmospheric wet deposition in Changjiang River estuary [J]. Chinese Journal of Applied Ecology, 14(7): 1107—1111 (in Chinese)
- Zhang J, Liu M G. 1994. Observations on nutrient elements and sulphate in atmospheric wet depositions over the northwest Pacific coastal oceans-Yellow Sea [J]. Marine Chemistry, 47: 173—189