

毕节市七星关区若干点位大气 无机氮湿沉降特点及通量估算

江秋群 马晶 张华应 蒙停 左芳文 李仰征¹

(贵州工程应用技术学院 生态工程学院, 贵州 毕节 551700)

【摘要】: 在毕节市七星关区城市功能差异明显的地域布置大气湿沉降采集器, 检测了三类无机氮指标(氨氮、亚硝态氮和硝态氮), 研究表明:①氨氮湿沉降通量最大值主要集中在夏季, 全年湿沉降最大点位是热电站, 月均达到了 $15.73\text{mg}/\text{m}^2$ 。由城市核心区向城郊方向, 沉降通量明显递减的趋势表明氨氮污染源主要来自于城市。②拥军路硝态氮沉降量超过热电站, 月均达到 $5.29\text{mg}/\text{m}^2$, 而与其空间毗邻的非公路路域的人民公园样点沉降量则显著偏小, 这表明公路路域是硝态氮的主要沉降区域, 这与石油中微量氮素的燃烧并以氧化态的(亚)硝态氮排放有关。西南地域氨硝比多大于 1, 是高原环境积温低和当地城市交通与工业经济欠发达等因素共同导致的。③大气中亚硝态氮与硝态氮有相似的污染来源。所有样点亚硝态氮冬季湿沉降通量比秋季大。④以 DIN 占 TDN 为 50%比率估算, 七星关区全年总氮湿沉降通量为 $2.61\text{kg}/\text{hm}^2$ 。

【关键词】: 无机氮 湿沉降 通量估算 七星关区

【中图分类号】: K903, P427 **【文献标识码】:** A **【文章编号】:** 1003-6563(2020)02-0068-07

0 引言

大气中的氮素主要以湿沉降的方式返还地表。近年来, 随着人类经济社会活动的增强导致湿沉降通量出现了异常, 这不仅会造成氮素循环的失衡, 也会对地表生态环境产生深远影响。因此, 近些年该领域得到了学界的广泛关注^[1-4]。国内研究则多集中在京^[5,6]、沪^[7,8]和渝^[9,10]等大中城市和农田地域系统^[11-13]。对生态环境脆弱与敏感区^[14-17]的研究还相对匮乏。我国西南地区喀斯特地貌发育充分, 无论在自然环境条件还是人文社会经济等方面与其他非岩溶区都存在着显著的差异。其大气氮沉降通量及氮形态构成如何, 以及季节变异特点与规律等问题都是非常值得研究和关注的。但是, 岩溶区氮沉降研究薄弱, 仅有 3 篇报道^[18-20]。因此, 在毕节市七星关开展相关研究, 旨在丰富氮沉降理论研究, 并为岩溶山区大气环境质量与地表生态系统保护提供科学依据。

1 材料与方法

1.1 研究区概况

毕节市七星关区位于贵州西北部, 为滇东高原向黔中山原过渡地带, 平均海拔约 1500m, 出露岩石以灰岩为主, 岩溶地貌发育充分。区域属亚热带高原季风气候, 年均温 13°C 、降水量 900mm(图 1)。在七星关建成区选择城市功能差异明显的微域若干,

作者简介: 江秋群(1994-), 女, 贵工程地理科学专业学生。李仰征(1979-), 男, 副教授, 主要从事自然地理教学与研究。

基金项目: 贵州工程应用技术学院大学生创新创业训练计划项目(201610668028)。

涵盖有文教区(贵州工程应用技术学院, 简称贵工程)、工业区(贵州华电毕节热电有限公司, 简称热电站)、城市核心区(居民休憩绿地人民公园与城市中心交通主干道拥军路)、城郊休闲区(阳山公园与碧阳湖), 并在距主城区约 8km 布置一个背景对样点(鸭池镇核桃村), 对照点远离硬化公路且周边无规模以上排污企业, 村民经济活动主要为农作物种植。

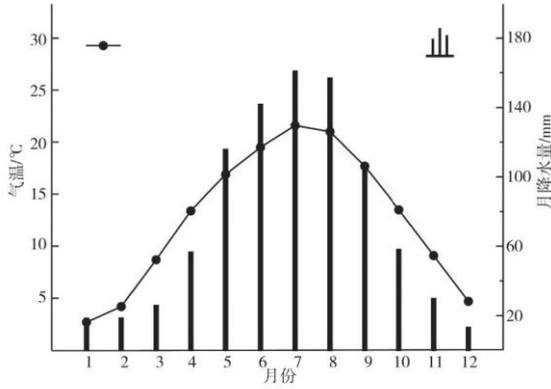


图 1 降水与气温逐月分布图

1.2 样点空间分布及湿沉降采集

样点分布与湿沉降采样器分别见图 2、图 3。采样装置上有纱布包裹漏斗圆口, 中部为 PVC 内外管, 内管填充已活化的阴阳离子交换树脂, 外管裹有反光隔热膜, 底部用脱脂棉封紧并用纱布抄底。将采样器垂直固定于电杆、枯树、栅栏或房顶等上部无他物遮挡、周围区域相对空旷的承载物上, 每个样点设 3 个平行。由于湿沉降采样器构造简单轻巧、野外布点隐蔽不易被他人察觉和破坏, 且湿沉降占据氮沉降通量的绝大部分(80%~90%)^[21-23], 故只对湿沉降进行监测与分析。分季节布点与回收实验:2017 年 6 月 18 日—8 月 25 日(夏季)、2017 年 9 月 18 日—11 月 26 日(秋季)、2017 年 11 月 27 日—2018 年 1 月 20 日(冬季)和 2018 年 2 月 3 日—2018 年 4 月 5 日(春季)。

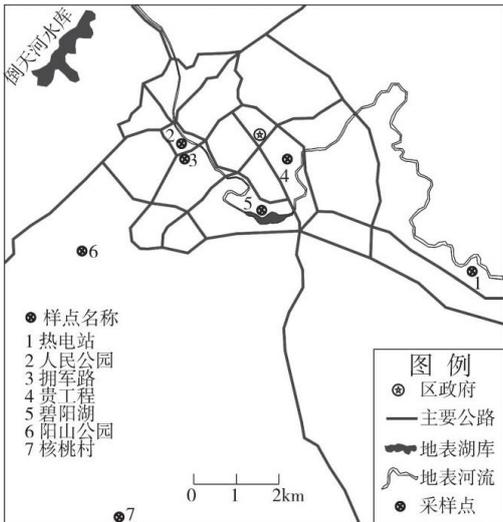


图 2 样点分布图

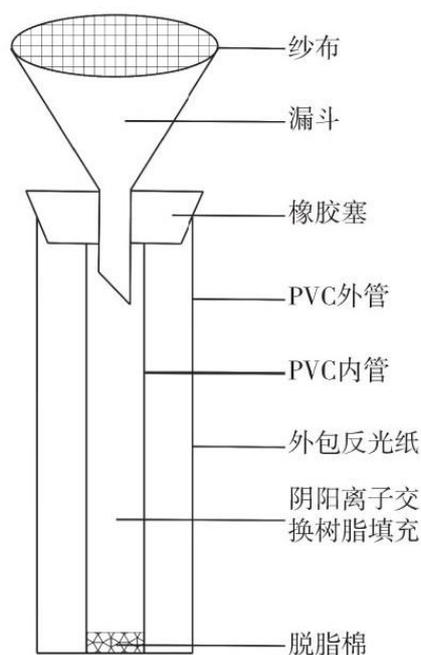


图 3 样品采样器结构图

1.3 检测方法与数据处理

取回采集器回收树脂后进行蒸馏水清洗、氯化钾浸提等步骤后定容备检。氨态氮、硝态氮和亚硝态氮分别采用纳氏比色法、酚二磺酸光度法和 N-(1-萘基)-乙二胺光度法测定。湿沉降通量的计算公式为：

$$M = \frac{C \times V}{T \times S} \times 30$$

其中：M 为某形态氮月沉降通量(以 30 天计)，C 和 V 分别为定容后待测浸提液的浓度和体积，T 为采集器户外布置天数，S 为漏斗口汇集面积。

2 结果与讨论

2.1 大气氨氮沉降特征

氨氮是自然界中以游离氨(NH₃)和铵离子(NH₄⁺)形式存在的氮。季节差异方面，几乎所有样点均表现为夏季氨氮沉降最大的特点(拥军路例外，出现在春季)。非降水条件下大气含氨的气溶胶长期飘浮难以沉降，降水凝结作用一方面可使各类微粒作为水汽集聚的凝结核，另一方面水滴冲并作用也可使其以湿沉降的形式降落至地表。毕节地区是典型的亚热带季风湿润气候，降水季节差异明显(图 1)，这导致夏季氨氮沉降量最大。这与其他地域研究结果是基本一致的：如崔健^[24]发现氨氮沉降通量与月降水量显著相关，贾钧彦^[14]对藏东南林芝、杨开军^[25]对都江堰林场和王圣杰^[15]对天山地区等许多研究均发现夏季为氨氮沉降通量最大的季节。此外，氨氮主要源于微生物蛋白酶对有机物的分解，夏季高温环境是有利于腐生菌增殖的，如源自植物体腐解挥发氮累计可占植株总氮的 20%以上^[12]。

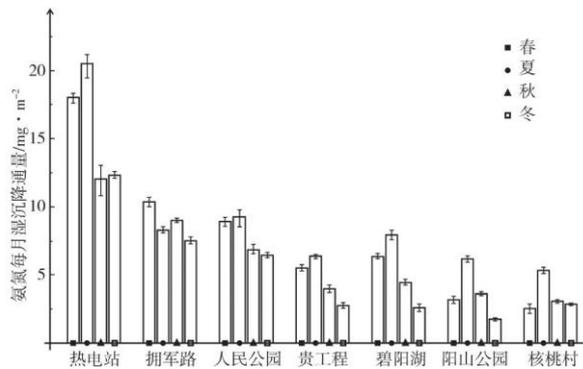


图4 大气氨氮月湿沉降通量

空间分布方面，七星关区不同城市功能区湿沉降量差异显著：热电站的氨氮沉降为所有样点的最大值，月均达到了 $15.73\text{mg}/\text{m}^2$ 。虽然煤炭中的氮素燃烧是以氮氧化物排放，不会产生还原态的氨氮，但热电站在烟气脱硝流程中使用了催化还原工艺，由于该工艺成本较低且脱硝效果良好而被广泛应用。又由于氨氮具有强挥发性，致使热电站在液氨卸载、储存及脱硝系统等环节不可避免地出现氨的泄露与排放，这导致了厂区附近有较高的氨氮沉降量。其次为城市核心区的拥军路与人民公园样点，月均值分别达到了 $8.80\text{mg}/\text{m}^2$ 和 $7.78\text{mg}/\text{m}^2$ 。主要因素可能为城市核心区人口密集，生活和生产活动强烈所致。如生活有机垃圾和人为粪便的分解，美发行业的染烫剂、建筑行业的混凝土添加剂及家具涂饰剂等都会导致氨的缓慢释放。即使沉降量相对较小且位于城市非中心区的碧阳湖、贵工程和阳山公园3个样点，其均值也明显高于郊区核桃村对照点，为后者的1.32倍。如不考虑工业区的点状污染源，总体上在七星关区越靠近城市核心区(图2中2、3点位附近区域为城市核心区，4、5和6点位为城市周边区域，7为城郊农村区域)，氨氮沉降通量也越大，这表明其污染源地主要来源于城市中心区域。

2.2 大气硝态氮沉降特征

大气中的硝态氮主要来自于硝化细菌对氨的氧化和含氮化石燃料产生的废气。图5中含量最高的分别为拥军路和热电站，前者为城市核心区主干道，硝态氮月均沉降通量已达 $5.29\text{mg}/\text{m}^2$ ，明显超过热电厂的 $4.35\text{mg}/\text{m}^2$ 。人民公园样点也属于城市中心区域，且与拥军路间距不足百米，但后者硝态氮沉降通量却为前者的2.11倍，而图4中两者氨氮全年逐月均值却十分接近，这说明公路旁大气湿沉降中硝态氮含量要显著高于非公路区域，而氨氮此现象则不明显。这可能与石油中含有 $0.1\% \sim 0.5\%$ 的氮素有关，燃料燃烧废气中的氮只能以氧化态形式进行释放。这表明交通尾气排放是城市硝态氮的重要污染源。王德宣^[26]等发现硝态氮在城市公路旁有明显的线源污染特征。贺成武^[6]也发现环城路与火车站等燃油交通运营密集区硝态氮沉降要明显高于文教区、生活区及公园等功能区。

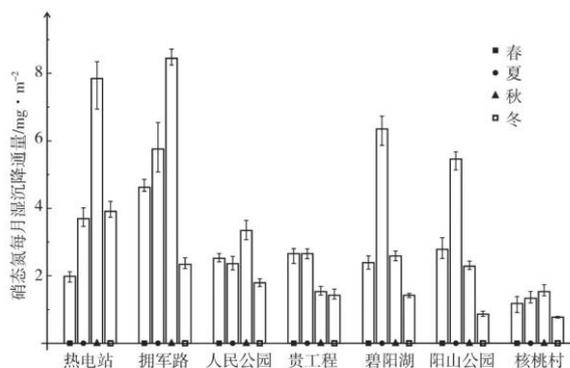


图 5 大气硝态氮月湿沉降通量

鉴于环境中氨氮和硝态氮分别主要源于有机物的分解和化石燃料的燃烧，因此，许多学者^[2,21,27]认为氨硝比可以在一定程度上反映出研究地域的经济生产方式。如果该值小于 1，表明城市交通与工业生产活动强烈，第二产业比重大。一些城市如伦敦^[28]、上海^[29]和南京^[30]等地该值均小于 1，伦敦更是低至 0.27。本案例中样点氨硝比均值为 2.30，说明七星关区城市经济发展与工业化水平还相对滞后。此外，西南地区的贵阳^[19]、都江堰^[25]等研究也发现大气沉降的无机氮均以氨氮为主导。这除了与西南诸多地域工业欠发达，硝态氮排放量有限有关，还与云贵高原特殊的自然地理环境有联系：一是海拔高造成积温低，导致氨氧化细菌生物活性低。七星关年均温只有约 13℃，董玉玮^[31]和叶建锋^[32]等发现氨氧化细菌在温度越低时其活性也越低(25℃时活性最强)，这势必会导致硝化过程缓慢、氨氮损耗有限；二是氨氮供给充足，许多异养菌诸如李斯特菌和葡萄球菌等，其温度耐受范围宽且有一定的嗜冷性，裘维蕃^[33]甚至发现芽孢杆菌在 0℃时还有较强的侵染能力，这表明低温环境氨氮供给并没有终止。而西藏林芝^[14]、天山冰区^[15]等相关研究也证实了这一点，氨硝比均大于 2，林芝地区甚至达到 4。

2.3 大气亚硝态氮沉降特征

大气沉降中的亚硝态氮主要源于化石燃料的非充分燃烧和空气微生物对含氨氮(硝态氮)的硝化(反硝化)作用，即它为氮素循环中的过渡产物。本案例中湿沉降中所有样点亚硝态氮月沉降通量均值仅占到无机总氮(TIN)的 6.95%，这与岳平(5.7%)^[34]和邓君俊(4.6%)^[30]的研究结果最为接近。大多数研究显示该比率在百分之几至十几不等，表明 TIN 中是以氨氮和硝态氮占据绝对优势。但从一些权威刊物的研究报道来看，有相当一部分学者^[9,13,15,22,35-39]在研究大气沉降中 TIN 时，并没有涉及到亚硝态氮。究其原因，可能与其实验过程相对其他氮较为繁琐，样品处理时效性高等因素有关。但无论从严谨治学的研究态度考量，还是鉴于其对植物的毒害效应对动物的致癌作用，该指标都不应该被忽略。

总体上和氨氮与硝态氮一致，湿沉降中亚硝态氮也是在热电站与拥军路沉降较大，月均值分别达到了 1.92mg/m² 和 1.10mg/m²(图 6)。热电站样点冬季更是达到了 2.84mg/m²，这与整个贵州高原冬季阴冷潮湿，居民取暖能耗高导致用电需求量大有关。亚硝态氮在拥军路与人民公园间的月均值之差已经占到拥军路的 48.43%，这和硝态氮同一指标较为接近(52.68%)，但都显著大于两样点在氨氮的差值比率(11.67%)。这表明，亚硝态氮很可能与硝态氮来源相近。王德宣^[5]研究也表明亚硝态氮与硝态氮一样，沉降大的区域均集中在交通干线附近，氨氮则无此规律。这体现了汽车尾气排放对(亚)硝态氮的沉降量有重要影响和贡献。

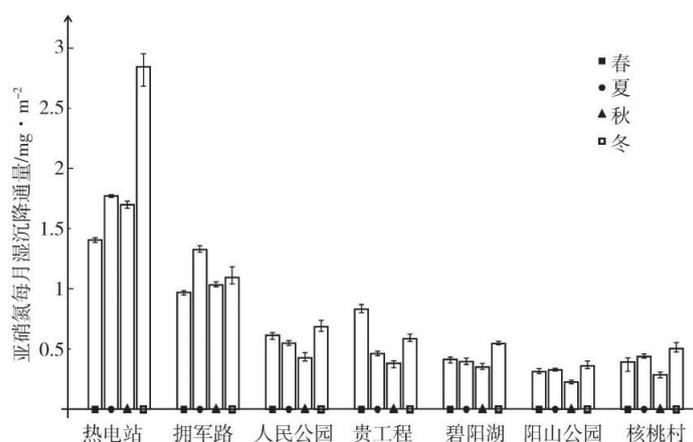


图 6 大气亚硝态氮月湿沉降通量

再来看其季节变化,图4中氨氮与图5中硝态氮均表现为夏(秋)季沉降量最大(拥军路氨氮例外),这与七星关区为高原季风气候区,5—10月的降水量占倒全年的82.02%有关。但所有样点亚硝态氮冬季月沉降通量要大于秋季,且部分样点冬季沉降量甚至为四季最高时期,除热电站以外,还有远离城市中心区的阳山公园、碧阳湖和核桃村对照点。冬季降水为一年中最少的时段,亚硝态氮沉降量反而较大。这可能与环境中的氨氧化细菌比亚硝酸氧化细菌对恶劣环境适应能力强有关^[40]。因为在一定温度范围条件内(20℃以下),前者增殖速度要明显优于后者^[41,42]。冬季七星关平均气温只有3.86℃,低温对亚硝酸氧化细菌的抑制作用更显著。这导致硝化作用顺利进行受阻,表现为亚硝态氮出现了累积。冰箱低温环境(5℃以下)长期冷藏饭菜会导致亚硝酸盐氮含量超标亦为同一道理,且冷藏时间越长超标越严重^[43]。

3 七星关区大气可溶性总氮湿沉降通量的估算

大气湿沉降中的可溶性总氮(TDN)包涵可溶性无机氮(DIN)和可溶性有机氮(DON)。由于不同地域自然环境条件和社会经济发展情况差异巨大,导致湿沉降中DIN占TDN的比率差异较大,但多数研究该值大体上处于约40%~70%之间^[9,13,15,22,25,30,36],本课题DIN全年沉降通量为130.80mg/m²。如以DIN占TDN为50%的比率估算,七星关区全年总氮湿沉降通量为2.61kg/hm²。这一数据已经明显高于天山冰川区(1.51kg/hm²)^[15]和藏东南的林芝市(2.36kg/hm²)^[14],但要小于昆明东郊(5kg/hm²)^[44],更是显著低于大连(32kg/hm²)^[45]、重庆(54kg/hm²)^[9]和上海(78kg/hm²)^[8]等大城市区域。天山冰川区氮的湿沉降通量为最低,这与其地处我国西北天山区,周边区域经济欠发达,含氮污染物来源十分有限有关。此外,其研究样地海拔高(4100m),大气稀薄,含氮悬浮颗粒物有限,且深居内陆季风无法波及则导致终年降水稀少,种种因素决定其沉降通量理应处于极低的水准。从全国其他地域总氮湿沉降通量分布特点来看,总体上城市经济规模越大的区域湿沉降通量也越大,这充分表明人类活动是影响大气湿沉降的根本原因。

4 结论

氨氮湿沉降均集中在夏季(拥军路点位例外),这一方面与大气降水作用导致含氨气溶胶以凝结核形式降落到地表有密切关系,还与夏季高温环境导致腐生菌增殖迅速,氨氮补给充足。湿沉降通量最大点位是热电站,月均达到了15.73mg/m²,这与氨氮自身挥发性强及工业生产中氨的非主观泄露有关。由城市核心区向城郊农村区域,氨氮沉降通量逐步递减的趋势表明氨氮污染源主要来自于城市的人为活动。

拥军路样点的硝态氮沉降量为所有样点最大,达到5.29mg/m²,是与其间距很近的人民公园样点沉降量的2.11倍,但前者氨氮却与后者十分接近,这表明沿公路干线的硝态氮沉降具有线状污染特征。这与石油中微量氮素成分的燃烧不能以还原态的氮而只能以氧化态的(亚)硝态氮排放有关。西南地区多数地域氨硝比均大于1,除了与当地城市交通与工业经济欠发达以外,还与高原环境积温低导致氨氮损耗有限有关。

亚硝态氮在拥军路与人民公园间的月均值差值所占比率和硝态氮对应比率较为接近,这表征两者有相近的污染来源。所有样点亚硝态氮湿沉降通量表现为冬季比秋季大(甚至是四季最高),这与氨氧化细菌在应对恶劣环境方面具有更强的适应能力有关,冬季低温可能导致了硝化作用受阻和亚硝态氮出现了累积。

以DIN占TDN为50%比率估算,七星关区全年总氮湿沉降通量为2.61kg/hm²。与其他地域研究结果对比,总体上城市人口分布越密集、经济活动规模越大,沉降通量也越大。

参考文献:

[1]JUNG C G, KIM S J. SWAT modeling of nitrogen dynamics considering atmospheric deposition and nitrogen fixation in a watershed scale[J]. Agricultural Sciences, 2017(8):326-340.

-
- [2]WU S P,DAI L H,WEI Y,et al.Atmospheric ammonia measurements along the coastal lines of Southeastern China:implications for inorganic nitrogen deposition to coastal waters[J].Atmospheric Environment,2018,177:1-11.
- [3]EVANGELINA R L,ROSAMARIA C B,JULIAGRISEL-DA C B,et al.Study of trace ions in wet deposition of an industrial site in Monterrey metropolitan area,Mexico[J].Open Journal of Ecology,2016(6):1-12.
- [4]TWONSEND A R,BRASWELL B H,HOLAND E A. et al.Spatial and temporal patterns in terrestrial carbon storage due to deposition of fossil fuel nitrogen[J].Ecological Applications,1996(6):804-814.
- [5]王德宣,赵普生,张玉霞,等.北京市区大气氮沉降研究[J].环境科学,2010,31(9):1987-1992.
- [6]贺成武,任玉芬,王效科,等.北京城区大气氮湿沉降特征研究[J].环境科学,2014,35(2):490-494.
- [7]张修峰.上海地区大气氮湿沉降及其对湿地水环境的影响[J].应用生态学报,2006,17(6):1009-1102.
- [8]周婕成,史贵涛,陈振楼,等.上海大气氮湿沉降的污染特征[J].环境污染与防治,2009,31(11):30-34.
- [9]袁玲,周鑫斌,辜夕容,等.重庆典型地区大气湿沉降氮的时空变化[J].生态学报,2009,29(11):6095-6101.
- [10]孙素琪,王云琦,王玉杰,等.缙云山大气氮湿沉降组成及其变化特征[J].北京林业大学学报,2013,35(4):47-54.
- [11]崔键,周静,杨浩.农田生态系统大气氮硫湿沉降通量的观测研究[J].生态环境学报,2009,18(6):2243-2248.
- [12]陆海燕,胡正义,张瑞杰,等.滇池北岸典型农区韭菜田大气氮湿沉降与氮挥发研究[J].2010,30(10):1309-1315.
- [13]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,2017,50(4):698-710.
- [14]贾钧彦,张颖,蔡晓布,等.藏东南大气氮湿沉降动态变化——以林芝观测点为例[J].生态学报,2009,29(4):1907-1913.
- [15]王圣杰,张明军,王飞腾,等.中国西北典型冰川区大气氮素沉降量的估算——以天山乌鲁木齐河源1号冰川为例[J].生态学报,2012,32(3):777-785.
- [16]岳平,宋韦,李凯辉,等.天山中部巴音布鲁克高寒草原大气无机氮沉降[J].应用生态学报,2014,25(6):1592-1598.
- [17]王欢博,石光明,田密,等.三峡库区大气活性氮组成及干沉降通量[J].中国环境科学,2018,38(1):44-50.
- [18]肖劲松,武学丽,夏园.贵州省六冲关流域大气沉降和地表水化学特征[J].环境科学研究,2010,23(5):539-542.
- [19]刘学炎,肖化云,刘丛强,等.贵阳地区主要大气氮源的沉降机制与分布:基于石生苔藓氮含量和氮同位素的证据[J].地球化学,2008,37(5):455-461.
- [20]黄铄淇,胡慧蓉,韩钊龙,等.昆明东郊大气氮湿沉降的测定与分析[J].四川农业大学学报,2014,32(4):418-425.

-
- [21]宋蕾, 田鹏, 张金波, 等. 黑龙江凉水国家级自然保护区大气氮沉降特征[J]. 环境科学, 2018, 39(10):4490-4496.
- [22]袁磊, 李文周, 陈文伟, 等. 戴云山国家级自然保护区大气氮沉降特点[J]. 环境科学, 2016, 37(11):4142-4146.
- [23]刘思言, 陈瑾, 卢平, 等. 广东韶关地区大气氮干湿沉降特征研究[J]. 生态环境学报, 2014, 23(9):1445-1450.
- [24]崔键, 周静, 杨浩, 等. 农田生态系统大气氮硫湿沉降通量的观测研究[J]. 生态环境学报, 2009, 18(6):2243-2248.
- [25]杨开军, 杨万勤, 庄丽燕, 等. 四川盆地西缘都江堰大气氮素湿沉降特征[J]. 应用与环境生物学报, 2018, 24(1):107-111.
- [26]王德宣, 赵普生, 张玉霞, 等. 用离子交换树脂柱法观测长春市大气氮沉降[J]. 环境科学研究, 2010, 23(8):1013-1018.
- [27]宋欢欢, 姜春明, 宇万太. 大气氮沉降的基本特征与监测方法[J]. 应用生态学报, 2014, 25(2):599-610.
- [28]SPIRO B, ROBERTSON S M C. Potential canopy influences on the isotopic composition of nitrogen and sulphur in atmospheric deposition[J]. *Oecologia*, 1997, 109(4):600-607.
- [29]梅雪英, 张修峰. 上海地区氮素湿沉降及其对农业生态系统的影响[J]. 中国生态农业学报, 2007, 15(1):16-18.
- [30]邓君俊, 王体健, 李树, 等. 南京郊区大气氮化物浓度和氮沉降通量的研究[J]. 气象科学, 2008, 29(1):25-30.
- [31]董玉玮, 张雁秋, 涂宝军, 等. 亚硝化细菌培养条件的优化[J]. 江苏农业科学, 2014, 42(4):314-316.
- [32]叶建锋, 徐祖信, 操家顺, 等. 亚硝酸型半硝化影响因素的试验研究[J]. 水处理技术, 2005, 31(10):5-7.
- [33]裘维蕃, 狄原渤, 周毓瑶, 等. 大白菜窖藏中一些腐烂细菌的研究[J]. 植物病理学报, 1964, 7(2):127-134.
- [34]岳平, 宋韦, 李凯辉, 等. 天山中部巴音布鲁克高寒草原大气无机氮沉降[J]. 应用生态学报, 2014, 25(6):1592-1598.
- [35]刘超明, 万献军, 曾伟坤, 等. 洞庭湖大气氮湿沉降的时空变异[J]. 环境科学学报, 2018, 38(3):1137-1146.
- [36]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.
- [37]王焕晓, 庞树江, 王晓燕, 等. 小流域大气氮干湿沉降特征[J]. 环境科学, 2018, 39(12):5365-5374.
- [38]陈能汪, 洪华生, 肖健, 等. 九龙江流域大气氮干沉降[J]. 生态学报, 2006, 26(8):2602-2607.
- [39]周旺明, 郭焱, 朱保坤, 等. 长白山森林生态系统大气氮素湿沉降通量和组成的季节变化特征[J]. 生态学报, 2015, 35(1):158-164.
- [40]王志盈, 袁林江, 彭党聪, 等. 内循环生物液化床硝化过程的选择特性研究[J]. 中国给水排水, 2000, 16(1):1-4.
- [41]叶建锋, 徐祖信, 操家顺, 等. 亚硝酸型半硝化影响因素的试验研究[J]. 水处理技术, 2005, 31(10):5-7.

[42]VAN LOOSDRECHT M C M, SALEM S. Biological treatment of sludge digester liquids[J]. Water Sci Technol, 2006, 53: 11-20.

[43]肖正华, 刘元清, 王刚. 蔬菜在冷藏条件下亚硝酸盐含量的变化[J]. 粮食与食品工业, 2010, 17(6):23-27.

[44]黄铄淇, 胡慧蓉, 韩钊龙, 等. 昆明东郊大气氮湿沉降的测定与分析[J]. 四川农业大学学报, 2014, 32(4):418-425.

[45]颜文娟, 史锟. 大连市区大气氮湿沉降研究[J]. 生态环境学报, 2013, 22(3):517-522.