DOI: 10.5846/stxb201409211868

顾峰雪,黄玫,张远东,闫慧敏,李洁,郭瑞,钟秀丽.1961—2010 年中国区域氮沉降时空格局的模拟研究.生态学报,2016,36(12): - . Gu F X, Huang M, Zhang Y D, Yan H M, Li J, Guo R, Zhong X L.Modeling the temporal-spatial patterns of atmospheric nitrogen deposition in China during 1961—2010.Acta Ecologica Sinica,2016,36(12): - .

1961—2010年中国区域氮沉降时空格局的模拟研究

顾峰雪1,黄 玫2,张远东3,*,闫慧敏2,李 洁1,郭 瑞1,钟秀丽1

1 中国农业科学院农业环境与可持续发展研究所,农业部旱作节水农业重点实验室,北京 100081

2 中国科学院地理科学与资源研究所生态系统观测与模拟重点实验室,北京 100101

3 中国林业科学研究院森林生态环境与保护研究所,国家林业局森林生态环境重点实验室,北京 100091

摘要:由于人类活动的干扰,近年来,通过沉降和施肥形式进入陆地生态系统的氮素持续增加,众多研究表明,中国已经成为继 欧洲和北美之后的第三大氮沉降区。氮与陆地生态系统生物地球化学循环的一系列过程都相互联系,碳循环及其格局也受到 氮的影响,因此大气氮沉降的变化受到广泛关注,探明区域大气氮沉降的时空格局对评估氮沉降对陆地生态系统碳循环的影响 具有重要意义。本研究构建了一个基于降水、能源消费和施肥数据的氮沉降时空格局模拟方法,通过与观测数据的比较说明该 模拟方法能够较好地模拟氮沉降的时空变化,在此基础上,利用该方法模拟了 1961—2010 年中国区域氮沉降的时空格局。结 果表明:(1)1961—2010 年中国区域年平均氮沉降速率为 0.81 g N m⁻² a⁻¹,由 20 世纪 60 年代的 0.31 g N m⁻² a⁻¹增加到 21 世纪 初的 1.71 g N m⁻² a⁻¹,年增长率为 0.04 g N m⁻² a⁻¹。总氮沉降量由 20 世纪 60 年代的 2.85 TgNa⁻¹增加至 15.68 TgNa⁻¹。(2) NH_x-N 的沉降速率大约是 NO_y-N 的4 倍,是主要的氮沉降形式。1961—2010 年我国湿沉降平均速率为 0.63 g N m⁻² a⁻¹,是干沉 降速率(0.17 g N m⁻² a⁻¹)的 3.63 倍,是氮素进入陆地生态系统的重要途径。(3)在空间上,我国的大气氮沉降速率呈现出由东 南向西北梯度递减的格局,华北、华中和东北的农田是氮沉降速率最大的区域,同时也是氮沉降速率增长最快的区域。**关键词**:氮沉降,降水,能源消费;施肥;模型模拟

Modeling the temporal-spatial patterns of atmospheric nitrogen deposition in China during 1961—2010

GU Fengxue¹, HUANG Mei², ZHANG Yuandong^{3,*}, YAN Huimin², LI Jie¹, GUO Rui¹, ZHONG Xiuli¹

1 Key Laboratory of Dryland Agriculture, Ministry of Agriculture, Institute of Environment and Sustainable Development in Agriculture, Chinese Academy of Agricultural Sciences, Beijing 100081, China

2 Key Laboratory of Ecosystem Network Observation and Modeling, Institute of Geographic Sciences and Natural Resources Research, CAS, Beijing 100101, China

3 Key Laboratory of Forest Ecology and Environment, State Forestry Administration, Institute of Forest Ecology, Environment and Protection, Chinese Academy of Forestry, Beijing 100091, China

Abstract: Anthropogenic activities have altered the global nitrogen cycle, which has led to increases of nitrogen input into ecosystems through N deposition. China has become the third largest N deposition region. Excess N input can have negative impacts on ecosystem health via processes such as soil acidification, losses of biodiversity, and changes in the carbon cycle. Meanwhile, nitrogen input is an important factor linked to terrestrial carbon sinks. Specifically, such input is connected with a number of biogeochemical cycles that can influence the carbon cycle and its spatial pattern. Because of these wide-ranging effects, atmospheric N deposition rates have attracted much concern, and several studies have attempted to reveal

收稿日期:2014-09-21; 修订日期:2016-01-25

* 通讯作者 Corresponding author.E-mail: zyd@ caf.ac.cn

基金项目:国家自然科学基金项目 National Nature Science Fund(31370463; 31070398);国家重点基础研究发展规划项目 the State Key Basic Research Development and Planning Project(编号:2010CB833503);中国农业科学院科技创新工程项目

the spatial and temporal patterns of N deposition with the purpose of evaluating N deposition effects on the carbon cycle of terrestrial ecosystems. We have established a new mathematical model that can be used to estimate regional N deposition over long time periods based on data related to precipitation, energy consumption, and fertilizer use. Comparisons between simulations and observations showed that the model can simulate the spatial and temporal variations of N deposition reasonably well. Then, we estimated the N deposition in China during 1961—2010 based on this model. The results were as follows. (1) During 1961—2010, the average total nitrogen deposition in China was 0.81 g N m⁻² a⁻¹, and the deposition values increased from 0.31 g N m⁻² a⁻¹ in the 1961—1970 to 1.71 g N m⁻² a⁻¹ in the 2001—2010; the total N deposition increased from 2.85 Tg N a⁻¹ to 15.68 Tg N a⁻¹. (2) The NH_x-N deposition rate was about 4 times that of NO_y-N, and NH_x-N was the main deposition type. The wet deposition rate was 3.63 times that of the dry deposition during 1961—2010; thus, wet deposition represents a main pathway for N input into ecosystems in the region. (3) In terms of spatial distribution patterns, the N deposition decreased from southeastern to northwestern China. The north, central, and cropland areas of the northeast had the largest overall N deposition rates and the largest increases in the N deposition rates over time.

Key Words: N deposition; precipitation; energy consumption; fertilizer use; model simulation

工业革命以来,由于人类活动的干扰导致活性氮产量显著增加,并不断向陆地和水生生态系统沉降,进而 改变生态系统生产力,引起水体酸化、富营养化,生态系统多样性丧失等一系列严重的生态问题,氮沉降的增 加已经引起了科学家和公众的广泛关注^[1-4]。全球人为活动导致的活性氮产生量由 1860 年的 15TgNa⁻¹提高 到 2000 年的 165TgNa^{-1[2]},2005 年这一数值已经持续上升至 187TgNa^{-1[5]},2008 年人类活动固定的活性氮达 到 192 TgNyr^{-1[6]}。中国已成为继北美、欧洲之后的全球三大氮沉降集中区之一^[7-9],据估计,随着社会经济和 工农业的进一步发展,我国氮沉降量可能还会继续升高。因此,分析我国氮沉降的时空格局变化,为评估氮沉 降对陆地生态系统碳循环的影响提供重要的基础数据支持。

对于氮沉降及其影响的定位研究开始于 20 世纪 80 年代末,目前美国和欧洲对氮沉降的观测已经形成研 究网络[10]。中国区域目前对氮沉降的观测还较为零散,而基于站点的已有观测又表明我国的氮沉降速率在 空间上具有很大的异质性[11-19]。另外已有一些研究应用不同的方法对我国大气氮沉降的整体状况进行了估 算。如 Lu 等^[4]基于大气化学传输模型与实测数据之间的相关关系,建立了一个实测值与模拟值之间的回归 方程,由此推导出了一套氮沉降时空格局数据,1996—2005年 NO,-N 沉降速率为 0.34g N m⁻² a⁻¹, NH,-N 沉降 速率为 1.54g N m⁻² a⁻¹。Liu 等^{20]}的研究表明,20 世纪 80 年代我国的大气氮沉降量为 1.32 g N m⁻² a⁻¹,21 世 纪初大气氮沉降量为2.11g N m⁻² a⁻¹。Jia 等^[21]基于280个观测站点的氮沉降数据,应用 Kriging 插值的方法, 计算得到我国的氮素湿沉降在 20 世纪 90 年代和 21 世纪初分别为 1.11g N m⁻² a⁻¹和 1.39 g N m⁻² a⁻¹,同时分 析发现大气氮沉降的分布与降水、能源消费和农田施肥具有很好的相关关系。观测数据的积累为探明中国大 气氮沉降的总体状况提供了数据基础,但是缺乏大范围长期动态连续的资料,并且目前大气氮沉降的观测点 多分布在东部地区,且分布点很不均匀。Lu等^[4]的方法尽管也描绘了过去中国氮沉降的时空动态,但该方法 无法对未来进行预测。未来我国需要建立全国性的监测网络,从而对不同区域和不同类型生态系统大气氮沉 降状况进行动态监测[22]。在此基础上,模型模拟方法可以提供长期的较大空间范围的氮沉降时空数据,并且 可以对未来不同发展情境下的氮沉降状况进行预测。基于此,本研究构建了一个具有较高分辨率,能够模拟 长时间尺度上并且实现预测的氮沉降计算方法,利用该方法基于我国的能源消费数据,施肥数据,降水数据生 成一套中国地区 1961—2010 年中国大气氮沉降空间网格数据,应用文献中收集的站点大气氮沉降数据进行 验证,并分析我国近50年氮沉降的空间分布及其变化趋势。

1 研究方法

1.1 氮沉降模拟方法

大气氮沉降是指大气中的氮元素主要以 NH,和 NO,的形式,降落到陆地和水体的过程。根据氮元素降

落方式的不同可以分为大气湿沉降和大气干沉降。大气湿沉降主要是通过降雨和其他隐性降水输入的 NH⁴ 和 NO⁻³,以及少量的可溶性有机氮。Lin 等^[23]建立了一个与降水简单的线性关系来计算湿沉降,参数根据植 被类型进行划分。大气干沉降是指通过降尘和湍流方式输入的活性氮和含氮的气溶胶/颗粒物,包括 NO₂、 NH₃和 HNO₃,颗粒状 NH⁴ 和 NO⁻³,以及一些有机化合物(例如 PAN、有机酸、含氮气溶胶和简单氨基酸)。在 Lin 等^[23]的方法中,由于缺乏资料,干沉降全球用一个统一的值来计算^[23]。尽管该方法简单,参数易于获取, 但是无法模拟由于人类活动造成的近 50 年氮沉降的快速增加,同时也无法模拟干沉降的空间变异。无机氮 沉降主要包含 NH_x和 NO_y 两类,还原性氮化物 NH_x主要来源于农田施肥和集约畜牧业,而氧化型氮化物 NO_y 主要来源于工业和化石燃料的燃烧^[9,24]。Jia 等^[21]的研究也发现氮沉降与氮肥施用、能源消费和降水具有很 好的相关关系,三者的共同作用可以解释我国氮素湿沉降空间变异的 79%。因此本研究在 Lin 等^[23]方法的 基础上,构建了一个基于施肥、能源消费和降水量的大气氮沉降计算方法,本方法中总氮沉降(N_{depo})是 NH_x-N (*Amm_{depo}*)和 NO_y-N(*Nit*_{depo})之和,而后两者分别又是湿沉降和干沉降之和。

$$N_{\rm depo} = \operatorname{Amm}_{\rm depo} + \operatorname{Nit}_{\rm depo} \tag{1}$$

$$Amm_{depo} = PRE \times P_1 \times fert + P_2 \times fert$$
(2)

$$Nit_{depo} = PRE \times P_3 \times ener + P_4 \times ener$$
(3)

式中, N_{depo} 为大气氮沉降速率(g N m⁻² a⁻¹), Amm_{depo} (g N m⁻² a⁻¹)为以 NH_x 形式沉降的氮, Nit_{depo} (g N m⁻² a⁻¹) 为以 NO_y 形式沉降的氮,*PRE* 为降水量(mm),*fert* 为施氮量(g N m⁻² a⁻¹),*ener* 为能源消费量(g 标准煤 m⁻² a⁻¹), P_1 、 P_2 、 P_3 和 P_4 为参数。通过文献我们收集了中国区域内 28 个站点不同年份观测的氮沉降数据,利用这 些观测数据,对 P_1 - P_4 参数进行了拟合。该方法不仅具有较好地理论基础,输入数据和参数易于获取,同时可 以根据能源利用效率和氮肥利用率的变化来调整参数,从而实现对未来情景的预测。

1.2 数据来源

本研究中计算氮沉降的主要输入数据包括降水数据、施肥数据和能源消费数据。降水数据来自于国家气象信息中心,包括1961—2010年全国756个气象台站的每旬降水量。使用 ANUSPLIN4.1 插值软件的样条函数插值法^[25]对气象数据进行内插到0.1°×0.1°的空间网格上,得到全国1961—2010年的0.1°气象栅格数据。

施肥数据来源于中国和各省的统计年鉴(NBS, http://www.stats.gov.cn/),包括 1978—2008 年全国和各 省的施肥量、施氮量,以及全国 2000 多个县 1992、1995、1999 年的施肥数据,根据模型输入数据的要求,对施 肥数据做以下处理:(1)按照不同时期各县所在省施肥总量的比例以及所在省 1978—2008 年的变化趋势,计 算得到全国各县级单元施氮总量 1978—2008 年的变化趋势。(2)基于 1978—2008 年各县级单元施氮总量的 线性变化趋势,计算得到各县级单元 1961—1977 年和 2009、2010 年的施氮总量数据。(3)将县级单元施氮数 据属性表与中国县市界先挂接,形成属性空间化。(4)利用通过行政区划求取的 2000 年各县市面积的和,然 后基于县市名称与各县市耕地面积挂接,实现耕地面积总量的空间化。(5)最后利用施肥量/各省市县耕地 面积和的栅格数据,实现施肥量单元栅格化(g N m⁻² a⁻¹)。

能源消费数据来源于中国统计局 (NBS, http://www.stats.gov.cn/),查找自 1978—2008 年全国和各省的 能源总量(万吨标准煤/年),全国和各省 1961—1977 年以及 2009、2010 年的能源消费数据根据 1978—2008 年的线性变换趋势计算得到。根据省界图,统计各省的面积,将各省的能源消费总量平均到单位面积上,在 ArcGIS 中提取模型输入所需的 0.1°格点的能源消费量(g标准煤 m⁻² a⁻¹)。

2 模型验证

为了验证模型对区域氮沉降的模拟能力,本研究系统收集了已有文献^[13,21,26-37]发表的氮沉降数据(包括总氮沉降和湿沉降),对模拟氮沉降进行了验证,观测平均值为2.28 g N m⁻² a⁻¹,对应时间对应站点的模拟平均值为2.61 g N m⁻² a⁻¹,平均相对误差为14%。模拟值和实测值具有显著相关性(*R*²=0.85, *p* < 0.001)(图1),由此可以看出该模型方法可以很好地模拟我国氮沉降的时空变化。未来随着氮沉降观测站点的增加和

数据的积累,可以利用更多的数据对模型的模拟加以校 准和验证。

另外我们将模拟的中国区域大气氮沉降的平均状 况和增长速率与其他基于观测和模型方法的研究结果 进行了比较(表1),结果表明,在1980-2000年间,本 研究模拟的氮沉降均值和增长速率均在已有研究结果 的范围内,但相对于基于观测的估算结果^[20-21],本研究 对总氮沉降有所低估。

3 结果与讨论

3.1 1961—2010年中国区域氮沉降的时间动态

1961-2010年,我国的氮沉降速率呈显著增加的 趋势(图2)。过去50年,中国陆地大气氮沉降速率增 加了近8倍,中国氮沉降速率变化范围在0.29-2.32g N m⁻² a⁻¹之间,50 年平均为 0.81g N m⁻² a⁻¹,年增长率

6 8 10 氮沉降观测值 Observed N deposition rate/(gN·m⁻²·a⁻¹) 图 1 模拟的氮沉降速率与观测值的比较 Fig. 1 Comparison of modeled nitrogen deposition rate with observed values 为0.04g N m⁻² a⁻¹。NH_x-N 变化范围在 0.23—1.84g N m⁻² a⁻¹之间,50 年平均为 0.64g N m⁻² a⁻¹, NH_x-N 的沉

降速率增加了 0.03g N m⁻² a⁻¹; NO_v-N 变化范围在 0.07—0.48g N m⁻² a⁻¹, 平均沉降速率为 0.17g N m⁻² a⁻¹, NO₂-N 沉降速率每年增加 0.007g N m⁻² a⁻¹(图 2,表 3)。研究时段内 NH₂-N 沉降速率及其增速都远大于 NO₂-N沉降,1961-2010年,NH_x-N的沉降速率大约是 NO_y-N 的 4 倍,是主要的氮沉降形式(图 2,表 3)。Zhang 等^[39]和 Holland 等^[40]的研究结果表明,美国的总氮沉降中 NO_x-N 所占的比例较大,而西欧则是以 NH_x-N 为 主。Lu 等[41]的研究结果也表明,中国区域氮沉降以 NH,-N 为主, NH,-N 的沉降量是 NO,-N 的近 5 倍, 与本研 究结果较为一致。人为活动引起的氮素排放主要包含 NH_x 和 NO_y 两类,氧化型氮化物 NO_y-N 主要来源于工 业和化石燃料的燃烧,还原性氮化物 NH,-N 主要来源于农田施肥和集约畜牧业^[9,24],因此在对氮沉降进行控 制管理时,不仅要针对 NO,-N 排放进行控制,通过合理的管理农业生产,减少 NH,-N 排放对控制氮沉降速率 同样具有重要意义。

Table 1 The average value and increase rate of N deposition in China during 1981-2010 and compared with other researches								
氦沉降速率 N deposition rate /(g N m ⁻² a ⁻¹)			增长速率 increase rate/	数据来源				
1981—2010	1991—2000	2001—2010	$(g N m^{-2} a^{-1})$	Source				
1.71(湿沉降)		2.11(湿沉降)	0.041	[20]				
	1.11(湿沉降)	1.39(湿沉降)		[21]				
		1.88	0.019	[4,38]				
1.12	1.06	1.71	0.058	本研究				

表1 模拟的氮沉降均值与其他研究的比较

本研究中将研究时段划分为5个年代,以便更好的研究我国大气氮沉降速率的时间变化特征(表2)。从 20世纪60年代到70年代,我国氮沉降速率的变化不大,到80年代,我国的大气氮沉降速率开始显著增加,是 60年代的 1.93 倍,20 世纪 90年代和 21 世纪初的大气氮沉降速率急剧增加,分别是 60年代的 3.43 倍和 5.50 倍。Schulze 等^[42]提出了氮饱和临界负荷理论,即在对生态系统结构和功能无明显伤害的情况下,生态系统 所容许的最大氮沉降量,超出临界负荷将对生态系统结构、功能和运行造成危害。尽管由于环境的差异,生态 系统本身存在变化,不同生态系统的土地利用用途和利用历史不同,使得不同生态系统的氮沉降临界值存在 很大的不确定性,但研究表明,陆地生态系统的氮沉降临界值在 1—2g N m⁻² a^{-1[40, 43-45]},如果按照这一理论, 我国氮沉降速率在 20 世纪 90 年代和 21 世纪初接近或超过了氮沉降的临界浓度。



大气向陆地生态系统输入氮素主要通过湿沉降和 干沉降两种途径。1961—2010年我国湿沉降平均速率 为 0.63g N m⁻² a⁻¹,是干沉降速率(0.17g N m⁻² a⁻¹)的 3.63 倍,是氮素进入陆地生态系统的重要途径。自 20 世纪 80 年代开始,我国的湿沉降速率呈显著增加趋势, 80 年代、90 年代、21 世纪初湿沉降速率分别为 0.47g N m⁻² a⁻¹、0.85g N m⁻² a⁻¹、1.33g N m⁻² a⁻¹,是 20 世纪 60 年代湿沉降速率的 1.98 倍、3.56 倍、5.56 倍(表 2)。 1961—2010 年,我国的干沉降速率同样显著增加,特别 是从 90 年代开始,干沉降速率达到 0.21g N m⁻² a⁻¹,是 60 年代氮沉降速率的 2.96 倍、21 世纪初的干沉降速率 为 0.38g N m⁻² a⁻¹,是 20 世纪 60 年代的 5.29 倍。

本研究中我国的大气氮沉降速率由 20 世纪 60 年 代的 0.31g N m⁻² a⁻¹增加到 21 世纪初的 1.71g N m⁻² a⁻¹,总氮沉降量由 20 世纪 60 年代的 2.85 TgNa⁻¹增加



Fig.2 Annual average nitrogen deposition rate in China during 1961-2010

至 21 世纪初的 15.68 TgNa⁻¹。也有一些研究应用不同的方法对我国大气氮沉降进行了估算。如 Jia 等^[21]基 于 280 个观测站点的氮沉降数据,应用 Kriging 插值的方法,计算得到我国的氮素湿沉降在 20 世纪 90 年代和 21 世纪初分别为 1.11g N m⁻² a⁻¹和 1.39g N m⁻² a⁻¹,本研究的结果在 20 世纪 90 年代(0.85g N m⁻² a⁻¹)略低于 这一结果,在 21 世纪初的湿沉降量(1.33g N m⁻² a⁻¹)与之非常接近。Liu 等^[20]的研究表明,20 世纪 80 年代 我国的大气氮沉降量为 1.32 g N m⁻² a⁻¹,21 世纪初大气氮沉降量为 2.11g N m⁻² a⁻¹,略高于本研究中的研究 结果。这可能是由于 Liu 等^[20]是基于监测站点数据的算术平均数求得的全国氮沉降数据,并没有考虑我国 氮沉降的空间格局。Lu 等^[41]在 2014年的研究结果表明,中国区域氮沉降速率由 20 世纪 60 年代的 1.26 g N m⁻² a⁻¹增加至 21 世纪初的 2.01 g N m⁻² a⁻¹,总氮沉降量在 21 世纪初为 18.33 TgNa⁻¹。由于本研究在 20 世纪 60 年代的估计要比 Lu 等^[41]的估计偏低,因此年增长速率要高于 Lu 等^[41]的结果(0.018 g N m⁻² a⁻¹)。总之, 由于缺乏氮沉降的长期站点网络观测数据,不同的研究者依据不同的方法估算出来的氮沉降存在一些差异, 我国的氮沉降估算仍然存在很大的不确定性。Zhang 等^[39]基于化学传输模型的模拟结果表明,美国大陆的氮沉 降量为 3.7—4.5 TgNa⁻¹,而西欧的氮沉降量为 8.4—10.8 TgNa⁻¹。尽管不同研究对不同区域的氮沉降量估计 存在一定的差异,但可以看出,中国区域的氮沉降量已经超过美国和欧洲地区,在 Dentener 等^[9]基于大气化 学传输模型对全球的模拟结果也表明,中国是氮沉降最严重的区域。

Table 2 The interdecadal variations of nitrogen deposition rate $(g N m^{-2} a^{-1})$ in China during 1961—2010							
年代 Years	湿沉降 Wet Nitrogen Deposition	干沉降 Dry Nitrogen Deposition	$\rm NH_{x}$ -N Deposition	NO_y -N Deposition	总沉降 Total Nitrogen Deposition		
1961—1970	0.24	0.07	0.24	0.07	0.31		
1971—1980	0.28	0.08	0.28	0.08	0.36		
1981—1990	0.47	0.13	0.48	0.12	0.60		
1991—2000	0.85	0.21	0.87	0.19	1.06		
2001—2010	1.33	0.38	1.34	0.37	1.71		
1961—2010	0.63	0.17	0.64	0.17	0.81		

表 2 1961—2010 年我国氮沉降速率的年代际变化(g N m⁻² a⁻¹)

3.2 1961—2010年中国区域氮沉降的空间格局

研究时段内,我国不同区域氮沉降水平差异很大(图3,图4)。从湿沉降的分布格局来看,华北、华中、西

5

36卷

南和东北一些区域的湿沉降量最高,超过了 2.0g N m⁻² a⁻¹,如河南、河北、湖南、湖北、陕西、江苏以及东北三省的平原区,南方的其他省湿沉降量一般在 1.0—2.0g N m⁻² a⁻¹,西北地区和内蒙古地区的湿沉降量在 0—0.5 g N m⁻² a⁻¹。根据 Jia 等^[21]的研究结果表明,20 世纪 90 年代和 21 世纪初,我国的氮素湿沉降速率呈现出由南向北,由东向西梯度递减的分布格局,湖南、湖北等省是氮沉降最多的地区,在湿沉降速率方面,20 世纪 90 年代南方各省的湿沉降速率一般在 2—2.5g N m⁻² a⁻¹,东北地区在 0.5—1.5g N m⁻² a⁻¹,华北在 1.0—2.0g N m⁻² a⁻¹,西北在 0—1.0g N m⁻² a⁻¹,21 世纪初各省的湿沉降量都有所增加,华北成为氮沉降集中区。这与本研究得到的氮素湿沉降在空间格局上具有很好的一致性,本研究中的氮沉降速率略小于 Jia 等^[21]的研究结果,这可能是由于研究时段的差异造成的,本研究中计算的是 1961—2010 年我国的湿沉降,在研究时段的前 20 年,氮沉降速率普遍偏低。从氮素的干沉降空间分布格局来看,我国华北、华中、华南和东北三省的干沉降量一般大于 0.5g N m⁻² a⁻¹,广西、云南和四川等省的干沉降量在 0.2—0.4g N m⁻² a⁻¹,西北、西藏和内蒙地区的干沉降在 0—0.2g N m⁻² a⁻¹。



图 3 我国大气氮素湿沉降速率(a)和干沉降速率(b)的空间格局(g N m⁻² a⁻¹) Fig.3 Spatial pattern of N deposition rate (g N m⁻² a⁻¹) during 1961—2010 (a) wet nitrogen deposition (b) dry nitrogen deposition

从我国的总氮沉降分布格局来看,我国的大气氮沉降速率也呈现出由东南向西北梯度递减的格局,华北、 华中和西南地区东北部氮沉降水平最高,一般变化在 1.77—3.18g N m⁻² a⁻¹左右,华南地区以及西南地区的西 部和南部的氮沉降水平次之,一般变化在 0.74—2.25g N m⁻² a⁻¹左右,西北、西藏、内蒙、西藏地区的氮沉降水 平最低,一般在 0.02—0.73g N m⁻² a⁻¹。本研究中的氮素湿沉降、干沉降和总氮沉降空间格局与基于观测和模 型模拟的其他研究结果也都具有很好的一致性^[3,4,9,21,44,46]。同时,已有的观测也表明,中国区域的氮沉降具 有较大的空间异质性,湿沉降由 0.4g N m⁻² a⁻¹变化到 10.3g N m⁻² yr^{-1[47-53]},华北成为我国氮沉降最为严重的 区域^[49,50]。

氮沉降的空间分布受人类活动的影响,郑祥洲等^[54]的研究表明,氮沉降与人类活动有密切关系,中东部和沿海等经济较发达地区的沉降量高于内陆地区,内陆地区又高于青藏高原、西南和西北等人类活动较弱的地区。Jia 等^[21]的分析也表明氮沉降与降水、能源消费和施肥具有很好的相关关系,三者能够解释 79%的氮沉降空间变异。同时氮沉降浓度随着距城市的距离增加而呈现指数下降^[21]。我国的主要大中城市均分布在东部地区,东部地区是我国能源消费、化肥用量和土地利用变化最为强烈的区域,因此也成为氮沉降的热点区域。





为了比较我国氮沉降速率变化的空间差异,本研究绘制了 1961—2010 年间五个年代大气氮沉降速率的 空间格局(图 4b—f)。由图 4 可知,我国的大气氮沉降速率在过去 50 年发生的变化存在显著的区域差异, 1961—2010 我国西北部地区,包括新疆、西藏、青海、内蒙古等省的大气氮沉降速率变化很小,基本保持在 0— 0.25g N m⁻² a⁻¹;而在我国东部的各省,大气氮沉降速率均显著增加。20 世纪 60 年代这些地区的大气氮沉降 速率一般在 0.25—1.0g N m⁻² a⁻¹,20 世纪 70 年代部分地区的大气氮沉降速率开始增加至 1.0—2.0g N m⁻² a⁻¹,20 世纪 80 年代东部各省的大气氮沉降速率普遍增加至 1.0—3.0g N m⁻² a⁻¹,20 世纪 90 年代这些地区的大气氮沉降速率增长更快,普遍在 1.0—4.0g N m⁻² a⁻¹,21 世纪初东部地区的大气氮沉降量均在 2.0g N m⁻² a⁻¹以上,江苏、山东、河南、安徽、河北、湖北、陕西等省的大部分地区的大气氮沉降速率达到了 4.5g N m⁻² a⁻¹。 a^{-1} 以上,江苏、山东、河南、安徽、河北、湖北、陕西等省的大部分地区的大气氮沉降速率达到了 4.5g N m⁻² a⁻¹。 如果按照 1—2g N m⁻² a⁻¹的氮沉降临界值^[40,43-45],20 世纪 90 年代我国有 35%和 25%的地区大气氮沉降速率超过了 1g N m⁻² a⁻¹,21 世纪初我国有 37%和 34%的地区大气氮沉降速率超过了 1g N m⁻² a⁻¹。 和 2g N m⁻² a⁻¹。 Zhang 等^[39]基于 GEOS-Chem 全球化学传输模型的研究结果表明,美国本土有超过 35%的地区大气氮沉降速率超过了 1g N m⁻² a⁻¹的氮沉降临界值,略小于我国 21 世纪初的范围。这表明,与美国相比,我国的氮饱和潜在风险问题更严峻,这将对生态系系统和人类本身带来严重的后果,如土壤酸化、生产力下降、生物多样性流失、河流和水质污染等问题,会对生态系统物质循环产生严重干扰和破坏^[55-56]。

3.3 氮沉降估算的不确定性分析

准确估算区域尺度氮沉降的时间动态和空间格局,对于评价氮沉降对陆地生态系统生产力和碳氮循环过程的影响具有重要意义。通过本研究的估算结果与文献获得的观测数据及与其他研究的比较可以看出,本研究的估算结果与Lu等^[4]基于观测数据与大气化学模型同化的方法基本一致,但低于基于观测的估算结果^[20-21](表1)。Xu等^[57]基于全国43个观测站点2010—2014年的观测结果表明,中国陆地生态系统的总氮沉降量的变化范围为2.9—75.2 Kg N ha⁻¹ a⁻¹,平均值为37.8 Kg N ha⁻¹ a⁻¹。目前基于观测数据的全国估算中,西部和青藏高原的观测站点均较少(国家氮沉降监测网络43个监测站点中西北地区和青藏高原一共仅有7个监测站点),这些地区的氮沉降水平显著低于其他地区^[57],而其面积则占到中国陆地总面积的近一半,模型是基于0.1°各格点的统计结果,这些低值区对于全国均值的贡献则要显著高于基于观测站点统计的贡献。因此,目前基于模型的估算结果和基于观测的估算结果相比,是否低估或其低估的水平有待于进一步的评估。随着国家氮沉降监测网络(Nationwide Nitrogen Deposition Monitoring Network,NNDMN)监测数据的积累,可以进一步调整模型的参数,并验证模型模拟的准确性,从而获取更为准确的区域氮沉降时空格局估算结果。

4 结论

本研究构建了一个基于观测和统计资料模拟和预测区域大气氮沉降的模型,该模型参数简单易于获取, 通过与站点实测数据以及与其他研究结果的比较,表明该氮沉降模拟方法可以很好地模拟我国大气氮沉降速 率的时空格局。模拟结果表明:1961—2010年,中国大气氮沉降速率呈显著增加的趋势,年增长率为0.04g N m⁻² a⁻¹,年平均氮沉降速率为0.81g N m⁻² a⁻¹,NH_x-N 是主要的氮沉降形式。20 世纪 90 年代和 21 世纪初我 国的大气氮沉降速率平均值超过了 1g N m⁻² a⁻¹的大气氮沉降临界值。在空间上,我国的大气氮沉降速率呈 现出由东南向西北梯度递减的格局,干沉降和湿沉降的空间格局与之基本一致,并且不同年代间的大气氮沉 降速率在空间格局上差异较大。未来随着监测网络体系的建立,获取更多的观测数据对模型加以验证和校 准,预测未来不同情景下中国区域氮沉降的变化特征,为决策提供科学建议。

参考文献(References):

- [1] Vitousek P M, Aber J D, Howarth R W, Likens G E, Matson P A, Schindler D W, Schlesinger W H, Tilman D G. Human alteration of the global nitrogen cycle: sources and consequences. Ecological Applications, 1997, 7(3): 737-750.
- [2] Galloway J N, Aber J D, Erisman J W, Seitzinger S P, Howarth R W, Cowling E B, Cosby B J. The nitrogen cascade. Bioscience, 2003, 53(4): 341-356.
- [3] Galloway J N, Dentener F J, Capone D G, Boyer E W, Howarth R W, Seitzinger S P, Asner G P, Cleveland C C, Green P A, Holland E A, Karl D M, Michaels A F, Porter J H, Townsend A R, Vöosmarty C J. Nitrogen cycles: past, present, and future. Biogeochemistry, 2004, 70(2): 153-226.
- [4] Lu C Q, Tian H Q, Liu M L, Ren W, Xu X F, Chen G S, Zhang C. Effect of nitrogen deposition on China's terrestrial carbon uptake in the context of multifactor environmental changes. Ecological Applications, 2012, 22(1): 53-75.

- [5] 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.
- [6] Gu B J, Chang J, Min Y, Ge Y, Zhu Q A, Galloway J N, Peng C H. The role of industrial nitrogen in the global nitrogen biogeochemical cycle. Scientific Reports, 2013, 3: 2579-2579.
- [7] Holland E A, Braswell B H, Lamarque J F, Townsend A, Sulzman J, Müller J F, Dentener F, Brasseur G, Levy II H, Penner J E, Roelofs G J. Variations in the predicted spatial distribution of atmospheric nitrogen deposition and their impact on carbon uptake by terrestrial ecosystems. Journal of Geophysical Research: Atmospheres(1984-2012), 1997, 102(D13): 15849-15866.
- [8] Holland E A, Dentener F J, Braswell B H, Sulzman J M. Contemporary and pre-industrial global reactive nitrogen budgets // Townsend A R, ed. New Perspectives on Nitrogen Cycling in the Temperate and Tropical Americas. Netherlands: Kluwer Academic Publishers; Reprinted from Biogeochemistry, 1999: 7-43.
- [9] Dentener F, Drevet J, Lamarque J F, Bey I, Eickhout B, Fiore A M, Hauglustaine D, Horowitz L W, Krol M, Kulshrestha U C, Lawrence M, Galy-Lacaux C, Rast S, Shindell D, Stevenson D, Van Noije T, Atherton C, Bell N, Bergman D, Butler T, Cofala J, Collins B, Doherty R, Ellingsen K, Galloway J, Gauss M, Montanaro V, Müller J F, Pitari G, Rodriguez J, Sanderson M, Solmon F, Strahan S, Schultz M, Sudo K, Szopa S, Wild O. Nitrogen and sulfur deposition on regional and global scales: a multi-model evaluation. Global Biogeochemical Cycles, 2006, 20 (4): GB4003.
- [10] 吕超群. 中国大气氮沉降与陆地生态系统碳循环研究[D]. 北京: 中国科学院地理科学与资源研究所, 2009.
- [11] Tian H Z, Hao J M, Lu Y Q, Zhu T L. Inventories and distribution characteristics of NOx emissions in China. China Environmental Science, 2001, 21(6): 493-497.
- [12] 遆超普,颜晓元.基于氮排放数据的中国大陆大气氮素湿沉降量估算.农业环境科学学报,2010,29(8):1606-1611.
- [13] 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.
- [14] 樊建凌, 胡正义, 庄舜尧, 周静, 王体健, 刘翠英. 林地大气氮沉降的观测研究. 中国环境科学, 2007, 27(1): 7-9.
- [15] 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.中国生态农业学报,2007,15(1):16-18.
- [16] 孙志高,刘景双,王金达.三江平原典型湿地系统大气湿沉降中氮素动态及其生态效应.水科学进展,2007,18(2):182-192.
- [17] 杨龙元,秦伯强,胡维平,罗潋葱,宋玉芝.太湖大气氮、磷营养元素干湿沉降率研究.海洋与湖沼,2007,38(2):104-110.
- [18] 张菊,康荣华,赵斌,黄永梅,叶芝祥,段雷.内蒙古温带草原氮沉降的观测研究.环境科学,2013,34(9):3552-3556.
- [19] 骆晓声,石伟琦,鲁丽,刘学军,莫亿伟,邓峰.我国雷州半岛典型农田大气氮沉降研究.生态学报,2014,34(19):5541-5548.
- [20] Liu X J, Zhang Y, Han W X, Tang A H, Shen J L, Cui Z L, Vitousek P, Erisman J W, Goulding K, Christie P, Fangmeier A, Zhang F S. Enhanced nitrogen deposition over China. Nature, 2013, 494(7438): 459-462.
- [21] Jia Y L, Yu G R, He N P, Zhan X Y, Fang H J, Sheng W P, Zuo Y, Zhang D Y, Wang Q F. Spatial and decadal variations in inorganic nitrogen wet deposition in China induced by human activity. Scientific Reports, 2014, 4(1): 1-7.
- [22] 常运华, 刘学军, 李凯辉, 吕金岭, 宋韦. 大气氮沉降研究进展. 干旱区研究, 2012, 29(6): 972-979.
- [23] Lin B -L, Sakoda A, Shibasaki R, Goto N, Suzuki M. Modelling a global biogeochemical nitrogen cycle in terrestrial ecosystems. Ecological Modelling, 2000, 135(1): 89-110.
- [24] Paulot F, Jacob D J, Henze D K. Sources and processes contributing to nitrogen deposition: an adjoint model analysis applied to biodiversity hotspots worldwide. Environmental Science & Technology, 2013, 47(7): 3226-3233.
- [25] Hutchinson M F. A new objective method for spatial interpolation of meteorological variables from irregular networks applied to the estimation of monthly mean solar radiation, temperature, precipitation and windrun // Fitzpatrick E A, Kalma J D, eds. Need for Climatic and Hydrological Data in Agriculture in South-East Asia. Proceedings of the United Nations University Workshop, December 1983., Canberra: Division of Water Resources Technical Memorandum 89/5, CSIRO, 1989:95-104.
- [26] 黄忠良,丁明懋,张祝平,蚁伟民. 鼎湖山季风常绿阔叶林的水文学过程及其氮素动态. 植物生态学报, 1994, 18(2): 194-199.
- [27] 周国逸, 闫俊华. 鼎湖山区域大气降水特征和物质元素输入对森林生态系统存在和发育的影响. 生态学报, 2001, 21(12): 2002-2012.
- [28] 孙本华, 胡正义, 吕家珑, 周丽娜, 徐成凯. 江西鹰潭典型丘陵区农业区氮湿沉降的动态变化. 西北农林科技大学学报: 自然科学版, 2006, 34(10): 118-122, 127-127.
- [29] 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.生态环境学报,2009,18(6):2243-2248.
- [30] 袁玲,周鑫斌,辜夕容,黄建国.重庆典型地区大气湿沉降氮的时空变化.生态学报,2009,29(11):6095-6101.
- [31] 陈义, 唐旭, 杨生茂, 吴春艳, 王家玉. 杭州稻麦菜轮作地区大气氮湿沉降. 生态学报, 2009, 29(11): 6102-6109.
- [32] 王小治, 尹微琴, 单玉华, 封克, 朱建国. 太湖地区湿沉降中氮磷输入量——以常熟生态站为例. 应用生态学报, 2009, 20(10): 2487-2492.
- [33] 王小治,朱建国,高人,宝川靖和.太湖地区氮素湿沉降动态及生态学意义:以常熟生态站为例.应用生态学报,2004,15(9): 1616-1620.
- [34] 李世清,李生秀.陕西关中湿沉降输入农田生态系统中的氮素.农业环境保护,1999,18(3):97-101.
- [35] 魏样,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.

- [36] 李玉中,祝廷成,姜世成. 羊草草地生态系统干湿沉降氮输入量的动态变化. 中国草地, 2000, 6(2): 24-27.
- [37] Zhu J X, He N P, Wang Q F, Yuan G F, Wen D, Jia Y L, Yu G R. The composition, spatial patterns, and influencing factors of atmospheric nitrogen deposition in Chinese terrestrial ecosystems. Sciences of Total Environment, 2014, 10.1016/j.scitotenv.2014.12.038.
- [38] Tian H Q, Melillo J, Lu C Q, Kicklighter D, Liu M L, Ren W, Xu X F, Chen G S, Zhang C, Pan S F, Liu J Y, Running S. China's terrestrial carbon balance: Contributions from multiple global change factors. Global Biogeochemical Cycles, 2011, 25(1): GB1007-GB1022.
- [39] Zhang L S, Jacob D J, Knipping E M, Kumar N, Munger J W, Carouge C C, Van Donkelaar A, Wang Y X, Chen D. Nitrogen deposition to the United States: distribution, sources, and processes. Atmospheric Chemistry and Physics, 2012, 12: 4539-4554.
- [40] Holland E A, Braswell B H, Sulzman J, Lamarque J -F. Nitrogen deposition onto the United States and Western Europe: synthesis of observations and models. Ecological Applications, 2005, 15(1): 38-57.
- [41] Lu C Q, Tian H Q. Half-century nitrogen deposition increase across China: A gridded time-series data set for regional environmental assessments. Atmospheric Environment, 2014, 97: 68-74.
- [42] Schulze E -D, De Vries W, Hauhs M, Rosén K, Rasmussen L, Tamm C -O, Nilsson J. Critical loads for nitrogen deposition on forest ecosystems.
 Water, Air, and Soil Pollution, 1989, 48(3/4): 451-456.
- [43] Bobbink R, Hicks K, Galloway J, Spranger T, Alkemade R, Ashmore M, Bustamante M, Cinderby S, Davidson E, Dentener F, Emmett B, Erisman 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.
- [44] Bouwman A F, Van Vuuren D P, Derwent R G, Posch M. A global analysis of acidification and eutrophication of terrestrial ecosystems. Water, Air, and Soil Pollution, 2002, 141(1/4): 349-382.
- [45] Duan L, Xie S D, Zhou Z P, Ye X M, Hao J M. Calculation and mapping of critical loads for S, N and acidity in China. Water, Air, and Soil Pollution, 2001, 130(1/4): 1199-1204.
- [46] Lu X H, Jiang H, Liu J X, Zhou G M, Zhu Q A, Peng C H, Wei X H, Chang J, Liu S R, Liu S G, Zhang Z, Wang K, Zhang X Y, Solomon A. Spatial and temporal variability of nitrogen deposition and its impacts on the carbon budget of China. Procedia Environmental Sciences, 2012, 13: 1997-2030.
- [47] 沈善敏. 氮肥在中国农业发展中的贡献和农业中氮的损失. 土壤学报, 2002, 39(增刊): 12-25.
- [48] 马雪华. 在杉木林和马尾松林中雨水的养分淋溶作用. 生态学报, 1989, 9(1): 15-20.
- [49] Pan Y P, Wang Y S, Tang G Q, Wu D. Wet and dry deposition of atmospheric nitrogen at ten sites in Northern China. Atmospheric Chemistry and Physics, 2012, 12: 6515-6535.
- [50] 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 Nr pollution and deposition in North China after the Beijing Olympics. Atmospheric Environment, 2013, 74: 209-216.
- [51] Shen J L, Li Y, Liu X J, Luo X S, Tang H, Zhang Y Z, Wu J S. Atmospheric dry and wet nitrogen deposition on three contrasting land use types of an agricultural catchment in subtropical central China. Atmospheric Environment, 2013, 67: 415-424.
- [52] Li K H, Liu X J, Song W, Chang Y H, Hu Y K, Tian C Y. Atmospheric nitrogen deposition at two sites in an arid environment of Central Asia. Plos One, 2013, 8(6): e67018. http://:dx.doi.org/10.1371/journal.pone.0067018.
- [53] 贾钩彦,张颖,蔡晓布,刘学军.藏东南大气氛湿沉降动态变化——以林芝观测点为例. 生态学报, 2009, 29(4): 1907-1913.
- [54] 郑祥洲,张玉树,丁洪,陈静蕊. 闽西北农田生态系统中大气氛湿沉降研究. 水土保持学报, 2012, 26(3): 127-130.
- [55] Aber J D, Nadelhoffer K J, Steudler P, Melillo J M. Nitrogen saturation in northern forest ecosystems. Bioscience, 1989, 39(6): 378-381.
- [56] Aber J, McDowell W, Nadelhoffer K, Magill A, Berntson G, Kamakea M, McNulty S, Currie W, Rustad L, Ferandez I. Nitrogen saturation in temperate forest ecosystems hypotheses revisited. Bioscience, 1998, 48(11): 921-934.
- [57] Xu W, Luo X S, Pan Y P, Zhang L, Tang A H, Shen J L, Zhang Y, Li K H, Wu Q H, Yang D W, Zhang Y Y, Xue J, Li W Q, Li Q Q, Tang L, Lu S H, Liang T, Tong Y A, Liu P, Zhang Q, Xiong Z Q, Shi X J, Wu L H, Shi W Q, Tian K, Zhong X H, Shi K, Tang Q Y, Zhang L J, Huang J L, He C E, Kuang F H, Zhu B, Liu H, Jin x, Xin Y J, Shi X K, Du E Z, Dore A J, Tang S, Collett Jr. J L, Goulding K, Zhang F S, Liu X J. Quantifying atmospheric nitrogen deposition through a nationwide monitoring network across China. Atmospheric Chemistry and Physics Discussion, 2015, 15: 18365-18405.