中国生态农业学报 2010 年 7 月 第 18 卷 第 4 期
Chinese Journal of Eco-Agriculture, July 2010, 18(4): 897−904

DOI: 10.3724/SP.J.1011.2010.00897

大气氮素沉降研究进展*

谢迎新[1] 张淑利[2] 冯 伟[1] 赵 旭[3] 郭天财[1**]

(1. 河南农业大学 国家小麦工程技术研究中心 郑州 450002; 2. 河南农业大学理学院 郑州 450002;
3. 中国科学院南京土壤研究所 土壤与农业可持续发展国家重点实验室 南京 210008)

摘 要 人为干扰下的大气氮素沉降已成为全球氮素生物化学循环的一个重要组成部分。作为营养源和酸源，大气氮沉降数量的急剧增加将严重影响陆地及水生生态系统的生产力和稳定性。本文从大气氮沉降对土壤和水体环境、农业和森林生态系统以及生物多样性等方面综述了近年来国内外大气氮素沉降的研究现状及其对生态系统的影响，并总结探讨了前人采用的大气沉降氮测定方法，展望了我国大气氮沉降的研究前景。

关键词 大气氮沉降 人类活动 生态效应 测定方法 活性氮 生态系统

中图分类号: Q14; X171.1 **文献标识码:** A **文章编号:** 1671-3990(2010)04-0897-08

Review of atmospheric nitrogen deposition research

XIE Ying-Xin[1], ZHANG Shu-Li[2], FENG Wei[1], ZHAO Xu[3], GUO Tian-Cai[1]

(1. National Engineering Research Center for Wheat, Henan Agricultural University, Zhengzhou 450002, China;
2. College of Science, Henan Agricultural University, Zhengzhou 450002, China; 3. State Key Laboratory of Soil and Sustainable Agriculture, Institute of Soil Science, Chinese Academy of Sciences, Nanjing 210008, China)

Abstract Atmospheric N deposition under human influence is an important part of global biogeochemical N cycle. As an important source of plant nutrient and soil acidification, increased N deposition from the atmosphere would greatly impact production and stability of global terrestrial and aquatic ecosystems. This paper reviews recent literatures on atmospheric N deposition and the related ecological effects on soil and water environment, agriculture and forest ecosystems and biodiversity. It summarizes documented measurement methods of atmospheric N deposition. Finally, the prospected and trend of atmospheric N deposition research development in China is advanced.

Key words Atmospheric N deposition, Human activity, Ecological effect, Measurement method, Reactive N, Ecosystem
(Received June 30, 2009; accepted Nov. 27, 2009)

自 19 世纪工业革命以来，随着化学氮肥和能源消耗量的激增，全球陆地向大气排放的 NH_x(包括 NH_3、RNH_2 和 NH_4^+)和 NO_x、陆地向水体迁移的氮以及大气沉降到陆地和水体的氮(NH_x 和 NO_x)的数量均有巨大增加[1−3]，同时发现植物从大气直接吸收的氮(NH_x+NO_x)的数量也相当可观[4−5]。据估算，人类活动生产的人为活化氮(化学合成氮、化石燃料燃烧形成的 NO_x 和豆科作物及水稻扩种而增加的生物固定的氮，简称人为活化氮)约为 140 Tg(N)·a^{-1}[6]，这些人为活化氮的 55%~60%又以 NH_y (NH_3+NH_4^+)和 NO_x 的形式返回到大气中，排放到大气中的 70%~80%氮又通过大气干湿沉降的形式返回到陆地和水体[3, 7−9]。据估计，近年来，全球每年沉降到各类生物群系的活化氮达 43.47 Tg(N)·a^{-1}，沉降到海洋表面的活化氮达 27 Tg(N)·a^{-1} [1,10]。作为营养源和酸源，大气氮沉降数量的急剧变化将严重影响陆地及水生生态系统的生产力和稳定性[11]，因而成为各国科学家和公众广泛关注的议题。国外自 20 世纪 50 年代就开展了氮沉降的相关研究，而国内该领域的研究始于 20 世纪 70 年代末[12−13]。本文对国内外大气氮素沉降的研究状况、测定方法及其生态环境效应进行初步总结，并展望了我国大气氮素沉降的

* 国家自然科学基金重大项目(30390080)、中国科学院知识创新工程重大项目(KZCX2-YW-312)、国家重点基础研究发展计划(973 计划)项目(2009CB118602)和农业部国家公益性行业科研专项计划项目(200803030)资助
** 通讯作者: 郭天财，男，教授，博士生导师，主要从事作物生理生态与农田生态系统研究。E-mail: tcguo888@sina.com
谢迎新，男，博士，硕士生导师，主要从事农田生态系统氮素循环研究。E-mail: xieyingxin@tom.com
收稿日期: 2009−06−30 接受日期: 2009−11−27

研究前景，为进一步开展该方面的研究提供参考。

1 大气氮沉降研究现状

1.1 国外研究现状

人类活动对大气干湿沉降氮通量的生成起着决定性的支配作用。19 世纪 60 年代，大气干湿沉降的氮量很少，在全球范围形成的 286 Tg(N)·a^{-1} 活化氮中以 NH_x(包括 NH_3、RNH_2 和 NH_4^+)和 NO_y(NO_3^-、HNO_3、N_2O_5、N_2O_3、PAN、RCN 和 NO_x)形式重新沉降到陆地与海洋生态系统的也仅为 31.6 Tg(N)·a^{-1}；而到 20 世纪 90 年代中期，氮沉降总量已达 103 Tg(N)·a^{-1}，预计到 2050 年全球活化氮的沉降量将达到 195 Tg(N)·a^{-1} [3,14]。Zheng 等[15]曾对亚洲活化氮的沉降量进行了估算，表明沉降到陆地和海洋生态系统的 NO_y 和 NH_x 量从 1861 年的 6.0 Tg(N)·a^{-1} 增加到 2000 年的 22.5 Tg(N)·a^{-1}，增长近 3 倍，预计 2030 年亚洲地区氮沉降总量将达到 37.8 Tg(N)·a^{-1}。前人研究[3]表明，全世界沉降氮量占人为活性氮量的比例经历了先急剧降低再缓慢提升的过程，即从 1860 年的 2.07 降到 20 世纪 90 年代中期的 0.66，预计到 2050 年又重新升高到 0.73(表 1)。亚洲地区沉降氮量占人为活性氮量的比例与全球变化趋势一致，即从 1861 年的 0.42 降到 2000 年的 0.33，预计到 2030 年又重新升高到 0.36(表 2)。以上结果表明，虽然全球或者区域性的人为活化氮的总量在当前和未来仍有不断升高的趋势，但随着人们环保意识的增强以及对所居住环境的更高要求，自然源活性氮占总活性氮比例逐步升高，而人为活化氮量占总活化氮的比例在逐步降低。

另外，据 Holland 等[1]报道，在工业化前，NO_y 和 NH_x 沉降主要发生在热带地区，当时主要受土壤排放、生物燃烧排放和雷电的影响，而目前 NO_y 和 NH_x 沉降主要发生在北半球温带生态系统，其数量大大超过了热带地区，且沉降量较工业化前增加 4 倍多。据 Goulding 等[8]在英国洛桑试验站长达 154 年(1843~1997 年)的观测结果表明，沉降到冬小麦上的氮由 1843 年 10 kg·hm^{-2}·a^{-1} 增长到 1998 年 45 kg·hm^{-2}·a^{-1}，甚至观测到森林生态系统沉降的氮高达 200 kg·hm^{-2}·a^{-1}。在人口密集、工业发达的德国中部地区，通过 ^{15}N 同位素稀释法连续 7 年(1994~2000 年)测得大气干湿沉降氮的数量高达 64±11 kg(N)·hm^{-2}·a^{-1}[4-5]。

1.2 国内研究现状

20 世纪 70 年代以来，由于中国经济的快速发展及能源和粮食消耗的迅猛增加，导致化学合成氮和化石燃料燃烧排放的氮氧化物(NO_x)迅速增加，分别从 1970 年的 2.52 Tg(N)·a^{-1} 和 1.06 Tg(N)·a^{-1} 激增到 1999 年的 24.45 Tg(N)·a^{-1} 和 4.60 Tg(N)·a^{-1}[16]。活化氮和陆地氮通量的增加势必引起中国大气沉降氮的增加，尤其是 NH_4^+的沉降增加更是明显，这主要与农田施用化学氮肥以及人和动物排泄物产生的大量 NH_3 挥发有关[16]。

表 1 全球不同来源的人为活化氮及沉降氮量

Tab. 1 Proportion of different anthropogenic Nr (reactive N) in total anthropogenic Nr and N deposition amount in the world

来源 Source	1860		20 世纪 90 年代中期 Mid-1990s		2050	
	数量 Amount [Tg(N)·a^{-1}]	所占比例 Proportion	数量 Amount [Tg(N)·a^{-1}]	所占比例 Proportion	数量 Amount [Tg(N)·a^{-1}]	所占比例 Proportion
Haber-bosch 法合成 Haber-bosch process synthesis	0	0	100.0	0.64	165.0	0.62
耕作栽培产生 Cultivation-induced biological N fixation	15.0	0.98	31.5	0.20	50.0	0.19
化石燃料排放 Fossil fuel combusion	0.3	0.02	24.5	0.16	52.2	0.19
总人为活性氮 Total anthropogenic Nr	15.3	—	156.0	—	267.0	—
沉降氮量 N deposition amount	31.6	2.07	103.0	0.66	195.0	0.73

根据 Galloway[3] 数据整理，1 Tg=10^{12} g，即 100 万 t。Data from Galloway[3], 1 Tg = 10^{12} g, ie one million ton.

表 2 亚洲地区人为活化氮量及沉降氮量

Tab. 2 The amount of anthropogenic Nr and N deposition amount in Asia

来源 Source	1961	2000	2030
Haber-bosch 法合成 Haber-bosch process synthesis [Tg(N)·a^{-1}]	2.1	46.4	72.8
农业生物固氮 Agricultural biological N fixation [Tg(N)·a^{-1}]	11.7	14.9	16.8
化石燃料排放 Fossil fuel consumption [Tg(N)·a^{-1}]	0.6	6.5	15.8
总人为活性氮 Total anthropogenic Nr [Tg(N)·a^{-1}]	14.4	67.7	105.3
沉降氮量 N deposition amount [Tg(N)·a^{-1}]	6.0	22.5	37.8
沉降氮量占人为活性氮比例 Proportion of N deposition in total anthropogenic Nr	0.42	0.33	0.36

根据 Zheng 等[15]数据整理 Data from Zheng et al[15].

近年来, 有关大气氮沉降对中国生态系统的影响已进行了许多研究。沈善敏[17]在中国 16 个试验点观测到由降水带入农田的氮量为每年 4~23 kg · hm^{-2}, 其中主要为 NH_4^+, 据此, 沈善敏[17]计算出每年由降水带入农田的氮为 8.0 kg · hm^{-2}。李生秀等[18]于 1990~1991 年在黄土旱塬地区测得每年通过降水向土壤输入的氮量为 14.3~29.7 kg(N) · hm^{-2}, 其中 NH_4^+占 71.9%~88.4%。另外, 从 1990 年初到 1994 年底, 李世清和李生秀[19]还在陕西关中地区测得大气氮沉降量在 6.3~26.6 kg(N) · hm^{-2} · a^{-1} 之间(表 3), 其中 NH_4^+占 66.3%~88.5%, NO_3^-占 11.5%~33.7%。据徐仁扣[20]报道, 在 20 世纪 80 年代中国部分城市降水中的 NH_4^+浓度就已经高出欧美几倍至几十倍, NH_4^+浓度北方高于南方, 并且降水中的 NH_4^+主要来自农田生态系统中的 NH_3 挥发损失, 其中有约 84%以 NH_4^+的形态进入降水中, 有约 15%以干沉降方式进入地表。在中国南方一些地区, 降水中的氮浓度过去多在 1~2 mg(N) · L^{-1} 之间, 带入地表的氮量也多在 9.0~19.5 kg(N) · hm^{-2} · a^{-1} 之间[21]。在中国一些森林地区, 也发现有很高的氮沉降量, 如广东鼎湖山国家级自然保护区的降水氮沉降量已达 35.57 kg(N) · hm^{-2} · a^{-1} 和 38.4 kg(N) · hm^{-2} · a^{-1}[22−23]; 马雪华[24]通过对江西分宜县大冈山林场的杉木林和马尾松林研究发现, 其降雨氮输入分别为 60.6 kg(N) · hm^{-2} · a^{-1} 和 57.0 kg(N) · hm^{-2} · a^{-1}(表 3), 已与欧洲高氮沉降量地区数量相当[4−5]。

由表 3 可以看出, 尽管不同地区大气氮湿沉降量各异, 但近年来氮沉降量有增无减, 尤其是人为活动剧烈的地区, 如北京地区、珠江三角洲地区(广东鼎湖山)、长江三角洲地区等。随着农业面源污染研究的深入, 降水带来的氮有多少来自农田氮肥的气态损失, 有多少来自工业交通运输业的化石燃料燃烧排放的 NO_x, 又有多少随降水进入到农田以及地表水中等一系列的相关问题, 已经日益受到人们的关注, 并成为近年来国内的研究热点。

2　大气氮沉降的检测方法

由于大气干湿沉降氮在不同季节、不同气候区域以及不同生态条件下受到较多因素影响, 不同的研究者通常根据自己的研究需要采用不同的采样和测定方法。迄今为止, 大气干湿沉降氮的采样和测定并没有统一的标准方法(表 3)。

表 3　中国部分地区大气氮素干湿沉降

Tab. 3　Atmospheric N deposition in some regions in China according the literatures

年代 Year	研究地区 Study region	氮沉降量 N deposition amount [kg(N) · hm^{-2} · a^{-1}]			采样仪器或分析方法 Sampling equipment or analysis method
		干沉降 Dry deposition	湿沉降 Wet deposition	混合沉降 Bulk deposition	
1985~1987	江西分宜大冈山林场[24]		57.01~60.65		自记雨量计
1980s	黑龙江省尚志县帽儿山林场[25]		12.89		雨量筒和自记雨量计
1989~1990	广东鼎湖山[22]		35.57		自制雨量筒
1990~1991	陕西关中黄土旱塬地区[18]		14.3~29.7		自制雨水接收器或气象站雨量筒
1990~1994	陕西关中[19]		6.3~26.6		自制雨水接收器或气象站雨量筒
1994~1995	吉林长岭腰井子羊草草原[26]			14.88	自制漏斗降水降尘接收器
1968~1997	长江流域[27]		4.9~18.2		统计数据和氮素生物地球化学循环模型
1999	云南西双版纳[28]		8.89		置于高 70 m 观测铁塔顶部的自记雨量计
1998~1999	广东鼎湖山[23]		38.4		自制雨水接收器
2002~2003	江苏太湖地区[29]		17.13~36.52		高出地面 1.5 m, 容积 1 L 的大玻璃杯
2003~2006	华北平原(北京、河北、山东)[30]			15~50	量雨器和武汉天虹 APS-Ⅲ型降水降尘自动采样器
2003~2004	北京地区[31]			26.6~38.5	天津 SDM6 型雨量器和武汉天虹 APS-Ⅲ型降水降尘自动采样器
2004	九龙江流域[32]		3.41~7.63		专用降尘缸湿法收集
2004~2005	北京东北旺和河北吴桥、曲周[33]			14.0~83.8	Integrated total nitrogen input (ITNI)系统
2003~2005	长江三角洲(南京、常熟、杭州)[34]		22.7~30.9		自制表面积 0.5 m^2、高 1.2 m 的雨水收集器
2003~2005	太湖地区(常熟、无锡)[35]		26.3~27.9		自制雨水收集器和武汉天虹 APS-3 型降水降尘自动采样器
2004~2005	黑龙江三江平原沼泽湿地[36]		7.57		自制采雨器
2005	北京近郊农田[37]	15~16 (NH_3 和 NO_2)			意大利柯瑞公司生产的 Radiello 被动采样器
2005~2006	陕西杨凌、洛川[38]	1.2~1.5	11.4~19.1	12.7~20.6	武汉天虹 APS-2A 型降水降尘自动采样器
2005~2006	西藏林芝[39]		1.33~3.05		自制采雨器
1998~2003	上海地区[40]		46.18~77.75 (TIN)		气象部门数据资料分析

大气湿沉降样品通常是把雨、雪和雾等降水用自动或人工采样器收集于塑料(聚乙烯)容器中，然后用 0.45 μm 玻璃纤维膜(GF/F)或核孔膜过滤[41]。陈能汪等[32]在对九龙江流域大气氮干沉降研究过程中借鉴 Balestrini 等[42]采用的样品收集方法，参照国家大气环境监测规范，用玻璃集尘缸(内径 15 cm)湿法收集大气氮干沉降样品，同时用另一相同型号集尘缸湿法收集降尘，以测定同期降尘量，降尘量的采样测定按照重量法进行(GB/T 15265－94)。集尘缸放置相对地面高度 1.2 m 以上，且周边无大树、高大房屋影响。缸内保持 5 cm 液面高度的蒸馏水，遇降雨封盖，雨停揭盖继续收集。夏季向缸内加入 2 mol · L^{-1} 的硫酸铜溶液 1 mL，以防止细菌、藻类生长。采样时首先将缸内水样经 0.45 μm 有机微孔滤膜过滤，记录水样体积后冰冻以备分析 NH_4^+和 NO_3^-以及总氮(DTN)浓度。其中，DTN 测定采用过硫酸钾氧化-紫外分光光度法，NH_4^+测定采用纳氏比色法，NO_3^-测定采用紫外分光光度法。无机氮(DIN)= NH_4^+ +NO_3^-，有机氮(DON)=DTN－DIN。

Zhang 等[30]和 Liu 等[31]利用监测点安装的雨量器及 APS-Ⅲ型降水降尘自动收集仪收集湿沉降样品，并且所有样品均在 3 个月内用连续流动分析仪(TRACC2000)测定 NH_4^+和 NO_3^-含量，沉降总量根据每次降雨中无机氮浓度与降雨量乘积累加计算。

曾有研究表明，大气氮化物干沉降量占氮沉降总量的 40%~80%[43−44]，因此，研究干沉降对生态系统的作用具有重要意义。干沉降速率(*V*d)是求算干沉降通量的重要参数，反映了干沉降过程中下垫面对各种化合物吸收能力的大小。国外对氮素 *V*d 进行了许多观测与模拟[45−48]，国内一些研究者用穿透雨量法[49]和浓度梯度法[50]也对氮化物 *V*d 进行了估算。但由于影响大气颗粒干沉降因子较多，干沉降速率通常难以精确测量。近年来国内外学者多采用大叶阻力相似模型计算气体和气溶胶粒子的干沉积速率 *V*d 大小[45−46, 51−52]，*V*d 与观测到的浓度相乘即可得到干沉降通量。例如樊建凌等[52]以中国科学院红壤生态试验站森林微气象站阔叶林(小叶栎)为研究对象，采用大叶阻力相似模型研究了各种氮化物 *V*d 动态变化，结果表明，1 年中，大气氮化物 *V*d 冬、春季高，夏、秋季低，同一天中的白天高于晚上。

为确定从大气沉降到土壤–植物系统的活性氮总量，Russow 等[4−5]在德国中部的 Bad Lauchstädt 地区，He 等[33]在华北地区对包括植株地上部直接吸收在内的大气干湿沉降氮利用 ITNI(Integrated total nitrogen input)测定系统采用 ^{15}N 同位素稀释法进行了系统研究，结果表明，沉降到土壤–植物系统的氮数量分别为 64±11 kg · hm^{-2} · a^{-1} 和 14.0~83.8 kg · hm^{-2} · a^{-1}(表 3)，研究还发现，ITNI 系统测定结果远高于以往测定的湿沉降或混合沉降(Bulk deposition)，但该高沉降氮量与长期的农田试验氮素平衡密切相关。

此外，由于微生物活动和环境温度的影响，若样品没有及时处理就可能产生硝化或者反硝化作用，从而导致样品 NH_4^+含量降低，NO_3^-含量升高，甚至总氮含量降低，因此，关于样品的保存也有报道。Cape 等[53]指出，如果样品不能立即进行实验室测定，应采取一定的措施防止保存过程中 DON 的降解和 NH_4^+的损失。目前，最常用的保存方法是避光低于–4 ℃冷藏，也可加入适量氯仿或氯化汞等化学固定剂抑制微生物的活动[54]，甚至也有在采样后用液氮立即把样品于–170 ℃迅速冷冻的试验[55]。

迄今为止，关于如何更准确地测定大气干湿沉降氮的讨论仍在继续，通常情况下，雨水中的无机氮和总氮的浓度均可以直接分析测定。但从测定本质上看，主要是关于大气干湿沉降氮中可溶性有机氮(DON)的测定问题，但不外乎两类即差减法和直接法。测定雨水中有机氮的方法，目前多用差减法，即把样品分为两份，一份采用离子色谱法或分光光度法直接测定无机氮(NH_4^+、NO_3^-、NO_2^-等)，另一份采用过氧化钾氧化(PWCO)法或紫外线光氧化(UVPO)法或高温催化氧化(HTCO)法测定总氮，由总氮减去无机氮含量推算出有机氮含量。近年来，虽然分析水样总氮含量的有关各种方法的对比研究很多，但至今并没有证明哪种方法更为优越[56−57]。目前，在雨水和气溶胶 DON 的测定中，PWCO 法和 UVPO 法应用较多[54−57]。Cornell 等[56]指出 UVPO 法优于 PWCO 法，Scudlark 等[58]则认为 PWCO 法更好。Cape 等[53]报道在测定雨水中 DON 时，HTCO 法得到最高的测定值，暗示其他两种方法可能低估了 DON 量。随着分析仪器及计算机技术的进步，HTCO 法可能是将来测定总氮的最好方法。然而，在最近一二十年里，这 3 种测定总氮的方法将受到实验室资源和研究地点的限制而并存[59]。

3 大气氮沉降的生态环境效应

3.1 大气氮沉降对农业和水环境的影响

目前，人类活动向全球陆地生态系统输入的氮已经翻了一番[60]，直到不久以前，这种增长仍集中在一些发达的国家(地区)。但随着化学肥料施用数量、化石燃料燃烧数量和生物体燃烧数量在欠发达地区的迅速增加，人类活动产生的氮来源与氮沉降已经扩展到全球范围[61−63]。植物直接利用的氮素主要是土壤中的 NH_4^+和 NO_3^-，然而，这两种

形态的氮素在土壤中存在的数量都不多。除通过施用氮肥补充这两种形态的氮素外, 来自大气的干湿沉降氮也是目前土壤中不可忽视的氮源。例如, Xie 等[35]对太湖地区农业生态系统大气沉降研究表明, 降雨中带入该区农田或水面的平均氮素已达 27 kg(N)·hm^{-2}·a^{-1}。近年来, 大气氮沉降对水环境产生的水体富营养化、水体酸化等负面影响越来越受到人们的重视[19–20,64–65]。

3.2　大气氮沉降对森林的影响

早期的观点认为, 对于森林, 大气氮沉降通常是一种养分来源, 但随着大气氮沉降量的逐年增加, 大气氮沉降对森林的作用视林地养分状况和氮输入量大小而定。在林木生长的早期阶段, 植物需要吸收大量的氮, 大气氮输入的增加通常可提高林木的氮含量[66–67], 故可提高植被的氮增长率。但在林冠郁闭之后, 当富营养的叶片生物量达到稳定时, 吸收量和增长率迅速下降[68–69], 此时, 即使增加大气氮的输入, 也不能继续提高植被的氮增长率[70]。

过量活化氮沉降到森林生态系统的最明显危害是与工业废气中的 SO_2 一起形成酸雨直接危害森林。酸雨直接通过植物叶片或间接通过土壤伤害植物, 促使森林衰亡。德国和瑞典的一些酸雨区已出现严重的大片林木死亡[58]; 日本从 20 世纪 50 年代出现红松、樱花衰退后, 又陆续出现了关东、关西平原的杉木衰退、冷杉枯损现象[71]; 20 世纪 80 年代以来, 中国开始研究酸雨对树木的影响, 并认识到酸雨已经威胁了中国某些地区的森林生态系统, 但只认为主要是 SO_4^{2-}的危害[72–73]。然而, 一些生态学家早在 20 世纪 80 年代就已观察到, 荷兰的森林衰退与大气 NH_4^+沉降之间存在显著相关性[67,74–75]。

3.3　大气氮沉降对土壤的影响

土壤 pH 降低将导致土壤有效养分的淋失, 土壤酸化可使土壤铝离子活性增强, 对植物产生毒害, 也可使土壤中某些有害元素如汞和镉的活性增强[65]。而大气氮沉降对生态环境的另一个重要影响是可能引起土壤酸化。半个多世纪来, 在人为活动剧烈的欧洲中部、斯堪的纳维亚半岛、美国和加拿大等地区和国家的酸雨严重区域, 已经出现了明显的土壤酸化现象。严重的土壤酸化可引起土壤一系列的物理化学和生物性质的改变。酸雨对土壤的危害不仅与雨水中 SO_4^{2-}有关, NO_3^-也负有责任。

在大气干湿沉降氮中, 不仅沉降的 NO_x 对土壤酸化有影响, NH_4^+对土壤酸化的影响更大, 这是因为沉降到土壤中的 1 分子 NH_4^+进行硝化作用时, 可以放出 4 个 H^+离子[6]。有人估算, 陆地人为活动排放的 NH_3 是全球氮沉降的最大源[76]。挥发到大气中的 NH_3 大部分随着大气干湿沉降近距离返回到陆地生态系统[17,77]。NH_3 是大气干湿沉降氮的主要成分, Wolfe 和 Patz[78]认为 NH_3 占沉降氮总量的 30%, 国内研究则更高, Liu 等[31]研究发现在中国北京地区东北旺观测点大气湿沉降中 NH_4^+约占总沉降氮的 75%, 这与 Xing 和 Zhu[16]的研究结果一致。因此, 就全球而言, NH_4^+沉降所导致的土壤酸化作用可能比 SO_2、NO_x 沉降所导致的酸化作用更强[6]。

3.4　大气氮沉降对水体氮污染源的贡献

从农田迁入水体的 NO_3^-一直是人们注意的重点, 在人口密度很高、工农业发达地区, 城市生活污水和农村人畜禽排泄物对地表水氮污染源的贡献已日益受到关注[31,79–80]。将大气干湿沉降氮视作水体重要污染源的观点在国外早已被提出[81], Winchester 等[81]对美国北佛罗里达州 12 处水域氮源的研究发现, 大气干湿沉降是其主要氮源, 河水中总溶解氮通量与大气沉降中 NH_4^+和 NO_3^-的通量相近。晏维金等[27]研究了长江流域 1968~1997 年 30 年间氮的输入、输出和平衡, 其中长江流域每年大气沉降氮量由 4.9 kg(N)·hm^{-2}·a^{-1} 增加到 18.2 kg(N)·hm^{-2}·a^{-1}, 增长近 3 倍, 且每年长江流域的氮输入量中, 大气沉降氮所占比例平均保持在 20%~30%之间。近年来, 大气干湿沉降氮对水体氮污染源的贡献也受到关注, 宋玉芝等[29]和 Xie 等[35]在中国太湖地区研究发现, 大气氮素干湿沉降数量不可忽视且已成为该地区农田自然供氮和水体氮污染的重要来源。

3.5　土壤氮饱和对生物多样性的影响

氮素是生物体必不可少的关键组成元素, 氮的多少决定着生物群落的发展[82], 而生物多样性又是生态环境稳定的重要标志。一般认为, 当无机氮沉降量在一定范围内时, 大部分氮被保留在生态系统中, 但 25 kg(N)·hm^{-2}·a^{-1} 通常被认为是一个临界点, 超过这一数值时, 就会出现氮饱和状态[83]。也有试验证明, 氮沉降量在 10~25 kg(N)·hm^{-2}·a^{-1} 范围内时, 森林生态系统的氮输出量将明显增加[84]。我国有些地区的氮沉降量已超过临界点的两倍, 且我国在未来一段时期内, 氮沉降量可能还会继续升高[14], 这将影响森林生态系统的生物多样性。生物多样性是地球生命经过几十亿年发展进化的结果, 是人类赖以生存和持续发展的物质基础。它提供人类所有的食物和木材、纤维、油料、橡胶等重要工业原料。中医药绝大部分来自生物, 目前直接和间接用于医药的生物已超过 3 万种。随着环境污染与生态破坏加剧, 如森林砍伐、植被破坏、滥捕乱猎、

滥采乱伐等，目前世界上的生物物种正在以每小时 1 种的速度消失。消失的物种不仅会使人类失去一种自然资源，还会通过生物链引起连锁反应，影响其他物种的生存。研究已表明，人为活化氮的增加也能导致全球性和区域性生物多样性的消失[85−89]。

氮沉降的增加已造成一些河口、海口和江湖等水域氮富集和陆地生态系统的氮饱和，引起科学界和公众的广泛关注。我国已成为世界上三大氮沉降较为集中的地区之一(美国、北欧和中国)。国外一些生态学家已开展了关于氮沉降的范围及其生态学影响的研究，但主要集中在氮沉降对森林和草地生态系统影响的研究上，并认为氮沉降是森林和草地生态系统退化的主要原因之一[90−93]。

4 结语

大气氮沉降已经成为一个普遍的自然现象，尽管大气氮沉降的成分和数量因地区而异，但其对生态环境的影响已引起世界各国的日益关注。目前国内外学者在大气氮沉降领域取得了许多重要成 果，但这些研究多集中在无机氮沉降对海洋、森林生态系统的研究，至于有机氮沉降及其化学性质和来源的确定以及对草地生态系统影响的研究相对较少。近年来，许多国外学者已经将稳定性 ^{15}N 同位素技术成功运用到生物固氮和人为氮等相关领域，也被用来确定大气中有机化合物的来源，但有关方法还不太成熟[94−95]，而国内在该领域的研究更是缺乏。

目前，有关大气干湿沉降的研究国际上还没有建立起一套标准的收集、保存及测定的公认方法，由于在方法上的差异，对国际上不同研究者报道的大气干湿沉降数量也难以进行系统比较与评估。有鉴于此，目前的研究数据使得科学家们很难就氮沉降对植物生长的影响作出全面和普遍性的结论。因此，要准确评价大气沉降氮的数量，揭示其时空分布变化规律及其来源，首先要建立一套标准的样品收集、保存和测定方法[96]。

随着中国经济高速发展及人类活动的加剧，主要来源于农业施肥、工业生产以及生活中有机废弃物排放的 NH_x 和主要来源于化石燃料及生物体燃烧产生的 NO_x 成倍增加，大气沉降氮的数量随之增加，大气沉降氮带来的生态环境问题也将日益突出。特别是近十多年来我国汽车工业迅猛发展，1990 年我国 NO_x 的排放量为 8.42 Mt，比 1950 年增长近 33 倍，排放强度最大的是中东部地区[97]，加之控制 NO_x 排放比控制 SO_2 困难更大，而且费用更高[98]，因此，中国氮沉降在未来 20 年内有不断发展的趋势，开展氮沉降及其生态影响的研究已成当务之急[83]。

此外，随着大气沉降氮数量的不断增加，以及其对农田和陆地生态系统贡献的逐步增大，近年来大气沉降氮作为“环境来源氮”(或称为“环境氮”)的一个重要组成部分，已成为农田自然供氮和水体氮污染的重要来源。准确估算该部分环境来源氮的数量对于氮肥优化管理提高氮素利用效率、减少农田氮素损失与环境压力，保障农业可持续发展具有重要意义。然而，限于研究方法、科研实力以及研究经费等系列问题，国内仅在北方华北地区，南方苏南、华南地区的研究报道逐渐增多。可以预言，在未来一段时间，大气氮素沉降将会成为中国科研工作者的研究热点和决策部门关注的主要对象之一。

参考文献

[1] Holland E A, Detenner F J, Braswell B H, et al. Contemporary and pre-industrial global reactive nitrogen budgets[J]. Biogeochemistry, 1999, 46(1): 7−43

[2] Rabalais N N. Nitrogen in aquatic ecosystems[J]. Ambio, 2002, 31(2): 102−112

[3] Galloway J N. The global nitrogen cycle: Past, present and future[J]. Sci China: Ser C, 2005, 48(Special issue): 669−677

[4] Russow R, Böhme F, Neue H-U. A new approach to determine the total airborne N input into the soil/plant system using ^{15}N isotope dilution (ITNI): Results for agricultural areas in central Germany[A]. The Scientific World, 2001, 1(S2): 255−260

[5] Russow R, Böhme F. Determination of the total nitrogen deposition by the ^{15}N isotope dilution method and problems in extrapolating results to field scale[J]. Geoderma, 2005, 127: 62−70

[6] Galloway J N. Acid deposition: Perspectives in time and space[J]. Water Air Soil Poll, 1995, 85: 15−24

[7] Asman W A H, Sutton M A, Schjorring J K. Ammonia: Emission, atmospheric transport and deposition[J]. New Phytol, 1998, 139: 27−48

[8] Goulding K W T, Bailey N J, Bradbury N J, et al. Nitrogen deposition and its contribution to nitrogen cycling and associated soil processes[J]. New Phytol, 1998, 139: 49−58

[9] 张修峰，李传红. 大气氮湿沉降及其对惠州西湖水体富营养化的影响[J]. 中国生态农业学报, 2008, 16(1): 16−19

[10] Galloway J N, Cowling E B. Reactive nitrogen and the world: 200 years of change[J]. Ambio, 2002, 31(2): 64−71

[11] Van Breemen N. Nitrogen cycle: Natural organic tendency[J]. Nature, 2002, 415: 381−382

[12] 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: 81−84

[13] 张金良，于志刚，张经. 大气的干湿沉降及其对海洋生态系统的影响[J]. 海洋环境科学, 1999, 18(1): 70−76

[14] Galloway J N, Cowling E B, Seitzinger S P, et al. Reactive nitrogen: Too much of a good thing?[J]. Ambio, 2002, 31(2): 60−63

[15] Zheng X H, Fu C B, Xu X K, et al. The Asian nitrogen cycle case study[J]. Ambio, 2002, 31(2): 79−87

[16] Xing G X, Zhu Z L. The environmental consequences of al-

tered nitrogen cycling resulting from industrial activity, agricultural production and population growth in China[A]. The Scientific World, 2001, 1(S2): 70–80

[17] 沈善敏. 氮肥在中国农业发展中的贡献和农业中氮的损失[J]. 土壤学报, 2002, 39(增刊): 12–25

[18] 李生秀, 寸待贵, 高亚军, 等. 黄土旱塬降水向土壤输入的氮素[J]. 干旱地区农业研究, 1993, 11(S1): 83–92

[19] 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[J]. 农业环境保护, 1999, 18(3): 97–101

[20] 徐仁扣. 我国降水中的 NH_4^+及其在土壤酸化中的作用[J]. 农业环境保护, 1996, 15(3): 139–140, 142

[21] 朱兆良, 文启孝. 中国土壤氮素[M]. 南京: 江苏科技出版社, 1992: 288–303

[22] 黄忠良, 丁明懋, 张祝平, 等. 鼎湖山季风常绿阔叶林的水文学过程及其氮素动态[J]. 植物生态学报, 1994, 18(2): 194–199

[23] 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[J]. 生态学报, 2001, 21(12): 2002–2012

[24] 马雪华. 在杉木林和马尾松林中雨水的养分淋溶作用[J]. 生态学报, 1989, 9(1): 15–20

[25] 刘世荣. 兴安落叶松人工林生态系统营养元素生物地球化学循环特征[J]. 生态学杂志, 1992, 11(5): 1–6

[26] 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[J]. 中国草地, 2000(2): 24–27

[27] 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——1968～1997 年的时间变化分析[J]. 地理学报, 2001, 56(5): 505–514

[28] 沙丽清, 郑征, 冯志立, 等. 西双版纳热带季节雨林生态系统氮的生物地球化学循环研究[J]. 植物生态学报, 2002, 26(6): 689–694

[29] 宋玉芝, 秦伯强, 杨龙元, 等. 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, 2005, 17(3): 226–230

[30] Zhang Y, Liu X J, Fangmeierb A, et al. Nitrogen inputs and isotopes in precipitation in the North China Plain[J]. Atmos Environ, 2008, 42: 1436–1448

[31] Liu X J, Ju X T, Zhang Y, et al. Nitrogen deposition in agroecosystems in the Beijing area[J]. Agr Ecosyst Environ, 2006, 113: 370–377

[32] 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

[33] He C E, Liu X J, Fangmeier A, et al. Quantifying the total airborne nitrogen input into agroecosystems in the North China Plain[J]. Agr Ecosyst Environ, 2007, 121: 395–400

[34] 谢迎新, 张淑利, 赵旭, 等. 长江三角洲地区雨水中 NH_4^+-N/NO_3^--N 和 $\delta^{15}NH_4^+$值的变化[J]. 应用生态学报, 2008, 19(9): 2035–2041

[35] 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]. Atmos Environ, 2008, 42: 5182–5192

[36] 孙志高, 刘景双, 王金达. 三江平原典型湿地系统湿沉降中氮浓度及沉降量初步研究[J]. 农业系统科学与综合研究, 2007, 23(1): 114–119, 123

[37] 沈健林, 刘学军, 张福锁. 北京近郊农田大气 NH_3 与 NO_2 干沉降研究[J]. 土壤学报, 2008, 45(1): 165–169

[38] 王志辉, 张颖, 刘学军, 等. 黄土区降水降尘输入农田土壤中的氮素评估[J]. 生态学报, 2008, 28(7): 3295–3301

[39] 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

[40] 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

[41] Cornell S E, Jickells T D, Thornton C A. Urea in rainwater and atmospheric aerosol[J]. Atmos Environ, 1998, 32: 1903–1910

[42] Balestrini R, Galli L, Tartari G. Wet and dry atmospheric deposition at prealpine and alpine sites in northern Italy[J]. Atmos Environ, 2000, 34(9): 1455–1470

[43] Fan J L, Hu Z Y, Wang T J, et al. Atmospheric inorganic nitrogen deposition to a typical red soil forestland in southern China[J]. Environmental Monitoring and Assessment, 2009, 159: 241–253

[44] 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

[45] Wesely M L. Parameterization of surface resistance to gaseous dry deposition in regional-scale numerical models[J]. Atmos Environ, 1989, 23(6): 1293–1304

[46] Wyers G P, Duyzer J H. Micrometeorological measurement of the dry deposition flux of sulfate and nitrate aerosols to coniferous forests[J]. Atmos Environ, 1997, 31(3): 333–343

[47] Meyers T P, Huebert B J, Hicks B B. HNO_3 deposition to a deciduous forest[J]. Boundary-Layer Meteorology, 1989, 49(4): 395–410

[48] Erisman J W, Van Elzakher B G, Mennen M G, et al. The Elspeetsche Veld experiment on surface exchange of trace gases: Summary of results[J]. Atmos Environ, 1994, 28(3): 487–496

[49] 金蕾, 邵敏, 曾立民, 等. 穿透水方法估算主要可溶性无机组分的干沉降通量[J]. 科学通报, 2006, 51(11): 1333–1337

[50] 黎云, 孙庆瑞. 氨的干沉降速率测定[J]. 环境化学, 1996, 15(5): 399–403

[51] 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, 2009, 29(1): 25–30

[52] 樊建凌, 胡正义, 王体健, 等. 阔叶林地大气氮化物干沉降速率动态变化研究[J]. 中国环境科学, 2009, 29(6): 574–577

[53] Cape J N, Kirika A, Rowland A P, et al. Organic nitrogen in precipitation: Real problem or sampling artefact?[J]. The Scientific World, 2001, 1(S2): 230–237

[54] Cornell S E, Jickells T D, Cape J N, et al. Organic nitrogen deposition on land and coastal environments: A review of methods and data[J]. Atmos Environ, 2003, 37: 2173–2191

[55] Keene W C, Montang J A, Mabab J R, et al. Organic nitrogen in precipitation over eastern North America[J]. Atmos Environ, 2002, 36: 4529–4540

[56] Cornell S E, Jickells T D. Water soluble organic nitrogen in atmospheric aerosol: A comparison of UV and persulfate oxidation methods[J]. Atmos Environ, 1999, 33: 833–840

[57] Bronk D A, Lomas M W, Glibert P M, et al. Total dissolved nitrogen analysis: Comparisons between the persulfate, UV and high temperature oxidation methods[J]. Mar Chem, 2000, 69: 163–178

[58] Scudlark J R, Russell K M, Galloway J N, et al. Organic nitrogen in precipitation at the mid-Atlantic U. S. coast—methods evaluation and preliminary measurements[J]. Atmos Environ, 1998, 32: 1719–1728

[59] Kimberly A M, Robert A D. On the use of UV photo-oxidation for the determination of total nitrogen in rainwater and water extracted atmospheric aerosol[J]. Atmos Environ, 2002, 36: 5937–5946

[60] Smil V. Detonator of the population explosion[J]. Nature, 1999, 400: 415

[61] Matthews E. Nitrogenous fertilizers: Global distribution of consumption and associated emissions of nitrous oxide and ammonia[J]. Global Biogeochem Cy, 1994, 8: 411–439

[62] Galloway J N, Levy Ⅱ H, Kasibhatla P S. Year 2020: Consequences of population growth and development on deposition of oxidized nitrogen[J]. Ambio, 1994, 23: 120–123

[63] Crutzen P J, Andreae M O. Biomass burning in the tropics: Impact on atmospheric chemistry and biogeochemical cycles[J]. Science, 1990, 250: 1669–1678

[64] 肖辉林. 大气氮沉降对森林土壤酸化的影响[J]. 林业科学, 2001, 37(4): 111–116

[65] Nosengo N. Fertilized to death[J]. Nature, 2003, 425: 894–895

[66] Kazda M. Indications of unbalanced nitrogen of Norway spruce status[J]. Plant Soil, 1990, 128: 97–101

[67] Van Dijk H F M, Roelofs J G M. Effects of excessive ammonium deposition on the nutritional status and condition of pine needles[J]. Physiol Plantarum, 1988, 73(4): 494–501

[68] Switzer G L, Nelson L E. Nutrient accumulation and cycling in loblolly pine (*Pinus taeda* L.) plantation ecosystems: The first twenty years[J]. Soil Sci Soc Am J, 1972, 36: 143–147

[69] Turner J. Nutrient cycling in an age sequence of western Washington Douglas-fir stands[J]. Ann Bot, 1981, 48: 159–170

[70] 朱兆良, 邢光熹. 氮循环——维系地球生命生生不息的一个自然过程[M]. 北京: 清华大学出版社; 广州: 暨南大学出版社, 2002

[71] 史秀华, 刘予宇, 浮田正夫. 日本酸雨及其对环境生态系统的影响[J]. 内蒙古农业大学学报, 2000, 21(1): 109–114

[72] 吴刚, 章景阳, 王星. 酸沉降对重庆南岸马尾松针叶林年生物生产量及其经济损失的估算[J]. 环境科学学报, 1994, 14(4): 560–465

[73] 汪家权, 吴劲兵, 李如忠, 等. 酸雨研究进展与问题探讨[J]. 水科学进展, 2005, 15(4): 526–530

[74] Van der Eerden L J M. Toxicity of ammonia to plants[J]. Agr Environ, 1982, 7: 223–235

[75] Den Boer W M J, Van den Tweel P A. The health condition of the Dutch forests in 1984[J]. Neth J Agr Sci, 1985, 33: 167–174

[76] Olivier J G J, Berdowski J J M. Global emissions sources and sinks[M]//Berdowski J, Guicherit R, Heij B J. The climate system. Lisse, The Netherlands: A A Balkema Publishers, Swets & Zeitlinger Publishers, 2001: 33–78

[77] Skeffington R A. Accelerated nitrogen inputs—A new problem or a new perceptive?[J]. Plant Soil, 1990, 128: 1–11

[78] Wolfe A, Patz J A. Nitrogen and human health: Direct and indirect impacts[J]. Ambio, 2002, 31(2): 120–125

[79] Xing G X, Cao Y C, Shi S L, et al. N pollution sources and denitrification in waterbodies in Taihu Lake region[J]. Sci China Ser B, 2001, 44: 304–314

[80] Breemen N V. Ecosystem effects of nitrogen in the Netherlands[J]. Environ Pollut, 1988, 54: 249–274

[81] Winchester J W, Escalona L, Meng F J, et al. Atmospheric deposition and hydrogeologic flow of nitrogen in northern Florida watersheds[J]. Geochim Cosmochim Ac, 1995, 59(11): 2215–2222

[82] Ferris H, Venette R C, Meulen H R. Nitrogen in mineralization by bacterial feeding nematodes: Verification and measurement[J]. Plant Soil, 1998, 203(2): 159–171

[83] 樊后保, 黄玉梓. 陆地生态系统氮饱和对植物影响的生理生态机制[J]. 植物生理与分子生物学学报, 2006, 32(4): 395–402

[84] Aber J, McDowell W, Nadelhoffer K, et al. Bioscience, nitrogen saturation in temperate forest ecosystems: Hypotheses revisited[J]. BioScience, 1998, 48: 921–934

[85] Pimm S L, Russell G J, Gittleman J L, et al. The future of biodiversity[J]. Science, 1995, 269: 347–350

[86] Sala O E, Chapin III F S, Armesto J J, et al. Global biodiversity scenarios for the year 2100[J]. Science, 2000, 287: 1770–1774

[87] Stevens C J, Dise N B, Owen Mountford J, et al. Impact of nitrogen deposition on the species richness of grasslands[J]. Science, 2004, 303: 1876–1879

[88] Phoenix G K, Hicks W K, Cinderby S, et al. Atmospheric nitrogen deposition in world biodiversity hotspots: The need for a greater global perspective in assessing N deposition impacts[J]. Global Change Biology, 2006, 12(3): 470–476

[89] Fraser L, Stevens C. Nitrogen deposition and loss of biological diversity: Agricultural land retirement as a policy response[J]. Land Use Policy, 2008, 25: 455–463

[90] Hall S J, Matson P A. Nitrogen oxide emissions after nitrogen additions in tropical forests[J]. Nature, 1999, 400: 152–155

[91] Magill A H, Aber J D, Berntson G M, et al. Long-term nitrogen addition and nitrogen saturation in two temperate forests[J]. Ecosystems, 2000, 3: 238–253

[92] Wamelink G W W, van Dobben H F, Mol-Dijkstra J P, et al. Effect of nitrogen deposition reduction on biodiversity and carbon sequestration[J]. Forest Ecology and Management, 2009, 258(8): 1774–1779

[93] 张燕, 崔学民, 樊明寿. 大气氮沉降及其对草地生物多样性的影响[J]. 草业科学, 2007, 24(7): 12–17

[94] Russell K M, Galloway J N, Macko S A, et al. Sources of nitrogen in wet deposition to the Chesapeake Bay region[J]. Atmos Environ, 1998, 32: 2453–2465

[95] Yeatman S G, Spokes L J, Dennis P F, et al. Can the study of nitrogen isotope composition in size-segregated aerosol nitrate and ammonium be used to investigate atmospheric processing mechanisms?[J]. Atmos Environ, 2001, 35: 1337–1345

[96] 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

[97] 王文兴, 王玮, 张婉华, 等. 我国 SO_2 和 NO_x 排放强度地理分布和历史趋势[J]. 中国环境科学, 1996, 16: 161–167

[98] Wang T J, Jin L S, Li Z K, et al. A modeling study on acid rain and recommended emission control strategies in China[J]. Atmos Environ, 2000, 34: 4467–4477