

应用大气化学模式解析东亚大气氮沉降 季节变化特征及其影响因素

张洗泷^{1*}, 赵园红^{1,2}

¹中国海洋大学海洋与大气学院, 山东 青岛

²中国海洋大学物理海洋教育部重点实验室, 山东 青岛

收稿日期: 2025年4月2日; 录用日期: 2025年5月1日; 发布日期: 2025年5月9日

摘要

本研究基于GEOS-Chem三维大气化学传输模式, 模拟分析了2016~2018年东亚地区活性氮(Nr)沉降与排放的时空分布情况, 以及其在季风降水的影响下的季节变化特征。沉降排放比(D/E)分析表明, 中国与印度D/E较低, 是东亚地区主要的活性氮排放源。本研究进一步发现, 不同国家和地区活性氮排放和季风降水不同位相的季节变化, 导致其活性氮沉降的季节变化也不同。中国活性氮排放与东亚季风降水的季节变化基本同位相, 各类活性氮沉降均呈“夏高冬低”的特征。印度地区则因活性氮排放和南亚季风降水的季节变化位相不同, 导致除氧化氮干沉降外, 其他各类氮沉降的季节变化主要受南亚季风强降水的影响, 与对应排放季节变化存在较大差异。而东南亚地区降水受季风影响较弱, 其沉降的季节变化主要取决于对应排放的季节变化。本研究解析了季风影响下活性氮排放对其沉降季节变化的影响, 有助于制定更为科学有效的区域减排政策。

关键词

GEOS-Chem, 氮沉降, 氮排放, 季风

Atmospheric Nitrogen Deposition in East Asia: Analysis of Seasonal Variations and Influencing Factors Using GEOS-Chem Model

Xilong Zhang^{1*}, Yuanhong Zhao^{1,2}

¹College of Oceanic and Atmospheric Sciences, Ocean University of China, Qingdao Shandong

²Key Laboratory of Physical Oceanography, Ministry of Education, Ocean University of China, Qingdao Shandong

Received: Apr. 2nd, 2025; accepted: May 1st, 2025; published: May 9th, 2025

*通讯作者&第一作者。

文章引用: 张洗泷, 赵园红. 应用大气化学模式解析东亚大气氮沉降季节变化特征及其影响因素[J]. 气候变化研究快报, 2025, 14(3): 349-359. DOI: 10.12677/ccrl.2025.143036

Abstract

This study uses the GEOS-Chem model to investigate the spatiotemporal distribution and seasonal mechanisms of reactive nitrogen (Nr) deposition and emissions across East Asia during 2016~2018. Analysis of deposition-to-emission ratios (D/E) shows that China and India have lower D/E ratios and are the main sources of active nitrogen emissions in East Asia. We find that the regional seasonal patterns of nitrogen deposition are shaped by phase relationships between emissions and monsoon precipitation. In China, synchronized peaks of the emissions and East Asian monsoon rainfall drive coherent “summer-high, winter-low” deposition patterns for all Nr deposition species. In contrast, India exhibits a phase mismatch: except for the dry deposition of nitrogen oxide, other Nr deposition species are mainly influenced by the heavy precipitation of the South Asian Monsoon, with a significant difference of the seasonal variation of emissions. While the Southeast Asia, with weaker monsoon influence to the precipitation, shows deposition seasonality primarily governed by local emission cycles. This study resolves the dual control of emissions and monsoons on Nr deposition, providing a framework for optimizing regional air quality policies.

Keywords

GEOS-Chem, Nitrogen Deposition, Nitrogen Emissions, Monsoon

Copyright © 2025 by author(s) and Hans Publishers Inc.

This work is licensed under the Creative Commons Attribution International License (CC BY 4.0).

<http://creativecommons.org/licenses/by/4.0/>



Open Access

1. 引言

随着人类活动对粮食和能源需求的不断增长,越来越多的氮氧化物(NO_x)和氨气(NH_3)等活性氮化合物被排放到大气中[1]。这些活性氮(Nr)化合物通过大气传输和复杂的化学反应以干、湿沉降的方式沉降到地面和海洋表面[2]。在生态系统中,活性氮的输入会扰动其碳循环进程,并通过调控二氧化碳(CO_2)、甲烷(CH_4)和氧化亚氮(N_2O)等温室气体的收支情况,显著影响全球气候变化[3]-[5]。同时过量的活性氮沉降也会引发土壤酸化、水体富营养化以及生物多样性减少等,对自然环境产生严重的负面影响[6]-[9],并危害人类健康[10]。中国由于存在较强的人为排放,是活性氮研究的热点区域之一[11][12]。活性氮排放和沉降的高值主要集中在中国东部华北平原地区[13][14],密集工农业活动导致其活性氮排放和沉降分别达 $90 \text{ kg N}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{yr}^{-1}$ 和 $40 \text{ kg N}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{yr}^{-1}$ [15]。

为提高空气质量并保护生态环境,中国政府出台了一系列关于 NH_3 和 NO_x 的减排政策,例如“十一五”规划(2016~2010年)、“十二五”规划(2011~2015年)、“十三五”规划(2016~2020年)以及2018~2020年蓝天保卫战三年行动计划[16][17]。研究表明近年来中国活性氮排放总量有所下降,其中 NH_3 排放依旧持续上升,但 NO_x 排放显著下降[18][19]。然而中国活性氮沉降总量仍在增长,目前约21%的地区活性氮沉降超过生态系统临界负荷[20]。中国仍需进一步优化活性氮排放政策,以减轻活性氮排放和过量活性氮沉降对人类健康和生态环境的负面影响。

研究表明活性氮人为源排放的变化与大气活性氮沉降的变化之间存在直接联系。同时,活性氮排放还可通过一系列复杂的大气化学过程,参与硝酸盐、硫酸盐和铵盐等二次无机气溶胶的生成过程,进一步对活性氮的沉降产生影响[21]。然而活性氮的沉降过程不仅受排放的调控,气象场亦对其有重要影响[22]。这种影响在降水变化显著的季风区则更为突出,因降水的变化会显著影响活性氮湿沉降的变化[23]。

例如, Zhang 等[24]通过采集黄海和东海沿海城市、偏远岛屿及巡航轨迹的雨水与气溶胶样本, 分析其中活性氮浓度, 探讨了东亚季风、人为排放对其时空变化的影响。而 Cui 等[25]通过对中国东南部典型红壤农业生态系统季风季节的长期监测实验, 发现猪粪施用等人为活动显著影响了大气活性氮湿沉降通量和趋势。但现有研究对于氮沉降与季风之间关系的认识还非常有限, 大部分研究主要以生态环境的视角来侧重分析局部地区活性氮沉降与季风之间季节变化的响应。

因此, 本研究将进一步应用大气化学模式 GEOS-Chem (Goddard Earth Observing System-Chemistry), 在更大的空间尺度上对比分析 2016~2018 年东亚地区活性氮沉降与排放和季风之间的空间分布和季节变化的响应特征。

2. 数据和方法

本研究采用 GEOS-Chem (v12.1.1) [26]的东亚区域嵌套模式, 对东亚地区 2016~2018 年大气活性氮的干湿沉降过程进行了模拟。GEOS-Chem 是三维全球大气化学传输模式, 因其全面性以及先进的化学机制, 已广泛应用于中国[27]、北美洲[28]以及全球[29]的大气活性氮沉降的研究中。本研究将 GEOS-Chem 模式全球粗网格 $2.5^{\circ} \times 2.5^{\circ}$ (经度 $\times$ 纬度) 的模拟结果作为边界条件, 以单向嵌套的方式输入到东亚区域细网格 $0.625^{\circ} \times 0.5^{\circ}$ (经度 $\times$ 纬度) 的活性氮沉降模拟中。

GEOS-Chem 由 MERRA-2 (The Modern-Era Retrospective analysis for Research and Applications, Version 2) 同化气象场数据驱动, 这些数据来源于美国国家航空航天管理局(NASA)所属的全球模式与资料同化办公室 GMAO (Global Modeling and Assimilation Office)。MERRA-2 包含了总降水量、10 米和 850 hPa 的风矢量和比湿、地表气压以及行星边界层高度等气象场数据[30]。其原始水平分辨率为 $0.625^{\circ} \times 0.5^{\circ}$ (经度 $\times$ 纬度), 与 GEOS-Chem 模式的分辨率一致。在垂直方向上, MERRA-2 气象场数据采用 σ - p 混合坐标, 一共 72 层。其中, 三维的温度、湿度和风场等数据的时间分辨率为 3 小时, 而地面温度、海平面气压等二维数据的时间分辨率为 1 小时。

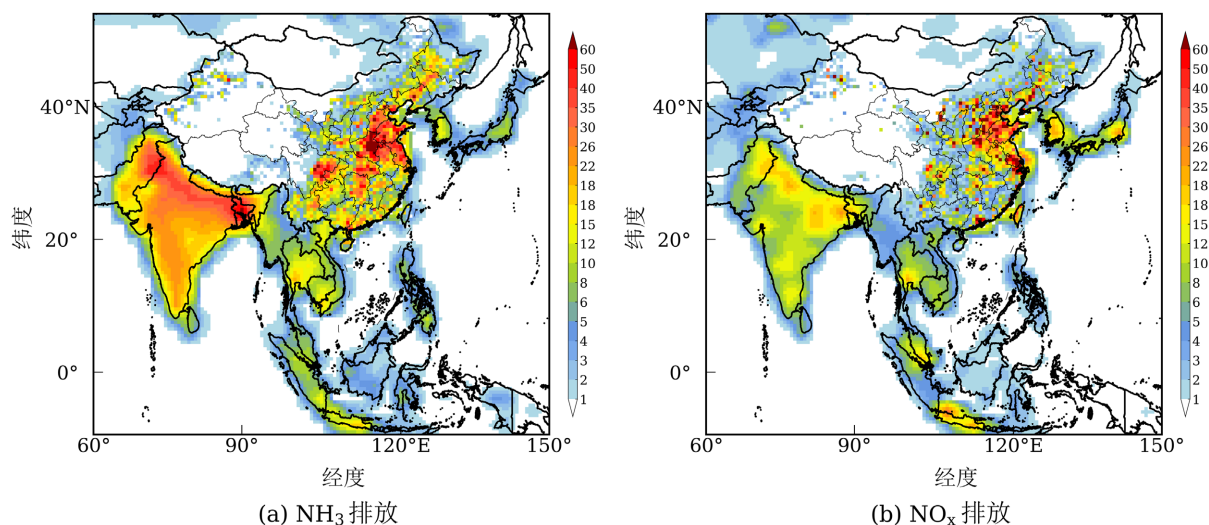
GEOS-Chem 采用全化学模拟机制, 其中包含了对流层臭氧 - 氮氧化物 - 碳氢化合物 - 气溶胶 - 卤素化学机制[31] [32]。模式中的气态硫酸(H_2SO_4)、硝酸(HNO_3)和氨气形成的硝酸盐、硫酸盐和铵盐气溶胶则通过 Fountoukis 和 Nenes 的 ISORROPIA-II 热力学模型进行计算的[33]。在气溶胶湿沉降的模拟方面, GEOS-Chem 采用的是 Liu 等[34]提出的方案。而气态物质的湿沉降, 则使用 Mari 等[35]以及 Amos 等[36]的参数化方案进行计算。该方案涵盖了次网格尺度下对流降水和大尺度降水的雨除及冲刷过程, 且针对不同情况采用不同的计算方法。干沉降通量通过模式最低层的浓度与干沉降速率相乘得到, 其中干沉降速率通过 Wesely 等[37]和 Zhang 等[38]的标准电阻串联模型计算得出。

本研究所用 GEOS-Chem 模式的人为源排放清单来自 CEDS (Community Emissions Data System) [39], 并且在中国区域使用中国多分辨率排放清单 MEIC (Multi-resolution Emission Inventory for China) [40]进行覆盖。CEDS 是开源的全球人为源排放清单, MEIC 则由清华大学联合生态环境部中国国家自然科学基金等多个机构和项目支持开发, 二者均具有较高时空分辨率, 能准确反映全球以及中国多种大气污染物的排放情况, 精准定位各类排放源[41] [42]。

3. 东亚地区活性氮排放时空分布特征

3.1. 活性氮排放的空间分布

GEOS-Chem 模式模拟的 2016~2018 年东亚地区大气活性氮排放(NH_3 和 NO_x)空间分布情况如图 1 所示。在模拟时段内, 东亚地区陆地 NH_3 排放平均为 $9.24 \text{ kg N} \cdot \text{ha}^{-1} \cdot \text{yr}^{-1}$, 相较而言, NO_x 排放强度略低, 为 $6.12 \text{ kg N} \cdot \text{ha}^{-1} \cdot \text{yr}^{-1}$ 。 NH_3 排放中人为源占主导, 可达 89%, 自然源较少。



单位: $\text{kg N}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{yr}^{-1}$ 。

Figure 1. The spatial distribution of the annual total nitrogen emission averaged in East Asia from 2016 to 2018

图 1. 2016~2018 年东亚地区氮排放空间分布图

从地理分布来看, NH_3 排放主要集中于农业和畜牧业较为发达的中国华北平原、四川盆地以及印度地区, 最高值出现在中国河南省, 高达 $41.9 \text{ kg N}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{yr}^{-1}$ 。 NO_x 排放的高值则主要集中于工业与能源消费密集的中国华北平原、长三角地区, 分别为 $27.0 \text{ kg N}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{yr}^{-1}$ 和 $25.0 \text{ kg N}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{yr}^{-1}$ 。

从国家尺度分析, 印度以 $34.2 \text{ kg N}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{yr}^{-1}$ 的全国平均排放强度和 $51.3 \text{ Tg N}\cdot\text{yr}^{-1}$ 的排放总量成为区域最大排放源, 且 NH_3 排放和 NO_x 排放的总量也均为最高, 分别为 $36.1 \text{ Tg N}\cdot\text{yr}^{-1}$ 和 $15.2 \text{ Tg N}\cdot\text{yr}^{-1}$ 。中国活性氮排放总量为 $20.4 \text{ Tg N}\cdot\text{yr}^{-1}$, 全国平均排放量为 $15.3 \text{ kg N}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{yr}^{-1}$ 。其中 NH_3 排放为 $11.0 \text{ Tg N}\cdot\text{yr}^{-1}$, 占总活性氮排放的 54%, 略高于 $9.4 \text{ Tg N}\cdot\text{yr}^{-1}$ 的 NO_x 排放。东南亚地区活性氮排放总量为 $13.9 \text{ Tg N}\cdot\text{yr}^{-1}$, 其中 NH_3 排放为 $8.1 \text{ Tg N}\cdot\text{yr}^{-1}$, NO_x 排放为 $5.9 \text{ Tg N}\cdot\text{yr}^{-1}$ 。数据表明, 不同国家和地区由于产业结构、经济发展水平以及人口密度等因素的差异, 活性氮排放存在明显的空间分布不均。

3.2. 活性氮排放的季节变化

东亚地区活性氮排放季节变化如图 2 所示, 活性氮排放总量的月平均变化范围介于 $1.0\sim 2.0 \text{ kg N}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{month}^{-1}$ 之间, 其中 1 月排放量最低, 5 月达最高值。春夏季月均排放量为 $2.9 \text{ kg N}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{month}^{-1}$, 是秋冬季($2.2 \text{ kg N}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{month}^{-1}$)的 1.3 倍, 整体呈现春夏季排放多、秋冬季排放少的特征。研究区域内 NH_3 排放的季节性显著强于 NO_x 排放, 前者呈现由春季至冬季递减的趋势。而 NO_x 排放主要来自人为活动所产生的化石燃料燃烧过程, 由于人类生产生活对化石燃料的需求相对稳定, 故研究区域内其季节变化不显著[43][44]。中国 NH_3 排放量在夏季最高, 可达 $2.9 \text{ kg N}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{month}^{-1}$, 冬季最低, 为 $1.7 \text{ kg N}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{month}^{-1}$ 。印度地区 NH_3 排放春季达峰值 $3.2 \text{ kg N}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{month}^{-1}$, 如图 5(d), 在 5 月和 9 月雨季前后呈双峰特征, 其峰值分别为 $4.9 \text{ kg N}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{month}^{-1}$ 和 $2.7 \text{ kg N}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{month}^{-1}$ 。东南亚地区 NH_3 排放季节变化和逐月变化趋势与印度地区相似, 但峰值相对较低, 分别为 $0.8 \text{ kg N}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{month}^{-1}$ 和 $0.5 \text{ kg N}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{month}^{-1}$ 。

4. 东亚地区活性氮沉降分布及其影响因素

4.1. 活性氮沉降空间分布

2016~2018 年东亚地区陆地年均活性氮沉降总量为 $29.8 \text{ Tg N}\cdot\text{yr}^{-1}$, 其中湿沉降为 $17.1 \text{ Tg N}\cdot\text{yr}^{-1}$,

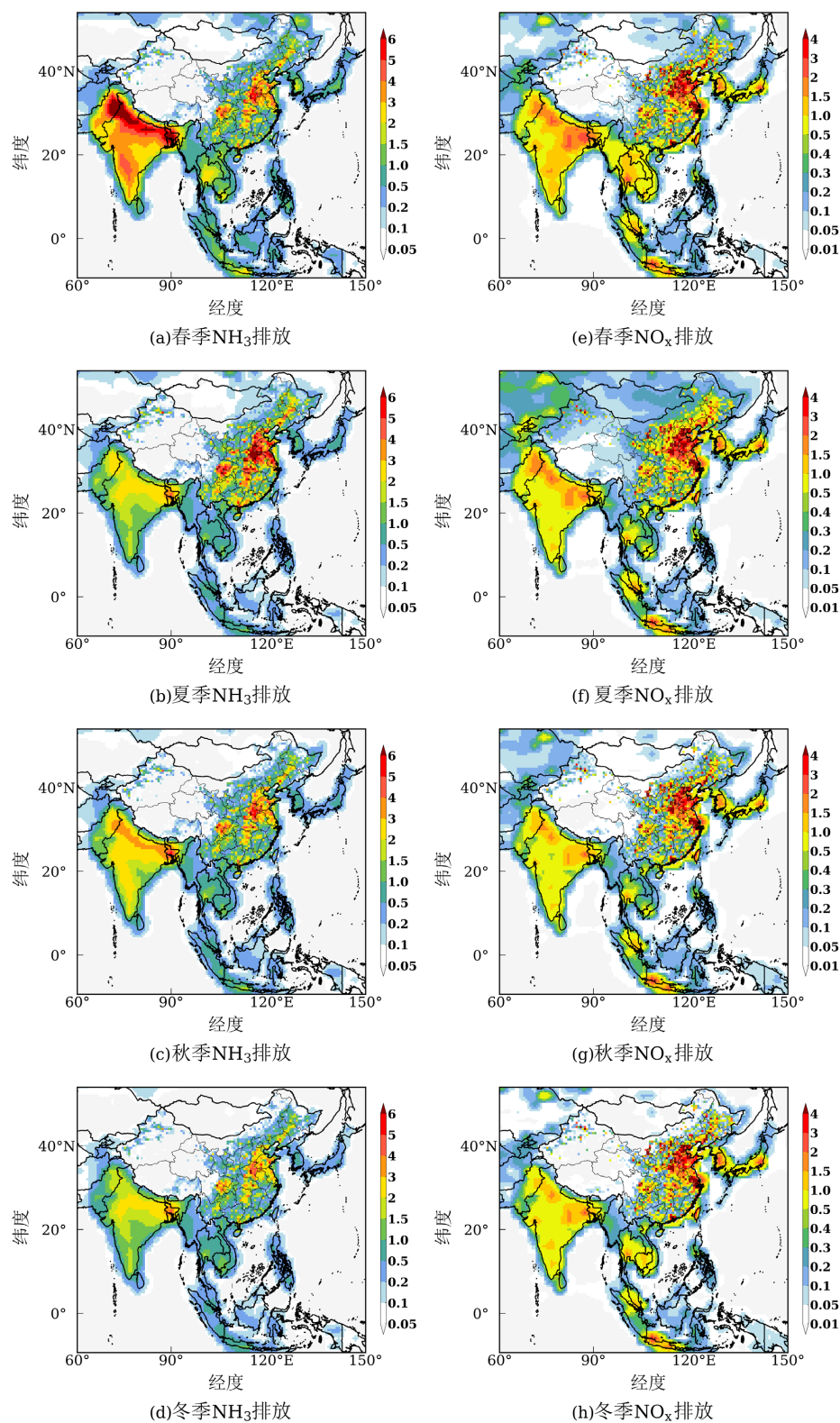
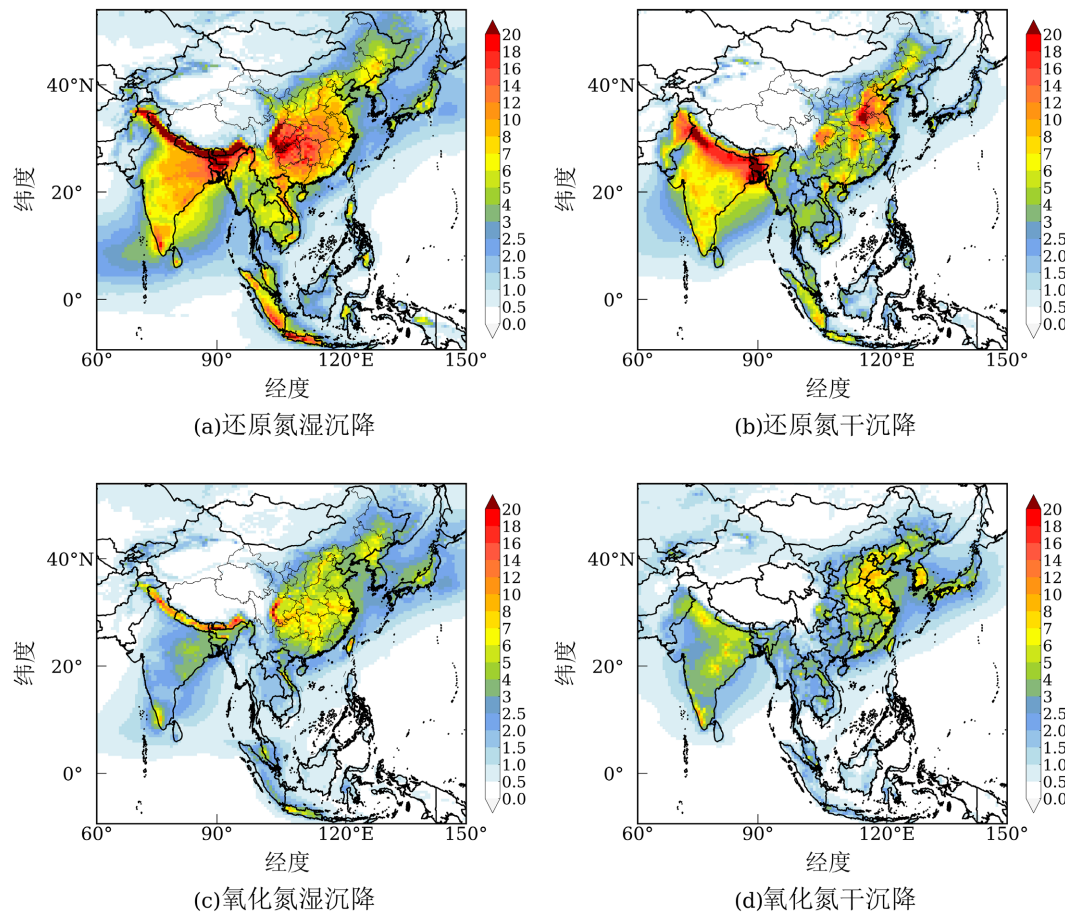


Figure 2. The seasonal variations of emissions in East Asia from 2016 to 2018

图 2. 2016~2018 年东亚地区氮排放季节变化图

高于干沉降的 $12.7 \text{ Tg N}\cdot\text{yr}^{-1}$, 还原氮沉降为 $20.1 \text{ Tg N}\cdot\text{yr}^{-1}$, 高于氧化氮沉降的 $9.7 \text{ Tg N}\cdot\text{yr}^{-1}$ 。如图 3 所示, 还原氮和氧化氮的湿沉降在空间上的分布, 与区域降水分布密切相关。其高值区域集中分布在降水较为充沛的中国东部、印度北部以及印度尼西亚东部地区。最高值出现在四川盆地和喜马拉雅山脉地区, 分别为 $29.2 \text{ kg N}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{yr}^{-1}$ 和 $47.2 \text{ kg N}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{yr}^{-1}$ (图 3(a)、图 3(c))。而干沉降的空间分布, 则主要取决于对应的排放, 其高值主要集中在排放量较高的中国华北平原和印度北部地区, 平均沉降量分别为 $14.0 \text{ kg N}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{yr}^{-1}$ 和 $9.8 \text{ kg N}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{yr}^{-1}$ (图 3(b)、图 3(d))。活性氮沉降的低值区域主要集中于人口和降水均较少的中国青藏高原、新疆南疆地区, 以及蒙古国境内 ($<0.5 \text{ kg N}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{yr}^{-1}$)。研究区域内各国家中印度活性氮沉降总量最高, 为 $8.8 \text{ Tg N}\cdot\text{yr}^{-1}$ 。其次是中国, 活性氮沉降总量为 $12.8 \text{ Tg N}\cdot\text{yr}^{-1}$, 全国平均沉降量为 $12.0 \text{ kg N}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{yr}^{-1}$, 其中还原氮湿沉降、还原氮干沉降、氧化氮湿沉降和氧化氮干沉降分别为 $5.3 \text{ Tg N}\cdot\text{yr}^{-1}$ 、 $2.8 \text{ Tg N}\cdot\text{yr}^{-1}$ 、 $2.7 \text{ Tg N}\cdot\text{yr}^{-1}$ 和 $2.0 \text{ Tg N}\cdot\text{yr}^{-1}$ 。东南亚地区活性氮沉降总量为 $5.9 \text{ Tg N}\cdot\text{yr}^{-1}$ 。



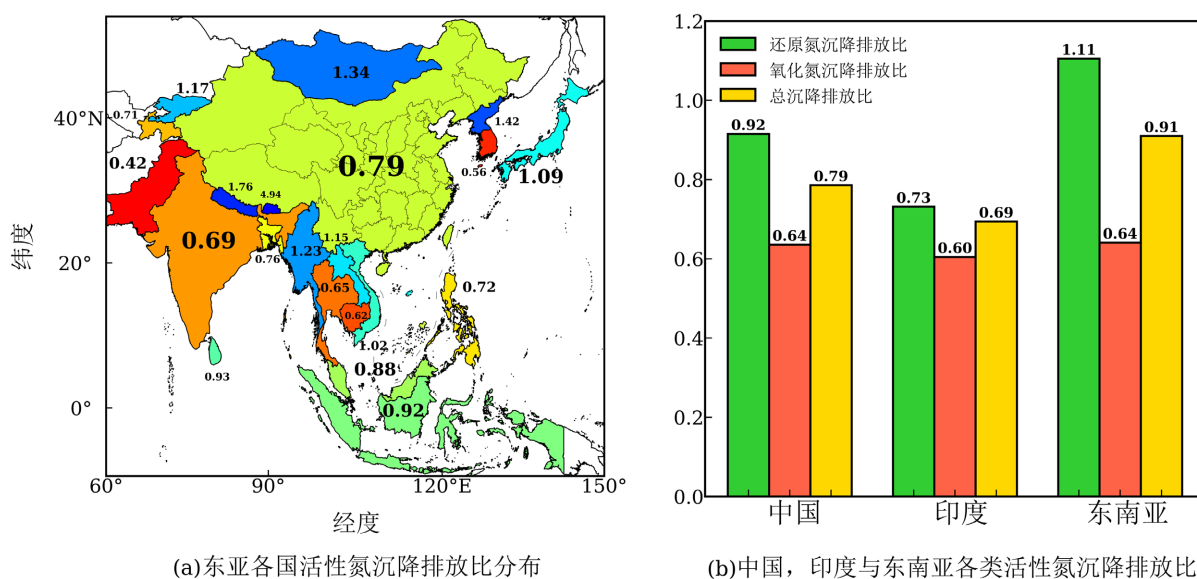
单位: $\text{kg N}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{yr}^{-1}$ 。

Figure 3. Simulated annual nitrogen deposition in East Asia from 2016 to 2018
图 3. 2016~2018 年东亚地区氮沉降空间分布图

4.2. 影响东亚地区活性氮沉降的要素

为了更好地理解东亚地区氮沉降的空间分布和季节变化, 本研究聚焦于活性氮排放、季风等要素对东亚地区活性氮沉降的影响。沉降排放比(D/E, deposition to emissions)用于分析活性氮排放与沉降之间的相互作用, 其分布特征如图 4 所示。图 4(a)中, 总 D/E 较低的国家为中国、印度、泰国和柬埔寨等国,

分别为 0.79、0.69、0.65 和 0.62。低 D/E 表明这些地区排放强度相对周边区域较高, 对周边区域空气污染水平影响较大。结合图 1 的排放强度分布可知, 印度和中国是东亚地区主要的活性氮排放源。相比之下, 不丹、尼泊尔、蒙古和朝鲜等国的总 D/E 较高, 分别为 4.94、1.76、1.34 和 1.42。高 D/E 表明这些地区活性氮沉降受区域污染传输的影响较为突出。以不丹和尼泊尔为例, 其南边紧邻印度这一东亚最大的活性氮排放源, 来自印度的污染物通过西南季风传输, 使得这两个国家的活性氮排放境外输入相对周边国家偏高。此外, 不丹和尼泊尔的地理位置特殊, 地处喜马拉雅山脉南侧迎风坡, 暖湿气流在爬坡过程中被迫抬升, 导致地形雨较为丰富, 促进了湿沉降过程。在上述两种因素的协同作用下, 不丹和尼泊尔的 D/E 显著偏高。图 4(b)中, 中国、印度和东南亚中还原氮 D/E 均高于氧化氮。这是由于 NH_3 的生命时间相对较短, 大部分 NH_3 会在源区附近沉降, 而对于生命时间较长的 NO_x , 其沉降更容易受传输过程和化学反应的影响。综合来看, 东亚地区的氮沉降受活性氮排放的影响较大, 印度和中国是东亚地区活性氮的主要源汇。



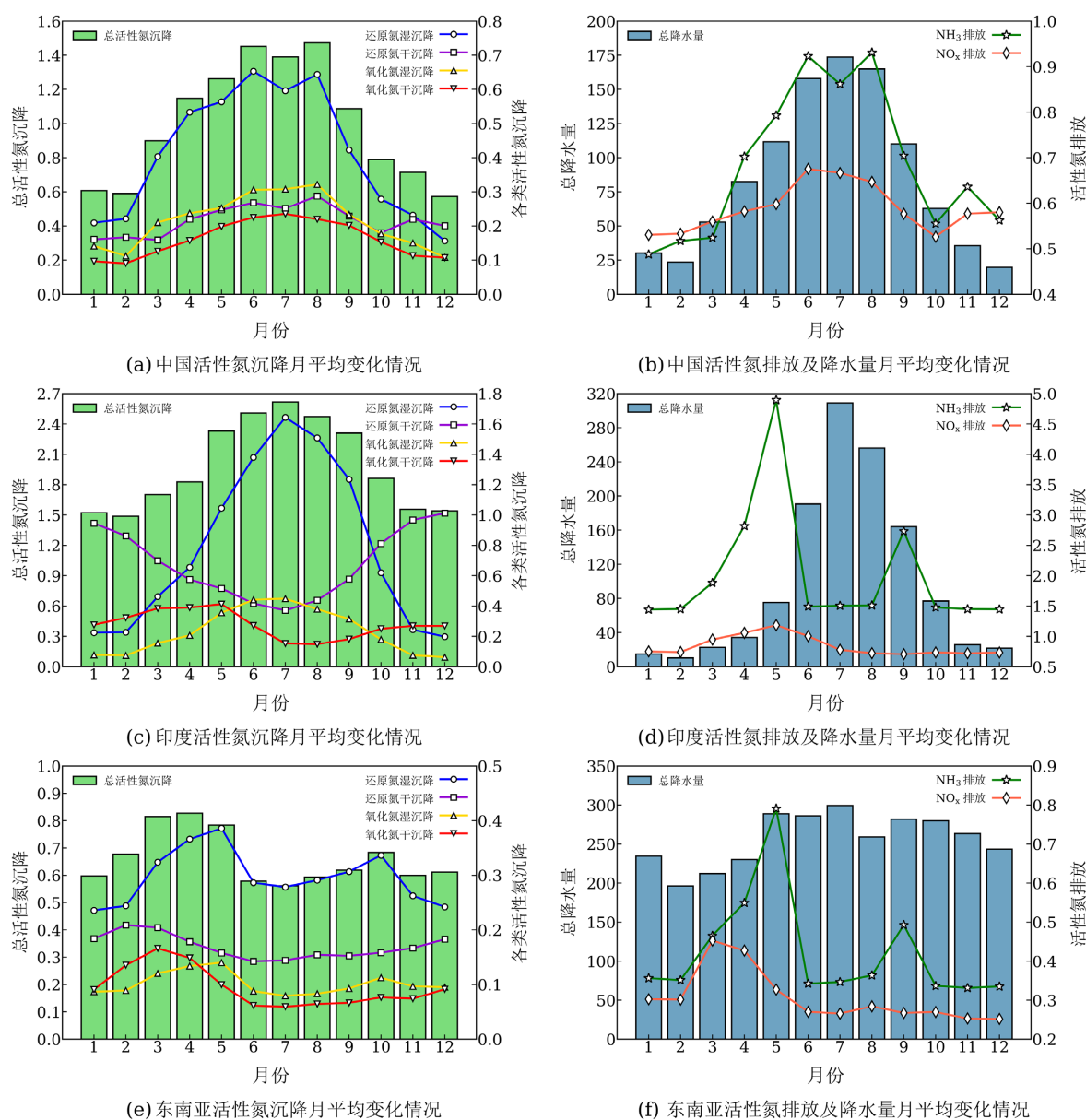
(a)中冷色调对应较低的 D/E 值, 暖色调区域则对应较高的 D/E 值。

Figure 4. The ratio of Nr deposition to emission in East Asia from 2016 to 2018

图 4. 2016~2018 年东亚地区活性氮沉降排放比

2016~2018 年东亚地区活性氮沉降总量的月平均变化范围介于 $0.7\sim 1.27 \text{ kg N}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{month}^{-1}$ 之间, 12 月沉降量最低, 7 月达最高值, 且存在显著的季节差异, 夏季平均沉降量 ($3.8 \text{ kg N}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{month}^{-1}$) 是冬季 ($2.1 \text{ kg N}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{month}^{-1}$) 的 1.8 倍。中国、印度和东南亚地区活性氮沉降月平均变化情况如图 5 所示。中国受东亚夏季风的影响, 5~9 月平均降水量超过 $100 \text{ mm month}^{-1}$, 占全年降水总量的 70% (图 5(b))。由于中国总活性氮排放量也呈“夏高冬低”的特征, 在降水和排放同位相的季节变化驱动下, 中国活性氮湿沉降的季节分布特征最为明显, 其中还原氮湿沉降夏季年均沉降量达 $1.8 \text{ kg N}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{month}^{-1}$, 是冬季 ($0.6 \text{ kg N}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{month}^{-1}$) 的 3 倍; 氧化氮湿沉降 ($0.9 \text{ kg N}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{month}^{-1}$) 夏季年均沉降亦为冬季 ($0.4 \text{ kg N}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{month}^{-1}$) 的 2.6 倍。但对于干沉降而言降水影响较小, 故其变化趋势与对应排放基本一致。尤其是还原氮干沉降, 其与 NH_3 排放均在 6 月、8 月和 11 月出现峰值 (图 5(a))。印度地区总氮沉降虽也呈现“夏高冬低”的特征, 但其中还原氮沉降季节变化的成因与中国不同: 印度地区夏季 NH_3 排放减少, 且在南亚夏季风 (6~9 月) 强降水 ($>160 \text{ mm month}^{-1}$) 的影响下 (图 5(d)), NH_3 因其高水溶性被湿沉降大量清除 (夏季平均浓度为 1.8

$\times 10^{11} \text{ molecules}\cdot\text{cm}^{-3}$), 在上述两种因素的作用下地表 NH_3 浓度降低, 夏季还原氮湿沉降升至全年最高的 $1.5 \text{ kg N}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{month}^{-1}$, 还原氮干沉降降至全年最低的 $0.2 \text{ kg N}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{month}^{-1}$; 而南亚夏季风消退后, 农业 NH_3 排放增加且降水减少, 导致地表 NH_3 浓度增加(冬季平均浓度为 $4.2 \times 10^{11} \text{ molecules}\cdot\text{cm}^{-3}$), 干沉降成为还原氮沉降的主导途径, 其冬季平均沉降量高达 $1.4 \text{ kg N}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{month}^{-1}$, 还原氮湿沉降降至全年最低($0.2 \text{ kg N}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{month}^{-1}$)。氧化氮湿沉降则与季风降水同步, 7 月达峰值 $0.4 \text{ kg N}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{month}^{-1}$, 干沉降则响应 NO_x 的排放周期, 在 5 月达峰值 $0.4 \text{ kg N}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{month}^{-1}$ (图 5(c))。东南亚地区除中南半岛和菲律宾以外, 其余国家位于赤道附近, 总体受季风影响较弱, 逐月平均降水量季节变化不显著, 基本大于 $200 \text{ mm}\cdot\text{month}^{-1}$ (图 5(f))。除还原氮干沉降外, 其余沉降月平均变化情况与对应排放相符(图 5(e))。



沉降和排放单位: $\text{kg N}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{yr}^{-1}$; 降水单位: $\text{mm}\cdot\text{month}^{-1}$ 。

Figure 5. Monthly variations of reactive nitrogen deposition and its influencing factors in China, India and Southeast Asia
图 5. 中国、印度和东南亚活性氮沉降及其影响因素月平均变化情况

综上所述, 活性氮排放和季风降水对东亚地区活性氮沉降的空间分布和季节变化有较大影响。中国和印度作为大气活性氮主要排放源呈现低 D/E 特征, 而不丹和尼泊尔等高 D/E 区域的沉降则主要受大气传输与地形影响。不同国家和地区活性氮排放和季风降水不同位相的季节变化, 导致其活性氮沉降的季节变化也不同。中国总活性氮排放、 NH_3 排放和 NO_x 排放与东亚季风降水的季节变化基本同位相, 总活性氮沉降、干沉降和湿沉降以及还原氮和氧化氮沉降均呈“夏高冬低”的特征。印度地区因活性氮排放和南亚季风降水的季节变化位相不同, 导致除氧化氮干沉降外, 其他种类的氮沉降季节变化与对应排放季节变化均存在较大差异。经研究分析, 这些氮沉降的季节变化主要取决于南亚季风强降水的季节变化。相对中国而言, 南亚季风强度大于东亚季风, 其对大气活性氮化合物的传输和清除机制在整个沉降过程中影响更大。不同于中国和印度, 东南亚地区总体受季风影响较弱, 降水较多且稳定, 其沉降的季节变化主要取决于对应排放的季节变化。

5. 结论与讨论

本研究基于 GEOS-Chem 模型模拟了 2016~2018 年东亚地区活性氮的排放与沉降的时空分布特征, 并探究了不同国家和地区活性氮排放和季风降水对活性氮沉降空间分布和季节变化的影响。

东亚地区活性氮排放与沉降具有显著的区域和季节差异。 NH_3 排放主要集中于农业发达的中国华北平原和印度北部, 最高可达 $41.9 \text{ kg N}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{yr}^{-1}$, NO_x 排放则集中在工业密集的中国长三角($25.0 \text{ kg N}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{yr}^{-1}$)和华北平原($27.0 \text{ kg N}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{yr}^{-1}$)。 NH_3 排放春夏季出现高峰, 而 NO_x 排放因化石燃料需求稳定, 季节波动较小。东亚地区年均活性氮沉降总量为 $29.8 \text{ Tg N}\cdot\text{yr}^{-1}$, 其中湿沉降($17.1 \text{ Tg N}\cdot\text{yr}^{-1}$)和还原氮沉降($20.1 \text{ Tg N}\cdot\text{yr}^{-1}$)占主导。印度是东亚地区最大的大气活性氮排放源, 总量可达 $51.3 \text{ Tg N}\cdot\text{yr}^{-1}$, 远超中国($20.4 \text{ Tg N}\cdot\text{yr}^{-1}$)和东南亚($13.9 \text{ Tg N}\cdot\text{yr}^{-1}$)。东亚地区活性氮沉降总量为 $29.8 \text{ Tg N}\cdot\text{yr}^{-1}$, 其中湿沉降($17.1 \text{ Tg N}\cdot\text{yr}^{-1}$)和还原氮沉降($20.1 \text{ Tg N}\cdot\text{yr}^{-1}$)占主导地位。沉降排放比(D/E)分析表明, 中国(0.79)和印度(0.69)作为主要排放源呈现低 D/E 值, 其活性氮沉降主要由本地排放主导; 不丹(4.94)、尼泊尔(1.76)等高 D/E 区域的活性氮沉降则受大气传输与地形的影响。东亚地区活性氮沉降季节变化受季风降水影响较大, 高值区与降水和排放密集区高度重合, 如中国四川盆地($29.2 \text{ kg N}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{yr}^{-1}$)和印度北部($47.2 \text{ kg N}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{yr}^{-1}$), 低值区则分布于中国青藏高原及蒙古国。季节变化显示, 东亚地区沉降量夏季($3.8 \text{ kg N}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{month}^{-1}$)为冬季($2.1 \text{ kg N}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{month}^{-1}$)的 1.8 倍。在东亚季风降水的驱动下, 中国夏季湿沉降($1.8 \text{ kg N}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{month}^{-1}$)达冬季 3 倍。印度则因南亚季风强降水导致夏季湿沉降最高($1.9 \text{ kg N}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{month}^{-1}$), 干沉降最低($0.6 \text{ kg N}\cdot\text{ha}^{-1}\cdot\text{month}^{-1}$)。东南亚地区逐月降水较为稳定, 活性氮沉降的季节变化受降水的影响较小, 其与本地排放变化基本一致。

本研究通过对东亚地区活性氮排放与沉降以及季风的时空分布和季节变化特征及其影响因素的系统研究, 深入解析了区域氮循环过程、评估了季风的影响下活性氮排放对其沉降季节变化的影响, 有助于制定更为科学有效的区域环境政策和减排策略, 以应对日益严峻的环境挑战, 促进东亚各国家和地区生态环境的可持续发展。

基金项目

本研究得到了山东省自然科学基金项目(ZR2021QD117)的资助。

参考文献

- [1] Fowler, D., Coyle, M., Skiba, U., Sutton, M.A., Cape, J.N., Reis, S., *et al.* (2013) The Global Nitrogen Cycle in the Twenty-First Century. *Philosophical Transactions of the Royal Society B: Biological Sciences*, **368**, Article 20130164. <https://doi.org/10.1098/rstb.2013.0164>

- [2] Galloway, J.N., Dentener, F.J., Capone, D.G., Boyer, E.W., Howarth, R.W., Seitzinger, S.P., *et al.* (2004) Nitrogen Cycles: Past, Present, and Future. *Biogeochemistry*, **70**, 153-226. <https://doi.org/10.1007/s10533-004-0370-0>
- [3] Duce, R.A., LaRoche, J., Altieri, K., Arrigo, K.R., Baker, A.R., Capone, D.G., *et al.* (2008) Impacts of Atmospheric Anthropogenic Nitrogen on the Open Ocean. *Science*, **320**, 893-897. <https://doi.org/10.1126/science.1150369>
- [4] Liu, L. and Greaver, T.L. (2009) A Review of Nitrogen Enrichment Effects on Three Biogenic GHGs: The CO₂ Sink May Be Largely Offset by Stimulated N₂O and CH₄ Emission. *Ecology Letters*, **12**, 1103-1117. <https://doi.org/10.1111/j.1461-0248.2009.01351.x>
- [5] Zaehle, S., Ciais, P., Friend, A.D. and Prieur, V. (2011) Carbon Benefits of Anthropogenic Reactive Nitrogen Offset by Nitrous Oxide Emissions. *Nature Geoscience*, **4**, 601-605. <https://doi.org/10.1038/ngeo1207>
- [6] Bouwman, A.F., Van Vuuren, D.P., Derwent, R.G. and Posch, M. (2002) A Global Analysis of Acidification and Eutrophication of Terrestrial Ecosystems. *Water, Air, and Soil Pollution*, **141**, 349-382. <https://doi.org/10.1023/a:1021398008726>
- [7] Stevens, C.J., Dise, N.B., Mountford, J.O. and Gowing, D.J. (2004) Impact of Nitrogen Deposition on the Species Richness of Grasslands. *Science*, **303**, 1876-1879. <https://doi.org/10.1126/science.1094678>
- [8] Bowman, W.D., Cleveland, C.C., Halada, L., Hreško, J. and Baron, J.S. (2008) Negative Impact of Nitrogen Deposition on Soil Buffering Capacity. *Nature Geoscience*, **1**, 767-770. <https://doi.org/10.1038/ngeo339>
- [9] Clark, C.M. and Tilman, D. (2008) Loss of Plant Species after Chronic Low-Level Nitrogen Deposition to Prairie Grasslands. *Nature*, **451**, 712-715. <https://doi.org/10.1038/nature06503>
- [10] Richter, A., Burrows, J.P., Nüß, H., Granier, C. and Niemeier, U. (2005) Increase in Tropospheric Nitrogen Dioxide over China Observed from Space. *Nature*, **437**, 129-132. <https://doi.org/10.1038/nature04092>
- [11] Dentener, F., Drevet, J., Lamarque, J.F., Bey, I., Eickhout, B., Fiore, A.M., *et al.* (2006) Nitrogen and Sulfur Deposition on Regional and global scales: A Multimodel Evaluation. *Global Biogeochemical Cycles*, **20**, 1-21. <https://doi.org/10.1029/2005gb002672>
- [12] Galloway, J.N., Townsend, A.R., Erisman, J.W., Bekunda, M., Cai, Z., Freney, J.R., *et al.* (2008) Transformation of the Nitrogen Cycle: Recent Trends, Questions, and Potential Solutions. *Science*, **320**, 889-892. <https://doi.org/10.1126/science.1136674>
- [13] Liu, X., Zhang, Y., Han, W., Tang, A., Shen, J., Cui, Z., *et al.* (2013) Enhanced Nitrogen Deposition over China. *Nature*, **494**, 459-462. <https://doi.org/10.1038/nature11917>
- [14] Vet, R., Artz, R.S., Carou, S., Shaw, M., Ro, C., Aas, W., *et al.* (2014) A Global Assessment of Precipitation Chemistry and Deposition of Sulfur, Nitrogen, Sea Salt, Base Cations, Organic Acids, Acidity and pH, and Phosphorus. *Atmospheric Environment*, **93**, 3-100. <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2013.10.060>
- [15] Liu, L., Xu, W., Lu, X., Zhong, B., Guo, Y., Lu, X., *et al.* (2022) Exploring Global Changes in Agricultural Ammonia Emissions and Their Contribution to Nitrogen Deposition since 1980. *Proceedings of the National Academy of Sciences*, **119**, e2121998119. <https://doi.org/10.1073/pnas.2121998119>
- [16] Liu, L., Zhang, X., Xu, W., Liu, X., Zhang, Y., Li, Y., *et al.* (2020) Fall of Oxidized While Rise of Reduced Reactive Nitrogen Deposition in China. *Journal of Cleaner Production*, **272**, Article 122875. <https://doi.org/10.1016/j.jclepro.2020.122875>
- [17] Xu, M., Qin, Z. and Zhang, S. (2021) Integrated Assessment of Cleaning Air Policy in China: A Case Study for Beijing-Tianjin-Hebei Region. *Journal of Cleaner Production*, **296**, Article 126596. <https://doi.org/10.1016/j.jclepro.2021.126596>
- [18] Zhang, X., Wu, Y., Liu, X., Reis, S., Jin, J., Dragosits, U., *et al.* (2017) Ammonia Emissions May Be Substantially Underestimated in China. *Environmental Science & Technology*, **51**, 12089-12096. <https://doi.org/10.1021/acs.est.7b02171>
- [19] Zheng, B., Tong, D., Li, M., Liu, F., Hong, C., Geng, G., *et al.* (2018) Trends in China's Anthropogenic Emissions since 2010 as the Consequence of Clean Air Actions. *Atmospheric Chemistry and Physics*, **18**, 14095-14111. <https://doi.org/10.5194/acp-18-14095-2018>
- [20] 黄静文, 刘磊, 颜晓元, 等. 我国自然生态系统氮沉降临界负荷评估[J]. 环境科学, 2023, 44(6): 3321-3328.
- [21] Zhao, Y., Zhang, L., Pan, Y., Wang, Y., Paulot, F. and Henze, D.K. (2015) Atmospheric Nitrogen Deposition to the Northwestern Pacific: Seasonal Variation and Source Attribution. *Atmospheric Chemistry and Physics*, **15**, 10905-10924. <https://doi.org/10.5194/acp-15-10905-2015>
- [22] Wen, Z., Xu, W., Li, Q., Han, M., Tang, A., Zhang, Y., *et al.* (2020) Changes of Nitrogen Deposition in China from 1980 to 2018. *Environment International*, **144**, Article 106022. <https://doi.org/10.1016/j.envint.2020.106022>
- [23] Wang, Q., Zou, J., Liu, Y., Li, J., Liu, X., Zhang, H., *et al.* (2024) Impacts of Farming Activities on Nitrogen Degradability under a Temperate Continental Monsoon Climate. *Agronomy*, **14**, Article 1094. <https://doi.org/10.3390/agronomy14061094>

- [24] Zhang, J., Zhang, G.S., Bi, Y.F. and Liu, S.M. (2011) Nitrogen Species in Rainwater and Aerosols of the Yellow and East China Seas: Effects of the East Asian Monsoon and Anthropogenic Emissions and Relevance for the NW Pacific Ocean. *Global Biogeochemical Cycles*, **25**, 1-14. <https://doi.org/10.1029/2010gb003896>
- [25] Cui, J., Zhou, J., Peng, Y., He, Y., Yang, H. and Mao, J. (2014) Atmospheric Wet Deposition of Nitrogen and Sulfur to a Typical Red Soil Agroecosystem in Southeast China during the Ten-Year Monsoon Seasons (2003-2012). *Atmospheric Environment*, **82**, 121-129. <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2013.10.023>
- [26] The GEOS-Chem Website. <http://geos-chem.org>
- [27] Zhao, Y., Zhang, L., Chen, Y., Liu, X., Xu, W., Pan, Y., *et al.* (2017) Atmospheric Nitrogen Deposition to China: A Model Analysis on Nitrogen Budget and Critical Load Exceedance. *Atmospheric Environment*, **153**, 32-40. <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2017.01.018>
- [28] Zhang, L., Jacob, D.J., Knipping, E.M., Kumar, N., Munger, J.W., Carouge, C.C., *et al.* (2012) Nitrogen Deposition to the United States: Distribution, Sources, and Processes. *Atmospheric Chemistry and Physics*, **12**, 4539-4554. <https://doi.org/10.5194/acp-12-4539-2012>
- [29] Zhao, Y., Zhang, L., Tai, A.P.K., Chen, Y. and Pan, Y. (2017) Responses of Surface Ozone Air Quality to Anthropogenic Nitrogen Deposition in the Northern Hemisphere. *Atmospheric Chemistry and Physics*, **17**, 9781-9796. <https://doi.org/10.5194/acp-17-9781-2017>
- [30] Index of /ExtData/GEOS_0.5x0.625_AS/MERRA2. http://geoschemdata.wustl.edu/ExtData/GEOS_0.5x0.625_AS/MERRA2/
- [31] Park, R.J., Jacob, D.J., Field, B.D., Yantosca, R.M. and Chin, M. (2004) Natural and Transboundary Pollution Influences on Sulfate-Nitrate-Ammonium Aerosols in the United States: Implications for Policy. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, **109**, D15204. <https://doi.org/10.1029/2003jd004473>
- [32] Mao, J., Jacob, D.J., Evans, M.J., Olson, J.R., Ren, X., Brune, W.H., *et al.* (2010) Chemistry of Hydrogen Oxide Radicals (hox) in the Arctic Troposphere in Spring. *Atmospheric Chemistry and Physics*, **10**, 5823-5838. <https://doi.org/10.5194/acp-10-5823-2010>
- [33] Fountoukis, C. and Nenes, A. (2007) ISORROPIA II: A Computationally Efficient Thermodynamic Equilibrium Model for K^+ - Ca^{2+} - Mg^{2+} - NH_4^+ - Na^+ - SO_4^{2-} - NO_3^- - Cl^- - H_2O Aerosols. *Atmospheric Chemistry and Physics*, **7**, 4639-4659. <https://doi.org/10.5194/acp-7-4639-2007>
- [34] Liu, H., Jacob, D.J., Bey, I. and Yantosca, R.M. (2001) Constraints from ^{210}Pb and 7Be on Wet Deposition and Transport in a Global Three-Dimensional Chemical Tracer Model Driven by Assimilated Meteorological Fields. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, **106**, 12109-12128. <https://doi.org/10.1029/2000jd900839>
- [35] Mari, C., Jacob, D.J. and Bechtold, P. (2000) Transport and Scavenging of Soluble Gases in a Deep Convective Cloud. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, **105**, 22255-22267. <https://doi.org/10.1029/2000jd900211>
- [36] Amos, H.M., Jacob, D.J., Holmes, C.D., Fisher, J.A., Wang, Q., Yantosca, R.M., *et al.* (2012) Gas-Particle Partitioning of Atmospheric Hg (II) and Its Effect on Global Mercury Deposition. *Atmospheric Chemistry and Physics*, **12**, 591-603. <https://doi.org/10.5194/acp-12-591-2012>
- [37] Wesely, M.L. (1989) Parameterization of Surface Resistances to Gaseous Dry Deposition in Regional-Scale Numerical Models. *Atmospheric Environment*, **23**, 1293-1304. [https://doi.org/10.1016/0004-6981\(89\)90153-4](https://doi.org/10.1016/0004-6981(89)90153-4)
- [38] Zhang, L. (2001) A Size-Segregated Particle Dry Deposition Scheme for an Atmospheric Aerosol Module. *Atmospheric Environment*, **35**, 549-560. [https://doi.org/10.1016/s1352-2310\(00\)00326-5](https://doi.org/10.1016/s1352-2310(00)00326-5)
- [39] ESGF MetaGrid. <https://esgf-node.llnl.gov/search/input4mips/>
- [40] MEICModel. <http://meicmodel.org>
- [41] Hoesly, R.M., Smith, S.J., Feng, L., Klimont, Z., Janssens-Maenhout, G., Pitkanen, T., *et al.* (2018) Historical (1750–2014) Anthropogenic Emissions of Reactive Gases and Aerosols from the Community Emissions Data System (CEDS). *Geoscientific Model Development*, **11**, 369-408. <https://doi.org/10.5194/gmd-11-369-2018>
- [42] Li, M., Liu, H., Geng, G., Hong, C., Liu, F., Song, Y., *et al.* (2017) Anthropogenic Emission Inventories in China: A Review. *National Science Review*, **4**, 834-866. <https://doi.org/10.1093/nsr/nwx150>
- [43] Ciais, P., Sabine, C., Bala, G., Bopp, L., Brovkin, V., Josep, C., *et al.* (2014) Carbon and Other Biogeochemical Cycles. *Climate Change 2013: The Physical Science Basis. Contribution of Working Group I to the Fifth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change*. Cambridge University Press.
- [44] Zhao, Y., Xi, M., Zhang, Q., Dong, Z., Ma, M., Zhou, K., *et al.* (2022) Decline in Bulk Deposition of Air Pollutants in China Lags behind Reductions in Emissions. *Nature Geoscience*, **15**, 190-195. <https://doi.org/10.1038/s41561-022-00899-1>