

我国 $\text{NH}_3\text{-N}$ 排放量及空间分布变化初步研究

王书伟^{1,2}, 廖千家骅¹, 胡玉婷¹, 颜晓元¹

(1.土壤与农业可持续发展国家重点实验室,中国科学院南京土壤所,江苏 南京 210008;2.中国科学院研究生院,北京 100049)

摘要 $\text{NH}_3\text{-N}$ 的排放量增加引起了水体富营养化、土壤酸化等一系列环境问题,所以对 $\text{NH}_3\text{-N}$ 排放情况的研究越来越受到科学家的重视。而有关我国 $\text{NH}_3\text{-N}$ 排放量历史变化情况,尤其是近 20 多年来的排放量报道很少。参照已有的各个 $\text{NH}_3\text{-N}$ 源的排放因子,利用中国农业年鉴统计等数据资料,计算了 1980—2005 年我国 $\text{NH}_3\text{-N}$ 排放量。结果表明,1980 年, $\text{NH}_3\text{-N}$ 排放量为 5.50 Tg,到 2005 年达到 13.38 Tg,增加了 143%,年均增长率为 5.51%。因使用化学肥料产生的 $\text{NH}_3\text{-N}$ 排放量最大,约占总排放量的 29.4%~47.4%,畜牧业中动物厩舍及其排泄物储存产生的 $\text{NH}_3\text{-N}$ 排放量居第二位。我国 $\text{NH}_3\text{-N}$ 排放量空间分布不均匀,主要分布在我国东部河南、山东、江苏、河北以及西南的四川等省,2005 年约占总排放量的 36.2%。我国 $\text{NH}_3\text{-N}$ 排放总量的时间变化最大的几个省份分别是黑龙江、天津、河北、河南、山东等,其年均增长在 8%以上,而我国的西北和青藏高原地区排放量变化最小,仅为 0.44%。

关键词 NH_3 排放量清单 排放因子 空间分布

中图分类号 X511 **文献标志码** A **文章编号** 1672-2043(2009)03-0619-08

A Preliminary Inventory of $\text{NH}_3\text{-N}$ Emission and Its Temporal and Spatial Distribution of China

WANG Shu-wei^{1,2}, LIAO Qian Jia-hua¹, HU Yu-ting¹, YAN Xiao-yuan¹

(1.State Key Laboratory of Soil and Sustainable Agriculture, Institute of Soil Science, Chinese Academy of Sciences, Nanjing 210008, China;
2.Graduate University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China)

Abstract NH_3 emission is increasingly becoming an environmental concern as it contributes to water eutrophication, soil acidification. Based on $\text{NH}_3\text{-N}$ emission factors and statistical data, we estimated $\text{NH}_3\text{-N}$ emissions from 1980—2005 for China. The total $\text{NH}_3\text{-N}$ emissions was 5.50 Tg in 1980, and amounted to 13.38 Tg in 2005, with a total increase of 143% from 1980 to 2005, and an annual growth rate of 5.51%. The use of chemical nitrogen fertilizer was the largest source, contributing 29.4%~47.4% to the total emissions; followed by emissions from livestock excreta during housing and storage. The spatial distribution of China's $\text{NH}_3\text{-N}$ emissions is uneven. Emissions from the Henan, Shandong, Jiangsu, Hebei and Sichuan Provinces accounted for about 36.2% of total in 2005. Average annual growth rate of NH_3 emission in Heilongjiang, Tianjin, Hebei, Henan, Shandong Provinces is over 8%, while that in Tibetan is only 0.44%.

Keywords Inventory of NH_3 emissions; emission factors; spatial distribution

NH_3 是大气中一种重要的活性组分,由其引发的环境问题越来越受到科学家们的关注。 $\text{NH}_3\text{-N}$ 排放是氮循环的一个重要过程^[1]。每年进入大气中的氨,有 90%与大气中的酸作用转化成 NH_4^+ ,有 84%的氨以氨根离子和结合氨的固体颗粒物形式,通过干湿沉降返还到陆地生态系统当中^[2],对陆地生态系统的稳定性和生命活力产生负面影响,使生长比较慢的植物在充足养分情况下变成快速生长植物,或者由于生态竞争

使快速生长植物代替慢速生长植物^[3-5]。以湿沉降(降雨)回到陆地生态系统中的 NH_4^+ 是造成河流湖泊富营养化的重要营养物质之一^[6]。并且过量的 NH_4^+ 输入对 H^+ 的转化产生很大影响,对土壤酸化起很大作用^[7]。化学肥料和有机肥的 $\text{NH}_3\text{-N}$ 挥发损失也使作物对肥料的利用率下降^[8]。

目前,国外关于 NH_3 排放研究已经有很多文献报道,而有关中国 $\text{NH}_3\text{-N}$ 排放的文献报道很少,Zhao 等^[9] 计算了 1993 年亚洲 $\text{NH}_3\text{-N}$ 的排放总量是 24.6 Tg,指出中国和印度是亚洲两个主要产 $\text{NH}_3\text{-N}$ 国家,而中国 $\text{NH}_3\text{-N}$ 的排放量是 13.6 Tg,占亚洲总排放量的 55%; Kazuyo Yamaji 等^[10] 计算了亚洲地区动物 $\text{NH}_3\text{-N}$ 、 N_2O

收稿日期 2008-06-15

基金项目 中国科学院创新项目(kzcxz-yw-312)

作者简介 王书伟(1983—),男,山东新泰人,硕士研究生,主要从事资源环境遥感,碳氮循环研究。E-mail: swwang@issas.ac.cn

和 CH_4 的排放情况,其中印度和中国占了总排放量的 60%~80%,中国高排放区域分布在黄河流域一带,Yan 等^[11]介绍了亚洲农田生态系统中 NH_3 、 N_2O 和 CH_4 的排放情况,得到 1995 年亚洲农田 $\text{NH}_3\text{-N}$ 排放总量 11.7 Tg,中国 $\text{NH}_3\text{-N}$ 排放量占总排放量的 49.5%;汪文兴等^[12]参照欧洲各排放源的排放因子计算了中国 1991 年 NH_3 排放强度,人为源 NH_3 的排放总量为 8.92 Tg,其中家禽排氮量占 64%,氮肥施用占 18%,人类粪便占 17%,氮肥生产占 1%,并计算了 1951—1991 年中国 NH_3 排放量的变化趋势;孙庆瑞等^[13]计算得出我国 1993 年 NH_3 的排放总量为 12.0 Tg,各种 NH_3 源中动物的贡献率为 52%,排放量最大的省份是河南,山东,四川。这些文献中报道的 $\text{NH}_3\text{-N}$ 排放数据大都是 20 世纪 90 年代前期的,因此,详细计算我国 $\text{NH}_3\text{-N}$ 排放强度及不同时期的历史变化,对研究降雨中 NH_4^+ 浓度变化及区域酸雨的成因有很重要的作用,同时 $\text{NH}_3\text{-N}$ 排放作为 N 循环的一个重要过程,掌握 $\text{NH}_3\text{-N}$ 排放强度历史变化,为摸清生态系统中 N 循环及农田生态系统中肥料损失提供基础数据资料,同时也为国家合理制定 $\text{NH}_3\text{-N}$ 减排措施提供科学依据。为此,本文利用中国农业年鉴统计数据对我国 $\text{NH}_3\text{-N}$ 排放量进行了详细计算,并探讨了一些适合我国 $\text{NH}_3\text{-N}$ 排放量计算的排放因子。

1 估算方法

把我国 $\text{NH}_3\text{-N}$ 源分为畜牧业 $\text{NH}_3\text{-N}$ 源、农业生态系统 $\text{NH}_3\text{-N}$ 源和其他 $\text{NH}_3\text{-N}$ 源。下面对各个 $\text{NH}_3\text{-N}$ 源进行详细的论述。

1.1 畜牧业 $\text{NH}_3\text{-N}$ 源

根据已有关于 $\text{NH}_3\text{-N}$ 排放量文献的报道,我们知道畜牧业生产是 $\text{NH}_3\text{-N}$ 排放的重要源,美国 and 欧洲因家畜和禽类排泄物产生的 $\text{NH}_3\text{-N}$ 分别占年排放量的 80% 和 75%^[14];汪文兴等^[12]通过引用欧洲家畜排泄物 $\text{NH}_3\text{-N}$ 排放因子计算出 1991 年我国畜禽类排 $\text{NH}_3\text{-N}$ 量占排放总量的 64%。畜禽产生的 $\text{NH}_3\text{-N}$ 主要来自其排泄物(图 1),我们假设畜禽的排泄物通过以下渠道释放 $\text{NH}_3\text{-N}$:一是畜禽的厩舍;二是畜禽排泄物的储存;三是对放牧动物来说,在放牧过程中,因动物随地排泄而释放的 $\text{NH}_3\text{-N}$;最后是农田中施用畜禽排泄物作有机肥料而产生的 $\text{NH}_3\text{-N}$,本文中我们把此项归为农田生态系统中的 $\text{NH}_3\text{-N}$ 源。因此,我们把畜禽排泄物产生的 $\text{NH}_3\text{-N}$ 排放源分为禽畜厩舍及排泄物储存源(MHS)、放牧动物在放牧过程

中的 $\text{NH}_3\text{-N}$ 排放源(EAG)。根据中国农业年鉴统计资料^[15],畜牧业中的家畜和禽类具体指牛(包括黄牛,奶牛等),马(包括驴和骡),骆驼,羊(包括山羊和绵羊),禽(包括鸡鸭鹅和兔)等。参照 IPCC^[16]中计算方法,可用以下公式计算畜牧业中 $\text{NH}_3\text{-N}$ 排放量:

$$\text{TAN} = \sum (\text{MHS} + \text{EAG}) = \sum_{i=1}^2 (\sum_j \text{Num}_j \text{Net}_j)$$

式中: TAN 为畜牧业中所有动物 N 总的排放量, $\text{kg NH}_3\text{-N} \cdot \text{a}^{-1}$;

$i = \begin{cases} 1. \text{禽畜厩舍及其排泄物储存 } \text{NH}_3\text{-N 源 (MHS)} \\ 2. \text{放牧动物 } \text{NH}_3\text{-N 源 (EAG)} \end{cases}$;

Num_j 为畜牧业 j 类动物个数;

Net_j 为畜牧业中 j 类动物的年排量 $\text{kg NH}_3\text{-N} \cdot \text{a}^{-1}$ 。

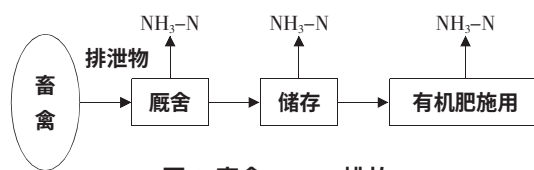


图 1 畜禽 $\text{NH}_3\text{-N}$ 排放

Figure 1 $\text{NH}_3\text{-N}$ emissions of livestock and poultry

1.1.1 畜禽厩舍及其排泄物储存 $\text{NH}_3\text{-N}$ 排放

不同禽畜厩舍条件下 $\text{NH}_3\text{-N}$ 排放因子主要是根据地板状况所确定的,在不同排泄物存放条件下 $\text{NH}_3\text{-N}$ 排放因子是根据是否对排泄物加以覆盖来确定的^[17]。我国畜牧业养殖是以农村散养为主,并且禽畜的排泄物大多还是直接裸漏在地面存放,即自然堆放在外界环境中。我们把同一种类畜禽,在不同年龄段及不同饲养条件下 $\text{NH}_3\text{-N}$ 排放因子用同一个数据计算,得到了本文中我国禽畜养殖条件下 $\text{NH}_3\text{-N}$ 排放因子(表 1)。从表 1 中可以看到,牛马等比较大的动物年均排 $\text{NH}_3\text{-N}$ 量比较大,其中牛年均 $\text{NH}_3\text{-N}$ 排放量为 $10.3 \text{ kg NH}_3\text{-N} \cdot \text{Animal}^{-1} \cdot \text{a}^{-1}$,猪的 $\text{NH}_3\text{-N}$ 排放因子最高为 51%,这与猪几乎全部实行圈养有关,其年均 $\text{NH}_3\text{-N}$ 排放量为 $1.642 \text{ kg NH}_3\text{-N} \cdot \text{Animal}^{-1} \cdot \text{a}^{-1}$ 。在我国家禽种类中,鸡占了很大的比例大约在 80% 以上^[17],由于缺乏具体数据记载,我们假定我国家禽中鸡的比例就是 80%,其他家禽包括鸭、鹅和兔,那么家禽在不同厩舍条件和粪便储存条件下总的 $\text{NH}_3\text{-N}$ 排放量为 $0.244 \text{ kg NH}_3\text{-N} \cdot \text{Animal}^{-1} \cdot \text{a}^{-1}$ 。

1.1.2 放牧中 $\text{NH}_3\text{-N}$ 的排放

放牧过程中 $\text{NH}_3\text{-N}$ 排放量受放牧时间长短、家畜的种类及年龄等很多因素影响,根据已有的文献资料我们把放牧中 $\text{NH}_3\text{-N}$ 排放的因子定为 7%^[6,20]。

表 1 我国禽畜不同厩舍和储存条件下 $\text{NH}_3\text{-N}$ 的排放因子Table 1 $\text{NH}_3\text{-N}$ emission factors at different conditions of livestock houses and storage in China

禽畜	年排氮总量/ $\text{kg N} \cdot \text{Animal}^{-1} \cdot \text{a}^{-1}$	NH_3 排放系数 % of N emitted	$\text{NH}_3\text{-N}$ 排放量/ $\text{kg} \cdot \text{Animal}^{-1} \cdot \text{a}^{-1}$
牛	38 ^a	27 ^a	10.3
猪	3.22 ^c	51 ^a	1.642
鸡	0.7 ^a	40 ^a	0.28
羊	21.9 ^a	10 ^a	2.19
马	50 ^a	10 ^a	5
其他家禽	0.38 ^a	25 ^a	0.10
骆驼 ^b			7.00
驴、骡 ^b			7.00

注: a 引用 Poulsen 和 Kristensen^[17], b 引用 Klaassen^[18], c 引用 Xing 和 Zhu^[19]。

根据中国农业年鉴^[15]的资料,只把牛、羊、马定为需放牧的动物,根据表 1,可以得到牛、羊、马每年因放牧 $\text{NH}_3\text{-N}$ 排量分别为 2.66、1.53、3.50 $\text{kg NH}_3\text{-N} \cdot \text{Animal}^{-1} \cdot \text{a}^{-1}$ 。

1.2 农田生态系统 $\text{NH}_3\text{-N}$ 源

$\text{NH}_3\text{-N}$ 产生的另一个重要源就是我们指的传统农业,即农田生态系统源。它包括施入农田中的 N 肥产生的 $\text{NH}_3\text{-N}$ (FSN),施入农田中的有机肥产生的 $\text{NH}_3\text{-N}$ (EAW),农田作物自身固氮而产生的 $\text{NH}_3\text{-N}$ (FBN),农田农作物本身产生的 $\text{NH}_3\text{-N}$ (Crop)^[11]。土壤本身就具有生物活性,即不在人为的影响下也会向大气中排放 NH_3 、 CH_4 、 N_2O 、 NO_x 等含氮化合物,我们称之为土壤排放的背景值^[16],所以农田田块自身产生 $\text{NH}_3\text{-N}$ 排放的背景值 (BGD) 也是一个重要的源。综上所述,农田生态系统中产生的 $\text{NH}_3\text{-N}$ 排放量可以用以下公式进行计算:

$$\text{TSN} = \text{BGD} + \text{FSN} + \text{EAW} + \text{FBN} + \text{Crop}$$

式中:TSN 为农田生态系统中排放 $\text{NH}_3\text{-N}$ 的总量。其他符号表示意义同上。

1.2.1 土壤 $\text{NH}_3\text{-N}$ 排放的背景值

在农田生态系统中,土壤 $\text{NH}_3\text{-N}$ 排放的背景值有很大不确定性因素,气候、土壤性质、耕作方式等地区性差异造成土壤 $\text{NH}_3\text{-N}$ 排放量的背景值差异很大。农作物本身吸收 $\text{NH}_3\text{-N}$,也释放 $\text{NH}_3\text{-N}$,这种反应方向及 $\text{NH}_3\text{-N}$ 交换量的多少受作物生长阶段和自身体内 N 含量影响,并且每年收割完作物的根茬和部分秸秆会继续存在农田中,秸秆和根茬的分解同样也会释放 $\text{NH}_3\text{-N}$ 。并且土壤和农作物本身就是一个相互影响,不容易区分的系统,所以把 BGD 和 Crop

看成一个整体作为农田系统中 $\text{NH}_3\text{-N}$ 排放一个源,用 BGD 表示。表 2 列举了文献中有关作物和不同土地类别 $\text{NH}_3\text{-N}$ 排放通量。由于没有适合我国农田 $\text{NH}_3\text{-N}$ 排放的具体背景值,我们引用 Yan 等^[11]估算南亚、东亚、东南亚农田 NH_3 、 N_2O 、 NO_x 排放量的数值,用 1.5 $\text{kg NH}_3\text{-N} \cdot \text{hm}^{-2} \cdot \text{a}^{-1}$ 作为中国农田 $\text{NH}_3\text{-N}$ 排放的背景值。

表 2 不同作物及土地类别 $\text{NH}_3\text{-N}$ 排放通量Table 2 Inventory of $\text{NH}_3\text{-N}$ emissions from different crops and land

地点	排放源	排放通量/ $\text{kg NH}_3\text{-N} \cdot \text{hm}^{-2}$	参考文献
丹麦	大麦	0.5~1.5	Hutchings ^[20]
丹麦	草地	3	Hutchings ^[20]
丹麦	耕地	5	Hutchings ^[20]
东亚、南亚、东南亚	耕地	1~2	Yan ^[11]

1.2.2 施入农田中 N 肥产生的 $\text{NH}_3\text{-N}$ 排放量

农田中大量的氮肥施用,增大了 $\text{NH}_3\text{-N}$ 的排放。2001 年全球平均施用的氮肥为 90 $\text{kg} \cdot \text{hm}^{-2}$,只有 10%~30%的氮肥最终被农作物利用^[21],相当大一部分通过 NH_3 挥发损失掉^[24]。含氮化肥 $\text{NH}_3\text{-N}$ 损失因子大小与氮肥种类、气候、气象、土壤性质等众多因素有关^[11-12]。Hutchings 等^[20]在对丹麦 $\text{NH}_3\text{-N}$ 排放量计算时总结了不同氮肥的排放因子,但国外很少应用 NH_4HCO_3 ,所以 Hutchings 没有对 NH_4HCO_3 的排放因子报道,而这种肥料在东亚、南亚、东南亚的施用量占总氮肥施用量的 23%^[11],在我国能占到 56%的份额^[13]。Yan 等^[11]通过分析文献中有关小区试验条件下尿素的 NH_3 挥发情况得到水稻田中 $\text{NH}_3\text{-N}$ 排放因子为 22%,旱田中 $\text{NH}_3\text{-N}$ 排放因子为 13.7%,并且 NH_4HCO_3 的排放因子大约是尿素的 1.5 倍,水稻田和旱地 $\text{NH}_3\text{-N}$ 排放因子分别为 33%和 20.5%,我国各个省份 N 肥 $\text{NH}_3\text{-N}$ 排放因子在 15.3%~19.7%之间。由于我国是 Yan 所研究区域的一部分,所以在整个农田系统中,利用 Yan 所总结的我国各个省份中纯氮肥的排放因子来计算我国农田中因 N 肥的施用产生的 $\text{NH}_3\text{-N}$ 排放量。

1.2.3 施入农田中的有机肥产生的 $\text{NH}_3\text{-N}$ 排放量

被用作有机肥施入到农田中的动物排泄物 $\text{NH}_3\text{-N}$ 挥发损失贡献率为 20%~30%^[23-24]。同厩舍、储存和放牧过程中家畜排泄物一样,施用在农田的家畜排泄物 $\text{NH}_3\text{-N}$ 排放也受家畜种类、粪便中矿质氮等多种因素影响,可以把这个过程理解为家畜排泄物的最终去处。本文中近似地认为家畜、禽排放的全部排泄物经

存储后都回归到农田当中去,参照 EEA^[25]中关于施入到农田中的家畜禽排泄物 $\text{NH}_3\text{-N}$ 排放因子,我们把牛、羊和家禽等产生排放因子定为 20%,那么每年农田中因施用牛、羊和家禽等产生的厩肥而排放到空气中的 $\text{NH}_3\text{-N}$ 量分别为 5.54、3.94、0.14 $\text{kg NH}_3\text{-N} \cdot \text{Animal}^{-1} \cdot \text{a}^{-1}$,用猪的排泄物做厩肥其 $\text{NH}_3\text{-N}$ 排放因子定为 10%^[11],那么每年产生的 $\text{NH}_3\text{-N}$ 量为 0.16 $\text{kg NH}_3\text{-N} \cdot \text{Animal}^{-1} \cdot \text{a}^{-1}$ 。

在我国广大的农村,人类粪便被作为一种重要的有机肥料施入到农田中去,因此人类粪便也成为 EAW 中一种重要的 $\text{NH}_3\text{-N}$ 源。由于我国城市人口产生的排泄物不再返还到农田系统中去,而是作为城市污泥处理,所以本文中我们只考虑农村成年人口产生的排泄物为 $\text{NH}_3\text{-N}$ 源,并假设全部作为有机肥返还到农田中去。表 3 是人类粪便 $\text{NH}_3\text{-N}$ 源的排放因子,根据文献农村成年人口的比例为 85%^[22]。

表 3 人类粪便 $\text{NH}_3\text{-N}$ 排放因子Table 3 $\text{NH}_3\text{-N}$ emissions factors for human waster

项目	年排氮总量/ $\text{kg N} \cdot \text{Animal}^{-1} \cdot \text{a}^{-1}$	NH_3 排放系数 % of N emitted	$\text{NH}_3\text{-N}$ 排放量/ $\text{kg} \cdot \text{Animal}^{-1} \cdot \text{a}^{-1}$
人类	0.69 ^c	29 ^d	0.2 ^d

注: c 引用 Xing 和 Zhu^[19], d 引用 Mosier AR^[26]。

1.2.4 固氮植物固氮产生的 $\text{NH}_3\text{-N}$ 排放量

固氮植物每年能从大气中固定一定数量的氮,IPCC^[16]曾提出了一个公式来计算固氮植物固定的氮量,其公式如下:

$$\text{FBN} = \sum (\text{Crop}_i \times \text{Frac}_{\text{DM-S}_i} \times \text{Frac}_{\text{N-S}_i} + \text{Crop}_i \times \text{Ratio}_i \times \text{Frac}_{\text{DM-R}_i} \times \text{Frac}_{\text{N-R}_i})$$

式中 Crop_i 为作物 i 的年产量; Ratio_i 为固氮植物 i 所剩余秸秆重量与产量之比; $\text{Frac}_{\text{DM-S}_i}$ 为固氮作物 i 籽粒的干物质量; $\text{Frac}_{\text{N-S}_i}$ 为固氮作物 i 中籽粒氮含量; $\text{Frac}_{\text{DM-R}_i}$ 为作物 i 剩余秸秆的干物质量; $\text{Frac}_{\text{N-R}_i}$ 为作物 i 剩余秸秆的氮含量。表 4 是公式中的参数。

EEA^[25]假定通过豆科植物固氮而产生 $\text{NH}_3\text{-N}$ 的排放因子是 1%。根据中国农业年鉴资料,我们只考虑大豆的固氮效应,图 2 是计算出的历年豆科植物固氮 $\text{NH}_3\text{-N}$ 排放量,由于没有其他豆科植物的详细资料,所以估算出在 1995 年固氮植物固氮的 $\text{NH}_3\text{-N}$ 排放量为 14.3 Gg,比 Yan 估算的小 7.8 Gg。

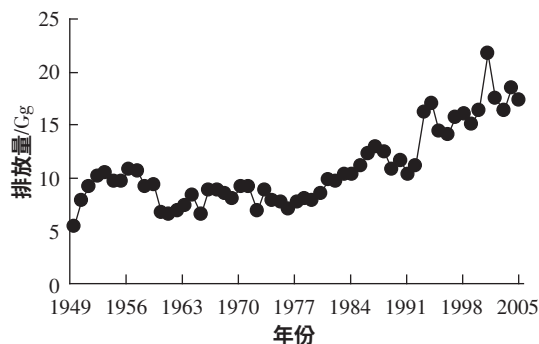
1.3 其他 $\text{NH}_3\text{-N}$ 源

NH_3 是工业生产中产生的一种重要气体,主要在化学肥料和纤维生产中产生^[27]。自从 Haber 和 Bosch

表 4 公式中的参数^[11,18]

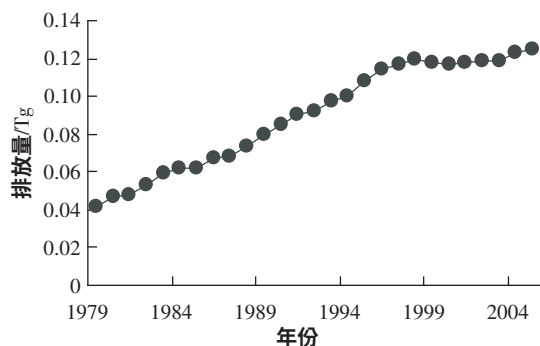
Table 4 Parameters of equation

Crop	Ratio	$\text{Frac}_{\text{DM-S}_i}$	$\text{Frac}_{\text{N-S}_i}$	$\text{Frac}_{\text{DM-R}_i}$	$\text{Frac}_{\text{N-R}_i}$
Soybean	2.1	0.93	0.069 3	0.86	0.023 0
Beans	2.1	0.89	0.039 7	0.86	0.015 0
Peas	1.5	0.87	0.039 8	0.87	0.014 2
Groundnut	1.0	0.96	0.047 0	0.86	0.010 6

图 2 固氮植物 $\text{NH}_3\text{-N}$ 排放量Figure 2 $\text{NH}_3\text{-N}$ emissions of nitrogen fixed by plants

发明人为合成 NH_3 的方法后, NH_3 的产量增长很快, 大约有 80% 化学合成的 NH_3 用来生产各种形态的氮肥^[21,27]。Erisman 等^[27]通过分析 1910 年到 2005 年农业 NH_3 源的排放情况和工业生产 NH_3 的量发现, 1965 年工业生产的 NH_3 量超过农业 NH_3 的排放。由于受生产流程和技术等众多因素的限制, 大量人工合成的 NH_3 除很大一部分被用来生产化学肥料或化工产品固定起来, 但还有一部分以气体的形式散发到空气中成为大气中一个很重要的 NH_3 源。Buijsman 等^[28]对工业 NH_3 源的排放因子研究发现, 每生产 1 t NH_3 大约有 0.8 kg 的 NH_3 损失掉, 而 Möller 等^[29]研究德国的合成 NH_3 厂和化肥厂, 发现 NH_3 的排放因子为 10 $\text{kg} \cdot \text{t}^{-1}$, 两者数据差距很大。根据我国的实际情况和参照已有的文献报道, 我们把我国工业 NH_3 源的排放因子定为 5 $\text{kg} \cdot \text{t}^{-1}$ (N)^[12-13]。为便于考虑问题, 我们假设每年纯 N 肥的用量即为 N 肥的生产总量, 图 3 为我国历年 N 肥用量下对应的工业 NH_3 排放量。从图 3 中看到我国工业 $\text{NH}_3\text{-N}$ 排放量从 1979—1998 年增长比较快, 平均年增长率超过 3%, 也正与我国在这 20 多年里农业生产活动发展迅速有关, 并且在 1998 年我国粮食产量达到历史最高 5.1 亿 t。

在人为和自然活动过程中, 还有很多小的 $\text{NH}_3\text{-N}$ 源, 如城市下水道污泥、各种垃圾的堆放和处理、汽车尾气、煤燃烧、农作物秸秆焚烧、家庭宠物等与人类生活密切相关的 $\text{NH}_3\text{-N}$ 源, 还有植物的衰老、雷电天气

图3 工业 $\text{NH}_3\text{-N}$ 排放量Figure 3 $\text{NH}_3\text{-N}$ emissions from industry

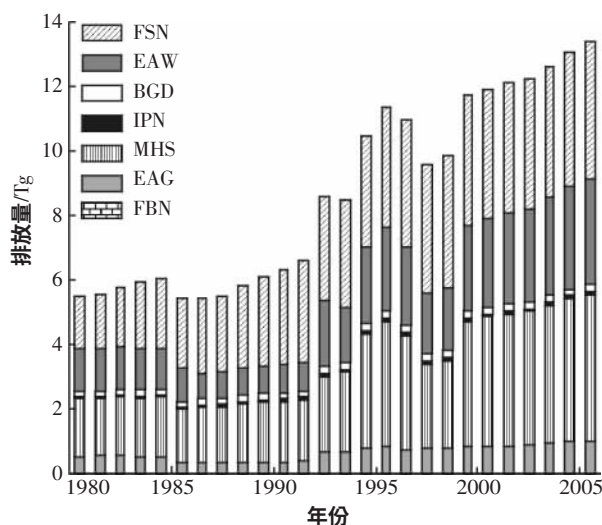
下 $\text{NH}_3\text{-N}$ 的合成, 这些小的 $\text{NH}_3\text{-N}$ 源占整个大气 $\text{NH}_3\text{-N}$ 排放量的比例也很大。David 等^[30]根据可以利用的数据计算出这些小的 $\text{NH}_3\text{-N}$ 源排放量大约是 $80\sim 140 \text{ kt}\cdot\text{a}^{-1}$, 超过了家畜的排放量。但由于目前认识的局限性, 对上述人为和自然条件下 $\text{NH}_3\text{-N}$ 排放还没有定量化研究, 所以在估算 $\text{NH}_3\text{-N}$ 排放量中不包括上述源。

2 结果与讨论

2.1 我国 1980—2005 年各 $\text{NH}_3\text{-N}$ 源排放清单

图 4 是我国 1980—2005 年的各 $\text{NH}_3\text{-N}$ 源排放清单。

图中 BGD (农田 $\text{NH}_3\text{-N}$ 排放的背景值) 从 1980—2005 年我国农田面积发生了比较大的变化, 为了便于计算, 我们统一按照中国农业年鉴 1996 年报道的中国耕地面积计算出每年农田 $\text{NH}_3\text{-N}$ 排放的背景值为 0.195 Tg , 土壤 $\text{NH}_3\text{-N}$ 排放量背景值仅占 1996 年 $\text{NH}_3\text{-N}$ 排放总量的 1.78%。EAW (农田中施用畜禽粪便以及人的排泄物产生 $\text{NH}_3\text{-N}$ 排放量) 历年对 $\text{NH}_3\text{-N}$ 排放量贡献率在 13.6%~24.5% 之间, 其贡献率最小出现在 1991 年, 仅占 $\text{NH}_3\text{-N}$ 排放总量的 13.6%, 而 EAW 排放量最小值出现在 1986 年, 仅为 0.8 Tg 。从图 4 中可以看到, 1985—1991 年这段期间我国有机肥 $\text{NH}_3\text{-N}$ 排放量呈下降趋势。同时从 1980—2005 年 EAW 排放量变化来看, 我国的施肥措施经历了从有机肥到无机化肥再到有机无机相结合的发展过程, 并且随着人们逐渐认识到有机肥具有保水、保肥、改善土壤质量等显著作用, EAW 对 $\text{NH}_3\text{-N}$ 排放总量的贡献率也有增加趋势。随着我国畜牧业的发展, 2005 年 EAG (放牧过程中动物排泄物产生的 $\text{NH}_3\text{-N}$ 排放量) 排放量达到 0.97 Tg 。1980—2005 年, FSN (农田中施用化学肥料产生的 $\text{NH}_3\text{-N}$ 排放量) 是



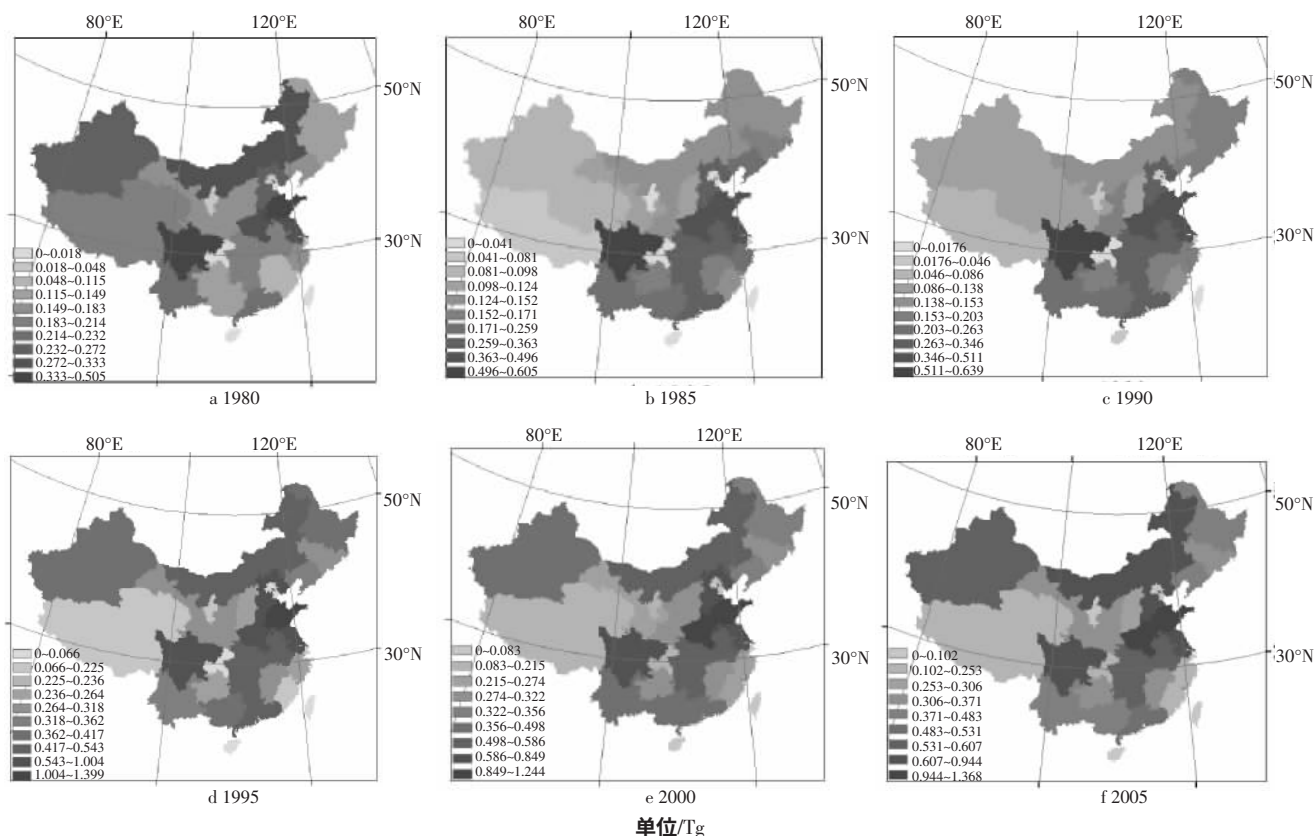
(FBN: 大豆固氮产生的 $\text{NH}_3\text{-N}$ 排放源; EAG: 放牧过程中动物排泄物产生的 $\text{NH}_3\text{-N}$ 排放源; MHS: 禽畜粪便在厩舍及储存时 $\text{NH}_3\text{-N}$ 排放源; IPN: 工业生产氮肥中产生的 $\text{NH}_3\text{-N}$ 排放源; BGD: 农田 $\text{NH}_3\text{-N}$ 排放的背景值; EAW: 农田施用有机肥产生的 $\text{NH}_3\text{-N}$ 排放源; FSN: 农田施用化学肥料产生的 $\text{NH}_3\text{-N}$ 排放源)

图4 1980—2005 年我国各 $\text{NH}_3\text{-N}$ 源排放量Figure 4 The inventory of all $\text{NH}_3\text{-N}$ emission sources from 1980 to 2005 for China

我国 $\text{NH}_3\text{-N}$ 排放第一大源, 这一方面与我国氮肥用量过大有关, 另一方面我国农作物对氮肥的利用率比较低, 仅为 30%~40%, 氮肥通过反硝化、淋溶和 $\text{NH}_3\text{-N}$ 挥发损失掉, 其损失率高达 50%。到 2005 年, FSN 排放量达到 4.24 Tg , 对总 $\text{NH}_3\text{-N}$ 排放量贡献率为 31.7%, 并且 FSN 对 $\text{NH}_3\text{-N}$ 贡献率最高出现在 1991 年, 为 47.4%。MHS (禽畜粪便在厩舍及储存时排放的 $\text{NH}_3\text{-N}$ 排放总量) 是 $\text{NH}_3\text{-N}$ 第二大排放源, 从 1980—2005 年, 历年对 $\text{NH}_3\text{-N}$ 排放量的贡献在 27.4%~34.4% 之间, 20 多年来年平均贡献率为 31.6%, 这与我国家禽养殖业迅速发展, 禽畜数量显著增加密切相关。到 2005 年我国家畜达到 103 662.4 万头, 家禽达到 533 000 万只。FBN (大豆固氮产生的 $\text{NH}_3\text{-N}$ 排放量) 和 IPN (工业生产氮肥中产生的 $\text{NH}_3\text{-N}$ 排放量) 对 $\text{NH}_3\text{-N}$ 总排放量的贡献率很小, 20 多年来, 年平均贡献率分别为 0.17% 和 1.02%。

2.2 $\text{NH}_3\text{-N}$ 排放强度空间分布

图 5 中 a、b、c、d、e、f 分别是我国 1980、1985、1990、1995、2000、2005 年这 6 a 的 $\text{NH}_3\text{-N}$ 排放空间分布图。从图中看到, 我国 $\text{NH}_3\text{-N}$ 排放量主要分布在黄河流域下游的河南和山东、长江流域上游的四川和下游的江苏及环渤海的河北省, 这 5 个省份在 2000

图 5 我国 1980—2005 年 $\text{NH}_3\text{-N}$ 排放强度空间分布Figure 5 Spatial distribution of $\text{NH}_3\text{-N}$ emissions from 1980 to 2005 for China

年和 2005 年 $\text{NH}_3\text{-N}$ 排放量达到 4.36 Tg 和 4.84 Tg, 分别占当年排放总量的 36.6% 和 36.2%, 并且河南和山东两省 FSN 排放源位居各排放源首位, 分别对本省全年 $\text{NH}_3\text{-N}$ 排放量贡献率为 32.5% 和 31.8%、31.6% 和 29.3%。西北地区内蒙古和新疆排放量居首位, 内蒙古 $\text{NH}_3\text{-N}$ 排放量除 1985 和 1990 年占总排放量较小外, 剩余年份 $\text{NH}_3\text{-N}$ 排放量占总排放量比较大。到 2005 年, 其 $\text{NH}_3\text{-N}$ 排放量达到 0.692 Tg, 占全年 $\text{NH}_3\text{-N}$ 排放总量的 5.17%, 并且内蒙古是我国畜牧业大省, EAG 为 0.101 Tg, 居各省之最。相对于主要的 $\text{NH}_3\text{-N}$ 排放区域, 东北三省对全国 $\text{NH}_3\text{-N}$ 排放量贡献较小, 1980 年东北三省 $\text{NH}_3\text{-N}$ 排放量为 0.388 Tg, 到 2005 年, 达到 1.159 Tg, 占全国 $\text{NH}_3\text{-N}$ 排放总量的 8.66%, 平均年增长率为 7.64%, 是我国 $\text{NH}_3\text{-N}$ 排放量增长比较快的地区之一。长江中游的湖北、湖南、安徽和珠江流域的广东也是我国 $\text{NH}_3\text{-N}$ 排放量比较明显的区域。并且从图 5 中看到 1980—2005 年, 26 a 左右的时间里, 我国 $\text{NH}_3\text{-N}$ 排放强度区域没有发生太大变化, 主要集中四川、山东、河南、江苏等省份。1980、1985、1990 年 $\text{NH}_3\text{-N}$ 排放量位居前五位的省份占全国 $\text{NH}_3\text{-N}$ 排放总量的 32.3%~39.6%, 其中四

川、山东、河南始终包括在内。1995、2000、2005 年 $\text{NH}_3\text{-N}$ 排放量位居前 5 位的省份是山东、河南、四川、河北、江苏, 其中 1995 年和 2000 年山东 $\text{NH}_3\text{-N}$ 排放量居各省首位, 分别为 1.269 Tg 和 1.102 Tg, 2005 年河南省 $\text{NH}_3\text{-N}$ 排放量超过山东省位居第一位, 为 1.251 Tg。1980—2005 年, $\text{NH}_3\text{-N}$ 排放量比较小的区域主要分布在宁夏、海南、北京、天津、重庆、上海, 这些区域的一个共同特点是面积都比较小, 并且重庆和海南设立为独立行政区划的年限比较短。

2.3 $\text{NH}_3\text{-N}$ 排放强度空间变化

从 1980—2005 年我国 $\text{NH}_3\text{-N}$ 排放总量增加了 143%, 图 6 为各省在 26 a 时间内 $\text{NH}_3\text{-N}$ 排放量变化图。由于海南和重庆两省市分别在 1988 年和 1996 年设为独立的行政区划, 所以 1980 年两省市 $\text{NH}_3\text{-N}$ 排放量为 0 (其相应的 $\text{NH}_3\text{-N}$ 排放量分别包含在广东省和四川省之内), 因此到 2005 年两省市变化率最大, 为 100%。东北地区的黑龙江和吉林、华北平原的河北和天津、黄河下游的河南和山东以及位于南方的广西, 还有安徽这些地区 1980 年 $\text{NH}_3\text{-N}$ 排放量与 2005 年 $\text{NH}_3\text{-N}$ 排放量变化最明显 ($P=0.002, \delta=0.05$), 其年均 $\text{NH}_3\text{-N}$ 排放量增长在 7% 以上, 其中天津、河

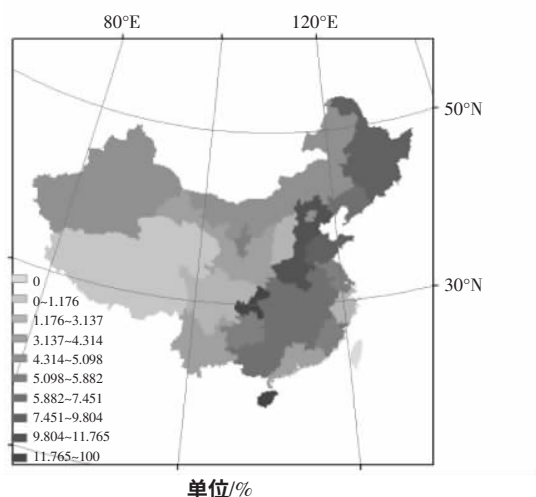
图 6 我国 1980—2005 年 $\text{NH}_3\text{-N}$ 排放强度空间变化

Figure 6 Spatial distribution dynamics of $\text{NH}_3\text{-N}$ emissions from 1980 to 2005 for China (%)

南年均 $\text{NH}_3\text{-N}$ 排放量增长在 10% 以上。其次,江西、湖南、湖北、辽宁、福建和江苏 $\text{NH}_3\text{-N}$ 排放量增长也很迅速,年均增长高于全国平均水平。我国的西北地区、青藏高原、西南地区 $\text{NH}_3\text{-N}$ 排放量变化较东部地区变化小,尤其是青海和西藏两省自治区,20 多年间 $\text{NH}_3\text{-N}$ 排放量仅增长了 0.23% 和 11.3%。四川是我国 $\text{NH}_3\text{-N}$ 排放总量比较大的省份,但年均 $\text{NH}_3\text{-N}$ 排放量增长率比较小,仅为 2.56%,这主要是因为 1996 年以后重庆 $\text{NH}_3\text{-N}$ 排放量不计算在四川 $\text{NH}_3\text{-N}$ 排放总量之内,如果计算在内,那么四川年均 $\text{NH}_3\text{-N}$ 排放量增长率为 15%,位居全国之首。

3 结论

我国 $\text{NH}_3\text{-N}$ 排放量由 1980 年的 5.50 Tg 增加到 2005 年的 13.38 Tg,增加了 143%,平均年增长为 5.51%,因施用化学肥料产生的 $\text{NH}_3\text{-N}$ (FSN) 排放量对总量的贡献率在 29.4%~47.4% 之间,并在这 20 多年内是所有 $\text{NH}_3\text{-N}$ 排放源中贡献最大的一个源,其最高贡献率出现在 1991 年(图 7)。这让我们认识到,如果对 $\text{NH}_3\text{-N}$ 排放进行减排,提高化学肥料的利用率、改善耕作和施肥措施是最重要的途径之一,不仅是对资源的节约利用和环境保护,更是会使我国农业、经济得到可持续的发展。禽畜厩舍及其排泄物的储存也是 $\text{NH}_3\text{-N}$ 排放的第二大源,在大力发展畜牧业的同时,一定加强禽畜厩舍改造及禽畜粪便的处理,尽量减少带来的气味污染和环境污染,减少由此产生的 $\text{NH}_3\text{-N}$ 排放量。

我国 $\text{NH}_3\text{-N}$ 排放量空间分布不均匀,主要分布

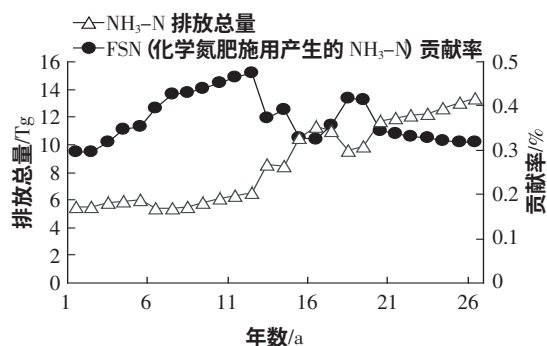
图 7 我国 1980—2005 年 $\text{NH}_3\text{-N}$ 排放总量及 FSN 贡献率

Figure 7 Inventory of $\text{NH}_3\text{-N}$ emissions and contributory ratio of FSN from 1980 to 2005 for China

在山东、河南、四川等省(图 5),这与其他文献中所得到的结论一致^[12-13]。这些区域是我国重要的粮食产区,大量化肥的施用,造成 FSN 对总 $\text{NH}_3\text{-N}$ 排放量的贡献率高于其他地方。

本文对计算方法也有所改进,把土壤排放 $\text{NH}_3\text{-N}$ 的背景值、固氮植物因固氮产生的 $\text{NH}_3\text{-N}$ 排放,工业生产化肥产生的 $\text{NH}_3\text{-N}$ 排放这些相对较小的 $\text{NH}_3\text{-N}$ 源也计算在内,使我国 $\text{NH}_3\text{-N}$ 排放的总量更精确化。表 5 是本文计算的中国 $\text{NH}_3\text{-N}$ 排放量与已有文献数据的比较。王文兴、孙庆瑞等^[12-13]分别计算的 1991 年和 1993 年中国 $\text{NH}_3\text{-N}$ 排放量所包括的源与本文相近,但得到 $\text{NH}_3\text{-N}$ 排放量数据比本文略大;Yan 等^[11]主要估算了农田生态系统中 $\text{NH}_3\text{-N}$ 排放量,Yamaji、Olivier 等^[10,31]估算畜牧业动物 $\text{NH}_3\text{-N}$ 排放量,除 Olivier 等估算的数值比本文大外,其他估算数值都比本文中小。综上所述,本文与各文献计算数据差异的根本原因是各排放源排放因子选择不一致造成的,尤其是禽畜粪便在厩舍及储存时 $\text{NH}_3\text{-N}$ 排放源和化学

表 5 中国 $\text{NH}_3\text{-N}$ 排放量与不同研究文献数据比较

Table 5 Chinese $\text{NH}_3\text{-N}$ Emissions estimates and comparison with previous studies

年份	$\text{NH}_3\text{-N}/\text{Tg}\cdot\text{a}^{-1}$	估算内容	参考文献
1990	3.2 (2.76*)	EA	Olivier ^[31]
1991	7.34 (6.56▽)	EAG、EAW、MHS、FSN、IPN、HMW	王文兴 ^[12]
1993	9.88 (8.45▽)	MHS、FSN、IPN、HMW	孙庆瑞 ^[13]
1995	5.77 (11.36▽)	FSN、FBN、BGD、EAW	Yan ^[11]
1995	4.1 (6.54*)	EA	Yamaji ^[10]
2000	4.5 (6.77*)	EA	Yamaji ^[10]

注:EA=MHS+EAW;HMW 为人类排泄物产生的 $\text{NH}_3\text{-N}$;EC 为能源消耗产生的 $\text{NH}_3\text{-N}$;括号中的数值为本文计算的相应年的 $\text{NH}_3\text{-N}$ 排放量,其中*表示本文与参考文献估算内容一致的 $\text{NH}_3\text{-N}$ 排放量数值,▽表示本文所有源 $\text{NH}_3\text{-N}$ 排放量。

肥料施用产生的 $\text{NH}_3\text{-N}$ 排放源, 在其排放因子的不同选择上直接影响结果的准确性。

参考文献:

- [1] Jamesn, Galloway, Zhao Dian-wu, et al. Nitrogen mobilization in The United States of America and The Peoples's Republic of China[J]. *Atmospheric Environment*, 1995, 30 (10) :1551-1561.
- [2] 苏成国, 尹 斌, 朱兆良, 等. 稻田氮肥的氨挥发损失与稻季大气氮的湿沉降[J]. *应用生态学报*, 2003, 14 (11) :1884-1888.
SU Cheng-guo, YIN Bin, ZHU Zhao-liang, et al. Ammonia volatilization loss of nitrogen fertilizer from rice field and wet deposition of atmospheric nitrogen in rice growing season[J]. *Chinese Journal of Applied Ecology*, 2003, 14 (11) :1884-1888.
- [3] Van Dam, D Van Dobben, H F ter Braak, et al. Air pollution as a possible cause for the decline of some phanerogamic species in the Netherlands[J]. *Vegetatio*, 1986, 65 :47-52.
- [4] Heil G W, Bruggink M. Competition for nutrients between *Cal Luna vulgaris* (L.) Hull and *Molina caerulea* (L.) [J]. *Moench Oecologia*, 1987, 73 :105-107.
- [5] Bobbink, R. Plant species richness and the accordance of empirical nitrogen critical loads :an inventory. Report Landscape Ecology [C]. Utrecht University/RIVM, Utrecht, 2004: 1-19.
- [6] B P Hyde, O T Cartona, P O'Toole, et al. A new inventory of ammonia emissions from Irish agriculture[J]. *Atmospheric Environment*, 2003, 37 :55-62.
- [7] 许中坚, 刘广深, 俞佳栋. 氮循环的人为干扰与土壤酸化[J]. *地质地球化学*, 2002, 30 (2) :74-78.
XU Zhong-jian, LIU Guang-shen, YU Jia-dong. Soil acidification and nitrogen cycle disturbed by man-made factors[J]. *Geology-Geochemistry*, 2002, 30 (2) :74-78.
- [8] Sørensen P, Amato M. Remineralisation and residual effects of N after application of pig slurry to soil[J]. *Eur J Agron*, 2002, 16 :81-95.
- [9] Zhao Dian-wu, Wang An-pu. Estimation of anthropogenic ammonia emissions in Asia[J]. *Atmospheric Environment*, 1994, 28 (4) :689-694.
- [10] Kazuyo Yamaji, Toshimasa Ohara, Hajime Akimoto. Regional-specific emission inventory for NH_3 , N_2O , and CH_4 via animal farming in South, Southeast, and East Asia[J]. *Atmospheric Environment*, 2004, 38 (40) :7111-7121.
- [11] Yan Xiao-yuan, Hajime Akimoto, Toshimasa Ohara. Estimation of nitrous oxide, nitric oxide and ammonia emissions from croplands in East, Southeast and South Asia[J]. *Global Change Biology*, 2003, 9 :1080-1096.
- [12] 王文兴, 卢筱凤, 庞燕波, 等. 中国氨的排放强度地理分布 [J]. *环境科学学报*, 1997, 17 (1) :1-6.
WANG Wen-xing, LU You-feng, PANG Yan-bo, et al. Geographical distribution of NH_3 emission intensities in China[J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 1997, 17 (1) :1-6.
- [13] 孙庆瑞, 王美蓉. 我国氨的排放量和时空分布[J]. *大气科学*, 1997, 21 (5) :590-598.
SUN Qing-rui, WANG Mei-rong. Ammonia emission and concentration in the atmosphere over China[J]. *Scientia Atmospherica Sinica*, 1997, 21 (5) :590-598.
- [14] J Webb, H Menzi. Managing ammonia emissions from livestock production in Europe[J]. *Environmental Pollution*, 2005, 135 :399-406.
- [15] 中国农业年鉴编委会. 中国农业年鉴[M]. 北京: 中国农业出版社, 1980-2006.
China Agriculture Yearbook editor committee, China Agriculture Yearbook[M], Beijing: China Agriculture and Technology Pres. 1980-2006 (in Chinese)
- [16] IPCC, 2000. IPCC (Intergovernmental Panel on Climate Change) WMO and UNEP[R]. <http://www.ipcc.ch>.
- [17] Poulsen H D, Kristensen V F (Eds.). Standard values for farm manure. A revaluation of the Danish standard values concerning the nitrogen, phosphorus and potassium content of manure. Beretning 736[R]. DIAS Report No. 7, Danish Institute of Agricultural Sciences, 1998, Tjele, Denmark (in English).
- [18] Klaassen G. Past and future emissions of ammonia in Europe. Part 1 of a Report to Ministry for Public Housing, physical Planning and Environment[C]. International Institute for Applied Systems Analysis, Laxenburg, Austria, 1991.
- [19] G X. Xing Z L Zhu. An assessment of N loss from agricultural fields to the environment in China[J]. *Nutrient Cycling in Agroecosystems*, 2000, 57 :67-73.
- [20] Hutchings N J, Sommer S G, Andersen J M, et al. A detailed ammonia emission inventory for Denmark.[J]. *Atmospheric Environment*, 2001, 35 :1959-1968.
- [21] Smil V. Enriching the Earth Fritz Haber, Carl Bosch and the Transformation of World Food Production[C] MIT Press, ISBN 026219449X, 2001: 411.
- [22] Zhu ZL Nitrogen balance and cycling in agroecosystems of China. In Zhu ZL, Wen QX and Freney JR (eds) Nitrogen in Soils of China[M]. Kluwer Academic Publishers, Dordrecht/Boston/London. 1997:323-330.
- [23] ECETOC. Ammonia emission to air in Western Europe[J]. *Technical Report*, 1994, 62 :192.
- [24] Misselbrook T H, van der Weerden T J, Pain B F, et al. Ammonia emission factors for UK agriculture[J]. *Atmospheric Environment*, 2000, 34 (6) :871-880.
- [25] EEA (European Environment Agency). Atmospheric mission Inventory Guidebook[R], Second edition. EEA, Copenhagen. 1999.
- [26] Mosier AR, Kroeze C, Nevison C, et al. Closing the global N_2O budget : nitrous oxide emissions through the agricultural nitrogen cycle[J]. *Nutr Cycl Agroecosyst*, 1998, 52 :225-248.
- [27] J W Erisman, A Bleeker, J Galloway, et al. Reduced nitrogen in ecology and the environment[J]. *Environmental Pollution*, 2007, 150 :140-149.
- [28] Ed Buijsman, Hans F M Maas, Willem A H Asman. Anthropogenic NH_3 emissions in Europe[J]. *Atmospheric Environment*, 1987, 21 (5) :1009-1022.
- [29] D Möller, H Schieferdecker. Ammonia emission and deposition of NH_3 in the G. D. R[J]. *Atmospheric Environment*, 1989, 23 (6) :1187-1193.
- [30] David S Lee, Geoff J Dollard. Uncertainties in current estimates of emissions of ammonia in the United Kingdom [J]. *Environmental Pollution*, 1994, 86 (3) :267-277.
- [31] J G J Olivier, A F Bouwman, K W Van der Hoek, et al. Global air emission inventories for anthropogenic sources of NO_x , NH_3 and N_2O in 1990[J]. *Environmental Pollution*, 1998, 102 (1) , Supplement 1 :135-148.