

田世丽, 竺夏英, 潘月鹏, 等. 华北玉米农田大气/植被界面氨气和铵盐动态变化研究[J]. 农业环境科学学报, 2018, 37(10): 2327–2333.

TIAN Shi-li, ZHU Xia-ying, PAN Yue-peng, et al. Dynamics of ammonia and ammonium at the atmosphere-vegetation interface over a selected maize farmland in the North China Plains[J]. *Journal of Agro-Environment Science*, 2018, 37(10): 2327–2333.

华北玉米农田大气/植被界面氨气和铵盐动态变化研究

田世丽¹, 竺夏英², 潘月鹏^{1*}, 谢雨竹¹, 周焱博³, 张国忠⁴

(1. 中国科学院大气物理研究所 LAPC, 北京 100029; 2. 国家气候中心, 北京 100081; 3. 阳泉市气象局, 山西 阳泉 045000; 4. 甘肃农业大学林学院, 兰州 730070)

摘要:为系统研究大气/植被界面还原性氮(氨气和铵盐, NH_3)的动态变化, 选择华北典型玉米农田生态系统, 于2016年8月和9月开展了2次综合观测实验, 同步采集并测量了植被冠层大气中氨气和铵盐浓度(气溶胶和降水)、玉米叶片和土壤中铵盐含量。结果表明: 实验期间(玉米抽穗期和花粒期), 植被冠层氨气和铵盐浓度的平均值分别为 $30.6 \pm 6.8 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ 和 $5.9 \pm 3.3 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$, 变化范围分别为 $21.1 \sim 37.6 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ 和 $2.1 \sim 8.0 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$; 降水过程造成植被冠层的气溶胶铵盐浓度下降了75%, 这一比例(被降水湿清除的效率)显著高于氨气。玉米叶片中铵盐含量从植株顶端到底部呈现下降趋势, 变化范围为 $0.17 \sim 0.25 \text{mg} \cdot \text{g}^{-1}$ (抽穗期)和 $0.74 \sim 1.20 \text{mg} \cdot \text{g}^{-1}$ (花粒期), 且呈现随温度升高而升高的日变化特征。抽穗期植株氨气补偿点为 $1.9 \pm 1.4 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$, 远低于大气氨气浓度 $31.4 \pm 4.8 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$; 花粒期植株氨气补偿点 $52.0 \pm 30.7 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$, 高于大气氨气浓度 $29.3 \pm 11.7 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ 。8月10—13日玉米抽穗期, 大气活性氮通过降水、气体和气溶胶3种途径输入到农田的总量约 $25 \text{mg N} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{d}^{-1}$, 是农田土壤和作物可利用氮的重要来源。农田氮管理中需要充分考虑植被与冠层大气氮的交换过程。

关键词: 氨气; 铵盐; 植被冠层; 农田; 玉米叶片; 大气氮沉降

中图分类号: X51 文献标志码: A 文章编号: 1672-2043(2018)10-2327-07 doi:10.11654/jaes.2017-1703

Dynamics of ammonia and ammonium at the atmosphere-vegetation interface over a selected maize farmland in the North China Plains

TIAN Shi-li¹, ZHU Xia-ying², PAN Yue-peng^{1*}, XIE Yu-zhu¹, ZHOU Yan-bo³, ZHANG Guo-zhong⁴

(1. Institute of Atmospheric Physics, Chinese Academy of Sciences, LAPC, Beijing 100029, China; 2. National Climate Center, Beijing 100081, China; 3. Yangquan Meteorological Bureau, Yangquan 045000, China; 4. College of Forestry, Gansu Agricultural University, Lanzhou 730070, China)

Abstract: The exchange and variation of reduced nitrogen [gaseous ammonia (NH_3) and particulate ammonium (NH_4^+), i.e., NH_3] at the atmosphere-vegetation interface of a typical maize farmland ecosystem in north China were studied. Atmospheric concentrations of NH_3 and NH_4^+ above the vegetation canopy, as well as NH_4^+ concentrations in maize leaves and soil samples, were simultaneously measured. The results showed that atmospheric concentrations of NH_3 and NH_4^+ ranged from 21.1 to $37.6 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ and from 2.1 to $8.0 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$, respectively. The removal efficiency of NH_4^+ (75%) by precipitation was much higher than that of NH_3 . The NH_4^+ content in maize leaves decreased from the top to the bottom of the maize plant, and tended to be higher as temperature increased. During the heading period, the average NH_3 compensation point of leaves was $1.9 \pm 1.4 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$, which was lower than the canopy NH_3 concentration ($31.4 \pm 4.8 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$). Conversely, the average NH_3 compensation point of leaves was $52.0 \pm 30.7 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$, which was higher than the canopy NH_3 concentration ($29.3 \pm 11.7 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$) during

收稿日期: 2017-12-12 录用日期: 2018-04-10

作者简介: 田世丽(1986—), 女, 河北廊坊人, 博士, 研究方向为大气颗粒物化学。E-mail: tianshili@mail.iap.ac.cn

*通信作者: 潘月鹏 E-mail: panyuepeng@mail.iap.ac.cn

基金项目: 国家自然科学基金项目(41405144); 国家重点研发计划专项(2017YFC0210100); 国家重点基础研究发展规划项目(2012CB417100)

Project supported: The National Natural Science Foundation of China (41405144); The Major State Research Development Program of China (2017YFC0210100); The National Basic Research Program of China (2012CB417100)

the anthesis maturity period. During the observation period between August 10 and 13, atmospheric reactive nitrogen deposition into the farmland via precipitation, gas, and aerosol was about $25 \text{ mg N} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{d}^{-1}$, which was an important source of soil nitrogen and crop available nitrogen. The NH_3 exchange between the atmosphere and plants should be considered in nitrogen management in intensive Chinese agricultural systems.

Keywords: ammonia; ammonium; vegetation canopy; farmland; maize leaf; atmospheric nitrogen deposition

工业革命以来,人类活动向大气释放活性氮(Nr)的数量和强度急剧增加,这改变了氮循环的自然过程,进而诱发了一系列生态环境效应。据估算,从1860年到2005年,全球人类活动排放的Nr由15 Tg $\text{N} \cdot \text{a}^{-1}$ 增加到187 Tg $\text{N} \cdot \text{a}^{-1}$,这些Nr有一半以上通过大气沉降进入地表,在数量上相当于全球陆地生物固氮量(90~130 Tg $\text{N} \cdot \text{a}^{-1}$)^[1-4]。过量的氮沉降是全球变化的重大问题,会导致生物多样性降低、水体富营养化和森林氮饱和以及土壤酸化等诸多不利影响^[5-7]。

氨气/铵盐($\text{NH}_3/\text{NH}_4^+$, NH_x)是Nr的重要组成部分,而农业活动是区域大气中 NH_x 的重要来源,这些Nr经过一系列化学反应会造成大气颗粒物污染,危害人体健康。最终,大气中的 NH_x 会通过降水、气溶胶和气体干沉降三种途径返回地表,即氮沉降过程^[8-10]。中国和美国的观测研究表明, NH_x 是大气氮干湿沉降的主要形态^[8]。我国以往氮沉降研究主要集中于湿沉降观测,干沉降研究多以模式估算为主。干沉降观测研究较少且尚未考虑 NH_3 在大气/植被界面的交换过程,对氮沉降总量(湿沉降、颗粒物和气体干沉降总和)存在系统性高估的可能^[8]。因此,研究大气/植被界面 NH_x 的动态变化,有利于明确植被 NH_3 排放和吸收在农田氮循环中的作用,对于深入研究农田大气氮沉降通量的测算方法及变化规律具有重要的科学意义。

植被叶片是大气 NH_3 的源或汇取决于环境和叶片气孔间气态 NH_3 的浓度差。当气孔内 NH_3 浓度与大气环境相同,叶片与大气间无净交换,此时的 NH_3 浓度称为气孔 NH_3 补偿点^[11]。补偿点受植物种类、生长阶段和土壤含氮量等因素影响^[12-14]。国际上对植物与大气间 NH_3 交换的方向、强度、发生过程和生理机制等方面开展了系统研究,但植被大气界面 NH_3 交换对 NH_x 沉降通量的影响还鲜见报道^[15]。

华北平原人口密集且农业集约化程度高,经过近几十年城市化的迅速发展,已经成为中国乃至全球大气Nr排放和沉降的热点地区^[8]。本研究选取了区域内典型玉米农田生态系统,探索研究大气/植被界面 NH_x 的动态变化,将植被冠层大气假设为一个闭合系

统(图1),在没有明显传输源影响的情况下,系统的氮输入和输出主要包括:①植被与大气交换的输入和输出过程;②气态和颗粒态氮干沉降的输入;③气态和颗粒态氮湿沉降的输入;④土壤向大气排放的输出。本文针对以上过程开展综合观测实验,同步采集并测量了植被冠层大气中 NH_3 和 NH_4^+ (气溶胶和降水)浓度、玉米叶片和土壤中 NH_4^+ 含量,分别根据玉米叶片的氨气补偿点、植被冠层的气态及颗粒态氮浓度、分段降水样品中的氮浓度及土壤剖面中氮随土壤深度的变化来评估植被冠层大气的氮输入和输出,探讨植被大气界面 NH_3 交换对 NH_x 沉降通量的影响,为深入了解农田大气-植被-土壤氮循环过程提供科学参考。

1 材料与方法

1.1 采样点介绍

采样点选择在河北香河南郊农田区,属暖温带大陆性季风气候,多年平均气温 11.5°C ,多年平均降雨量近600 mm,降雨集中在夏季,无霜期180 d左右。开展实验的农田区域在6月20日种植玉米,9月30日左右收获。本研究于2016年8月和9月开展了两次综合观测实验,分别处于玉米的抽穗期和花粒期。观测前一年(即2015年8月到2016年8月),农田共施肥两次:一次为农业堆肥,施肥日期为2015年11月15日,含氮量约18%,施肥量约 $375 \text{ kg} \cdot \text{hm}^{-2}$;另一次为复合肥,施肥日期为2016年6月20日,含氮量33%,施肥量约 $450 \text{ kg} \cdot \text{hm}^{-2}$ 。两次施肥输入到农田土壤的氮总量约 $430 \text{ kg N} \cdot \text{hm}^{-2} \cdot \text{a}^{-1}$ 。

1.2 实验观测和样品采集

植被冠层的大气Nr浓度(NH_3 、气态硝酸 HNO_3 、 NH_4^+ 和颗粒态硝酸盐 NO_3^-)采用Delta系统测定(Denuder for long-term atmospheric sampling,英国生态水文中心)。采样持续时间为24 h(上午9:00至次日上午9:00)。Delta采样系统抽取空气的流速 $0.3\sim 0.4 \text{ L} \cdot \text{min}^{-1}$,采样泵与流量表相连以计算采样体积(图1)。空气进入采样链后,气态和颗粒态Nr分别被扩散管

和滤膜吸附/收集。收集 HNO_3 的扩散管长 15 cm, 涂抹 1%KOH+1% 甘油甲醇溶液作为吸附剂。吸附 NH_3 的扩散管长 10 cm, 吸附剂为 5% 柠檬酸甲醇溶液。上层滤膜收集 NO_3^- , 吸附剂为 5%KOH+10% 甘油甲醇溶液; 下层滤膜涂有 13% 柠檬酸甲醇溶液用以收 NH_4^+ ^[16]。8 月 10—13 日和 9 月 15—17 日观测期间共获得 5 条 Delta 采样链用以测量大气 Nr 浓度, 每条采样链的测定可以同步得到 HNO_3 、 NH_3 、 NO_3^- 和 NH_4^+ 四种成分的浓度。 HNO_3 、 NH_3 、 NO_3^- 和 NH_4^+ 浓度的准确度分析见参考文献[17]。

在观测植被冠层大气 Nr 浓度期间, 同步采集玉米植株叶片, 清晨傍晚各一次, 用以考察植株 NH_3 挥发的昼夜变化特征。选取距 Delta 采样系统 0.5、1.0 m 和 1.5 m 的 3 株玉米, 每株分别采集上(距地面 1.5~1.7 m)、中(0.9~1.1 m)、下(0.5~0.7 m) 3 个高度的叶片。8 月 10—13 日(上午 10:00 和下午 8:00) 和 9 月 15—17 日(上午 6:00 和下午 6:00) 观测期各采集 5 次植株叶片, 共获得 90 个样品。

针对观测期间 8 月 12 日的降水过程, 用直径 36 cm 的 PVC 容器间隔 10~30 min 分段收集降水样品, 用量筒量取样品体积后保存于 50 mL 的 PET 瓶。此次降水事件前期每 10 min 收集一次, 后期每 30 min 一次。共采集 6 个分段降水样品, 样品冷藏保存, 采集 3 d 天内即进行化学分析。

在距离 Delta 采样点 3 m 的农田取深度为 50 cm 土壤剖面, 以 5 cm 为间隔划分土壤层, 每层取一个混合均匀的土壤样品。另在农田中随机采集了 3 个表

层土壤样品, 共采集土壤样品 13 个。

1.3 化学分析

Delta 采样链的 NH_3 扩散管和 NH_4^+ 滤膜用去离子水浸提, HNO_3 扩散管和 NO_3^- 滤膜用 H_2O_2 浸提。浸提液用离子色谱仪测定 NH_4^+ 和 NO_3^- 浓度, 计算得到植被冠层大气中不同形态 Nr 浓度。

玉米叶片样品先用去离子水清洗表面附着物, 晾干后称取 1.5~2.0 g 剪碎研磨, 用 30 mL 去离子水浸提可溶性成分。浸提液用 2 μm 滤膜过滤后取一部分测定 pH, 另一部分用离子色谱仪测定 NH_4^+ 浓度。

分段降水样品取一部分测定 pH 和电导率(EC), 另取一部分用离子色谱仪测定 NH_4^+ 和 NO_3^- 浓度。

土壤样品自然晾干后, 称取约 0.05 g 溶解于 40 mL 去离子水中, 过滤后用离子色谱测定 NH_4^+ 和 NO_3^- 浓度。离子色谱仪的测定方法和检出限等见参考文献[18-20]。

1.4 玉米农田的 NH_3 补偿点估算

大气/植被界面 NH_3 双向交换过程取决于植株叶片中可排放的 NH_3 浓度: 当大气 NH_3 浓度高于叶片 NH_3 补偿点时, 植株叶片吸收 NH_3 ; 相反, 当大气中 NH_3 浓度低于补偿点时, 植株叶片向大气中释放 NH_3 。 NH_3 补偿点的计算公式为^[21]:

$$\chi_s = \frac{[\text{NH}_x]}{RTH_{\text{NH}_3} \left(\frac{1}{\gamma_{\text{NH}_3}} + \frac{10^{-\text{pH}}}{\gamma_{\text{NH}_4} K_{\text{NH}_4}} \right)}$$

式中: $[\text{NH}_x]$ 和 pH 分别为叶片质外体中 NH_x 浓度和质外体 pH 值, 本研究用整个叶片中的对应物质浓度和

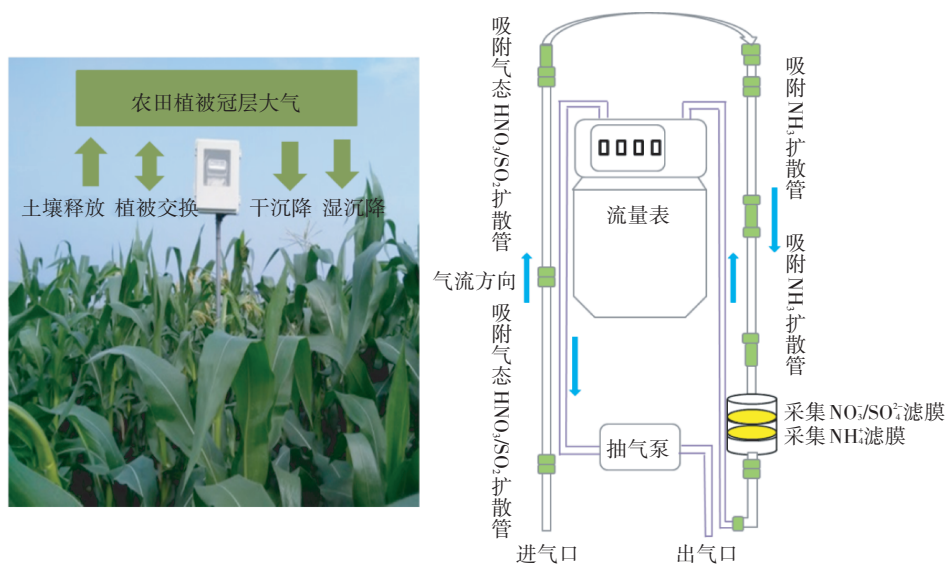


图1 Delta 系统示意图^[16]及农田植被冠层大气闭合系统的氮输入和输出

Figure 1 Delta system schematic^[16] and input and output of nitrogen of the atmospheric system above vegetation canopy

pH值进行 NH_3 补偿点估算。 R 为气体常数 $8.207 \times 10^{-2} \text{ atm}^{-1} \cdot \text{mol}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$, T 为K氏温度, γ_{NH_3} 和 $\gamma_{\text{NH}_4^+}$ 分别为 NH_3 和 NH_4^+ 的活度系数, 这里取为1, 亨利常数 H 和 NH_4^+ 的电离常数 $K_{\text{NH}_4^+}$ 均与温度有关, 分别依据以下两个公式计算:

$$H_{\text{NH}_3} = 56 \exp[4092(\frac{1}{T} - \frac{1}{298.15})]$$

$$K_{\text{NH}_4^+} = 5.67 \times 10^{-10} \exp[-6286(\frac{1}{T} - \frac{1}{298.15})]$$

本研究利用整个叶片组织的 $[\text{NH}_4^+]$ 浓度和pH值替代质外体估算了 NH_3 补偿点, 该估算方法具有一定的不确定性。为了考察方法的可靠性, 我们后续进行了叶片组织和质外体方法的同步测算。结果表明, 叶片组织的 $[\text{NH}_4^+]$ 浓度低于质外体, 会造成补偿点的低估; 而pH值高于质外体, 会造成补偿点的高估; 整体上利用叶片组织估算的补偿点略高于质外体方法(7.2%), 两者的变化趋势一致。此外, 采用气温代替叶温在一定程度上会低估植物叶片的氨气补偿点。

2 结果与讨论

大多数植物具有“双峰型”的 NH_3 挥发趋势, 即在开花期和成熟期各出现一次 NH_3 挥发高峰^[22-23]。考虑到植株与大气交换活动较为强烈的时间段, 本研究选择在玉米抽穗期(8月10—13日)和花粒期(9月15—17日)分别开展综合观测实验。从国家气象局获取了2016年8—9月香河气象参数的时间变化序列。8月平均温度、相对湿度和降水量分别为 25.7°C 、77.6%和78.7 mm, 这些气象参数在8月10—13日研究时段分别为 28.5°C 、82.6%和47.0 mm; 9月平均温度、相对湿度和降水量分别为 20.7°C 、77.6%和15.7 mm, 在9月15—17日研究时段分别为 22.8°C 、82.6%和1.0 mm。可以看出, 两个研究时段代表了区域内夏秋季典型的气象条件。

2.1 植株叶片 NH_4^+ 浓度变化及其与大气 NH_3 交换

叶片 NH_4^+ 含量从玉米植株顶端到底部呈逐渐下降趋势, 8月10—13日采集的3个高度叶片 NH_4^+ 含量从上到下依次为 0.25 、 $0.21 \text{ mg} \cdot \text{g}^{-1}$ 和 $0.17 \text{ mg} \cdot \text{g}^{-1}$, 9月15—17日采集3个高度的叶片 NH_4^+ 含量从上到下依次为 1.20 、 $0.99 \text{ mg} \cdot \text{g}^{-1}$ 和 $0.74 \text{ mg} \cdot \text{g}^{-1}$ 。这种差异反映了同一植株不同部位的 NH_3 挥发量可能不同^[24]。清晨和傍晚叶片 NH_4^+ 含量分别受到夜间和白天 NH_3 交换过程的直接影响, 反映了植株 NH_3 交换的昼夜变化特征。8月10—13日清晨采集的植株叶片 NH_4^+ 浓度整体上高于傍晚, 反映出植株 NH_3 挥发具有昼高夜低

的特征, 可能受控于叶片 NH_4^+ 同化和气孔导度的变化^[25]。白天温度较高, 植物光合/蒸腾作用活跃, 植株气态 NH_3 分压升高^[26], 叶片 NH_3 挥发明显高于夜间, 造成傍晚采集叶片的 NH_4^+ 浓度较低, 而清晨采集叶片的 NH_4^+ 浓度较高。此外, 植株叶片 NH_4^+ 浓度也在一定程度上受到采样时刻温度的影响。叶片 NH_4^+ 浓度与温度的相关性分析表明, 随着温度升高, 叶片 NH_4^+ 浓度整体呈增高趋势, 两个研究时段的决定系数 R^2 分别为0.67和0.79($P < 0.05$)。

为进一步考察植株叶片与大气中 NH_3 的交换过程, 测定了植被冠层的 NH_3 浓度和植株叶片中 NH_4^+ 浓度, 并计算了植株叶片 NH_3 补偿点(图2)。可以看出, 8月10—13日植株 NH_3 补偿点为 $1.9 \pm 1.4 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$, 远低于大气 NH_3 浓度 $31.4 \pm 4.8 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$, 整体呈现叶片从大气吸收 NH_3 的趋势, NH_3 沉降通量测算若不考虑植被交换过程将被显著低估; 9月10—17日植株氨气补偿点 $52.0 \pm 30.7 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$, 高于大气 NH_3 浓度 $29.3 \pm 11.7 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$, 整体呈现叶片向大气排放 NH_3 的趋势, NH_3 沉降通量测算若不考虑植被交换过程将被显著高估。 NH_3 补偿点很大程度上受pH驱动, 花粒期叶片pH值平均为6.4, 高于抽穗期的平均值5.3, 导致植株的花粒期 NH_3 补偿点高于抽穗期。此外, 作物生长后期植物叶片以氮素转运为主, 尤其是到了衰老期, 蛋白质水解产生大量的 NH_4^+ , 为叶片 NH_3 挥发提供了直接来源, 也导致较高的叶片 NH_3 补偿点。

2.2 植被冠层大气 NH_3 和 NH_4^+ 气溶胶浓度及氮的干沉降量估算

8月10—13日和9月15—17日两次观测期间植被冠层大气 NH_3 浓度的变化范围分别为 $27.1 \sim 36.6$

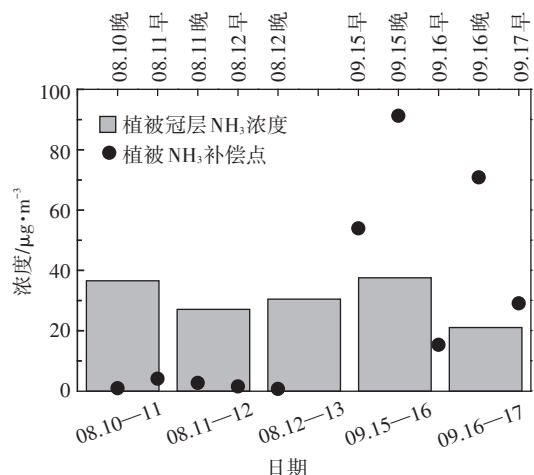


图2 植株 NH_3 补偿点和植被冠层 NH_3 浓度

Figure 2 NH_3 compensation points of maize leaves and atmospheric concentrations of NH_3 above vegetation canopy

$\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 和 $21.1\sim 37.6\ \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ (图3),这与北京周边农田地区夏季 NH_3 浓度比较接近($14.9\sim 29.8\ \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 和 $27\sim 41\ \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$)^[27-28],而远高于欧美一些农田地区(低于 $10\ \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$)^[29-31]。8月10—13日植被冠层大气 NH_4^+ 的变化范围为 $2.1\sim 8.0\ \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$,较大的波动范围主要与湿清除造成 NH_4^+ 浓度的降低有关。8月12日13:00—15:00出现一次短时降水过程,植被冠层的 NH_3 浓度没有明显下降($30.1\ \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$),可能是植被或土壤排放补充了被降水清除的 NH_3 。降水结束后颗粒物 NH_4^+ 浓度却由 $8.0\ \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 显著降低到 $2.1\ \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$,表明降水对颗粒物 NH_4^+ 的湿清除效果大于气体 NH_3 。

利用农田 Nr 年平均干沉降速率(V_d)^[9]与本研究期间测量的气态和颗粒态 Nr 浓度,估算本研究期间(8月10—13日,3 d) NH_3 、 HNO_3 、 NH_4^+ 和 NO_3^- 的干沉降量分别是 33.5 、 2.6 、 $2.5\ \text{mg N}\cdot\text{m}^{-2}$ 和 $0.9\ \text{mg N}\cdot\text{m}^{-2}$;干沉降中还原性氮与氧化性氮的比值是 $10:1$ 。

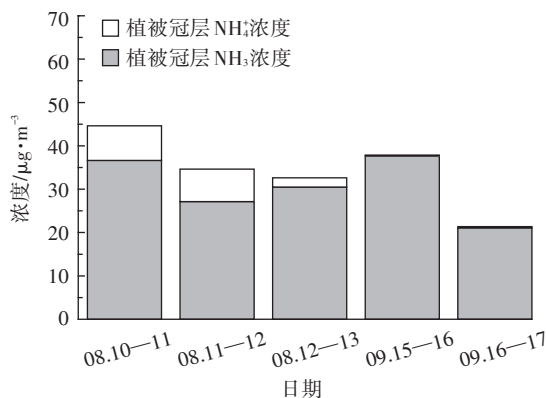


图3 植被冠层大气 NH_3 和 NH_4^+ 浓度

Figure 3 Atmospheric concentrations of NH_3 and NH_4^+ above vegetation canopy

2.3 大气 NH_3 的湿清除过程及氮沉降总量估算

观测期间分段收集的降水中 NH_4^+ 浓度整体呈现下降趋势(图4)。降水开始后的前10 min, NH_4^+ 浓度高达 $2.6\ \text{mg N}\cdot\text{L}^{-1}$,这是因为大气中含有大量气体 NH_3 和颗粒物 NH_4^+ 。随着降水过程的持续,降水开始后的10~40 min内(13:25—13:55)采集到的分段样品 NH_4^+ 浓度在 $1.5\ \text{mg N}\cdot\text{L}^{-1}$ 上下波动。降水结束前的1 h内(13:55—14:55),分段降水样品 NH_4^+ 浓度稳定在 $0.5\ \text{mg N}\cdot\text{L}^{-1}$ 。降水 NO_3^- 浓度的时间变化规律与 NH_4^+ 基本相似。

此次降水过程 NH_4^+ 和 NO_3^- 的湿沉降量分别是 $22.6\ \text{mg N}\cdot\text{m}^{-2}$ 和 $11.9\ \text{mg N}\cdot\text{m}^{-2}$,还原性氮与氧化性氮的比值是 $2:1$,与华北地区典型农田氮湿沉降的形态构成相似^[8]。由此,结合上一节的干沉降通量,估算8

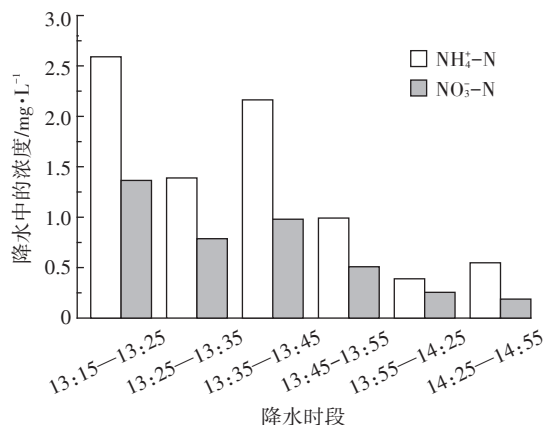


图4 降水过程中 NH_4^+-N 和 NO_3^--N 浓度的时间变化

Figure 4 Variations of NH_4^+-N and NO_3^--N concentrations in precipitation samples

月10—13日研究期间干、湿沉降无机氮总量为 $39.6+34.5=74\ \text{mg N}\cdot\text{m}^{-2}$ ($0.74\ \text{kg N}\cdot\text{hm}^{-2}$),这与山东禹城 and 河北栾城观测到的无机氮沉降的通量范围一致(分别是 $70.7\ \text{mg N}\cdot\text{m}^{-2}$ 和 $75.5\ \text{mg N}\cdot\text{m}^{-2}$)^[8]。

2.4 土壤剖面无机氮分布和 NH_3 排放量估算

观测期间,土壤剖面 NH_4^+ 主要集中在表层0~10 cm, NH_4^+ 含量随着土壤深度增加呈现出幂指数下降趋势(图5)。表层土壤 NH_4^+ 含量平均值为 $0.03\pm 0.01\ \text{mg}\cdot\text{g}^{-1}$,略高于华北的河北栾城、南皮和山东惠民等地(无机氮为 $0.006\sim 0.029\ \text{mg}\cdot\text{g}^{-1}$,0~20 cm)^[32]。土壤 NH_4^+ 含量在0~25 cm深度内由 $0.41\ \text{mg}\cdot\text{g}^{-1}$ 剧烈下降至 $0.03\ \text{mg}\cdot\text{g}^{-1}$ 。土壤深度25~50 cm范围内, NH_4^+ 含量变化幅度较小,维持在 $0.03\ \text{mg}\cdot\text{g}^{-1}$ 左右。土壤剖面 NO_3^- 含量的变化与 NH_4^+ 略有不同, NO_3^- 在0~15 cm深度内略有下降趋势,15~50 cm各层中 NO_3^- 含量稳定在 $0.07\sim 0.10\ \text{mg}\cdot\text{g}^{-1}$ 。

假设深层土壤中所含有的物质含量代表母质背

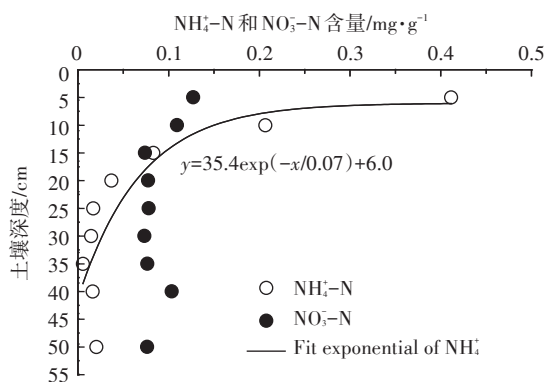


图5 不同深度土壤层 NH_4^+ 和 NO_3^- 含量

Figure 5 Mass contents of NH_4^+ and NO_3^- in soil samples in different depths

景,表层土壤的物质含量代表母质背景上叠加的人为源输入,依据表层和深层物质含量的差异可估算人为源输入量^[33]。由此估算人为源输入到土壤中 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 和 $\text{NO}_3^-\text{-N}$ 总和约 $420\text{ kg N}\cdot\text{hm}^{-2}\cdot\text{a}^{-1}$,与施肥量($430\text{ kg N}\cdot\text{hm}^{-2}\cdot\text{a}^{-1}$)相当。大气氮沉降是农田土壤和作物可利用氮的重要来源,需要在农田氮管理中充分考虑氮沉降输入量的动态变化。

3 结论

本研究以华北典型农田玉米生态系统为研究对象,综合研究了植被冠层大气、玉米叶片、土壤剖面和分段降水样品中 NH_3 浓度的动态变化,讨论大气-植被-土壤界面间 NH_3 的交换通量,得到以下主要结论:

(1)植被冠层的 NH_3 和 NH_4^+ 浓度变化范围分别是 $27.1\sim 36.6\text{ }\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 和 $2.1\sim 8.0\text{ }\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$,降水对 NH_4^+ 的清除作用显著高于 NH_3 。

(2)植株叶片中的 NH_3 浓度从顶端到底部呈逐渐下降趋势,且日变化特征一定程度上受温度影响,这些变化可能受制于植株 NH_3 挥发的潜势。

(3)抽穗期植株叶片 NH_3 补偿点低于植被冠层 NH_3 浓度,而花粒期 NH_3 补偿点整体高于植被冠层 NH_3 浓度,大气与植株叶片 NH_3 交换过程在不同生长阶段呈现不同方向。

(4)基于观测结果估算大气 Nr 通过降水、气体和颗粒物输入到农田生态系统的沉降量分别为 34.5 、 $36.1\text{ mg N}\cdot\text{m}^{-2}$ 和 $3.4\text{ mg N}\cdot\text{m}^{-2}$,约合 $74\text{ mg N}\cdot\text{m}^{-2}$ 。

参考文献:

- [1] Galloway J N, Dentener F J, Capone D G, et al. Nitrogen cycles: Past, present, and future[J]. *Biogeochemistry*, 2004, 70(2): 153-226.
- [2] Galloway J N, Schlesinger W H, Levy H, et al. Nitrogen fixation: Anthropogenic enhancement-environmental response[J]. *Global Biogeochemical Cycles*, 1995, 9(2): 235-252.
- [3] Galloway J N, Townsend A R, Erisman J W, et al. Transformation of the nitrogen cycle: Recent trends, questions, and potential solutions[J]. *Science*, 2008, 320(5878): 889-892.
- [4] Liu X, Zhang Y, Han W, et al. Enhanced nitrogen deposition over China[J]. *Nature*, 2013, 494(7438): 459-462.
- [5] Liu X, Duan L, Mo J, et al. Nitrogen deposition and its ecological impact in China: An overview[J]. *Environmental Pollution*, 2011, 159(10): 2251-2264.
- [6] Matson P, Lohse K A, Hall S J. The globalization of nitrogen deposition: Consequences for terrestrial ecosystems[J]. *AMBIO: A Journal of the Human Environment*, 2002, 31(2): 113-119.
- [7] 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.
- [8] MEI Xue-ying, ZHANG Xiu-feng. Nitrogen in wet deposition in Shanghai area and its effects on agriculture ecosystem[J]. *Chinese Journal of Eco-Agriculture*, 2007, 15(1): 16-18.
- [9] Pan Y P, Wang Y S, Tang G Q, et al. Wet and dry deposition of atmospheric nitrogen at ten sites in northern China[J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2012, 12(14): 6515-6535.
- [10] Xu W, Luo X S, Pan Y P, et al. Quantifying atmospheric nitrogen deposition through a nationwide monitoring network across China[J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2015, 15(21): 12345-12360.
- [11] 鲁如坤, 刘鸿翔, 闻大中, 等. 我国典型地区农业生态系统养分循环和平衡研究 II. 农田养分收入参数[J]. 土壤通报, 1996, 27(4): 151-154.
- [12] LU Ru-kun, LIU Hong-xiang, WEN Da-zhong, et al. Study on nutrient cycling and balance of agricultural ecosystem in typical areas of China II. Farmland nutrient income parameters[J]. *Chinese Journal of Soil Science*, 1996, 27(4): 151-154.
- [13] Farquhar G D, Firth P M, Wetselaar R, et al. On the gaseous exchange of ammonia between leaves and the environment: Determination of the ammonia compensation point[J]. *Plant Physiology*, 1980, 66(4): 710-714.
- [14] Harper L A, Sharpe R R, Langdale G W, et al. Nitrogen cycling in a wheat crop: Soil, plant, and aerial nitrogen transport[J]. *Agronomy Journal*, 1987, 79(6): 965-973.
- [15] Husted S, Schjoerring J K. Ammonia flux between oilseed rape plants and the atmosphere in response to changes in leaf temperature, light intensity, and air humidity: Interactions with leaf conductance and apoplastic NH_4^+ and H^+ concentrations[J]. *Plant Physiology*, 1996, 112(1): 67.
- [16] Bussink D W, Harper L A, Corré W J. Ammonia transport in a temperate grassland: II. Diurnal fluctuations in response to weather and management conditions[J]. *Agronomy Journal*, 1996, 88(4): 621-626.
- [17] 李世清, 赵琳, 邵明安, 等. 植物冠层与大气氨交换的研究进展[J]. 西北植物学报, 2004(11): 2154-2162.
- [18] LI Shi-qing, ZHAO Lin, SHAO Ming-an, et al. Ammonia exchange between plant canopy and the atmosphere: A review[J]. *Acta Bot Borealis-Occident Sin*, 2004(11): 2154-2162.
- [19] Tang Y, Simmons I, Van Dijk N, et al. European scale application of atmospheric reactive nitrogen measurements in a low-cost approach to infer dry deposition fluxes[J]. *Agriculture, Ecosystems & Environment*, 2009, 133(3): 183-195.
- [20] 田世丽, 刘学军, 潘月鹏, 等. 应用扩散管测量霾污染期间大气氮硫化物浓度的方法[J]. 环境科学, 2017, 38(9): 3605-3609.
- [21] TIAN Shi-li, LIU Xue-jun, PAN Yue-peng, et al. Observations of reactive nitrogen and sulfur compounds during haze episodes using a denuder-based system[J]. *Environmental Science*, 2017, 38(9): 3605-3609.
- [22] Pan Y P, Wang Y S, Tang G Q, et al. Spatial distribution and temporal variations of atmospheric sulfur deposition in Northern China: Insights into the potential acidification risks[J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2013, 13(3): 1675-1688.
- [23] Tian S, Pan Y, Liu Z, et al. Size-resolved aerosol chemical analysis of

- extreme haze pollution events during early 2013 in urban Beijing, China[J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2014, 279:452-460.
- [20] Tian S, Pan Y, Wang J, et al. Concurrent measurements of size-segregated particulate sulfate, nitrate and ammonium using quartz fiber filters, glass fiber filters and cellulose membranes[J]. *Atmospheric Environment*, 2016, 145:293-298.
- [21] Van Hove L, Heeres P, Bossen M. The annual variation in stomatal ammonia compensation point of rye grass (*Lolium perenne* L.) leaves in an intensively managed grassland[J]. *Atmospheric Environment*, 2002, 36(18):2965-2977.
- [22] 李生秀, 李宗让, 田霄鸿, 等. 植物地上部分氮素的挥发损失[J]. 植物营养与肥料学报, 1995, 1(2):18-25.
- LI Sheng-xiu, LI Zong-rang, TIAN Xiao-hong, et al. Nitrogen loss from above-ground plants by volatilization[J]. *Plant Nutrition and Fertilizer Sciences*, 1995, 1(2):18-25.
- [23] Parton W, Morgan J, Altenhofen J, et al. Ammonia volatilization from spring wheat plants[J]. *Agronomy Journal*, 1988, 80(3):419-425.
- [24] 王朝辉, 刘学军, 巨晓棠, 等. 田间土壤氨挥发的原位测定:通气法[J]. 植物营养与肥料学报, 2002, 8(2):205-209.
- WANG Zhao-hui, LIU Xue-jun, JU Xiao-tang, et al. Field in situ determination of ammonia volatilization from soil: Venting method[J]. *Plant Nutrition and Fertilizer Science*, 2002, 8(2):205-209.
- [25] Stutte C, Weiland R, Blem A. Gaseous nitrogen loss from soybean foliage[J]. *Agronomy Journal*, 1979, 71(1):95-97.
- [26] Dasgupta P K, Dong S. Solubility of ammonia in liquid water and generation of trace levels of standard gaseous ammonia[J]. *Atmospheric Environment*, 1986, 20(3):565-570.
- [27] 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.
- SHEN Jian-lin, LIU Xue-jun, ZHANG Fu-suo. Atmospheric dry depositions of ammonia and nitrogen dioxide to agricultural fields in peri-suburbs of Beijing[J]. *Acta Pedologica Sinica*, 2008, 45(1):165-169.
- [28] 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):79-87.
- SUN Qing-rui, WANG Mei-rong. Ammonia emission and concentration in the atmosphere over China[J]. *Scientia Atmospherica Sinica*, 1997, 21(5):79-87.
- [29] Sutton M A, Nemitz E, Milford C, et al. Micrometeorological measurements of net ammonia fluxes over oilseed rape during two vegetation periods[J]. *Agricultural and Forest Meteorology*, 2000, 105(4):351-369.
- [30] Robarge W P, Walker J T, McCulloch R B, et al. Atmospheric concentrations of ammonia and ammonium at an agricultural site in the south-east United States[J]. *Atmospheric Environment*, 2002, 36(10):1661-1674.
- [31] Dragosits U, Theobald M R, Place C J, et al. Ammonia emission, deposition and impact assessment at the field scale: A case study of sub-grid spatial variability[J]. *Environmental Pollution*, 2002, 117(1):147-158.
- [32] 杨莉琳, 张福锁, 毛仁钊, 等. 华北平原农田生态系统土壤 C、N 净矿化及尿素转化研究[J]. 植物营养与肥料学报, 2007, 13(5):824-830.
- YANG Li-lin, ZHANG Fu-suo, MAO Ren-zhao, et al. Soil net N and C mineralization and urea transformation in agroecosystems across North China Plain[J]. *Plant Nutrition and Fertilizer Science*, 2007, 13(5):824-830.
- [33] Pan Y P, Wang Y S. Atmospheric wet and dry deposition of trace elements at 10 sites in northern China[J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2015, 15(2):951-972.