中国科学: 地球科学 2014 年 第 44 卷 第 2 期: 292 ~ 301
www.scichina.com earth.scichina.com
《中国科学》杂志社
SCIENCE CHINA PRESS

论 文

鲁西北平原玉米地涡度相关臭氧通量日变化特征

朱治林[①], 孙晓敏[①*], 董云社[②], 赵风华[①], Franz X MEIXNER[③]

① 中国科学院地理科学与资源研究所生态系统网络观测与模拟重点实验室, 北京 100101;
② 中国科学院地理科学与资源研究所环境地理与人类健康研究室, 北京 100101;
③ Max Planck Institute for Chemistry, Biogeochemistry Department, 55128 Mainz, Germany
* 联系人, E-mail: sunxm@igsnrr.ac.cn

收稿日期: 2012-10-18; 接受日期: 2013-06-09; 网络版发表日期: 2014-01-13
国家自然科学基金项目(批准号: 31070400)、国家重点基础研究发展计划(编号: 2010CB833501-01)和中国科学院地理科学与资源研究所自主部署创新项目(编号: 201003001)资助

摘要 近地面高浓度臭氧(O_3)对植物生长发育和光合作用等都有副作用. 基于O_3通量(特别是植物气孔吸收)的评价指标被认为比基于O_3浓度的指标能更好地反应O_3对生态系统的影响. 本文报道了利用涡度相关技术进行农田生态系统(玉米地)O_3通量的观测结果, 初步分析了该地区夏玉米地上O_3浓度、沉积速度(V_d)和臭氧通量(F_o)的日变化规律及其与生态环境条件的关系. 结果表明: (1) 观测期间(2011 年 8 月 9 日至 9 月 28 日), 30 min 平均O_3浓度存在明显的日变化规律, 其最低值(16.5 nL L^{-1})和最高值(60.1 nL L^{-1})的出现时间分别为 6:30 和 16:00 左右. 白天(6:00~18:00)和夜间(18:00~6:00, 下同)的 O_3 浓度分别为(39.8±23.1)和(20.7±14.1) nL L^{-1}(平均值±标准差), 瞬时O_3浓度最大值为 97.5 nL L^{-1}. O_3浓度受太阳辐射和温度影响比较明显. (2) 无论白天还是夜间, 近地层O_3都是向下运动的. V_d日变化规律表现为夜间小而平稳、上午快速上升、中午前后大而平稳以及下午快速下降的过程. 白天和夜间的 V_d平均值分别为 0.29 和 0.09 cm s^{-1}, 最大值为 0.81 cm s^{-1}. 白天V_d的大小受作物生长期的影响, 而V_d的日变化受太阳辐射和相对湿度的影响最为明显. (3) O_3通量的日变化受O_3浓度和V_d的共同影响, 白天和夜间的平均O_3通量(F_o)分别为–317.7 和–70.2 ng m^{-2} s^{-1}. F_o与CO_2通量(F_c)和潜热通量(LE)的相关关系比较显著, 通过比较白天和晚上 V_d 的差别, 可以判断白天的气孔吸收是玉米地上大气O_3主要的汇.

关键词
臭氧通量
沉积速度
臭氧浓度
涡度相关
农田生态系统
鲁西北平原

作为一种主要的污染气体和重要的温室气体, 近地层高浓度臭氧(O_3)对植物生长发育、光合作用以及产量形成等都有严重的影响(王春乙和白月明, 2007; 许宏等, 2007; 任巍和田汉勤, 2007; Mills 等, 2007; Avnery 等, 2011). 根据长期定位观测, 目前全球地面O_3浓度每年以 0.5%~2%的速度增加, 这已经成为一个影响可持续发展的限制因子(Vingarzan, 2004; Jaffe 和 Ray, 2007; Krzyscin 等, 2007; Xu 等, 2008). 随着工业化和城市化的快速发展, 中国 NO_x, CO 等的排放量迅速增加, 在适宜的条件下均可能造

中文引用格式: 朱治林, 孙晓敏, 董云社, 等. 2014. 鲁西北平原玉米地涡度相关臭氧通量日变化特征. 中国科学: 地球科学, 44: 292–301
英文引用格式: Zhu Z L, Sun X M, Dong Y S, et al. 2014. Diurnal variation of ozone flux over corn field in Northwestern Shandong Plain of China. Science China: Earth Sciences, doi: 10.1007/s11430-013-4797-9

成局地高浓度 O_3(Crutzen 等, 1999; 唐文苑等, 2009; 邓雪娇等, 2011). 为此, 从 20 世纪 80 年代开始, 中国就在部分地区开展了 O_3 本底浓度的长期观测(丁国安等, 2001; 刘洁等, 2006; 金赛花等, 2008).

O_3 对植物的影响通常是采用开顶式气室(OTC)来研究的. 即通过控制 O_3 浓度来定量研究 O_3 对植物生长发育、光合作用和产量形成等的影响(Feng 等, 2003; 姚芳芳等, 2008; Gerosa 等, 2009; 郑有飞等, 2010; 郑飞翔等, 2011). 而 O_3 对自然生态系统的影响, 则主要是通过观测陆地生态系统上的 O_3 浓度、沉积速度(V_d)和 O_3 通量(F_o)等来进行研究的, 并提出了一系列评价 O_3 对生态系统影响的污染指标(Fuhrer 等, 1997; Pleijel 等, 2004; 梁晶等, 2010; Mills 等, 2011). 这些指标可大致分为两类: 一类是基于 O_3 浓度的环境评价指标, 另一类是基于 O_3 通量的评价指标. 第一类指标虽然相对容易获得, 但没有考虑植被和生态系统状况(如气孔阻抗, 作物生育期和叶面积大小等). 所以, 一些科学家认为, O_3 通量(特别是进入气孔内的 O_3 通量, 简称"气孔吸收")是评价 O_3 对植被和生态系统影响的最好指标(Pleijel 等, 2004; Uddling 等, 2004; Musselman 等, 2006; Coyle 等, 2009; Mills 等, 2011).

被广泛认可的气孔吸收估算方法是首先测量生态系统上总的 O_3 通量, 然后利用模型分别估算气孔吸收和其他吸收总量(统称为"非气孔吸收")(Fowler 等, 2009; Lamaud 等, 2009). 在中国, O_3 对生态系统影响评价研究相对薄弱, 特别是生态系统尺度上 O_3 通量的观测研究几乎还是空白(梁晶等, 2010), 有限的 O_3 通量观测都是基于梯度法和箱式法的短期测量(Sorimachi 等, 2003; Tong 等, 2011). 涡度相关方法是测量生态系统上 O_3 沉积通量最先进的技术. 本文将报告中国首次用该方法在鲁西北平原夏玉米地上观测的 O_3 沉积通量, 初步分析该地区 O_3 浓度、沉积速度和通量的日变化特征及其主要影响因子, 同时分析 O_3 通量与其他通量(如 CO_2 通量和水汽通量)之间的关系, 为估算 O_3 的气孔吸收和评价 O_3 对生态系统的影响提供科学依据.

1 材料和方法

1.1 场地

O_3 浓度和通量的观测是在中国科学院(山东)禹城综合试验站(116°34′E, 36°50′N, 海拔 28 m)夏玉米田上进行的. 观测地周围开阔, 观测期间的玉米高度为 2.4 m. 该站位于华北平原的黄河冲积平原, 土壤母质为黄河冲积物, 表土质地为轻、中壤土. 夏玉米是该地区夏季的主要粮食作物, 主要生育期为 7~9 月份.

1.2 仪器和观测

O_3 通量的观测是和中国通量网(ChinaFLUX)禹城农田生态系统长期涡度相关通量观测系统配合进行的. 该系统是由 1 个三维超声风速仪(CSAT3, Campbell Sci. Co., 美国)和 1 套 H_2O/CO_2 浓度红外分析仪(LI-7500, LI-COR Biosciences, 美国)组成的, 可测量生态系统的感热、CO_2 和水汽通量(于贵瑞等, 2006). 就目前的技术水平而言, 用涡度相关方法测量 O_3 通量通常需要 2 个仪器, 即 O_3 相对浓度快速脉动仪和 O_3 绝对浓度慢速分析仪. 本研究中, 大气 O_3 绝对浓度是用便携式 O_3 浓度分析仪(Model 205, 2B Technologies, inc., 美国)测量的, 精度为 1 nL L^{-1}v, 每 2 s 测量一次并输出一组结果. 该仪器经过严格标定, 满足技术要求. 测量 O_3 相对浓度快速变化的脉动仪是由德国公司新研制的(Enviscope GmbH, 德国. 以下简称"ENVI")(Zahn 等, 2012). 仪器的基本测量原理是: 当含有 O_3 的空气快速通过仪器腔体时, 一个涂有乙烯基和芳香物的感应面就会和 O_3 发生化学反应并产生蓝光, 利用光电放大器可将光信号输出成为电信号, 实现对 O_3 浓度快速变化的测量. 两种 O_3 浓度都是采用闭路方式测量的, 输气管都是用 3 m 长的惰性材料特氟龙(Teflon)制造的. 为了研究 O_3 和其他环境要素的关系, 我们还进行了微气象和辐射观测. 包括: 空气温湿度(HMP45C, Vaisala Co., 芬兰)、水平风速(A100R, Vector Ins, 英国)、四分量净辐射(CNR1, Kipp & Zonen, 荷兰)以及光合有效辐射(LI-190SB, LI-COR Biosciences, 美国)等.

观测是从 2011 年 8 月 9 日开始到 9 月 28 日结束, 虽然期间一直是连续自动观测, 但由于仪器和其他原因, 有效数据不是很完整. 涡度相关系统的采样频率为 10 Hz, 每 30 min 系统输出一组上述观测项目的平均结果(包括微气象、辐射、通量和 O_3 浓度等). 涡度相关系统主要仪器的观测高度为 3.2 m, 2 个 O_3 分析仪进气口高度和超声风速仪的高度一致, 水平距离约为 0.2 m. 由于 ENVI 感应涂层不断被消耗, 为了保持仪器灵敏度, 我们每 3 d 左右更换 1 次感应涂层

片. 所有 10 Hz 的原始数据和平均结果都采用高速数据采集器(CR5000, Campbell Sci. Co., 美国)进行了存储.

1.3 O_3 沉积速度的计算

沉积速度等于臭氧通量除以臭氧浓度. 因为 ENVI 的灵敏度是变化的, 所以用该仪器配合超声风速仪不能直接测量出 O_3 通量. 为此, 通常要假设该仪器灵敏度在某个短时段内(例如 30 min)的变化可以忽略, 这样就可以先计算出 O_3 的沉积速度(V_d) (Muller 等, 2010):

$$V_d = -\frac{\overline{w'X'}}{\overline{X}}, \quad (1)$$

式中, X 是 ENVI 输出的信号(mV), w 是垂直风速(m s^{-1}), 上横线表示时间平均, 撇号表示变量的脉动. 因为近地层 O_3 总是向下沉积运动的, 为了使得 V_d 保持正值, 所以在公式(1)前增加负号.

1.4 臭氧通量和其他通量的计算和校正

O_3 通量(F_o)是 V_d 与 O_3 浓度的乘积, 而 O_3 绝对浓度可采用慢速 O_3 浓度分析仪得到. 所以, 实际 O_3 通量(F_o)计算公式为

$$F_o = -\overline{\rho}_{o3} V_d = \overline{\chi}_{o3} \frac{P}{T} \frac{M_{o3}}{R} \frac{\overline{w'X'}}{\overline{X}}, \quad (2)$$

式中, $\overline{\rho}_{o3}$ 和 $\overline{\chi}_{o3}$ 分别为用慢速 O_3 浓度分析仪观测的 O_3 密度(ng m^{-3})和 O_3 混合比(ppbv 或 nL L^{-1}), P 是大气压(kPa), T 是空气绝对温度(K), M_{o3} 是 O_3 摩尔质量(48 g mol^{-1}), R 的气体常数(8.314 J mol^{-1} K^{-1}). 生态系统上感热通量(H)、潜热通量(LE)和 CO_2 通量(F_c)用以下公式计算

$$H = \rho_a c_p \overline{w'T'}, \quad (3)$$

$$LE = L\overline{w'\rho_v'}, \quad (4)$$

$$F_c = \overline{w'\rho_c'}, \quad (5)$$

式中, ρ_a, ρ_v 和 ρ_c 分别是空气密度(kg m^{-3}), 水汽密度(g m^{-3})和 CO_2 密度(mg m^{-3}). C_p 是空气的定压比热(1005 J K^{-1}), L 是水的蒸发潜热(2450 J g^{-1}). 用以上公式计算出来的各种通量都要经过一系列的常规校正, 本研究中采用的通量校正项目包括超声温度的水汽影响校正、O_3 通量的延迟时间校正、二次坐标旋转校正、频谱校正和空气密度脉动(WPL)校正(Lee 等, 2004; 于贵瑞和孙晓敏, 2006).

2 讨论和结果

2.1 臭氧浓度的日变化特征及其影响因子

图 1(a)是观测期间(2011 年 8 月 9 日至 9 月 28 日)O_3 浓度的平均日变化情况(30 min 间隔). 为了比较 O_3 浓度日变化与其他环境要素日变化之间的规律, 我们同时给出了同时段的总辐射(Q)和气温(T)的平均日变化(图 1(b)). 30 min 平均 O_3 浓度最低值(16.5 nL L^{-1})的平均出现时间在 6:30 左右, 该时间点比平均日出时间(总辐射 Q>10 w m^{-2})要晚半小时左右. 大约从上午 7:00 开始, 随着辐射的增强和温度升高, O_3 浓度也开始持续上升, 并在下午的 16:00 左右才达到一天的最大值(60.1 nL L^{-1}), 然后 O_3 浓度开始出现一个快速下降过程到日落前后(18:00 左右). 在前半夜 O_3 浓度呈现慢速下降的变化, 而后半夜则保持相对平稳的变化过程. 白天(6:00~18:00)O_3 浓度的平均值为(39.8±23.1) nL L^{-1}(平均值±标准差); 夜间的平均值为(20.7±14.1) nL L^{-1}, 观测期间 30 min 平均 O_3 浓度的最大值为 97.5 nL L^{-1}(8 月 29 日 16:00).

通过比较总辐射(Q)、气温(T)和 O_3 浓度之间的日变化特征(图 1), 我们发现, Q 是以中午 12:00(最大值)为中心对称变化的. T 的变化要落后于辐射变化约 2 h 左右, 在 14:00 左右达到最大值. 而 O_3 浓度白天最大值的出现时间比气温最大值出现时间还要晚 2 h 左右(16:00 左右). 这说明在下午, 虽然辐射减弱了, 但已经产生的 O_3 并没有马上沉积的下垫面或被其他化学物分解. 在夜间, 虽然局地不会产生 O_3, 但白天产生的 O_3 在沉积到下垫面或被其他化学物分解时也需要一定的时间, 所以, 前半夜的 O_3 浓度的慢速下降可以理解为 O_3 的沉积和消解. 而在后半夜 O_3 浓度保持平稳的变化, 这可能主要是由于上层大气 O_3 向下输送的结果. 白天和夜间 O_3 浓度的差别比较大, 说明该地区的 O_3 浓度主要来自局地的光化学反应(Crutzen 等, 1999).

一些研究者将 O_3 的日循环大致分为 4 个阶段: O_3 及其前体物的前夜累积阶段、清晨 NO_x 大量排放的 O_3 抑制阶段、O_3 光化学生成阶段和 O_3 消耗阶段(唐文苑等, 2009). 事实上, 不同地方的 O_3 浓度日变化特征(如极值出现时间)是不相同的, 其日变化过程与当地的特定条件有关. 我们的观测结果与南京郊区观测的结果(安俊琳等, 2010)和北京上甸子的观测结果

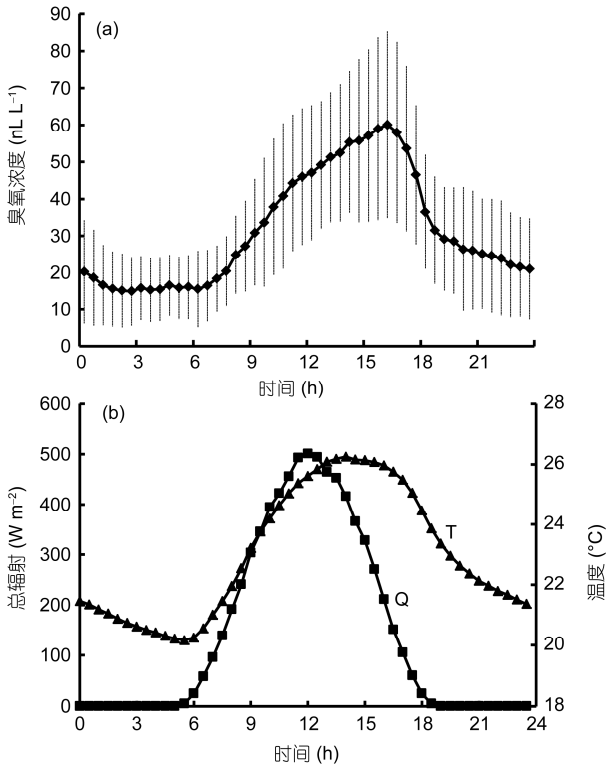

图 1　观测期间 O_3 浓度(a)与总辐射和气温(b)的平均日变化

垂直线上下端分别表示平均值±标准差

(刘洁等, 2006)比较一致. 但与在青海瓦里关观测的 O_3 浓度日变化不同(金赛花等, 2008).

局地 O_3 产生和消解是一系列复杂化学和物理过程综合作用的结果, 在不考虑 O_3 远程输送的条件下, O_3 的产生取决于 O_3 前体(VOCs 和 NO_x 等的含量)以及 O_3 和 NO_2 等的光解速率(唐文苑等, 2009). 对于白天 O_3 浓度的日变化而言, 环境条件(辐射、温度、湿度和风向等)是重要的驱动因子(Duenas 等, 2002; 刘洁等, 2006; 朱治林等, 2012). 因为 O_3 的产生是一系列光化学反应的结果, 所以太阳辐射(特别是紫外辐射)应该是影响 O_3 浓度变化的重要驱动因子. 考虑到白天 O_3 浓度变化与 Q 之间存在时间滞后关系(图 1), 我们把白天某时刻 O_3 浓度分别与前 0~4 小时的 Q 进行相关分析, 最后发现 O_3 浓度与 2 小时前的 Q 之间的相关关系最显著(图 2(a)). 一些研究者通过相关分析认为, 空气温湿度是影响 O_3 浓度变化的重要因子(Duenas 等, 2002; 刘洁等, 2006). 图 2(b)给出了 O_3 浓度与气温之间的相关关系. 因为这些因子都与太阳辐射是直接相关的, 所以, 温湿度可以理解为影响 O_3 浓度变化的间接因子.

2.2　臭氧沉积速度日变化及其主要控制因子

由于 V_d 去除了 O_3 浓度对通量的影响, 所以在比较不同地点和下垫面 O_3 沉积规律的时候, 科学家一般更喜欢用 V_d 来研究(Rummel 等, 2007). V_d 可以理解为大气 O_3 污染物被消解的相对效率, 其数值的大小在某种程度上受大气湍流交换特征和下垫面状况影响. 同时, V_d 被广泛用于研究 O_3 和其他痕量气体的沉积过程和气孔吸收的模拟(Pederson 等, 1995; Wesely 和 Hicks, 2000).

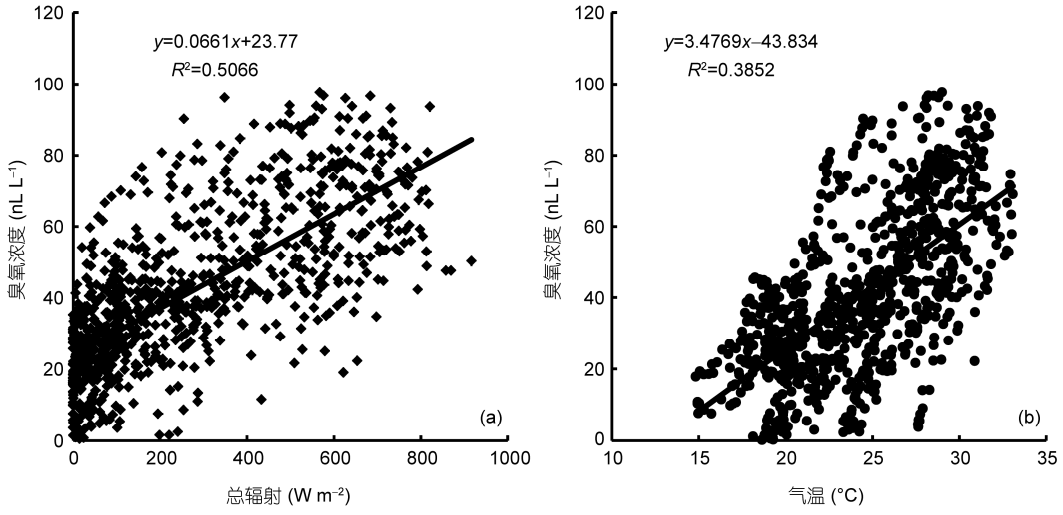

图 2　白天 O_3 浓度与 2 小时前太阳总辐射(a)和气温(b)之间的相关关系

2.2.1 臭氧沉积速度的日变化特征

图 3(a)是观测期间夏玉米冠层上 V_d 的平均日变化情况. 和 O_3 浓度相比, V_d 的日变化有很大的不同, 其日变化过程可以划分为 4 个过程: (1) 上午(7:00~10:00 左右)的快速上升的过程; (2) 中午前后(10:00~15:00 左右), V_d 较大且相对平稳的变化过程(V_d 在 0.3~0.4 cm s^{-1} 波动); (3) 下午(15:00~20:00)的快速下降过程; (4) 晚上(20:00~7:00)V_d 弱而平缓的变化过程(V_d 在 0.05~0.1 cm s^{-1} 变化). 利用观测的资料, 统计得到整个观测期间白天(6:00~18:00)的 V_d 平均值为 0.29 cm s^{-1}, 夜间的平均值为 0.09 cm s^{-1}, 30 min 平均 V_d 最大值为 0.81 cm s^{-1}(8 月 13 日 12:30).

近地层 O_3 沉积需要 2 个条件, 首先是需要一个汇, 使得上层 O_3 可以源源不断的向汇沉积. 同时还需要一定强度的大气湍流交换, 使 O_3 较容易到达下垫面而形成通量. 在上午, 辐射的增强有利于气孔迅速打开, 同时大气湍流交换(以摩擦风速 u^*表示)也快速的增强(图 3(a)), 所以导致 V_d 在上午上升很快. 下午, 随着湍流交换的减弱和植物气孔的逐步关闭, V_d 也很快下降到一个相对低的水平. 在夜间, 虽然此时植物的气孔基本上完全关闭, 但 O_3 仍然保持一个相对慢的沉积过程. 这部分 O_3 可能沉积到其他地方(如土壤表面, 植物茎秆等部位)或者被其他化学物质(如 NO 等)所消解. 我们的观测结果和 Gerosa 等(2004)在大麦地观测的 V_d 大小和日变化规律非常相似, 但和在云杉林里观测的日变化过程有较大的不同(Mikkelsen 等, 2000).

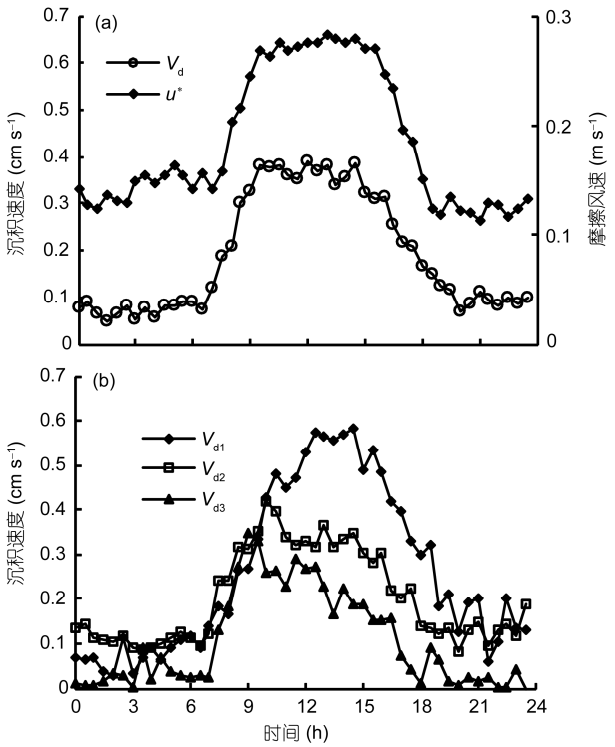

图 3 观测期间夏玉米冠层上 O_3 沉积速度和摩擦风速的平均日变化(a)和不同生长期 V_d 的日变化(b)

V_{d1}, V_{d2} 和 V_{d3} 分别是 8 月 9 日至 8 月 14 日、8 月 29 日至 9 月 7 日和 9 月 22 日至 9 月 27 日的平均值

许多研究表明不同下垫面的 V_d 存在很大的差异(Pederson 等, 1995; Padro 等, 1996; Wesely 和 Hicks, 2000; Rummel 等, 2007; Fowler 等, 2009). 一方面, 有无植被覆盖可以使得 V_d 产生数量级的差别, 例如, 在非生物表面(例如, 水体、雪面、土壤和沙漠等)上的 V_d 的数量级为 0.1 cm s^{-1} 或者更低, 这个数值远远低于有植被的表面的 V_d(Wesely 和 Hicks, 2000). 另一方面, 不同植被状况(如叶面积大小和气孔开闭状况、冠层结构和植物生理特性等)的平均 V_d 也有明显的不同. 一般情况下, 森林上方的 V_d 大于低矮植被(场地和农田等)的 V_d. Padro(1996)用涡度相关方法得到了葡萄园、棉花地、草地和森林白天的平均 V_d 分别为 0.5, 0.8, 0.2 和 1.0 cm s^{-1}, 夜间平均为 0.2 cm s^{-1}左右, 草地在枯死阶段或夜间 V_d 只有 0.05 cm s^{-1} 左右. 我们观测得到的 V_d 介于 Padro(1996)在草地和葡萄园观测的结果之间.

2.2.2 影响臭氧沉积速度的生物和气象因子

为了研究影响 V_d 的因子, 有必要介绍被广泛应用于近地层物质交换研究的阻抗模型及其与 V_d 的关系. O_3 沉积交换过程的总阻抗(R_t, s m^{-1})在数值上等于 V_d 的倒数, 它可以分解为空气动力学阻抗(R_a), 边界层阻抗(R_b)和冠层阻抗(R_c)之和. 而 R_c 又可简单的分解为气孔阻抗(R_{st})和非气孔阻抗(R_{ns})的并联关系(Baldocchi 等, 1987; Gerosa 等, 2003), 即

$$R_t = \left(\frac{1}{V_d}\right) = R_a + R_b + R_c = R_a + R_b + \frac{R_{st}R_{ns}}{R_{st}+R_{ns}}, \qquad (6)$$

式中, R_a 和 R_b 主要受大气湍流交换强度(如摩擦风速 u^*)和稳定度等的影响(Gerosa 等, 2003; Rummel 等, 2007). 而 R_c 受到生物和环境因素影响(Baldocchi 和 Meyers, 1998; Gerosa 等, 2007). 所以, V_d 会受到作物生长状况和环境条件等综合影响.

现以不同生长期 V_d 的日变化为例, 简单分析生

物因子对 V_d 的影响. 观测期间, 玉米处于从生长旺期到初步成熟的过程中. 我们分别选取 3 个连续时段(8 月 9 日至 14 日, 8 月 29 日至 9 月 7 日和 9 月 22 日至 27 日), 分别计算 V_d 的平均日变化并进行比较(图 3(b)). 从数值大小的角度看, 随着玉米的逐渐成熟, V_d 的数值呈现一个逐步减少的过程. 观测初期玉米处于生长旺期(V_{d1}), 中午前后的沉积速度可达 0.5~0.6 cm s^{-1}, 且持续时间较长. 而在后期玉米处于成熟阶段(V_{d3}), 最大的沉积速度只有 0.2~0.3 cm s^{-1}. 另外, 从日变化规律看, 最大值的出现的时间呈现越来越早的趋势. 后期的 V_d 在上午就达到最大值. 这种变化可能与玉米气孔导度状况有关系, 因为在玉米生长后期, 叶子衰老后气孔数量减少, 从而导致冠层气孔导度(阻抗的倒数)下降, 最终使得 V_d 下降.

辐射、气象和大气湍流交换强度等也影响 V_d 的日变化(Fowler 等, 2009). 为了消除不同生育期对 V_d 产生的影响, 我们选择连续几天(8 月 9~14 日)的资料, 简单分析了总辐射(Q)、温度(T)、相对湿度(RH)和 u^* 与 V_d 的相关关系(图 4). 通过比较, 我们发现 V_d 与 Q 和 RH 的相关关系比较明显, 其原因可能是 Q 和 RH 是影响气孔开闭(阻抗)的主要因子. 一方面, 辐射的增强导致作物叶温升高, 而作物为了降低自身温度,

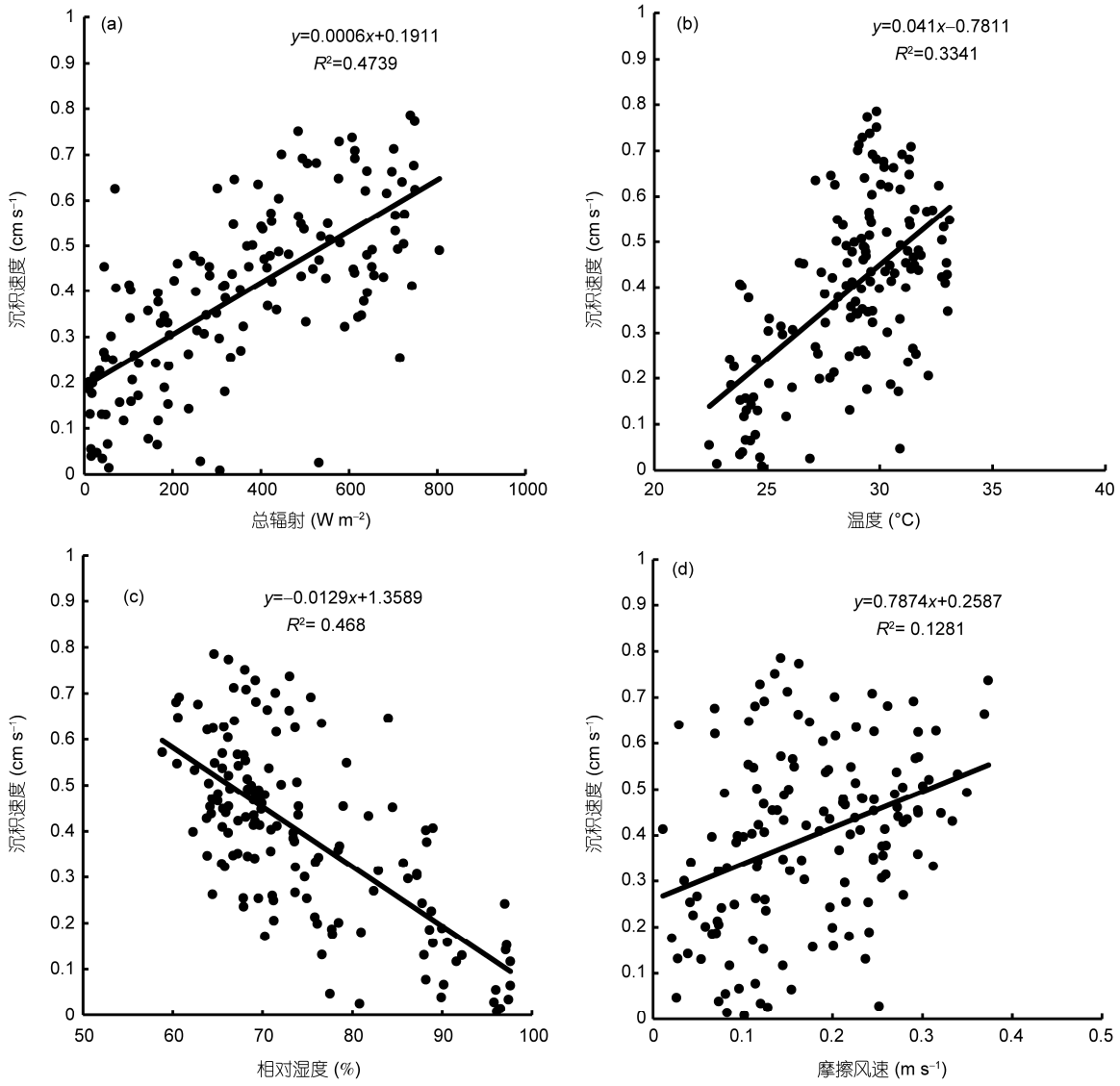

图 4　臭氧沉积速度与总辐射(a)、空气温度(b)、相对湿度(c)和摩擦风速(d)的相关关系

叶片上的气孔就会自动开启让水分向外扩散而降低温度, 从而形成作物蒸腾. 在气孔开启的同时, 其他气体(CO_2和O_3等)也通过气孔进入到植物体内, 作物在进行光合作用的同时, O_3 等污染气体也同时进入了气孔. 另一方面, 辐射增加也可使得大气的湍流交换增强, 有利于O_3的沉积. 所以, 辐射增强导致了V_d的增加.

另外, 相对湿度大(饱和差小)不利于植物的蒸腾, 使得气孔内外气体交换的阻力就会显著变大, 所以, 最终也导致了 V_d 降低. 气温受辐射影响但其日变化过程要比辐射滞后, V_d与温度间的相关关系较弱可能是与两者之间日变化规律不同步的原因有关. 虽然 V_d 和 u^*之间的日变化规律有一定的相似性(图 3(a)), 但两者之间的相关关系并不显著. 这可能也与两者之间的变化不同步有关.

2.3 臭氧通量的日变化及与其他通量的关系

2.3.1 臭氧通量的日变化特征

图 5(a)是观测期间 O_3 通量(F_o)的平均日变化图. 晚上, 由于 O_3 浓度和 V_d 的变化都很小且平稳, 所以导致夜间的 F_o 很小且平稳, 观测期间夜间 F_o 的平均值仅为–70.2 ng m^{-2} s^{-1}. 上午, 由于 V_d 的快速增强, 同时 O_3 浓度也不断升高, 导致 F_o 有一个比较快速的增加. 中午到下午前期, F_o 表现的还是相对平缓增加并一直平稳变化到16:00左右, 但 V_d 最大值的出现时间比 O_3 浓度最大值的出现时间要早一些. 在此过程中, 臭氧通量的变化主要依赖于 O_3 浓度的变化. 从16:00 后, 由于此时的 O_3 浓度开始快速降低, 所以导致 F_o 也开始迅速减少, 白天 F_o 的平均强度为–317.7 ng m^{-2} s^{-1}.

如上分析所述, 白天 O_3 沉积过程主要是和植物的气孔导度紧密联系的, 所以, 所有通过植物气孔的通量应该是互相有联系的. 图 5(b)是生长旺期(8 月 10 日)F_o 和 CO_2 湍流通量(F_c)的日变化情况. 可以看出, 两者之间的日变化过程存在较好的一致性, 也就是说, 当玉米气孔打开吸收 CO_2 而进行光合作用的同时, O_3 也会同时进入到气孔.

2.3.2 臭氧通量与其他通量之间的相关关系

观测期间玉米完全封垄, 所以, 用涡度相关系统测量的白天的 CO_2 湍流通量(F_c)和总蒸散量(LE)主要

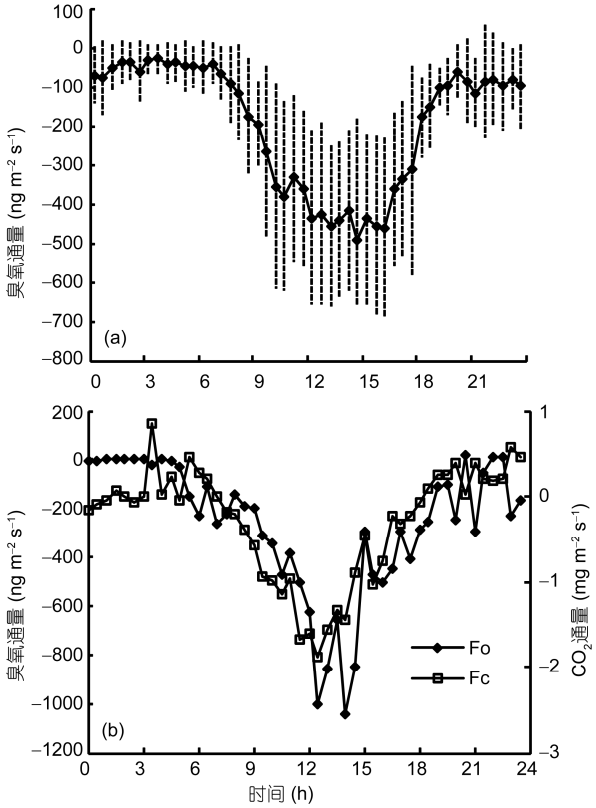

图5 观测期间夏玉米冠层上O_3通量的平均日变化(a)和生长旺期(8 月 10 日)O_3通量与 CO_2 通量的日变化(b)

垂直线上下端分别表示平均值±标准差

是作物气孔与大气间的气体交换结果. 用涡度相关法观测的 O_3 通量是生态系统总通量, 包含气孔吸收和非气孔吸收. 如果绝大部分 O_3 都是气孔吸收的话, 那么, 测量的 F_o 应该与 F_c 和 LE 存在很好的相关关系. 图 6 是白天时段 F_o 分别与 F_c 和 LE 的相关关系. 可以看出, 虽然 F_o 与 F_c 和 LE 的相关关系都比较好, 但仍然存在一定的离散. 表明 O_3 在沉积过程中, 虽然玉米叶片的气孔所吸收起主导作用, 但非气孔吸收(包括化学消解)对 O_3 通量也有一定的贡献.

虽然科学家认为植被的气孔吸收是评价 O_3 对植物伤害的最好指标, 然而目前还没有可以直接测量O_3气孔吸收的仪器. 所以, O_3的气孔吸收都是采用模型估算的(Pleijel 等, 2004; Uddling 等, 2004; Musselman 等, 2006; Gerosa 等, 2009; Mills 等, 2011). 例如: Gerosa 等(2004)在大麦地估算的气孔吸收比例约为 50%. 一些研究者还认为, 下垫面的非气孔吸收阻抗可以近似看着是一个常数, 而在典型的生态系统, 该比例的范围一般在 1/3~2/3(Fowler 等, 2009).

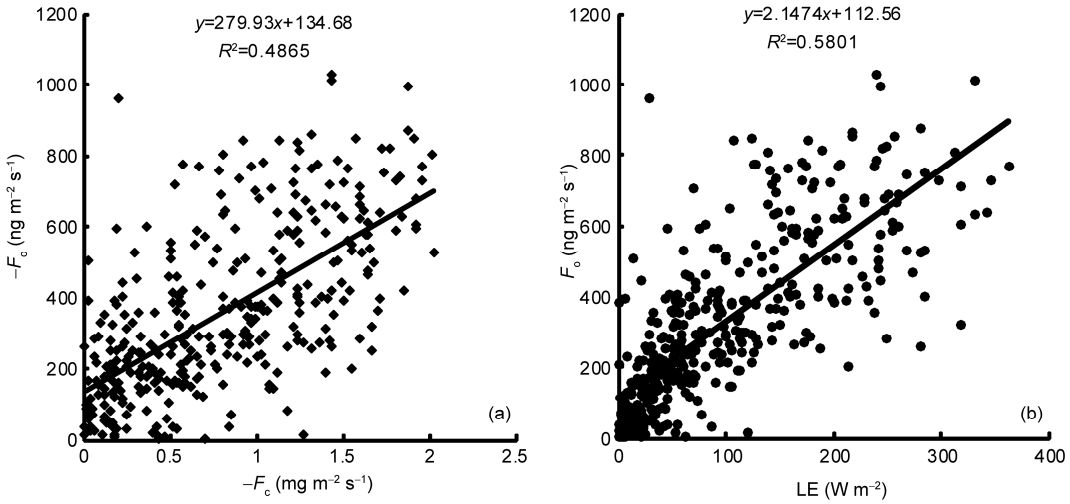

图 6　O_3 通量与 CO_2 通量(a)和潜热通量(b)之间的相关关系

在利用 F_c 分析生态系统光合总量和呼吸总量时, 通常认为晚上的 F_c 就是生态系统的呼吸量, 而白天的 F_c 则是生态系统的净交换(光合作用总量与呼吸作用平衡后的结果). 借用类似的关系, 我们可以简单假设夜间的 F_o 就等于 O_3 的非气孔吸收, 而白天的 F_o 则是气孔吸收和非气孔吸收之和. 通过比较白天和夜间 F_o 的差别, 我们可以得出初步结论, 气孔吸收是玉米地上方 O_3 消解的主要方式.

3　结论

利用先进的涡度相关技术, 首次在中国鲁西北平原夏玉米地上进行了 O_3 通量的观测. 通过计算和分析, 可以得出以下初步结论:

(1) 观测期间(2011 年 8 月 9 日至 9 月 28 日), 30 min 平均 O_3 浓度(下同)存在明显的日变化规律, 其最低值(16. 5 nL L^{-1})和最高值(60.1 nL L^{-1})的出现时间分别为 6:30 和 16:00 左右. 白天 O_3 浓度的平均值为(39.8±23.1) nL L^{-1}; 夜间为(20.7±14.1) nL L^{-1}, 瞬时 O_3 浓度的最大值为 97.5 nL L^{-1}. O_3 浓度变化与多种因素(包括前体)有关, 而太阳辐射强度是影响影响白天 O_3 浓度变化的最直接的因子.

(2) 无论白天还是夜间, 近地层 O_3 都是向下运动. 玉米地 V_d 日变化规律可分为 4 个阶段: 夜间(20:00~7:00)V_d 慢且平稳变化阶段, 上午(7:00~10:00)的快速上升阶段、中午前后(10:00~15:00)沉积较快而平稳变化阶段, 以及下午(15:00~20:00)的快速下降阶段. 白天和夜间的 V_d 平均值分别为 0.29 和 0.09 cm s^{-1}. 最大值为 0.81 cm s^{-1}. V_d 的逐日长期变化受作物生长期的影响, 而日变化受太阳辐射和相对湿度的影响最为显著.

(3) 观测期间, 白天和夜间 F_o 的平均值分别为 –317.7 和–70.2 ng m^{-2} s^{-1}. 白天的 F_o 与 F_c 和 LE 都存在比较显著的正相关关系, 表明玉米叶片的气孔所吸收起主导作用, 同时非气孔吸收对 O_3 的消解也起着一定的作用.

致谢　审稿专家对本文提出的宝贵修改建议, 德国马普化学所为本研究提供 O_3 快速反应探测仪以及中国科学院禹城综合试验站刘振民的现场观测和仪器维护工作, 在此一并致谢.

参考文献

安俊琳, 杭一纤, 朱彬, 等. 2010. 南京北郊大气臭氧浓度变化特征. 生态环境学报, 19: 1383–1386
邓雪娇, 周秀骥, 吴兑, 等. 2011. 珠江三角洲大气气溶胶对地面臭氧变化的影响. 中国科学: 地球科学, 41: 93–102
丁国安, 徐晓斌, 罗超, 等. 2001. 中国大气本底条件下不同地区地面臭氧特征. 气象学报, 59: 88–96
金赛花, 樊曙先, 王自发, 等. 2008. 青海瓦里关地面臭氧浓度的变化特征. 中国环境科学, 28: 198–202

梁晶, 曾青, 朱建国, 等. 2010. 植物对近地层高浓度臭氧响应的评价指标研究进展. 中国生态农业学报, 18: 440–445
刘洁, 张小玲, 张晓春, 等. 2006. 上甸子本底站地面臭氧变化特征及影响因素. 环境科学研究, 19: 19–25
任巍, 田汉勤. 2007. 臭氧污染与陆地生态系统生产力. 植物生态学报, 31: 219–230
唐文苑, 赵春生, 耿福海, 等. 2009. 上海地区臭氧周末效应研究. 中国科学 D 辑: 地球科学, 39: 99–105
王春乙, 白月明. 2007. 臭氧和气溶胶浓度变化对农作物的影响研究. 北京: 气象出版社
许宏, 杨景成, 陈圣宾, 等. 2007. 植物的臭氧污染胁迫效应研究进展. 植物生态学报, 31: 1205–1213
姚芳芳, 王效科, 陈展, 等. 2008. 农田冬小麦生长和产量对臭氧动态暴露的响应. 植物生态学报, 32: 212–219
于贵瑞, 伏玉玲, 孙晓敏, 等. 2006. 中国陆地生态系统通量观测研究网络(ChinaFLUX)的研究进展及其发展思路. 中国科学 D 辑: 地球科学, 36(增刊Ⅰ): 1–21
于贵瑞, 孙晓敏. 2006. 陆地生态系统通量观测的原理和方法. 北京: 高等教育出版社
郑飞翔, 王效科, 侯培强, 等. 2011. 臭氧胁迫对水稻生长以及 C、N、S 元素分配的影响. 生态学报, 31: 1479–1486
郑有飞, 胡程达, 吴荣军, 等. 2010. 地表臭氧浓度增加对冬小麦光合作用的影响. 生态学报, 30: 847–855
朱治林, 孙晓敏, 赵风华, 等. 2012. 鲁西北平原冬小麦田臭氧浓度变化特征及对产量的潜在影响和机理分析. 植物生态学报, 36: 313–323
Avnery S, Mauzerall D L, Liu J F, et al. 2011. Global crop yield reductions due to surface ozone exposure: 1. Year 2000 crop production losses and economic damage. Atmos Environ, 45: 2284–2296
Baldocchi D, Hicks B, Camara P. 1987. A canopy stomatal resistance model for gaseous deposition to vegetated surfaces. Atmos Environ, 21: 91–101
Baldocchi D, Meyers T. 1998. On using eco-physiological, micrometeorological and biogeochemical theory to evaluate carbon dioxide, water vapor and trace gas fluxes over vegetation: A perspective. Agric For Meteorol, 90: 1–25
Crutzen P J, Lawrence M G, Poschel U, 1999. On the background photochemistry of tropospheric ozone. Tellus, 51: 123–146
Coyle M, Nemitz E, Storeton W R, et al. 2009. Measurements of ozone deposition to a potato canopy. Agric For Meteorol, 149: 655–666
Duenas C, Fernandez M C, Canete S, et al. 2002. Assessment of ozone variations and meteorological effects in an urban area in the Mediterranean Coast. Sci Total Environ, 299: 97–113
Feng Z W, Jin M H, Zhang F Z, et al. 2003. Effects of ground-level ozone O_3 pollution on the yields of rice and winter wheat in the Yangtze River Delta. J Environ Sci, 15: 360–362
Fowler D, Pilegaard K, Sutton M A, et al. 2009. Atmospheric composition change: Ecosystems-Atmosphere interactions. Atmos Environ, 43: 5193–5267
Fuhrer J, Skarby L, Ashmore M R. 1997. Critical levels for ozone effects on vegetation in Europe. Environ Pollut, 97: 91–106
Gerosa G, Cieslik S, Ballarin D A. 2003. Micrometeorological determination of time-integrated stomatal ozone fluxes over wheat: A case study in Northern Italy. Atmos Environ, 37: 777–788
Gerosa G, Marzuoli R, Cieslik S, et al. 2004. Stomatal ozone fluxes over a barley field in Italy. “Effective exposure” as a possible link between exposure-and flux-based approaches. Atmos Environ, 38: 2421–2432
Gerosa G, Derghi F, Cieslik S. 2007. Comparison of different algorithms for stomatal ozone flux determination from micrometeorological measurements. Water Air Soil Pollut, 179: 309–321
Gerosa G, Marzuoli R, Rossini M, et al. 2009. A flux-based assessment of the effects of ozone on foliar injury, photosynthesis and yield of bean (Phaseolus vulgaris L. cv. Borlotto Nano Lingua di Fuoco) in open-top chambers. Environ Pollut, 157: 1727–1736
Jaffe D, Ray J. 2007. Increase in surface ozone at rural sites in the western US. Atmos Environ, 41: 5452–5463
Krzyscin J, Krizan P, Jarosławski J, et al. 2007. Long-term changes in the tropospheric column ozone from the ozone soundings over Europe. Atmos Environ, 41: 606–616
Lamaud E, Loubet B, Irvine M, et al. 2009. Partitioning of ozone deposition over a developed corn crop between stomatal and non-stomatal uptakes using eddy-covariance flux measurements and modelling. Agric For Meteorol, 149: 1385–1396
Lee X, Massman W, Law B. 2004. Handbook of Micrometeorology—A Guide for Surface Flux Measurement and Analysis. Dordrecht: Kluwer Academic Publishers
Mikkelsen T N, Ro-Poulsen H, Pilegaard K, et al. 2000. Ozone uptake by an evergreen forest canopy: Temporal variation and possible mechanisms. Environ Pollut, 109: 423–429
Mills G, Buse A, Gimeno B, et al. 2007. A synthesis of AOT40-based response functions and critical levels of ozone for agricultural and horticultural crops. Atmos Environ, 41: 2630–2643
Mills G, Pleijel H, Braun S, et al. 2011. New stomatal flux-based critical levels for ozone effects on vegetation. Atmos Environ, 45: 5064–5068

Muller J B, Percival C J, Gallagher M W, et al. 2010. Sources of uncertainty in eddy covariance ozone flux measurements made by dry chemiluminescence fast response analysers. Atmos Meas Tech, 3: 163–176

Musselman R C, Lefohn A S, Massman W J, et al. 2006. A critical review and analysis of the use of exposure-and flux-based ozone indices for predicting vegetation effects. Atmos Environ, 40: 1869–1888

Padro J. 1996. Summary of ozone dry deposition velocity measurements and model estimates over vineyard, cotton, grass and deciduous forest in summer. Atmos Environ, 30: 2363–2369

Pederson J R, Massman W J, Mahrt L, et al. 1995. California ozone deposition experiment-Methods, results and Opportunities. Atmos Environ, 29: 3115–3132

Pleijel H, Danielssona H, Ojanper K. 2004. Relationships between ozone exposure and yield loss in European wheat and potato—A comparison of concentration- and flux-based exposure indices. Atmos Environ, 38: 2259–2269

Rummel U, Ammann1 C, Kirkman1 G A, et al. 2007. Seasonal variation of ozone deposition to a tropical rain forest in southwest Amazonia. Atmos Chem Phys, 7: 5415–5435

Sorimachi A, Sakamoto K, Ishihara H, et al. 2003. Measurements of sulfur dioxide and ozone dry deposition over short vegetation in northern China—A preliminary study. Atmos Environ, 37: 3157–3166

Tong L, Wang X K, Geng C M, et al. 2011. Diurnal and phenological variations of O_3 and CO_2 fluxes of rice canopy exposed to different O_3 concentrations. Atmos Environ, 45: 5621–5631

Uddling J, Gunthardt M S, Matyssek R. 2004. Biomass reduction of juvenile birch is more strongly related to stomatal uptake of ozone than to indices based on external exposure. Atmos Environ, 38: 4709–4719

Vingarzan R. 2004. A review of surface ozone background levels and trends. Atmos Environ, 38: 3431–3442

Wesely M L, Hicks B B. 2000. A review of the current status of knowledge on dry deposition. Atmos Environ, 34: 2261–2282

Xu X, Lin W, Wang T, et al. 2008. Long-term trend of surface ozone at a regional background station in eastern China 1991–2006: Enhanced variability. Atmos Chem Phys, 8: 2595–2607

Zahn A, Weppner J, Widmann H, et al. 2012. A fast and precise chemiluminescence ozone detector for eddy flux and airborne application. Atmos Meas Tech, 5: 363–375