

DOI:10.7524/j.issn.0254-6108.2020032803

马儒龙, 王章玮, 张晓山. 城市绿化林中大气氨浓度垂直分布观测[J]. 环境化学, 2021, 40(7): 2028-2034.

MA Rulong, WANG Zhangwei, ZHANG Xiaoshan. Observation on the vertical distribution of atmospheric ammonia in urban green vegetation canopy[J]. Environmental Chemistry, 2021, 40 (7): 2028-2034.

城市绿化林中大气氨浓度垂直分布观测*

马儒龙^{1,2} 王章玮^{1,2}** 张晓山^{1,2}

(1. 中国科学院生态环境研究中心城市与区域生态国家重点实验室, 北京, 100085; 2. 中国科学院大学, 北京, 100049)

摘要 城市绿化植被与大气存在氨气(NH₃)交换,但冠层内部NH₃源汇关系不清.本研究基于典型城市绿化植被系统测量了植被冠层内不同高度及自由大气中NH₃浓度梯度,并同步获得冠层下绿化植物物质外体氨补偿点(χ_s).结果表明,观测期间NH₃浓度日变化明显,不同高度NH₃浓度均为白天高于夜间,白天、夜间NH₃整体平均浓度分别为(12.5±3.35) μg·m⁻³和(11.9±2.76) μg·m⁻³.冠层内NH₃浓度随高度增加降低,单位高度(m)降低量与所在高度植被密度有关.对植被补偿点的观测表明植物对NH₃主要起到吸收作用,与城市空旷地区NH₃浓度梯度相比,植被NH₃吸收作用大于NH₃干沉降作用对冠层NH₃浓度梯度的影响;与农作物冠层内NH₃浓度梯度相比,城市较为分散的植被分布导致绿化植被冠层内气体混合相对均匀,其NH₃浓度梯度相对农作物冠层差异不明显.本研究为今后进一步深入研究城市绿化植被对大气NH₃的调节以及空气质量影响提供基础数据.

关键词 城市绿化植被,冠层,氨气,垂直分布.

Observation on the vertical distribution of atmospheric ammonia in urban green vegetation canopy

MA Rulong^{1,2} WANG Zhangwei^{1,2}** ZHANG Xiaoshan^{1,2}

(1. State Key Laboratory of Urban and Regional Ecology, Research Center for Eco-Environmental Sciences, Chinese Academy of Sciences, Beijing, 100085, China; 2. University of Chinese Academy of Science, Beijing, 100049, China)

Abstract There is an exchange of ammonia (NH₃) between urban green vegetation and atmosphere, but the relationship of source and sink of NH₃ in the canopy is unclear. Based on the typical urban green vegetation system, the NH₃ concentration gradients in the canopy and free atmosphere were measured, and the ammonia compensation points (χ_s) of vegetation on the ground were obtained at the same time. Results showed that the diurnal variation of NH₃ was distinct during the observation period, and the average concentration of NH₃ was (12.5±3.35) μg·m⁻³ in the daytime, which was higher than those in night ((11.9±2.76) μg·m⁻³). The concentration of NH₃ in the canopy decreased with the increase of height, and the reduction of unit height (m) was related to the density of vegetation at that layer. The calculation of χ_s showed that NH₃ was absorbed by the plants. Comparing the discrepancy of NH₃ concentration gradient between vegetation covered area and the area without vegetation in urban, we found that the effect of vegetation absorption on NH₃ concentration gradient was greater than NH₃ dry deposition in canopy. Compared with the

2020年3月28日收稿(Received: March 28, 2020).

* 国家重点研发计划项目(2017YFC0210106)资助.

Supported by National Key R&D Program (2017YFC0210106) of China.

** 通讯联系人 Corresponding author, E-mail: wangzhw@rcees.ac.cn

concentration gradient of NH_3 in crop canopy, the gas mixing in-canopy of urban vegetation was more sufficient with the relatively scattered vegetation distribution, and caused the gradient of ammonia in the canopy vegetation was not obvious.

Keywords urban green vegetation, canopy, ammonia, vertical distribution.

氨(NH_3)是大气环境中一种重要的活性氮,对生态环境有着重要影响; NH_3 与气态硫酸(H_2SO_4)反应会生成硫酸铵($(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$)或硫酸氢铵(NH_4HSO_4)气溶胶,与气态硝酸(HNO_3)反应会生成硝酸铵(NH_4NO_3)气溶胶,这些气溶胶是大气细颗粒物($\text{PM}_{2.5}$)的重要组成成分^[1].高浓度的 $\text{PM}_{2.5}$ 是产生雾霾的主要因素,影响大气能见度及大气辐射强迫,引发一系列环境效应,对人体健康产生不利影响^[2-3]. NH_3 通过干湿沉降进入地面或水体中,会导致土壤酸化及水体富营养化,对生态环境产生影响^[4-5].

植被冠层可作为大气 NH_3 的源或汇,交换方向和大小受冠层内及大气中 NH_3 浓度梯度影响^[6-7],植被冠层 NH_3 交换受到土壤、叶片表皮、叶片气孔等影响:叶片气孔与大气中 NH_3 交换是双向的,叶片表皮则通常为 NH_3 的汇^[8-11].近年来,对农业系统植被冠层-大气 NH_3 交换以及冠层内 NH_3 浓度梯度已开展了大量观测研究^[12-13],且根据 NH_3 在植被-大气中双向交换的特点和规律建立了双向交换概念模型并进行了参数化处理^[8],并广泛用于农田和森林系统土壤-植被-大气 NH_3 交换的模拟和预测^[11,14-15].城市绿化植被作为城市的重要组成部分,被认为是主要的城市净化系统,其冠层与大气也存在 NH_3 的交换.但目前对城市绿化植被 NH_3 变化观测基础数据十分缺乏,城市绿化植被与大气 NH_3 交换过程尚不明确,冠层内部 NH_3 浓度梯度及源汇关系不清.

本研究基于典型城市绿化植被系统测量了植被冠层内部及冠层上方自由大气中 NH_3 浓度梯度,并同步获得冠层下绿化植被质外体氨补偿点(χ_s),为今后进一步深入研究城市绿化植被对大气 NH_3 的调节以及空气质量影响提供基础数据.

1 实验部分 (Experimental section)

1.1 实验设计

选取北京市典型绿化植被(中国科学院生态环境研究中心院内($40^\circ00'28''\text{N}$, $116^\circ20'15''\text{E}$))于2019年9月23日—2019年9月30日开展观测研究.实验地区东面临近学清路,西面临近双清路,附近具有较大车流量,周围无明显工业点源排放干扰,试验区绿化植被无施肥现象.该观测点被浓密杂草丛(0 m)覆盖,1—3 m高度处有低矮灌木丛,高度6—10 m处为高大乔木冠层(如图1).根据绿化植被冠层结构,使用15 m高采样架安放采样头,在0、1、3、6、9、15 m高度处开展 NH_3 浓度和大气 $\text{PM}_{2.5}$ 观测,记录温度变化.期间同步测定站点及周边绿化植被质外体 NH_4^+ 浓度与pH值的日变化,计算获 χ_s 日变化.

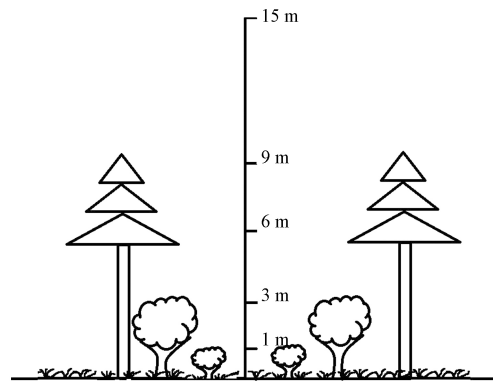


图1 观测绿化植被示意图与采样高度分布

Fig.1 Schematic diagram of green vegetation layer and sampling height

1.2 样品采集与测定

利用便携式 NH₃ 分析仪 (LGR, 美国) 和多通道转换器 (LGR, 美国) 测定不同高度处 NH₃ 浓度, NH₃ 分析仪响应频率为每次 50 s, 每个通道连续观测 200 s 后自动切换下一通道, 20 min 循环一周, 为避免通道切换时光腔氨气残留对结果影响, 数据处理时删除通道切换后的第一个数据. 观测期间使用 15 m 长 Teflon 管道连接采样头与多通道, 管内保持干燥以降低管路 NH₃ 损失, 采样气体流量为 1.5 L·h⁻¹, 并用 0.5 mm Teflon 滤膜过滤大气颗粒物以免干扰测定. 定期使用 7.60 μg·m⁻³ NH₃ 标准气体 (齐云生物技术有限公司) 标定仪器以确保测量数据可靠性.

选取观测站点及周边绿化植物早熟禾、玉簪、连翘、北京丁香、一串红、黄鹤菜等, 按照 Husted 等方法^[16] 测定质外体 NH₄⁺ 浓度及 pH 值, 测定时间依次为 9 月 23 日、9 月 24 日、9 月 25 日、9 月 26 日、9 月 27 日、9 月 28 日. 随机剪取 15 片发育良好的植被叶片立即放置于去离子水中保存, 每种处理 3 个重复. 使用 Li-6400 便携式光合仪测定叶片温度. 样品采集后 30 min 内完成质外体 NH₄⁺ 浓度及 pH 值测定, 同时测量苹果酸脱氢酶 (MDH) 以检测细胞质污染^[16]. 使用 ICS-1100 (DINOX) 离子色谱测量质外体 NH₄⁺ 浓度, STARA2110 微量 pH 计测量质外体 pH 值.

1.3 城市绿化植被氨补偿点计算

绿化植被氨排放潜势与氨补偿点计算参照 Massad 等^[8] 方法:

$$\Gamma_s = [\text{NH}_4^+]/[\text{H}^+] \quad (1)$$

其中, [NH₄⁺] 为质外体 NH₄⁺ 浓度, [H⁺] 为质外体 H⁺ 浓度.

$$\chi_s = \frac{161500}{T} \times e^{-\frac{10380}{T}} \times \Gamma_s \quad (2)$$

式中, T 为叶片温度, K.

1.4 气象资料与 PM_{2.5} 数据

PM_{2.5} 数据选取中国科学院气象站奥森公园站点 PM_{2.5} 数据, 记录每小时平均值, 奥森公园采样点距实验区域 5.1 km, 附近绿化植被较多, 无明显工业源. 温度数据下载于 wunderground 网站 (www.wunderground.com), 每 3 小时记录 1 次温度数据.

2 结果与讨论 (Results and discussion)

2.1 大气 NH₃ 浓度日变化

观测期间 PM_{2.5} 浓度及各层 NH₃ 浓度日变化见图 2(b, c), 平均日变化见图 3. 由图 3 可知, NH₃ 浓度与 PM_{2.5} 浓度变化趋势基本相同, 在凌晨 04:00 至下午 13:00 具有较高浓度, 随后缓慢降低, 下午 18:00 附近达到最低值. NH₃ 浓度在 10:00 左右达到最高值, 可能受到露水蒸发的影响: 观测期间草地露水较多, 有研究表明露水既是夜间 NH₃ 的重要汇, 也是白天 NH₃ 的重要源, 随温度升高露水蒸发, 大气 NH₃ 浓度上升^[17-18]. 不同层大气 NH₃ 浓度与 PM_{2.5} 浓度均有明显线性正相关关系 ($R^2=0.88-0.90$), 这是由于绿化植被冠层较为分散, 冠层内 NH₃ 与自由大气交换密切, 受大气环境条件影响较大, 对 PM_{2.5} 的响应关系与自由大气中 NH₃ 相似^[19].

观测期间 PM_{2.5} 浓度与各层 NH₃ 浓度均表现为白天大于夜晚, 白天、夜间 PM_{2.5} 平均浓度分别为 (43.8±28.8) μg·m⁻³、(41.6±23.1) μg·m⁻³, 这主要是由于白天车流量较大, 汽车尾气排放产生大量一次污染物, 在光照条件下极易生成二次颗粒物, PM_{2.5} 浓度较高; NH₃ 平均浓度分别为 (12.5±3.35) μg·m⁻³、(11.9±2.76) μg·m⁻³, 这与 Walker 等^[20] 对 Kinston 点位 (美国) 的研究结果类似: 北京与 Kinston 点位 NH₃ 排放较低, 白天较高的温度会促进植被凋落物及其他 NH₃ 源的排放, 造成 NH₃ 累积^[21], 晚间温度降低及人为活动减少导致 NH₃ 浓度下降. 除温度外, 冠层内及自由大气 NH₃ 浓度还与风向有关, 当盛行北风时各观测高度 NH₃ 浓度上升, 盛行南风时 NH₃ 浓度下降 (图 2(a)), 这主要是由于观测点距北部农业区域相对较近, 作物大量施肥增加环境空气 NH₃ 的浓度^[22-23]. 与本研究相反, Wei 等^[19] 对北京春季 NH₃ 浓度的日变化观测及 Walker 等^[20] 对 Clinton 站点的观测呈现 NH₃ 浓度夜间高白天低的现象,

这可能是由于夜间风速较低及逆温层形成导致污染物堆积,使夜间具有较高 NH_3 浓度^[24]. 总之,城市绿化植被冠层内 NH_3 日变化明显且影响因素复杂,有待进一步系统观测研究.

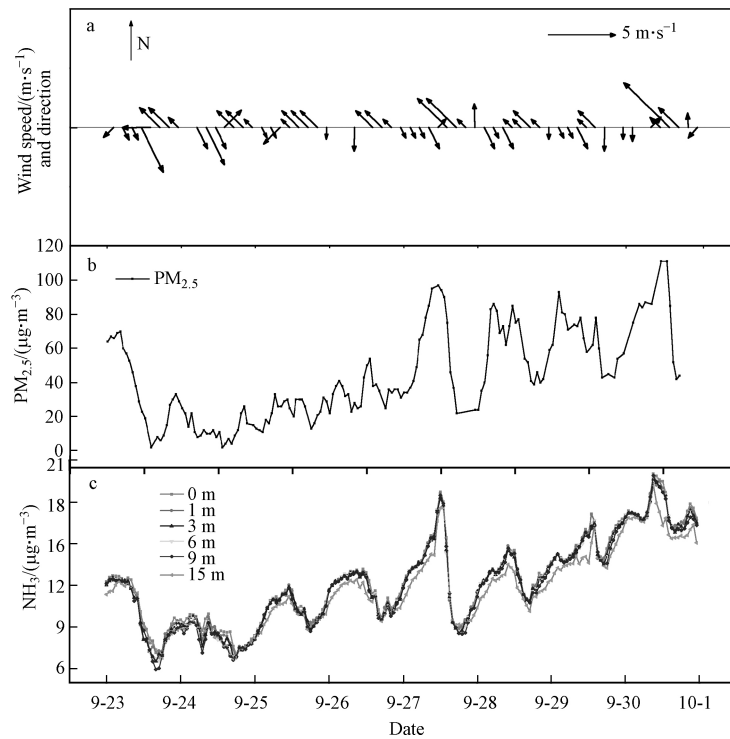


图 2 风速、风向变化(a)、 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度(b)及不同高度处 NH_3 浓度(c)($\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$) 日变化曲线

Fig.2 Daily variation of wind speed and direction (a), $\text{PM}_{2.5}$ (b) and NH_3 concentration (c) ($\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$) of different height

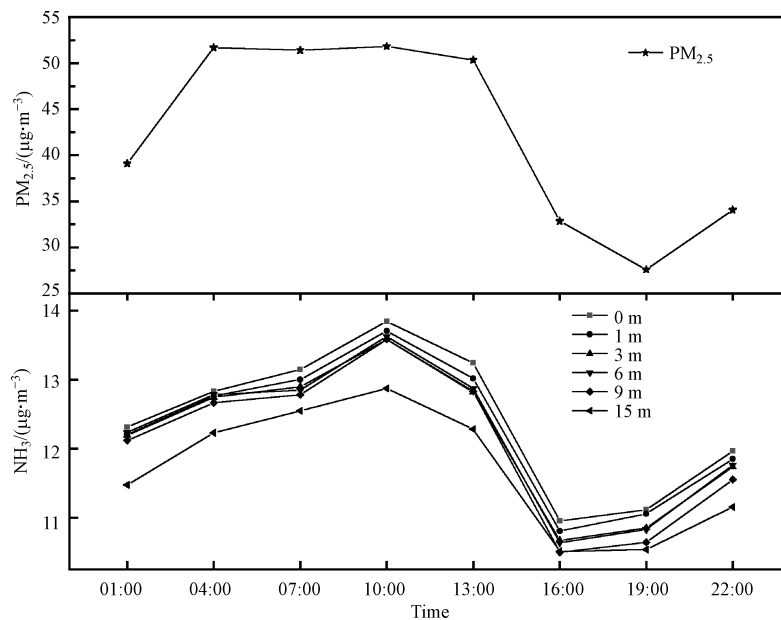


图 3 平均 NH_3 浓度与 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度 ($\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$) 日变化

Fig.3 Daily variation of mean NH_3 concentration ($\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$) and $\text{PM}_{2.5}$ concentration

2.2 不同高度处 NH_3 浓度变化

图 4 为观测期间白天及夜晚不同高度处 NH_3 平均浓度及变化. 白天夜间冠层内 NH_3 浓度梯度变化相似, 均随高度增加降低. 白天 0 m 处与 15 m 处 NH_3 浓度相差 $0.77 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, 每米平均降低浓度为 $0.05 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$; 夜间 0 m 与 15 m 处 NH_3 浓度相差 $0.69 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, 每米平均降低浓度为 $0.05 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, 这表明冠层内地面及凋落物是 NH_3 的主要排放源, 冠层植被起到对 NH_3 的吸收作用(见 2.3 节). 对比不同层

NH₃ 的单位高度(1 m)浓度差发现,0—1、1—3、3—6、6—9、9—15 m 高度处单位高度 NH₃ 浓度差分别为 0.13、0.06、0、0.04、0.07 μg·m⁻³, 在冠层内部, 单位高度浓度差大小主要受到植被密集程度影响: 靠近地面处植被较为密集, 对氨气的吸收作用及对气流阻碍作用较强导致气体混合不均匀, NH₃ 浓度差异较大; 在 9—15 m 无植被处, 大气的自由扩散影响氨气浓度。

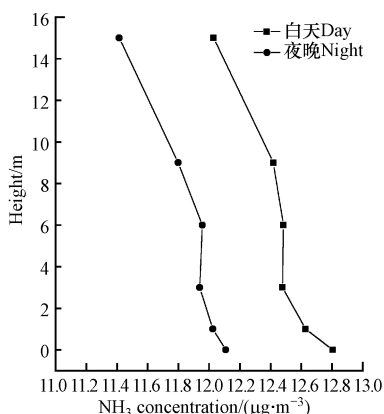


图 4 观测期间白天、夜间不同高度处平均 NH₃ 浓度 (μg·m⁻³) 及变化

Fig.4 Concentration (μg·m⁻³) variation of NH₃ at different heights in daytime and nighttime

进一步对比不同植被冠层近地层 NH₃ 的梯度分布(见表 1)发现, 无论是城市绿化植被还是农作物, NH₃ 的浓度都随离地高度的增加而减少, 但减少幅度差异明显. 与农作物相比, 城市绿化植被近地层 NH₃ 浓度垂直分布相对均匀, 梯度变化较小, 这与城市 NH₃ 背景浓度相对较低有关, 同时城市湍流作用及较为分散的绿化植被分布也有助于气体混合. 北京市空旷地无植被处近地层 NH₃ 呈现由低到高逐渐升高的现象, 在 10—20 m 高度处达到峰值, 这可能是由于在非植被覆盖区域, 氨气浓度主要受到高度较高的工业源影响, 在 10—20 m 处出现氨气最大值^[24,27]. 与城市空旷地近地层 NH₃ 浓度梯度相比, 在微风条件下, 绿化植被冠层内植被对 NH₃ 的吸收作用控制 NH₃ 的浓度梯度: 植被越密集, 梯度越明显. 总体来说, 当存在植被冠层时, 近地面 NH₃ 浓度随高度逐渐降低, 反之则随高度升高, 变化量与大气背景 NH₃ 浓度及冠层植被分布情况有关。

表 1 本研究与其他 NH₃ 垂直浓度 (μg·m⁻³) 梯度观测研究对比

Table 1 Overview of measured vertical NH₃ concentrations (μg·m⁻³) in previous studies and in this study

	空旷地(农村) Open area (Rural)	玉米 Corn	甘蔗 Sugar cane	空旷地(北京) Open area (Beijing)	空旷地(北京) Open area (Beijing)	绿植覆盖(北京) Open area (Beijing)
0 m	—	8.8	173.3	—	—	12.4
1 m	6.8(1 m)	3.1	78.3	—	—	12.3
1—5 m	11.5(4 m)	—	61.8(2 m)	—	12.5	12.2(3 m)
5—10 m	—	—	—	7.9	13.4	12.1
10—20 m	9.6	—	—	15.8	13.8	11.7(15 m)
日期 (Data)	2014.07	2005	2017.07	2019.02	2016.03—2017.03	2019.09
参考文献	[25]	[12]	[13]	[26]	[27]	本研究

2.3 近地面绿化植被氨气补偿点(χ_s)日变化

为探究近地面较高的 NH₃ 浓度是否与植被排放有关, 观测期间测量了冠层下早熟禾、玉簪、连翘、北京丁香、一串红、黄鹌菜等近地面植物 χ_s 日变化, 结果见图 5. 早熟禾、玉簪、连翘、北京丁香、一串红、黄鹌菜 χ_s 变化范围分别为 0.05—0.27、0.03—0.15、0.02—0.12、0.03—0.17、0.10—0.61、0.02—0.08 μg·m⁻³, 除连翘外, 均呈现出先增加后降低的趋势, 所有植物最高 χ_s 值出现在 13:30. 与大气 NH₃ 浓度(图 2)比较, 各植物 χ_s 值远低于大气 NH₃ 浓度, 表明城市中绿化植被除叶片表面吸附 NH₃ 外^[8], 其气孔也是大气 NH₃ 的重要汇。

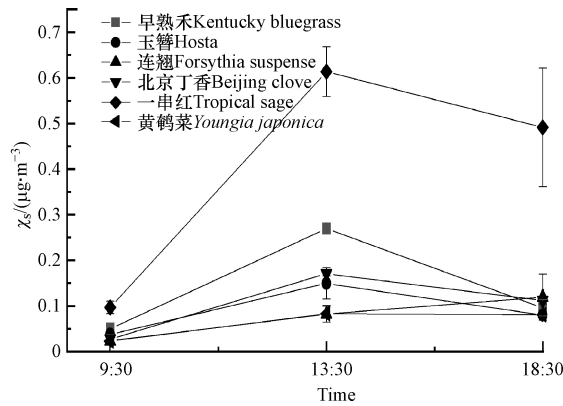


图 5 冠层内六种绿化植物 χ_s 日变化

Fig.5 Diurnal variations of χ_s of six vegetation in experimental green vegetation canopy

绿化植被由于缺少施肥处理,其 χ_s 远低于农作物. Massad 等^[28]在对油菜的研究中发现,在 $5 \text{ mmol}\cdot\text{L}^{-1} \text{ NH}_4^+$ 培养液下培养油菜,其氨补偿点可达到 $7.74 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$; Walker 等^[29]也发现施用家禽粪便后,大豆氨补偿点可达到 $15.17 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$. 这表明除肥料本身造成 NH_3 土壤挥发外,也通过改变植物补偿点增加 NH_3 排放,城市绿化近地面植被由于未经施肥处理,对 NH_3 主要起到吸收作用,即 0 m 处较高的 NH_3 浓度与植被叶片无关,可能受到植被凋落物排放影响^[30].

3 结论 (Conclusion)

试验期间城市绿化植被冠层内 NH_3 浓度日变化明显,受温度及气流影响,白天浓度略高于夜间;无论是白天还是夜间城市绿化植被冠层下 NH_3 浓度均随高度增加而降低,但明显小于农作物冠层内单位高度 (m) NH_3 浓度变化量;与城市空旷地相比,绿化植被覆盖处植被冠层对 NH_3 的吸收作用主导 NH_3 浓度变化,两者 NH_3 浓度梯度变化规律相反. 在冠层内,由于冠层对气流的阻碍作用及植被对氨气吸收作用导致不同层单位高度 (m) NH_3 浓度变化不同,由低到高变化量逐渐减少. 此外,冠层下绿化植被 χ_s 日变化呈现先增加后降低趋势,于下午 13:30 附近达到峰值, χ_s 值远低于大气 NH_3 浓度,对大气 NH_3 起到吸收作用,气孔也是冠层内 NH_3 的重要汇. 植被冠层对 NH_3 的影响可能与冠层内风速廓线、温度、植被 NH_3 交换等因素有关,区分这些因素的各自贡献需要进一步研究.

参考文献 (References)

- [1] CHANG S C, CHOU C C K, CHAN C C, et al. Temporal characteristics from continuous measurements of $\text{PM}_{2.5}$ and speciation at the Taipei Aerosol Supersite from 2002 to 2008 [J]. *Atmospheric Environment*, 2010, 44(8): 1088-1096.
- [2] ADAMS P J, SEINFELD J H, KOCH D, et al. General circulation model assessment of direct radiative forcing by the sulfate-nitrate-ammonium-water inorganic aerosol system [J]. *Journal of Geophysical Research-Atmospheres*, 2001, 106(D1): 1097-1111.
- [3] RAMANATHAN V, RAMANA M V, ROBERTS G, et al. Warming trends in Asia amplified by brown cloud solar absorption [J]. *Nature*, 2007, 448(7153): 575-U5.
- [4] OSBURN C L, HANDSEL L T, PEIERLS B L, et al. Predicting sources of dissolved organic nitrogen to an estuary from an agro-urban coastal watershed [J]. *Environmental Science & Technology*, 2016, 50(16): 8473-8484.
- [5] WANG L, PADES P, ERIKSSON D, et al. Elevated atmospheric CO_2 decreases the ammonia compensation point of barley plants [J]. *Journal of Experimental Botany*, 2013, 64(10): 2713-2724.
- [6] 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.
- [7] SCHJOERRING J K, KYLLINGSBEAK A, MORTERSEN J V, et al. Field investigations of ammonia exchange between barley plants and the atmosphere. 1. Concentration profiles and flux densities of ammonia [J]. *Plant Cell and Environment*, 1993, 16(2): 161-167.
- [8] MASSAD R S, NEMITZ E, SUTTON M A. Review and parameterisation of bi-directional ammonia exchange between vegetation and the atmosphere [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2010, 10(21): 10359-10386.
- [9] NEMITZ E, SUTTON M A, GUT A, et al. Sources and sinks of ammonia within an oilseed rape canopy [J]. *Agricultural and Forest Meteorology*, 2000, 105(4): 385-404.

- [10] NEMITZ E, SUTTON M A, SCHJOERRING J K, et al. Resistance modelling of ammonia exchange over oilseed rape [J]. *Agricultural and Forest Meteorology*, 2000, 105(4): 405-425.
- [11] HANSEN K, PERSONNE E, SKJOTH C A, et al. Investigating sources of measured forest-atmosphere ammonia fluxes using two-layer bi-directional modelling [J]. *Agricultural and Forest Meteorology*, 2017, 237: 80-94.
- [12] BASH J O, WALKER J T, KATUL G G, et al. Estimation of in-canopy ammonia sources and sinks in a fertilized zea mays field [J]. *Environmental Science & Technology*, 2010, 44(5): 1683-1689.
- [13] DENMEAD O T, FRENEY J R, DUNIN F X. Gas exchange between plant canopies and the atmosphere: Case-studies for ammonia [J]. *Atmospheric Environment*, 2008, 42(14): 3394-3406.
- [14] HANSEN K, SORENSEN L L, HERTEL O, et al. Ammonia emissions from deciduous forest after leaf fall [J]. *Biogeosciences*, 2013, 10(7): 4577-4589.
- [15] BUTLER T, MARINO R, SCHWEDE D, et al. Atmospheric ammonia measurements at low concentration sites in the northeastern USA: implications for total nitrogen deposition and comparison with CMAQ estimates [J]. *Biogeochemistry*, 2015, 122(2-3): 191-210.
- [16] HUSTED S, SCHJOERRING J K. Apoplastic pH and ammonium concentration in leaves of brassica-napus [J]. *Plant Physiology*, 1995, 109(4): 1453-1460.
- [17] WENTWORTH G R, MURPHY J G, BENEDICT K B, et al. The role of dew as a night-time reservoir and morning source for atmospheric ammonia [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2016, 16(11): 7435-7449.
- [18] TENG X L, HU Q J, ZHANG L M, et al. Identification of major sources of atmospheric NH₃ in an urban environment in northern China during wintertime [J]. *Environmental Science & Technology*, 2017, 51(12): 6839-6848.
- [19] WEI L F, DUAN J C, TAN J H, et al. Gas-to-particle conversion of atmospheric ammonia and sampling artifacts of ammonium in spring of Beijing [J]. *Science China Earth Sciences*, 2014, 58(3): 345-355.
- [20] WALKER J T, WHITALL D R, ROBARGE W, et al. Ambient ammonia and ammonium aerosol across a region of variable ammonia emission density [J]. *Atmospheric Environment*, 2004, 38(9): 1235-1246.
- [21] LANFORD A, FEHSENFELD F, ZACHARIASSEN J, et al. Gaseous ammonia fluxes and background concentrations in terrestrial ecosystems of the United States [J]. *Global Biogeochemical Cycles*, 1992, 6(4): 459-483.
- [22] PAN Y P, TIAN S, ZHAO Y, et al., Identifying ammonia hotspots in China using a national observation network[J], *Environ. Sci. Technol.*, 52, 3926-3934, doi: [10.1021/acs.est.7b05235](https://doi.org/10.1021/acs.est.7b05235),2018.
- [23] WANG Y S, YAO L, WANG L L, et al. Mechanism for the formation of the January 2013 heavy haze pollution episode over central and eastern China [J]. *Science China-Earth Sciences*, 2014, 57(1): 14-25.
- [24] VAN PUL A, HERTEL O, GEELS C, et al., Modelling of the atmospheric transport and deposition of ammonia at a national and regional scale[C]. *Atmospheric Ammonia*, Baker. 2009..
- [25] DAMMERS E, SCHAAP M, HAAIMA M, et al. Measuring atmospheric ammonia with remote sensing campaign: Part 1-Characterisation of vertical ammonia concentration profile in the centre of The Netherlands [J]. *Atmospheric Environment*, 2017, 169: 97-112.
- [26] 周焱博, 竺夏英, 潘月鹏, 等. 城市近地层气态污染物的垂直分布特征 [J]. *环境化学*, 2017, 36(8): 1752-1759.
ZHOU Y B, ZHU X Y, PAN Y P, et al. Vertical distribution of gaseous pollutants in the lower atmospheric boundary layer in urban Beijing [J]. *Environmental Chemistry*, 2017, 36(8): 1752-1759(in Chinese).
- [27] ZHANG Y Y, TANG A, WANG D, et al. The vertical variability of ammonia in urban Beijing, China [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2018, 18(22): 16385-16398.
- [28] MASSAD R S, LOUBET B, TUZET A, et al., Ammonia stomatal compensation point of young oilseed rape leaves during dark/light cycles under various nitrogen nutrition[J]. *Agriculture Ecosystems & Environment*, 2009, 133(3-4): 170-182.
- [29] WALKER J T, ROBARGE W P, WU Y, et al. Measurement of bi-directional ammonia fluxes over soybean using the modified Bowen-ratio technique [J]. *Agricultural and Forest Meteorology*, 2006, 138(1-4): 54-68.
- [30] SUTTON M A, NEMITZ E, MILFORD C, et al., Dynamics of ammonia exchange with cut grassland: Synthesis of results and conclusions[J].*Biogeosciences*,2009,6(12):2907-2934.