

DOI: 10.11766/trxb202303290119

董学涛, 吴华勇, 宋效东, 张甘霖, 潘洁. 风化壳颗粒大小是决定典型干旱区硝态氮深部累积特征的关键因素[J]. 土壤学报, 2024

DONG Xuetao, WU Huayong, SONG Xiaodong, ZHANG Ganlin, PAN Jie. Regolith Particle Size Controls Deep Nitrate Accumulation in a Typical Arid Region[J]. Acta Pedologica Sinica, 2024

风化壳颗粒大小是决定典型干旱区硝态氮深部累积特征的关键因素*

董学涛^{1,2}, 吴华勇^{2,3,4†}, 宋效东^{2,3}, 张甘霖^{2,3,5}, 潘洁¹

(1. 南京林业大学林学院, 南京 210037; 2. 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研究所), 南京 210008; 3. 中国科学院大学, 北京 100049; 4. 中国科学院大学南京学院, 南京 211135; 5. 中国科学院南京地理与湖泊研究所, 南京 210008)

摘要: 我国干旱区农田关键带过量施氮造成氮肥利用率低和土壤硝态氮大量累积, 威胁生态环境安全。阐明干旱区土壤硝态氮累积特征及其影响因素, 可为干旱区水肥综合管理提供科学参考。选择典型干旱区—新疆阿克苏地区为研究区域, 从南向北沿地形序列布设三个钻孔点, 分别为 60 年棉田 XJ1 (40°36'48.7"N, 80°48'14.2"E)、32 年老苹果园 XJ2 (41°16'16.2"N, 80°19'9.1"E) 和 15 年新苹果园 XJ3 (41°20'37.6"N, 80°17'11.0"E), 海拔依次为 971 m、1 129 m 和 1 213 m, 采样深度依次为 7.75 m、10.52 m 和 9.91 m, 利用线性和非线性相关分析方法研究了土壤有关理化性质与土壤硝态氮浓度变异的关系。结果表明, 海拔低处棉田和海拔高处不同种植年限的苹果园土壤深部均出现了硝态氮显著累积特征, 深部浓度高达 44 mg·kg⁻¹, 最大累积深度超过 10 m。土壤含水量和不同粒径颗粒(砾石、砂粒、粉粒与黏粒)含量等关键理化性质可解释土壤硝态氮浓度垂直变异的约 50%。其中, 土壤含水量和土壤颗粒大小是决定土壤硝态氮深部累积特征的重要因素, 土壤含水量越高、土壤颗粒越细, 土壤硝态氮浓度通常越高。棉田土壤硝态氮在 4 m 深地下水位以下发生了明显的反硝化作用, 使累积的硝态氮浓度降至较低水平(< 1 mg·kg⁻¹)。苹果园因地下水位较深, 土壤硝态氮未发生明显的反硝化作用, 且已大量迁移累积至植物根系难以触及的深部区域(> 5 m)。土壤含水量是影响土壤硝态氮深部累积特征的地下部直接性因素; 土壤颗粒大小通过调控土壤含水量空间变异, 而成为影响土壤硝态氮深部累积特征的地下部根本性因素。

关键词: 土壤硝态氮; 地球关键带; 反硝化作用; 棉田; 苹果园

中图分类号: S661.1; S562; S151

文献标志码: A

Regolith Particle Size Controls Deep Nitrate Accumulation in a Typical Arid Region

DONG Xuetao^{1,2}, WU Huayong^{2,3,4†}, SONG Xiaodong^{2,3}, ZHANG Ganlin^{2,3,5}, PAN Jie¹

(1. College of Forestry, Nanjing Forestry University, Nanjing 210037, China; 2. State Key Laboratory of Soil and Sustainable Agriculture, Institute of Soil Science, Chinese Academy of Sciences, Nanjing 210008, China; 3. University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China; 4. University of Chinese Academy of Sciences, Nanjing 211135, China; 5. Nanjing Institute of Geography and Limnology, Chinese Academy of Sciences, Nanjing 210008, China)

* 国家重点研发计划项目(2023YFD1900103, 2018YFE0107000)和国家自然科学基金项目(41977003)资助 Supported by the National Key Research and Development Program of China (Nos. 2023YFD1900103, 2018YFE0107000) and the National Natural Science Foundation of China (No. 41977003)

† 通讯作者 Corresponding author, E-mail: hywu@issas.ac.cn

作者简介: 董学涛(1996-), 女, 山西太原人, 硕士研究生, 主要从事土壤地理和土壤地球化学研究。E-mail: xtd13313513852@163.com
收稿日期: 2023-03-29; 收到修改稿日期: 2024-01-11; 网络首发日期(www.cnki.net):

Abstract: 【Objective】 Overuse of Nitrogen (N) fertilizer results in a low N use efficiency and intensive soil nitrate accumulation in arid farmland critical zone of China, which threatens eco-environmental safety. Elucidating characteristics of soil nitrate accumulation and its influencing factors can provide scientific reference for integrated management of water and fertilizers. 【Method】 The Aksu region, a typical arid region, was selected as the study area. Regolith core samples were collected from three drilling sites including XJ1 (40°36'48.7"N, 80°48'14.2"E), XJ2 (41°16'16.2"N, 80°19'9.1"E), and XJ3 (41°20'37.6"N, 80°17'11.0"E) along a topographic sequence from south to north, with depths of 7.75 m, 10.52 m, and 9.91 m, respectively. The drilling sites were located in a 60-year-old cotton field, a 32-year-old apple orchard, and a 15-year-old apple orchard, respectively. Key soil properties were measured and their relationship to soil nitrate concentration accumulation was analyzed using linear and nonlinear correlations. 【Result】 Significant accumulation of soil nitrate concentration was found under cotton fields with a low altitude and apple orchards with different planting years and a high altitude. Soil nitrate concentrations at depth can reach 44 mg·kg⁻¹ and soil nitrate accumulation occurs deeper than 10 m. Key soil properties including soil water content and soil particle (gravel, sand, silt and clay fractions) sizes could explain about 50% variations of soil nitrate concentrations with depth. Among key soil properties, soil water content and soil particle sizes were found to be the main factors determining soil nitrate accumulation at depth. Soil nitrate concentration was generally accumulated under conditions with a high soil water content and a fine soil particle. Notable denitrification below the groundwater table at a depth of 4 m occurred under cotton fields and led to a low nitrate concentration below 1 mg·kg⁻¹. Notable denitrification was not observed below 10 m under apple orchards with a deep groundwater table and soil nitrate concentration was intensively accumulated beyond the root zone deeper than 5 m. 【Conclusion】 Soil water content was found to be the below-ground direct factor determining soil nitrate accumulation at depth. Soil particle sizes were found to be the fundamental factor determining soil nitrate accumulation via controlling soil water content variations.

Key words: Soil nitrate; Critical Zone; Denitrification; Cotton field; Apple orchard

农田土壤氮肥的过量施用造成氮肥利用率下降和土壤硝态氮大量累积^[1-6], 威胁全球水体生态环境安全^[7-10]。研究发现我国华北平原和黄土高原等半干旱区和半湿润区农田土壤硝态氮显著累积, 在 0~4 m 的深度范围内, 小麦地、玉米地、露天蔬菜地、塑料大棚蔬菜地和果园的土壤硝态氮平均累积量分别可达 453、749、1 191、1 269、2 155 kg·hm⁻², 其中约 70% 的硝态氮累积在 1 m 深度以下的区域^[11]。近年来, 研究发现我国南方丘陵岗地等湿润区农田也会出现土壤深部硝态氮显著累积现象^[12-15], 约 90 % 的土壤硝态氮累积在 1~8 m 的深度范围内, 其中 1~4 m 的土壤硝态氮累积量达 632 kg·hm⁻², 占硝态氮总累积量的约 70%^[12]。模型模拟研究发现全球包气带中累积了大量的硝态氮, 其中, 2000 年全球包气带中硝态氮累积量可达 605~1 814 Tg N, 主要累积在北美、中国和欧洲等农业历史悠久的区域^[1]。土壤中大量累积的硝态氮移动性强, 在降水、灌溉水等的驱动下, 可进入地表水和地下水, 引起地表水富营养化、地下水硝酸盐超标等水环境安全问题^[9, 16]。研究发现土壤深部累积的硝态氮进入水体会存在一个遗留时间, 这个遗留时间会极大影响富营养化水体污染修复治理的效果^[17]。例如, 针对美国密西西比河流域入海口墨西哥湾的缺氧区, 通过流域源头减氮、过程消氮等多种举措同时治理 15 a 后 (2001—2015 年), 缺氧区面积不降反增, 究其原因主要在于氮遗留效应的影响, 模拟研究发现 2010 年排放到墨西哥湾的约 50% 的氮在流域内遗留时间超过了 30 a^[18-19]。硝态氮累积量、累积峰位置、迁移速率及遗留时间等关键特征及其模拟均会受到水肥管理、土地利用、气候条件等地上因素和土壤及地下水等地下因素的制约^[11-15, 20-23], 然而由于风化壳常深达数米至数十米, 摸清深部土壤因素的影响并非易事。因此, 系统研究深部土壤性质对硝态氮深部累积特征的影响具有重要意义。

研究发现可变电荷土壤和恒电荷土壤性质对硝态氮迁移与累积的影响存在差异。可变电荷土壤区通常降水充沛, 进入土壤中的或土壤中产生的硝态氮一部分随降水较为快速地穿透整个风化壳而进入地下水或地表水, 而另一部分累积在风化壳中^[9]。可变电荷土壤区含有较多的高岭石、埃洛石等 1:1 型层状硅酸盐黏土矿物和铁铝 (氢) 氧化物, 在自然 pH 条件下土壤颗粒总体上通常带负电荷, 但局部因铁 (氢) 氧化物等的存在而带正电荷, 可通过静电作用吸附带负电荷的硝酸根、氯离子等

阴离子。研究发现铁(氢)氧化物淀积峰与硝态氮累积峰位置相对应,且硝态氮累积峰的大小随施氮年限的增加而变大,累积峰的位置不易向下移动,主要原因是淀积峰附近土壤表面正电荷量多、容重大、孔隙度低^[12, 15]。恒电荷土壤区通常降水量少、蒸发量大,进入土壤中的或土壤中产生的硝态氮一部分随降水或灌溉水逐步地向风化壳深部迁移而进入地下水或地表水中,而另一部分累积在风化壳中。恒电荷土壤含有大量的水云母、蛭石、绿泥石等 2:1 型和高岭石等 1:1 型层状硅酸盐黏土矿物,在自然 pH 条件下土壤颗粒通常带负电荷,与带负电荷的阴离子间呈静电排斥作用。在恒电荷土壤中硝态氮在降水或灌溉水等的驱动下移动性强,主控土壤水分运动的土壤性质将会主导硝态氮的迁移和累积,因此,土壤质地、容重、孔隙结构等性质将成为重要的影响因素。研究发现在我国半干旱和半湿润区的恒电荷土壤中,玉米地 0~1 m 深度范围内质地较黏重的土壤较质地较轻的土壤会累积更多的硝态氮,而小麦地并未发现显著的差异^[23]。到目前为止,鲜有研究报道干旱区恒电荷土壤性质对硝态氮深部迁移与累积的影响,尚未阐明恒电荷土壤中土壤性质与硝态氮深部累积特征的关系。

新疆是我国最重要的优质棉生产基地以及特色林果基地,也是典型的绿洲农林干旱区,氮肥过量施用造成氮肥利用率低和土壤硝态氮大量累积。例如,新疆阿克苏地区棉田在传统施氮条件下,土壤硝态氮累积量和淋溶的深度均较优化施氮条件下大^[24];新疆阿克苏地区棉田随施氮量增加 0~60 cm 土层硝态氮显著增加^[25]。尽管已经发现新疆浅层土壤硝态氮累积现象,但尚未摸清该地区深层土壤硝态氮累积特征和机制。本研究选取新疆阿克苏地区为研究区,利用钻孔取样技术从南至北沿地形序列采集了棉田和苹果园深达 8~11 m 的土柱样品,结合野外调查和室内测试数据,深入研究了干旱区恒电荷土壤中硝态氮的深部累积特征及其影响因素,以期在水肥综合管理和地下水硝酸盐污染防治提供科学依据。

1 材料与方法

1.1 研究区概况

研究区位于我国新疆的阿克苏地区。新疆指新疆天山以南、昆仑山以北的部分,新疆幅员辽阔,干旱少雨,春夏有沙尘、倒春寒、干热风、冰雹、洪水等极端恶劣天气,属于典型的弱质农林业。同时新疆拥有充足的光热资源、相对完善的灌溉体系。新疆具有典型的暖温带大陆性干旱气候特征,降雨稀少,蒸发量大,气候干燥,无霜期较长,平均气温 9~12 °C,气温年较差超过 40 °C,年平均降水量为 90 mm。

1.2 野外调查采样

2020 年 10 月,通过土壤图、土地利用图、数字高程模型和现场踏勘等多种方式对研究区及其周边环境进行分析,充分了解研究区的土地利用历史、施肥与灌溉管理等情况后,从南至北沿地形序列选取 3 个代表性的田块进行钻孔采样(图 1 和表 1),土地利用现状为棉田和苹果园。棉田种植年限为 60 a,每年化学氮肥施氮量约为 300 kg·hm⁻²,其中基肥约为 230 kg·hm⁻²和追肥约为 70 kg·hm⁻²,肥料类型为尿素和复合肥。基肥在翻地时施入,追肥通过滴灌水肥一体化形式施入。棉田灌溉水源为地表水,每年以漫灌形式进行一次冬灌和一次春灌,并进行 9 次滴灌。苹果园种植年限为 32 a 和 15 a,种植 32 a 的苹果园每年每棵树以穴施方式施用 30 kg 羊粪和 8 kg 复合肥(复合肥折合纯氮 1.2 kg),每年复合肥来源的施氮量约为 600 kg·hm⁻²。每年 4 月施用羊粪,5 月和 8 月施用复合肥,施肥位置距树干约 1 m,施肥后进行灌溉,灌溉水源主要为地下水。种植 15 a 的苹果园每年每棵树以穴施方式施用 2 kg 复合肥(折合纯氮 0.4 kg)和以漫灌形式分次冲施复合肥 4 kg(折合纯氮 0.8 kg),平均每两年每棵树以穴施方式施用一次商品有机肥(10 kg)或羊粪,每年复合肥来源的施氮量约为 600 kg·hm⁻²,灌溉水源主要为地下水。

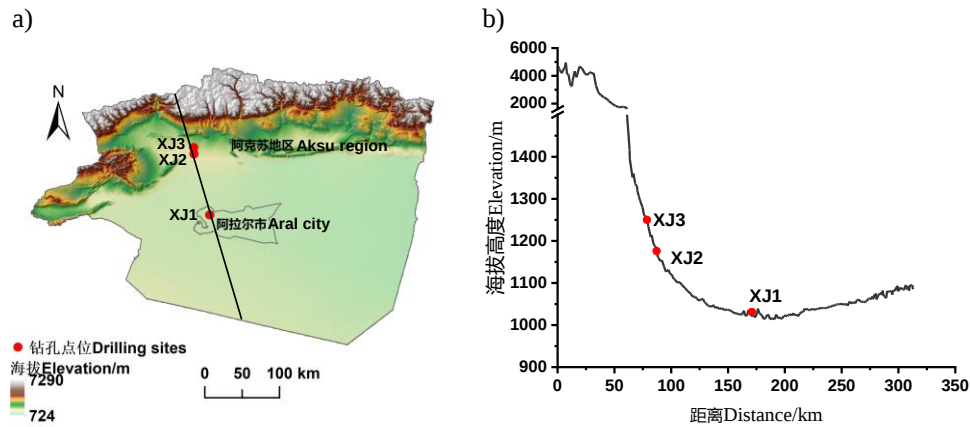


图1 研究区地理位置及钻孔取样点位分布图

Fig. 1 Map of study area and drilling site distribution

利用西班牙 TEC-12 多功能钻机进行原状土壤样品连续采集, 采样深度约 8~11 m, 采样深度主要取决于不同条件下钻机所能达到的最大采样深度。依据采样过程的观察, 钻孔 XJ1 地下水位深度约为 4 m, 钻孔 XJ2 和 XJ3 地下水位深度均超过采样深度。土壤样品采集时, 原状土壤样品直接进入 1 m 长的聚氯乙烯 (PVC) 管中, PVC 管外径 6.5 cm, 内径 6.2 cm。每采集 1 管土壤样品后, 在 PVC 管的两端分别装上不同颜色的塑胶盖, 以示上下的区别, 并用胶带密封管口, 然后带回实验室。

表 1 南疆钻孔点位信息

Table 1 Drilling site information in southern Xinjiang

编号 Number	土地利用类 型 Land-use type	种植年限 Planting years/a	经纬度 Latitude and longitude	海拔 Elevation/m	深度 Depth/cm	样品数 Number of samples
XJ1	棉田	60	40°36'48.7"N 80°48'14.2"E	971	775	28
XJ2	苹果园	32	41°16'16.2"N 80°19'09.1"E	1129	1052	47
XJ3	苹果园	15	41°20'37.6"N 80°17'11.0"E	1213	991	48

1.3 样品分析

采回的样品处理前, 存放于实验室 4 °C 低温保存箱中。处理时, 用切割器将 PVC 管纵向切开, 根据土壤样品的细土 (粒径 < 2 mm) 质地、砾石含量及大小、颜色、紧实性等指标进行分层。三个钻孔的样品, 共划分为 123 层, 对应的样品数为 123 个。每层土壤样品混匀后装入聚乙烯自封袋中, 一部分于 4 °C 低温保存箱中保存, 另一部分于室内风干。土壤样品风干研磨前, 筛分粒径 ≥ 2 mm 的砾石和 < 2 mm 的细土。细土经研磨后过筛, 制备成 10 目和 100 目土样。

分析和测定土壤含水量、颗粒组成、砾石含量、pH, 以及全氮、可溶性全氮、可溶性有机氮、硝态氮、铵态氮和氯离子含量。土壤常规分析参照《土壤调查实验室分析方法》^[26]。土壤含水量测定采用烘干法。颗粒组成采用激光粒度仪法, 测定细土砂粒 (2 000~50 μm)、粉粒 (50~2 μm) 和黏粒 (< 2 μm) 体积百分比。土内砾石 (粒径 ≥ 2 mm) 含量测定采用称重法。土壤 pH 测定采用酸度计法 (土水比 1:2.5)。全氮含量测定采用硒粉、硫酸铜、硫酸钾消化-蒸馏法。可溶性氮 (可溶性全氮、硝态氮和铵态氮) 含量测定采用去离子水浸提和连续流动分析仪法。可溶性氮和氯离子含量测

定具体流程为称取 6.5 g 新鲜土壤样品于 100 mL 离心管中,采用称重法加 65 g 去离子水,土水比 1:10,旋紧盖子后,于往复摇床上振荡 1 h,在 $4\,500\text{ r}\cdot\text{min}^{-1}$ 条件下离心 15 min,离心完毕后用注射器吸取离心管中的上清液,将取出的一部分上清液过 $0.45\text{ }\mu\text{m}$ 孔径滤膜于 15 mL 离心管中,用连续流动分析仪 (San⁺⁺ System, Skalar, The Netherlands) 测定滤液中的可溶性全氮、硝态氮和铵态氮含量,利用差减法计算可溶性有机氮含量。另一部分上清液过 $0.22\text{ }\mu\text{m}$ 孔径滤膜于 2 mL 进样瓶中,用离子色谱仪 (ICS-5000⁺, Thermo Fisher Scientific) 测定滤液中的氯离子含量。

1.4 数据处理

用 Microsoft Excel 2010 进行数据汇总整理;用 SPSS 25 进行描述性统计分析和相关性分析;用 R 软件 randomForest 程序包进行随机森林模型运算,分析每个变量对硝态氮累积特征的相对重要性。用 Origin 2021 pro 进行图表绘制。

2 结果

2.1 土壤剖面可溶性氮浓度的垂直分布特征

图 2 显示棉田和苹果园剖面土壤可溶性氮中硝态氮占绝对优势,其中棉田、种植 32 a 和 15 a 的苹果园土壤硝态氮浓度范围分别为 $0.78\sim 87.73\text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ 、 $0.56\sim 44.22\text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ 、 $0\sim 20.71\text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$,浓度均值分别为 $14.61\pm 18.28\text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ 、 $14.82\pm 13.03\text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ 、 $4.23\pm 5.72\text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ 。棉田剖面土壤含有少量的可溶性有机氮,其浓度范围和均值分别为 $0\sim 17.44\text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ 、 $3.79\pm 3.89\text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$;两种苹果园剖面土壤中可溶性有机氮均很低,其浓度均值小于 $1\text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ 。棉田和苹果园剖面土壤亚硝态氮浓度在绝大多数情况下均低于 $0.10\text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ 或低于检测限($0.003\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$),铵态氮浓度基本低于检测限($0.046\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$);值得一提的是棉田土壤约 6 m 深度附近亚硝态氮浓度陡增,可达 $4.57\text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ 。

棉田和苹果园剖面土壤硝态氮在浅层土壤中 (1 m 深度以内) 基本呈现出浓度随深度锐减的特征,而在深部土壤 (1 m 深度以下) 中均出现了深部累积特征,且累积峰的大小、深度、形态均不同 (图 2)。棉田土壤剖面中,硝态氮浓度有两个累积峰,分别位于 158.5 cm 和 322 cm 深度处,峰值分别为 $17.88\text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ 和 $16.00\text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ 。种植 32 a 的苹果园土壤剖面中,硝态氮浓度有四个累积峰,分别位于 304.5 cm、450.0 cm、686 cm 和 848.5 cm 处,峰值分别为 $16.24\text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ 、 $36.20\text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ 、 $39.86\text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ 和 $44.22\text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ 。种植 15 a 的苹果园土壤剖面中,硝态氮浓度有一个宽峰和一个尖峰,位于 479~663.5 cm 和 814 cm 处,峰值分别为 $20.71\text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ 和 $10.25\text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ 。

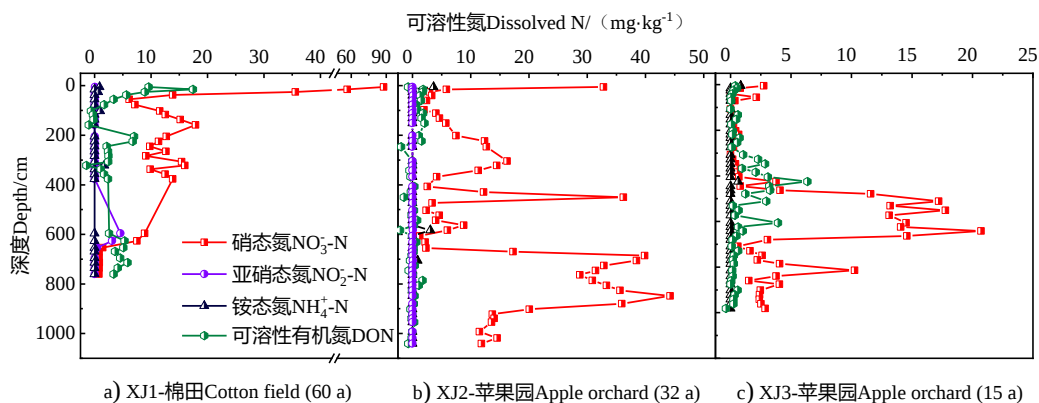


图 2 不同土地利用类型下可溶性氮浓度随深度的变化特征

Fig. 2 Changes of dissolved N concentrations with depth under different land uses

2.2 土壤剖面硝态氮浓度与土壤有关性质的垂直变化关系

图 3 显示了棉田和苹果园剖面土壤中砾石含量、粉粒含量、黏粒含量、含水量、氯离子浓度与硝态氮浓度垂直变化的直观关联特征。需要说明的是砂粒含量与黏粒及粉粒含量呈负相关性,为了

提高数据点的辨识度,图中未显示砂粒含量数据。棉田土壤剖面中,硝态氮浓度在 158.5 cm 和 322 cm 深度处的两个累积峰,均与黏粒、粉粒和含水量的累积峰位置相对应。硝态氮浓度在 1~4 m 深度区间内与氯离子浓度的垂直变化特征相似,4 m 深度以下氯离子浓度增大。种植 32 a 的苹果园土壤剖面中,硝态氮浓度在 304.5 cm、450.0 cm、686 cm 和 848.5 cm 处的四个累积峰,同样均与黏粒含量、粉粒含量、含水量的累积峰位置相对应,硝态氮浓度与氯离子浓度的垂直变化特征基本一致。种植 15 a 的苹果园土壤剖面中,硝态氮浓度在 479~663.5 cm 和 814 cm 深度处的宽峰和尖峰,同时对应黏粒含量、粉粒含量、含水量、氯离子浓度的累积峰,但在 218 cm 处,黏粒含量、粉粒含量累积峰处未出现硝态氮浓度累积峰,而出现了含水量和氯离子浓度累积峰。

图 4 显示了棉田和苹果园剖面中土壤 pH 和全氮含量随深度的变化特征。棉田、种植 32 a 和 15 a 苹果园的剖面中,土壤 pH 平均值分别为 8.16 ± 0.25 、 8.63 ± 0.36 、 8.91 ± 0.24 。棉田土壤剖面中,全氮含量和硝态氮浓度均在 322 cm 处有累积峰。种植 32 a 的苹果园土壤剖面中,硝态氮浓度的 4 个累积峰位置基本对应全氮含量的 4 个累积峰。种植 15 a 的苹果园土壤剖面中,硝态氮浓度的累积宽峰内,全氮的含量也相对较高。

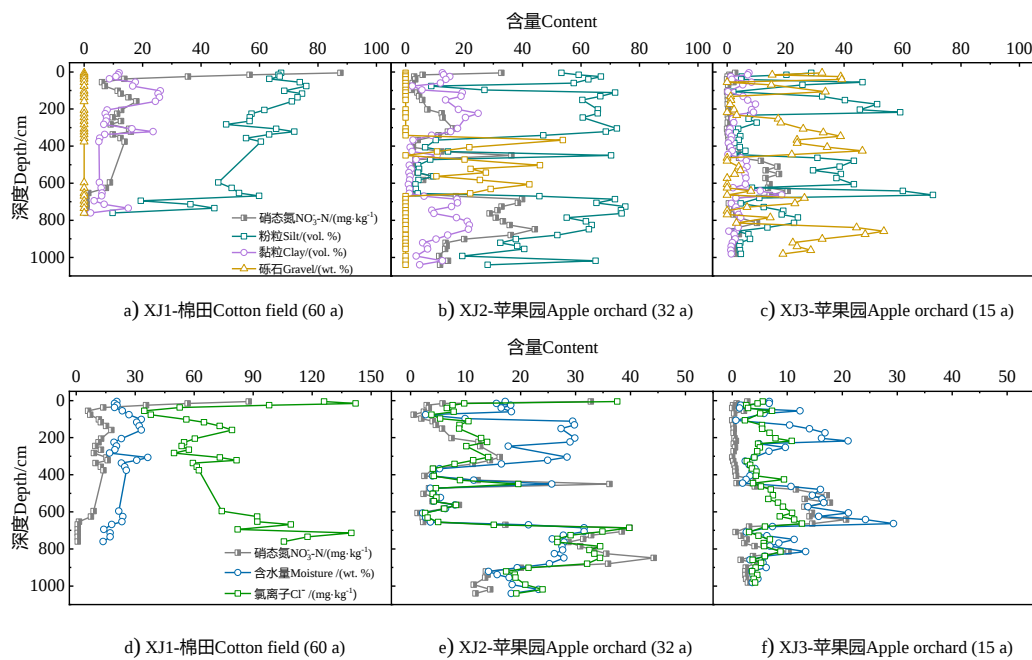


图 3 不同土地利用类型下土壤有关性质随深度的变化特征

Fig. 3 Changes of selected soil properties with depth under different land uses

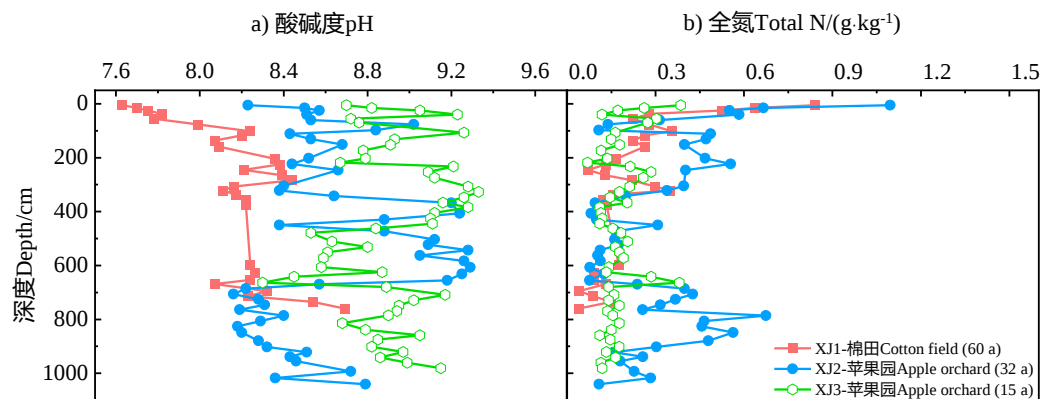


图 4 不同土地利用类型下土壤 pH 和全氮含量随深度的变化特征

Fig. 4 Changes of soil pH and total N contents with depth under different land uses

2.3 土壤剖面硝态氮浓度与土壤有关性质的线性和非线性关系

Pearson 线性相关性矩阵显示在棉田（0~775 cm）和两种苹果园（0~991 cm 和 0~1052 cm）的调查深度范围内，硝态氮浓度与全氮含量、粉粒含量、黏粒含量、含水量呈现显著正相关性，与土壤 pH、砂粒和砾石含量呈显著负相关性（表 2）。

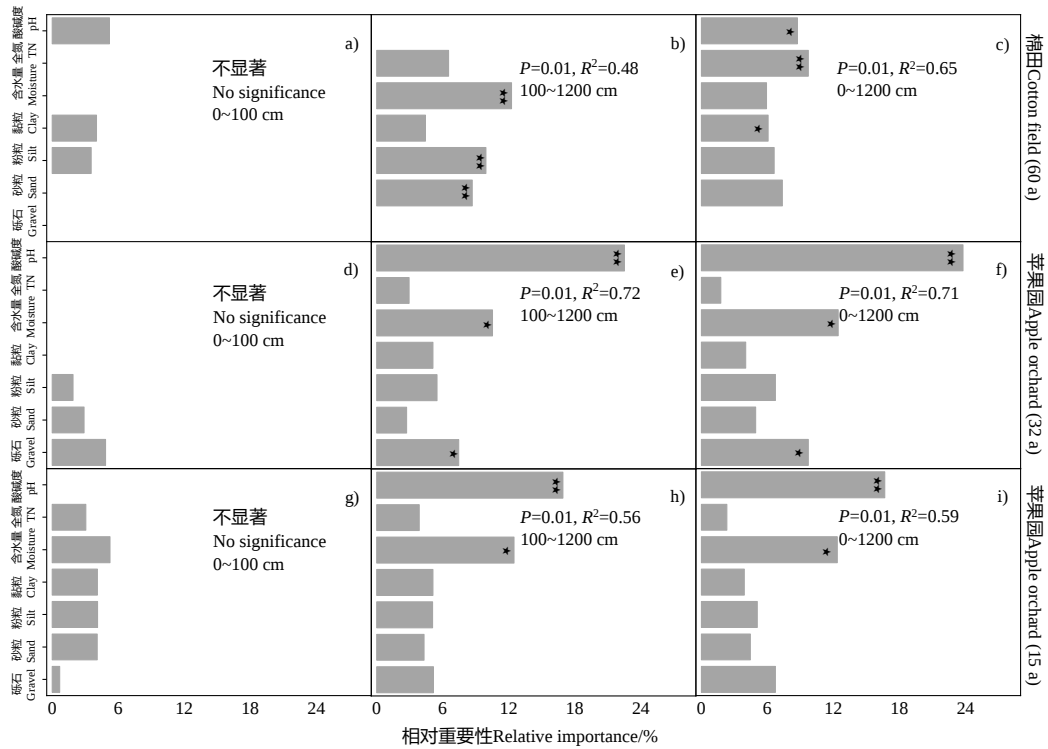
随机森林模型预测了棉田和两种苹果园 0~100 cm、100~775/991/1 052 cm 和 0~775/991/1 052 cm 三类深度范围内土壤有关理化性质对硝态氮浓度变异的相对贡献（图 5）。预测结果显示在 0~100 cm 深度范围内，棉田和苹果园土壤有关理化性质对硝态氮浓度变异的总体解释率不高，数值范围为 2%~21%。在 100~775/991/1052 cm 深度范围内，棉田和苹果园土壤有关理化性质对硝态氮浓度变异的总体解释率较高，数值范围为 42%~57%；棉田解释率较高的显著性土壤性质为含水量、粉粒含量和砂粒含量，32 a 苹果园解释率较高的显著性土壤性质为 pH、含水量和砾石含量，15 a 苹果园解释率较高的显著性土壤性质为 pH 和含水量。在 0~775/991/1 052 cm 深度范围内，棉田和苹果园土壤有关理化性质对硝态氮浓度变异的总体解释率最高，数值范围为 44%~63%；棉田解释率较高的显著性土壤性质与 100~775/991/1 052 cm 深度范围的不同，为全氮含量、pH 和黏粒含量，而两种苹果园解释率较高的显著性土壤性质与 100~775/991/1 052 cm 深度范围的相同。

表 2 土壤硝态氮浓度与有关理化性质的相关性

Table 2 Correlation coefficients between soil nitrate concentrations and other soil properties

	硝态氮 Nitrate N	pH	全氮 Total N	含水量 Moisture	黏粒 Clay	粉粒 Silt	砂粒 Sand	砾石 Gravel
硝态氮 Nitrate N	1							
pH	-0.647***	1						
全氮 Total N	0.639***	-0.500***	1					
含水量 Moisture	0.379***	-0.209*	0.477***	1				
黏粒 Clay	0.475***	-0.702***	0.631***	0.478***	1			
粉粒 Silt	0.549***	-0.877***	0.554***	0.455***	0.848***	1		
砂粒 Sand	-0.547***	0.862***	-0.585***	-0.472***	-0.903***	-0.993***	1	
砾石 Gravel	-0.350*	0.456**	-0.217	-0.684**	-0.568**	-0.638**	0.631**	1

注：* $P < 0.05$, ** $P < 0.01$, *** $P < 0.001$ （双尾检验）；所有参数样本量 $n = 123$ 。Note: * $P < 0.05$, ** $P < 0.01$, *** $P < 0.001$ (Two-tailed test), the number of samples is 123.



注: *代表显著水平为 0.05, **代表显著水平为 0.01。Note: * indicates a significance level of 0.05 and ** indicates a significance level of 0.01.

图 5 随机森林模型模拟的土壤有关性质对硝态氮浓度变异的相对重要性

Fig. 5 Relative importance of selected soil properties to nitrate concentration variations predicted by random forest model

3 讨论

3.1 土地利用对土壤剖面硝态氮累积特征的影响

土地利用类型和年限深刻影响土壤剖面硝态氮累积特征^[12-14]。种植 32 a 的苹果园土壤硝态氮累积量最大, 种植 15 a 的苹果园土壤硝态氮累积量最小, 而种植 60 a 的棉田土壤硝态氮累积量居中(图 6)。据本研究农户调查, 不同种植年限的苹果园每年的化学氮肥施用量均为 $600 \text{ kg} \cdot \text{hm}^{-2}$, 苹果园种植年限越长, 氮肥投入量会越高, 过量施用的氮肥量会越多, 加之 32 a 苹果园土壤剖面黏粒含量较高, 固持硝态氮的能力较强, 这为 32 a 苹果园土壤剖面硝态氮累积量超出 15 a 苹果园提供了必要的地上部和地下部条件。与 60 a 棉田相比, 32 a 苹果园每年化学氮肥施用量为棉田的 2 倍, 虽然种植年限约为棉田的 1/2, 但我国化肥大规模施用始于 20 世纪 80 年代, 推断 32 a 苹果园的总化学氮肥施用量应超过 60 a 棉田的总施用量, 加之棉田的地下水位浅, 反硝化脱氮作用可能较为强烈, 这为 32 a 苹果园土壤剖面硝态氮累积量超出 60 a 棉田提供了必要的地上部和地下部条件。15 a 苹果园土壤硝态氮累积量低于 60 a 棉田的主要原因是 15 a 苹果园土壤剖面黏粒含量较低, 固持硝态氮的能力较弱。

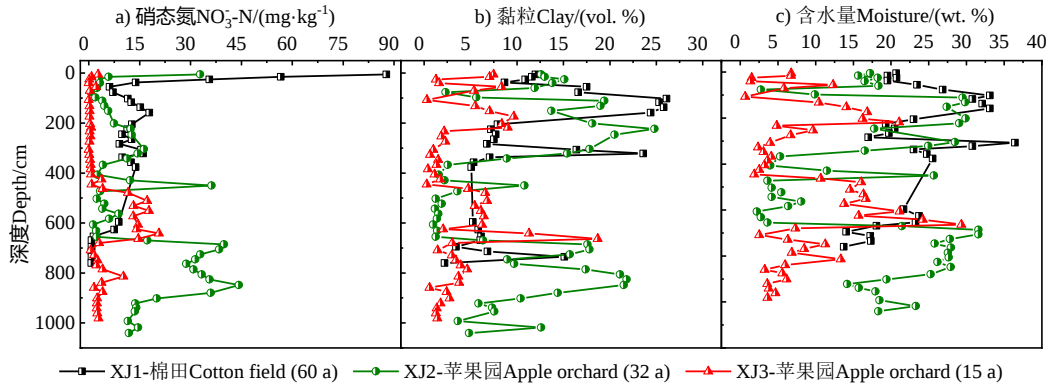


图 6 不同土地利用类型下土壤硝态氮浓度、黏粒含量和含水量随深度的变化特征

Fig. 6 Changes of soil nitrate concentration, clay content and moisture with depth under different land uses

3.2 风化壳性质对土壤剖面硝态氮累积特征的影响

地上部因素和地下部因素综合决定了风化壳硝态氮的深部累积特征^[11-15, 20-23], 而分析同一钻孔硝态氮的累积特征可有效剥离地上部因素的影响, 从而重点解剖地下部因素的影响。从直观上看, 地下水位以上区域, 棉田和苹果园风化壳硝态氮浓度和氯离子浓度基本同步发生垂直变异, 且大体与黏粒含量、粉粒含量、含水量正向同步发生垂直变异, 而与砂粒含量反向同步发生垂直变异。氯离子是保守性离子, 随水而动, 地下水位以上区域硝态氮与氯离子浓度的同步变化意味着风化壳中硝态氮基本以物理迁移为主。现场打钻结果显示海拔较高的两种苹果园取样深度达约 10 m 时, 均未到达地下水位; 32 a 苹果园风化壳中未检测到亚硝态氮存在 (15 a 苹果园未测定该指标), 可推断苹果园风化壳中未发生明显的反硝化作用。海拔较低的棉田 4 m 深度已达地下水位, 4~6 m 深度范围基本未取出岩芯样品, 主要为沙和水; 室内检测结果显示约 6 m 深度亚硝态氮浓度陡增, 而硝态氮浓度陡降, 推断地下水中发生了明显的反硝化作用。土壤硝态氮在地下水中发生反硝化作用是一个普遍存在的现象, 得到了相关研究的证实^[27-31]。因此, 在本研究区, 地下水位以上的风化壳中, 硝态氮基本与氯离子行为相似, 主要以物理迁移和累积过程为主; 风化壳中离子迁移和累积的主要驱动力是水, 而含水量的空间变异主要决定于风化壳的颗粒大小 (包括砾石、砂粒、粉粒和黏粒), 风化壳的颗粒大小是影响地下部硝态氮深部累积特征的关键因素。

本研究利用随机森林模型进一步量化了土壤各因素对硝态氮浓度垂直变异的相对重要性。在 0~100 cm 深度内, 由于受到地上部氮肥输入和灌溉水等的深刻影响, 地下部土壤性质对硝态氮浓度变异的影响并不显著。已有研究也有类似的发现, 例如我国小麦—玉米轮作种植区, 0~100 cm 深度范围内土壤质地对玉米季土壤硝态氮累积量有显著影响, 而对小麦季则无显著影响^[23], 其可能原因是与玉米季相比, 小麦季硝态氮淋溶作用较弱等, 未能体现出土壤质地的影响。在 100~1 200 cm 和 0~1200 cm 深度内, 相关分析表明土壤 pH 和含水量基本上是解释硝态氮浓度垂直变异的最重要因素。但是, 碱性范围内的土壤 pH 在理论上难以成为恒电荷土壤区影响硝态氮浓度变异的重要因素, 这与可变电荷土壤区不同^[15]。实际上, 土壤含水量与硝态氮浓度呈显著正相关、与土壤 pH 呈显著负相关, 在表观上土壤 pH 与硝态氮浓度呈显著负相关, 在相关性上成为重要的影响因素, 其实不太可能存在因果关系。土壤含水量与 pH 呈显著负相关的原因可能主要是源于碳酸盐的淋溶和淀积作用, 土壤剖面中的碳酸盐在含水量高的区域淋溶作用强, 因而表现出更低的 pH, 而含水量低的区域碳酸盐淋溶作用弱而淀积作用强, 从而呈现出更高的 pH。已有研究可从侧面支撑上述解释, 例如研究发现干旱灌溉农业区土壤水流通量增加会造成土壤 0~4.9 m 深度范围的碳酸盐发生损耗^[32]。因此, 地下部主导土壤硝态氮浓度变异的直接因素是土壤含水量, 而土壤含水量的高低主要决定于风化壳颗粒大小, 颗粒越小的区域具备更高的储水能力, 进而能够累积更多的硝态氮。

4 结 论

研究发现我国西北干旱区农田土壤出现了显著的确态氮深部累积特征。化学施氮量、土壤含水量和不同粒径颗粒（砾石、砂粒、粉粒与黏粒）含量等土壤关键性质是影响土壤剖面硝态氮累积量的地上部和地下部关键因素。土壤关键性质可解释土壤硝态氮浓度垂直变异的约 50%。土壤含水量是影响土壤硝态氮深部累积特征的地下部直接性因素；土壤颗粒大小通过调控土壤含水量空间变异，而成为影响土壤硝态氮深部累积特征的地下部根本性因素。恒电荷土壤区地下部影响土壤硝态氮深部累积特征的因素主要为物理因素，而与可变电荷土壤区物理和化学复合影响因素存在明显不同。

参考文献（References）

- [1] Ascott M J, Gooddy D C, Wang L, et al. Global patterns of nitrate storage in the vadose zone[J]. *Nature Communications*, 2017, 8: 1416.
- [2] Min L L, Shen Y J, Pei H W, et al. Characterising deep vadose zone water movement and solute transport under typical irrigated cropland in the North China Plain[J]. *Hydrological Processes*, 2017, 31(7): 1498-1509.
- [3] Jia X X, Zhu Y J, Huang L M, et al. Mineral N stock and nitrate accumulation in the 50 to 200 m profile on the Loess Plateau[J]. *Science of the Total Environment*, 2018, 633: 999-1006.
- [4] Gao J B, Wang S M, Li Z Q, et al. High nitrate accumulation in the vadose zone after land-use change from croplands to orchards[J]. *Environmental Science & Technology*, 2021, 55(9): 5782-5790.
- [5] Qin S P, Yuan H J, Hu C S, et al. Anthropogenic N input increases global warming potential by awakening the “sleeping” ancient C in deep critical zones[J]. *Science Advances*, 2023, 9(6): eadd0041.
- [6] Ji W J, Huang Y N, Qian X, et al. Conversion from farmland to orchards has minor effects on nitrogen biological processes in deep loess deposits[J]. *Agriculture, Ecosystems & Environment*, 2022, 338: 108111.
- [7] Wang S Q, Zheng W B, Kong X L. Spatial distribution characteristics of nitrate in shallow groundwater of the agricultural area of the North China Plain[J]. *Chinese Journal of Eco-Agriculture*, 2018, 26(10): 1476-1482. [王仕琴, 郑文波, 孔晓乐. 华北农区浅层地下水硝酸盐分布特征及其空间差异性[J]. *中国生态农业学报*, 2018, 26(10): 1476-1482.]
- [8] Matiatos I, Wassenaar L I, Monteiro L R, et al. Global patterns of nitrate isotope composition in rivers and adjacent aquifers reveal reactive nitrogen cascading[J]. *Communications Earth & Environment*, 2021, 2: 52.
- [9] Wu H Y, Dong Y, Gao L, et al. Identifying nitrate sources in surface water, regolith and groundwater in a subtropical red soil Critical Zone by using dual nitrate isotopes[J]. *Catena*, 2021, 198: 104994.
- [10] Li S L, Liu X, Yue F J, et al. Nitrogen dynamics in the Critical Zones of China[J]. *Progress in Physical Geography: Earth and Environment*, 2022, 46(6): 869-888.
- [11] Zhou J Y, Gu B J, Schlesinger W H, et al. Significant accumulation of nitrate in Chinese semi-humid croplands[J]. *Scientific Reports*, 2016, 6: 25088.
- [12] Wu H Y, Song X D, Zhao X R, et al. Accumulation of nitrate and dissolved organic nitrogen at depth in a red soil Critical Zone[J]. *Geoderma*, 2019, 337: 1175-1185.
- [13] Yang S H, Wu H Y, Dong Y, et al. Deep nitrate accumulation in a highly weathered subtropical critical zone depends on the regolith structure and planting year[J]. *Environmental Science & Technology*, 2020, 54(21): 13739-13747.
- [14] Yang S H, Wu H Y, Song X D, et al. Variation of deep nitrate in a typical red soil Critical Zone: Effects of land use and slope position[J]. *Agriculture, Ecosystems & Environment*, 2020, 297: 106966.
- [15] Wu H Y, Song X D, Liu F, et al. Regolith property controls on nitrate accumulation in a typical vadose zone in subtropical China[J]. *Catena*, 2020, 192: 104589.
- [16] Wang S Q, Wei S C, Liang H Y, et al. Nitrogen stock and leaching rates in a thick vadose zone below areas of long-term nitrogen fertilizer application in the North China Plain: A future groundwater quality threat[J]. *Journal of Hydrology*, 2019, 576: 28-40.
- [17] Wang L, Butcher A S, Stuart M E, et al. The nitrate time bomb: A numerical way to investigate nitrate storage and lag

- time in the unsaturated zone[J]. *Environmental Geochemistry and Health*, 2013, 35(5): 667-681.
- [18] van Meter K J, van Cappellen P, Basu N B. Legacy nitrogen may prevent achievement of water quality goals in the Gulf of Mexico[J]. *Science*, 2018, 360(6387): 427-430.
- [19] Basu N B, van Meter K J, Byrnes D K, et al. Managing nitrogen legacies to accelerate water quality improvement[J]. *Nature Geoscience*, 2022, 15: 97-105.
- [20] Zhu X Q, Miao P, Wang P Z, et al. Variations and influencing factors of nitrate accumulation in the deep soil profiles of apple orchards on the Loess Plateau[J]. *Agriculture, Ecosystems & Environment*, 2022, 335: 108005.
- [21] Liu M Y, Min L L, Wu L, et al. Evaluating nitrate transport and accumulation in the deep vadose zone of the intensive agricultural region, North China Plain[J]. *Science of the Total Environment*, 2022, 825: 153894.
- [22] Li L D, Shields J, Snow D D, et al. Labile carbon and soil texture control nitrogen transformation in deep vadose zone[J]. *Science of the Total Environment*, 2023, 878: 163075.
- [23] Lu J, Bai Z H, Velthof G L, et al. Accumulation and leaching of nitrate in soils in wheat-maize production in China[J]. *Agricultural Water Management*, 2019, 212: 407-415.
- [24] Hou X L, Zhang Y, Li P, et al. Effect of nitrogen fertilizer on fluvo-aquic soil $\text{NO}_3\text{-N}$ distribution in Nanjiang[J]. *Agricultural Research in the Arid Areas*, 2006, 24(6): 73-77, 84. [侯秀玲, 张炎, 李磐, 等. 施氮对南疆潮土硝态氮分布的影响[J]. *干旱地区农业研究*, 2006, 24(6): 73-77, 84.]
- [25] Yin H, Yang Y, Zhang C, et al. Effects of nitrogen application rate on soil nitrogen and cotton nitrogen uptake and utilization in Southern Xinjiang[J]. *Southwest China Journal of Agricultural Sciences*, 2023, 36(8): 1702-1710. [殷昊, 杨阳, 张宸, 等. 施氮量对南疆棉田土壤氮素及棉花氮吸收利用的影响[J]. *西南农业学报*, 2023, 36(8): 1702-1710.]
- [26] Zhang G L, Gong Z T. Soil survey laboratory methods[M]. Beijing: Science Press, 2012. [张甘霖, 龚子同. 土壤调查实验室分析方法[M]. 北京: 科学出版社, 2012.]
- [27] Rivett M O, Buss S R, Morgan P, et al. Nitrate attenuation in groundwater: A review of biogeochemical controlling processes[J]. *Water Research*, 2008, 42(16): 4215-4232.
- [28] Zhou W, Ma Y C, Well R, et al. Denitrification in shallow groundwater below different arable land systems in a high nitrogen-loading region[J]. *Journal of Geophysical Research: Biogeosciences*, 2018, 123(3): 991-1004.
- [29] Xin J, Liu Y, Chen F, et al. The missing nitrogen pieces: A critical review on the distribution, transformation, and budget of nitrogen in the vadose zone-groundwater system[J]. *Water Research*, 2019, 165: 114977.
- [30] Wan J M, Tokunaga T K, Brown W, et al. Bedrock weathering contributes to subsurface reactive nitrogen and nitrous oxide emissions[J]. *Nature Geoscience*, 2021, 14: 217-224.
- [31] Morrissey J G, Currell M J, Reichman S M, et al. Nitrogen contamination and bioremediation in groundwater and the environment: A review[J]. *Earth-Science Reviews*, 2021, 222: 103816.
- [32] Kim J H, Jobbágy E G, Richter D D, et al. Agricultural acceleration of soil carbonate weathering[J]. *Global Change Biology*, 2020, 26(10): 5988-6002.

(责任编辑: 檀满枝)