

温度对农田 N_2O 产生与排放的影响*

郑循华 王明星 王跃思 沈壬兴 张 文 龚晏邦

(中国科学院大气物理所, 北京 100029)

摘要 以华东太湖地区的水稻-冬麦轮作农田为研究对象, 采用基于箱法-气相色谱法的自动连续观测系统, 对整个轮作周期的 N_2O 排放和温度进行了同步自动连续观测, 同时, 在实验室开展了一系列的模拟实验, 以研究 N_2O 产生与排放过程的温度效应. 实验研究结果表明, 在土壤湿度适宜的一定温度范围内, N_2O 排放通量对温度的依赖性可用指数函数 $F = A e^{at}$ 来描述; 轮作周期内显著 N_2O 排放发生的频率随温度的变化呈正态分布, 67% 的排放量都集中在 15—25 °C 温度范围内; 在旱地阶段, 温度是影响 N_2O 排放季节变化的关键因子, 而在水田阶段则不然; 水田和旱地 N_2O 排放具有相同的规律性日变化形式, 但后者达到极大值的时间要比前者延迟约 3h.

关键词 N_2O 排放, 温度, 排放通量, 稻麦轮作系统, 农田, 太湖地区.

农田生态系统是大气 N_2O 的重要源, 农田排放的 N_2O 主要产生于土壤微生物硝化和反硝化过程. 温度除影响 N_2O 产生的生物学过程外, 还强烈影响调节土壤中 N_2O 传输速率的物理化学参数, 所以, 温度是影响 N_2O 产生与排放的一个重要因素. 早在大约 20 年前人们就认识到, 15—35 °C 是硝化作用微生物活动的适宜温度范围, < 5 °C 或 > 40 °C 都抑制硝化作用发生^[1], 反硝化微生物所要求的适宜温度为 5—75 °C^[1]. 但 N_2O 在反应产物中的比重取决于 O_2 浓度, 而不是硝化或反硝化过程速率^[2-4]. N_2O 排放是温度、 O_2 和反应底物浓度以及传输过程交互作用的结果^[5]. 由于温度与 N_2O 排放的相互关系格外复杂, 尽管从 80 年代起, 人们就在研究生态系统中 N_2O 排放的温度控制问题^[6-8], 但至今仍然未得出明确的结论.

本文以太湖地区稻麦轮作生态系统为研究对象, 在同步连续观测研究 N_2O 排放通量与温度同时, 还开展了一些模拟实验, 以研究温度对农田 N_2O 产生与排放过程的影响.

1 实验研究方法

研究对象为我国华东太湖地区的典型农田生态系统之一, 即稻麦轮作生态系统, 实验田设在江苏吴县市农科所实验农场的典型水稻土潜

育性黄泥土上. 实验中采用一套自行研制的 N_2O 自动采样分析系统对整个稻麦轮作周期内的 N_2O 排放通量和温度进行全天候适时原位连续测量. N_2O 通量自动观测系统上设有 8 个温度探头, 分别安装在 0、2、5、10、15 cm 土层深度和距离地面 1.5 m 高度, 在全天候连续测量 N_2O 排放通量的同时, 系统每 15 min 自动记录 1 次 8 个探头的温度数据.

为研究温度对土壤产生 N_2O 的影响, 采用 1300 ml 可塑瓶密闭培养法^[9] 进行了一系列的模拟培养实验. 具体方法是, 将经风干磨碎的水稻田耕层土壤, 按一定水土比湿润后分别置于不同温度条件下密闭恒温培养, 定时用注射器抽取培养瓶中气体样品, 用气相色谱仪分析 N_2O 浓度, 换算成单位土壤的 N_2O 累积产量, 并用累积产量-时间曲线的最大斜率代表培养土壤样品的 N_2O 产生率, 即单位时间单位质量土壤排出的 N_2O 质量数. 培养土壤样品为 1994 年插秧前采集并经风干粉碎的实验田耕层土壤, 其有机质、TN、TP (以 P_2O_5 计) 和 TK (以 K_2O 计) 含量分别为 $34.93 \text{ g} \cdot \text{kg}^{-1}$ 、1.88 g ·

* 本研究属攀登计划第 27 项内容, 同时受国家自然科学基金 (批准号 49675270) 和边界层物理与大气化学国家重点实验室资助. 参加工作的还有骆冬梅和江苏吴县市农科所的金继生和李老土.

收稿日期: 1997-01-21

kg^{-1} 、 $1.15\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$ 和 $13.4\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$. 用可塑瓶进行培养实验,是为了避免采气样造成负压后影响 N_2O 产生过程^[9]. 实验中设有10、16、22、27和44 5个温度处理,每个温度条件下又分别设有普通空气和低氧分压2种初始 O_2 浓度处理^[9]. 为了研究土壤样品培养过程中的 N_2O 产生机制,本实验还分别采用NaCl溶液浸提-蒸馏定氮法和水浸提-离子色谱法对27恒温培养土壤的 NH_4^+ 和 NO_3^- 含量变化进行了监测.

2 结果与讨论

2.1 温度对 N_2O 产生的影响

(1) N_2O 累积产量的时间变化 图1和图2显示了水土比为0.8:1时各种处理的 N_2O 累积产量时间变化. 比较这些结果可以发现,初始 O_2 浓度相同时, N_2O 累积产量随培养时间的变化明显不同,无论是低氧分压还是普通空气培养,达到 N_2O 累积产量极大值的时间随培养温度升高而显著地急剧缩短,且二者的对数呈显著负相关(如图3). 培养温度相同时,2种初始 O_2 浓度处理的 N_2O 累积产量时间变化也存在明显差异. 这主要表现为:温度较低时,如10(283K),普通空气处理的累积产量值要比低氧分压处理的低一个数量级,且前者比后者更早地达到累积产量极大值(图1a和图2a),而当温度高于10 时,普通空气处理达到极大值的时间却略滞后于低氧分压处理;低氧分压处理的 N_2O 累积产量达到极大值之后立即呈显著下降趋势(如图1b—d),而普通空气处理则不然. 图1a显示的结果说明,当温度低于硝化作用发生的适宜温度下限15 时, N_2O 产量显著偏低,这意味着,空气处理产生的 N_2O 主要自于硝化过程. 和其他温度处理相比,图2a中的 N_2O 产量偏低不如图1a明显,表明10 低氧分压培养产生的 N_2O 主要来源于反硝化作用,因为通常> 5 的温度条件就适宜于发生微生物反硝化作用,且温度越偏低, N_2O 在反硝化产物中的比重越大^[1]. 多次重复实验均发现,27 空气培养时,刚湿润土壤就有大量 N_2O 从土壤

中排出,然后密闭环境中的 N_2O 浓度急剧下降到接近空气本底的水平,之后迅速上升,直到出现极大值(如图2c). 其它3个温度条件下这种现象不明显. 出现这种现象的原因,有待进一步探讨.

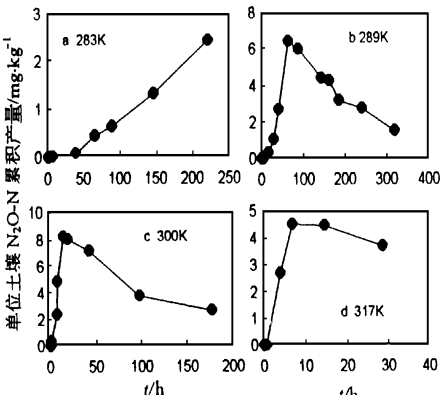


图1 不同温度条件下恒温培养土壤样品的 N_2O 累积产量时间变化
(10g 风干土+ 8ml 水, 低氧分压培养)

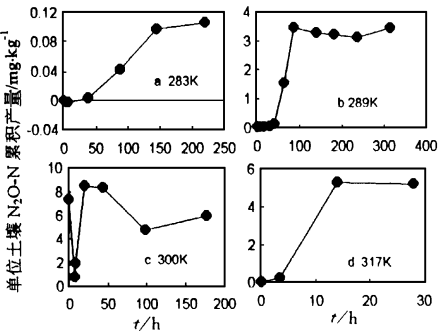


图2 不同温度条件下恒温培养土壤样品的 N_2O 累积产量时间变化
(10g 风干土+ 8ml 水, 空气培养)

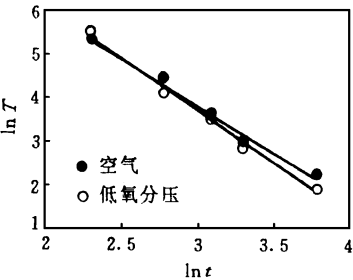


图3 N_2O 累积产量达到极大值的时间与温度的关系
(T 代表温度/ , t 代表时间/h)

图4显示了27 恒温培养过程中土壤

NH_4^+-N 和 NO_3^--N 含量的监测结果. 通过比较分析图1c, 图2c 和图4后可以认为, 达到极大值之前 N_2O 累积产量急剧上升是土壤微生物硝化和反硝化作用2个过程共同产生 N_2O 的结果, 但整个培养过程中 N_2O 累积产量变化状况与土壤中 NH_4^+ 浓度变化的关系更为密切. 出现累积产量极大值后, 低氧分压处理的 NH_4^+ 含量仍在大幅度上升, 而空气处理, 则由于环境中仍然有足够的 O_2 用于硝化作用, 使得 NH_4^+ 含量立即大幅度下降, 同时, 硝化作用也仍然产生 N_2O , 因而, 空气处理的 N_2O 累积产量达到极大值, 其下降趋势不明显. 对于低氧分压处理, N_2O 累积产量在极大值之后急剧下降, 是因为环境中高度缺 O_2 , 使 N_2O 气体被仍然活跃的反硝化微生物进一步反硝化还原.

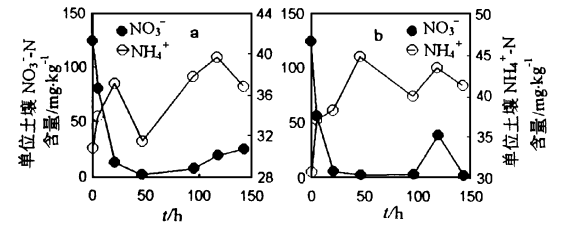


图4 土壤恒温培养过程中 NO_3^--N 和 NH_4^+-N 含量变化
(a. 10g 风干土+ 8ml 水, 300K, 空气培养; b. 同 a, 低氧分压培养)

(2) 温度对 N_2O 产生率的影响 如图5所示, 水土比为0.8:1时, 低氧分压处理的 N_2O 产生率在10—44 范围内与温度呈正相关, 而空气处理则只在10—27 时呈线性相关. 这表明, 空气培养处理产生的 N_2O 较多地来源于硝化过程, 因为当培养温度大于发生硝化作用的适宜温度上限35 时, N_2O 产生率显著下降(如图5b).

同样在27 条件下, 水土比 $> 4:1$ 或 $< 0.3:1$ 时, 培养土壤的 $\text{N}_2\text{O}-\text{N}$ 产生率都低于 $0.03\text{mg}\cdot\text{h}^{-1}\cdot\text{kg}^{-1}$, 因此, 在较干燥的旱地或在淹水稻田, 通常检测不到明显的 N_2O 排放通量.

2.2 N_2O 排放季节变化与温度的关系

对整个稻麦轮作周期的 N_2O 排放进行全天候连续观测的结果, 均未检测到明显的 N_2O 负通量. 经测定, 稻麦轮作系统中植株本身的

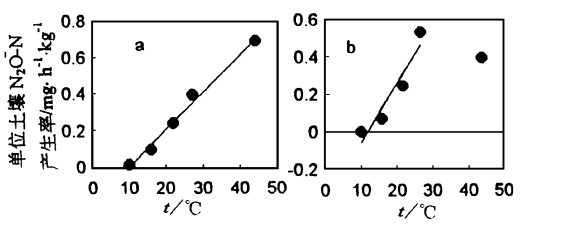


图5 温度与培养土壤 N_2O 产生率的关系
(a. 10g 风干土+ 8ml 水, 300K, 低氧分压培养; b. 同 a, 空气培养)

N_2O 排放量仅为土壤和植株总排放量的1%—3%^[10], 因而, 在讨论温度对农田 N_2O 排放的影响时, 将植株本身的排放忽略不计.

(1) 水稻田 N_2O 排放季节变化与温度 观测结果表明, 在水稻生长期内, N_2O 排放的季节性变化与温度的关系不明显. 如图6所示, 从6月中旬到10月中旬稻田停止灌水以前, 日平均气温和5cm 土层日平均温度均介于17—34 之间, 具备土壤中硝化和反硝化形成 N_2O 的适宜温度条件, 但明显的 N_2O 排放却只发生在排水或追施氮肥时, 与日平均气温或土壤温度关系不明显. 这表明, 这一阶段影响 N_2O 排放的关键因素是土壤湿度或养分状况, 而不是温度. 只有在田间停止灌水的水稻生长后期, 当气温明显降到10 左右或5cm 土壤湿度降到15 左右时, N_2O 才明显地受到日平均温度变化的影响(如图6).

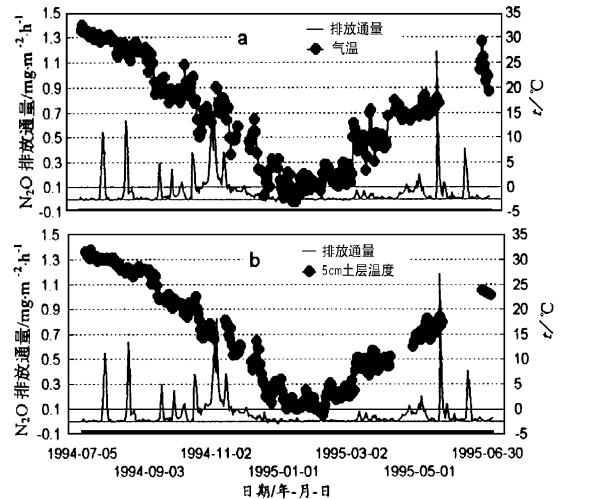


图6 温度与 N_2O 排放通量季节变化

(2) 旱地 N_2O 排放季节变化与温度 从图6可见, 11月初以后, 麦田 N_2O 排放随气温和土壤温度下降而逐渐减弱, 直到至12月中旬以后降到检测限 ($0.0175\text{mg}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{h}^{-1}$) 附近. 12月中旬到3月初以前, 气温和土壤温度基本上都维持在 5°C 以下, 这一阶段即使施肥也检测不到明显的 N_2O 排放. 3月上旬至6月中旬田间淹水以前, 温度通常高于 10°C , N_2O 排放随温度和土壤温度变化而起伏. 分析结果表明, 当土壤湿度适宜时, 稻麦轮作生态系统旱地阶段的 N_2O 排放对表层土壤温度的依赖性可以用指数函数 $F = Ae^{at}$ 来描述, 式中 F 为 N_2O 日平均排放通量, t 为 5cm 土层深度的日平均温度, A 和 a 为常数. 如图7所示, 温度 $5^\circ\text{C} < t < 28^\circ\text{C}$ 时, 系数 A 和 a 分别为 0.00516 和 0.23477 , N_2O 排放通量经对数变换后与温度呈显著正相关. 图7中 18°C 左右的实际观测值出现了3个偏离拟合曲线较大的奇异点, 这是降雨引起 N_2O 爆发排放的结果, 其原因尚难以解释清楚.

分析结果显示, 土壤湿度太低或田间淹水时, N_2O 排放与温度之间不存在明显相关性. 但在温度适宜的旱地阶段, N_2O 排放通量与降雨量和土壤湿度均呈显著正相关^[9]. 这表明, 田间土壤水分含量影响着由温度条件所决定的 N_2O 排放潜力的正常发挥.

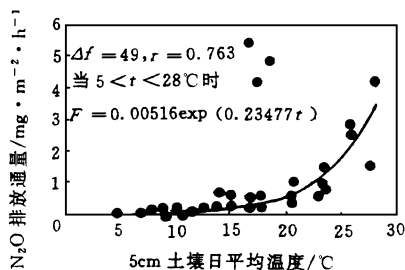


图7 N_2O 排放的土壤温度效应

(3) N_2O 排放的温度分布 如图8所示, 稻麦轮作周期内大于观测系统检测限2倍(即 $0.035\text{mg}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{h}^{-1}$) 的 N_2O 排放通量发生的频率随表层土壤(5cm 土层深度) 日平均温度变化而呈正态分布, 67% 的 N_2O 排放量都集中在 $15\text{--}25^\circ\text{C}$ 温度范围, $> 25^\circ\text{C}$ 和 $< 15^\circ\text{C}$ 时的排放量仅分别占17%和16%. 之所以发生这样的分

布, 是因为轮作周期内的高温和低温阶段都由于土壤过湿或温度过低而限制了 N_2O 的产生和排放过程.

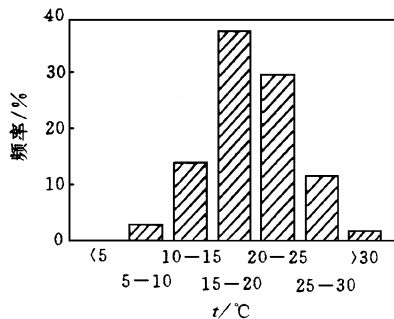


图8 显著 N_2O 排放发生的频率随温度分布

2.3 温度与 N_2O 排放日变化

N_2O 排放日变化表现为随机性和规律性2种形式, 规律性日变化(如图9)通常发生在土壤水分、养分等状况都相对稳定, 且温度日差比较大的晴天. 从图9可见, 土壤水分过饱和的稻田与水分不饱和的麦田相比, 它们的 N_2O 排放规律性日变化均与温度日变化密切相关, 且具有相同的变化形式, 但二者达到极大值的时间却有所不同, 后者约比前者延迟3h左右.

很显然, 图9a 显示的 N_2O 日排放几乎与气温和表层土壤温度同步地达到极大值, 排放极小值通常发生在夜间. 这样的日变化格局很可能取决于 N_2O 气体在土壤和水中的扩散传输过程. 水稻成熟期以前的表层土壤温度通常都在 25°C 以上, 只要能保证一定量的 O_2 供应, 即使夜间, 土壤中也产生 N_2O . 但由于 N_2O 气体在水和泥浆中的扩散传输较慢, 所产生的 N_2O 未及时排放出. 白天, 随温度上升, N_2O 的扩散传输也加快, 使夜间产生并积累在土壤中的 N_2O 逐渐排出, 从而表现为 N_2O 排放速率的变化几乎与气温和表层土壤温度同步.

如图9b 所示, 对于土壤水分一般不饱和的麦田而言, 其 N_2O 排放达到极大值的时间要比气温和表层土壤温度延迟2h左右. 这样的日变化格局很可能取决于土壤中的 N_2O 产生过程. 小麦生长季的表层土壤温度通常低于 20°C , 温度变化将强烈地影响 N_2O 产生过程(如图7). 同时, N_2O 气体在水分不饱和土壤中主要通过

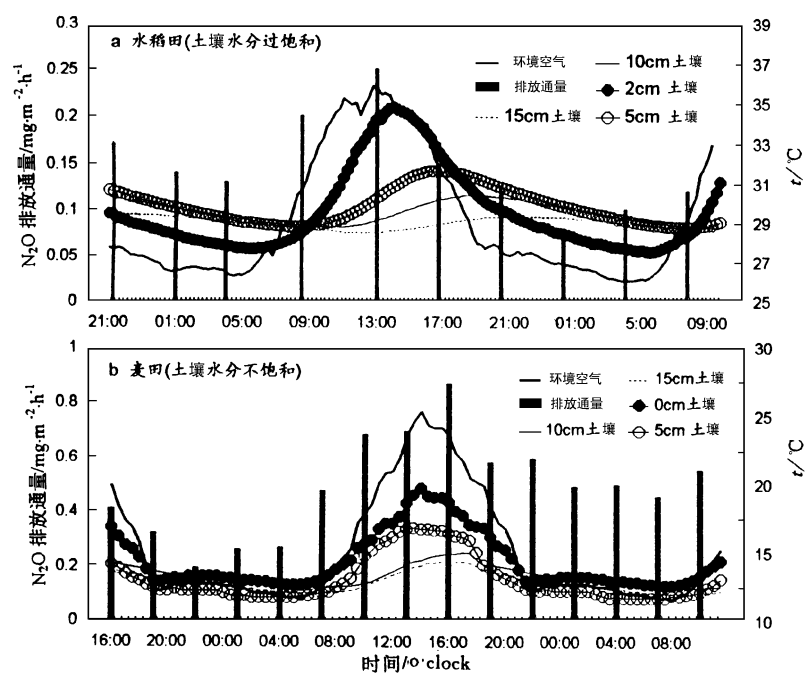


图9 N₂O 排放通量和温度的规律性日变化

孔隙内的气体介质扩散传输,其扩散系数比在水分过饱和土壤中中大2—4个数量级,从而可使新产生的N₂O及时排出土壤.实验结果还表明,麦田土壤的N₂O产生过程主要发生在0—10cm土层.因此可以认为,麦田N₂O日排放峰值比温度峰值延迟,很可能是土壤中产生N₂O的酶活性对温度变化的响应滞后的结果.

参 考 文 献

1 朱兆良和文启孝主编.中国土壤氮素.南京:江苏科学技术出版社,1992:303

2 Anderson I C and Levine J S. Relative rates of nitric oxide and nitrous oxide production by nitrifiers, denitrifiers, and nitrate respirers. *Appl. Environ. Microbiol.*, 1986, **51**: 938—945

3 Firestone M K and Davidson E A. Microbiological basis of NO and N₂O production and consumption in soil. In: *Exchange of Trace Gases between Terrestrial Ecosystems and the Atmosphere* (ed. M. O. Andreae and D. S. Schimel). New York: John Wiley, 1989: 7—21

4 Poth M and Focht D D. ¹⁵N kinetic analysis of N₂O production by nitrosomonas europea: An examination of nitrifier denitrification. *Appl. Env. Microbiol.*, 1985, **49**: 1134—1141

5 Williams E J, Hutchinson G L and Fehsenfeld F C. NO_x and N₂O emission from soil. *Global Biogeochemical cycles*, 1992, **6**(4): 351—388

6 Christensen S and Tiedje J M. Brief and vigorous N₂O production by soil at spring thaw. *Journal of Soil Science*, 1990, **41**: 1—4

7 Benckiser, G, Haider K and Sauerbeck D. Field measurement of gaseous nitrogen losses from an Alfisol planted with sugar beets (in English). *Zeitschrift fur pflanzener-nahrung und Bodenkunde*, 1986, **149**: 250—261

8 Skiba U. Emissions of NO and N₂O from soils. In: *Environmental Monitoring & Assessment*, No. 31, Netherlands: Kluwer Academic Publishers, 1994: 153—158

9 郑循华,王明星和王跃思等.稻麦轮作生态系统中土壤湿度对N₂O产生与排放的影响. *应用生态学报*, 1996, (3): 213—219

10 郑循华.农田N₂O产生与排放过程研究.中国科学院大气物理所博士论文,北京:1996:76—77

Impacts of Temperature on N₂O Production and Emission. Zheng Xunhua, Wang Mingxing et al. (Institute of Atmospheric Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100029): *Chin. J. Environ. Sci.*, **18**(5), 1997, pp. 1—5

N₂O emission fluxes from a rice-wheat rotation ecosystem of the Taihu Region in South-east China and temperature of air and soil were simultaneously measured with an automated system to understand the effects of temperature on N₂O emission. The principle of this automated system for N₂O emission measurement was based on static chamber techniques and gas chromatography with an electronic capture detector. Additionally, some simulated experiments were also undertaken in laboratory to study temperature impacts on N₂O production. Based on the results from this experimental study, conclusions as following could be drawn. N₂O emission flux from fields with suitable moisture is exponentially correlated to top soil temperature. The occurring frequency of significant N₂O emission in a rice-wheat rotation cycle versus top soil temperature is in normal distribution, with 67% of the total N₂O amount emitted within 15—25 °C. Temperature is rather a key factor regulating N₂O emission from wheat fields. However, on significant relationship between temperature and seasonal variation of N₂O emission from rice field was found. Although the diurnal maximum of N₂O emission from rice fields which occurs simultaneously with diurnal temperature peak appears about 3 hours earlier than that from wheat fields, the diurnal variation patterns from both rice and wheat fields are the same.

Key words: N₂O emission, temperature, N₂O production, rice-wheat ecosystem, emission fluxes, farmland.

Calculation of Critical Loads for Acid Deposition with Steady-state Acidification Model. Xie Shaocong, Hao Jiming, Zhou Zhongping (Dept. of Environ. Eng., Tsinghua Univ., Beijing 100084): *Chin. J. Environ. Sci.*, **18**(5), 1997, pp. 6—9

A steady-state soil chemistry model was used to calculate the critical loads of acid deposition for schist red earth and surface water in Liuzhou Area. A complete and systematic approach to collect, measure and estimate the parameters required by the model was established, and some empiric formulas to calculate total deposition from wet deposition for coniferous ecosystems in this area were acquired.

The results indicate that schist red earth in this area have reached a steady-state with the acid deposition, whose critical loads of acidity, potential acidity and sulfur deposition are 1.96, 1.88 and 1.1 keq·hm⁻²·a⁻¹ (1.8 g Sm⁻²·a⁻¹) respectively, and those of surface water 0.88, 0.80 and 0.61 keq·hm⁻²·a⁻¹ (1.0 g Sm⁻²·a⁻¹) respectively.

Key words: steady-state acidification model, critical load, red earth, acid deposition, schist red earth, surface water, empiric formula.

Study of Atmospheric Reaction between Isoprene and O₃. Li Shuang, Chen Zhongming, Shao Kesheng, Tang Xiaoyan (The State Key Laboratory of Environmental Simulation and Pollution Control, Center of Environmental Sciences, Peking University, Beijing 100871): *Chin. J. Environ. Sci.*, **18**(5), 1997, pp. 10—14

The reaction of isoprene-O₃ in the dark was studied by means of the Long Path Fourier Transform Infrared (LP-FTIR) method. Experiments were carried out in the evacuable quartz reactor with the volume of 28.5 L under the room temperature. The experiment results indicated that the major products in the isoprene-O₃ reaction system are methacrolein, methyl vinyl ketone and HCHO, with a yield of 37.4%, 20.2% and 55.1%, respectively. Other products identified in the FTIR spectrum are HCOOH, CO and CO₂, etc. The reaction mechanism for the ozone oxidation of isoprene is briefly discussed.

Key words: isoprene, O₃, LP-FTIR, atmospheric reaction.

N₂O Exchanges between Atmosphere and Territory from Forest and Grassland. Liu Ye, Mu Yujing, Zhong Jinxian, Yang Wenxiang (Research Center for Eco-Environment Sciences, Chinese Academy of Sciences, 100085): *Chin. J. Environ. Sci.*, **18**(5), 1997, pp. 15—18

Nitrous oxide(N₂O) is not only a major greenhouse gas in the atmosphere, but also an important matter that can cause ozone depletion. The emission sources of N₂O are consisted by a large number uncertain minor sources. Besides agricultural soils, grassland and forest soils are also the major natural source of N₂O emissions. In this paper, a completed method to determine the N₂O emission flux from forest and grassland soil by a closed chamber installation was set up, and the N₂O emission at the natural environment was measured in