

太湖地区湖水与河水中溶解 N_2O 及其排放

熊正琴, 邢光熹, 沈光裕, 施书莲, 杜丽娟(中国科学院南京土壤研究所物质循环开放实验室, 南京 210008)

摘要: 水体是 N_2O 排放的重要来源. 2000-09 ~ 2001-09, 每月 2 次采样(重复 3 次)连续监测太湖地区太湖和大运河水体 N_2O 排放通量和水中溶解的 N_2O 浓度, 还同时监测不同深度水样中的 N_2O 浓度. 结果表明, 太湖 N_2O-N 的年均排放通量为 $3.53 \mu\text{g}/(\text{m}^2 \cdot \text{h})$, 而大运河已高达 $122.5 \mu\text{g}/(\text{m}^2 \cdot \text{h})$. 太湖湖水中溶解 N_2O-N 浓度为 $0.36 \mu\text{g}/\text{L}$, 大运河河水中浓度高达 $11.31 \mu\text{g}/\text{L}$, 浅水型水体是 N_2O 排放的源. 结果还表明, 不同深度水中 N_2O 浓度差异不明显, 而时间差异显著. 水面 N_2O 的排放通量和水中溶解的 N_2O 浓度呈显著正相关关系, 二者又都与水温呈显著正相关.

关键词: 太湖地区; N_2O 排放; 水中溶解 N_2O ; 水体

中图分类号: X16 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2002)06-05-0026

Dissolved N_2O Concentrations and N_2O Emissions from Aquatic Systems of Lake and River in Taihu Lake Region

Xiong Zhengqin, Xing Guangxi, Shen Guangyu, Shi Shulian, Du Lijuan(Laboratory of Material Cycling in Pedosphere, Institute of Soil Science, Chinese Academy of Sciences, Nanjing 210008, China)

Abstract: Aquatic systems are an important source of N_2O emissions. N_2O concentrations dissolved in lake and river water in Taihu Lake region and N_2O fluxes from these waterbodies were monitored twice a month in three replicate from Sept. 26, 2000 to Sept. 26, 2001. At the same time, both top and bottom water were analyzed for N_2O concentrations four times in a consecutive year. Results demonstrated that rather high N_2O-N concentrations of $11.31 \mu\text{g}/\text{L}$ were dissolved in river water and resulted in high N_2O-N fluxes of $122.5 \mu\text{g}/(\text{m}^2 \cdot \text{h})$ from river water surfaces while low N_2O-N concentration of $0.36 \mu\text{g}/\text{L}$ and N_2O-N flux of $3.53 \mu\text{g}/(\text{m}^2 \cdot \text{h})$ was found in lake water. No obvious difference was found in dissolved N_2O concentration between top water and bottom water. Results also indicated that there existed significantly positive relationship between dissolved N_2O concentration and N_2O flux and water temperature. The results indicate that the aquatic systems are an important source of N_2O .

Key words: Taihu Lake region; N_2O emissions; dissolved N_2O ; aquatic system

在相同数量下, N_2O 的全球增温潜能(GWP)是 CO_2 的 320 倍, 是 CH_4 的 13 倍. N_2O 在大气中的寿命为 166 ± 16 年^[1]. 同时 N_2O 在平流层中发生光化学反应形成 NO , 是破坏臭氧层的重要参与者. 大气中 N_2O 浓度从工业革命以来, 以平均每年 $0.2 \sim 0.3\%$ 的速度增加, N_2O 对总的 GWP 的贡献将来可能增加到 10% ^[2]. 目前对 N_2O 的研究集中在农田土壤^[3,4]. 而淡水及海岸生态系统水体 N_2O-N 排放量估计可达 $1.9 \text{ Tg}/\text{a}$ ^[5], 其量与耕地、草地、动物排泄物相当^[6]. 太湖地区是长江三角洲经济发达地区, 人口密集. 该地区水系以太湖为主体, 有众多河

流, 是研究经济高度发达地区水体 N_2O 的典型区域^[7-9].

因此, 本文报道了 2000-09 ~ 2001-09 湖水与河水水体 N_2O 排放量及水中溶解 N_2O 浓度的变化, 同时初步研究了湖水、河水 N_2O 浓度在不同深度的变化.

1 材料与方法

1.1 采样地点及样品采集

基金项目: 国家自然科学基金重大项目(39790100); 国家自然科学基金项目(49971048)

作者简介: 熊正琴(1973 ~), 女, 博士生, 主要从事土壤氮循环对环境的影响研究.

收稿日期: 2001-12-12; 修订日期: 2002-04-01

湖水采集点位于太湖中心区域吴县扬午村石贡山附近,河水选择京杭大运河吴县河段为代表,采集点位于吴县农业科学研究所附近,每月采样 2 次,测定 N_2O 通量和水中溶解 N_2O 浓度,同时测定箱温、水温、水位,水样采自水面下 0.3 ~ 0.5 m 处,不同时间表层、底层水的采集一年采 4 次,表层水指水面下 0.3 ~ 0.5 m 处,底层水指离河、湖底 5 ~ 10 cm 处,均重复 3 次.

1.2 N_2O 气样采集和计算

N_2O 气体样品采用密闭箱法采集,采样装置、方法类似于 Minami 提供的方法^[10].密闭箱为 0.34 m × 0.34 m × 0.25 m 的有机玻璃箱,每月观测 2 次,每隔 30 min 采 1 次,在 0.30、60.90 min 时采集气样共 4 次,同时测定箱温、水温、气温和水位.

1.3 测定水中溶解 N_2O 水样的采集和计算

根据 Terry 等^[11]的方法,用注射器将 5 mL 水样注入 18.5 mL 的真空瓶(日本国立农业环境研究所提供)中,立即充入当时当地空气,使与外界大气平衡,立即放入保冰瓶中运回实验室冰冻保存,再在 5 °C 下平衡 24 h,抽取瓶内上部空气测定该气体中 N_2O 浓度.根据 Terry 等^[11]提供的公式计算水中溶解 N_2O 的浓度,采用 5 °C 下的 Bunsen 吸收系数(α)1.06 计算.

1.4 N_2O 测定

N_2O 样品用带十通阀控制的反吹装置和 ^{63}Ni 电子捕获器的气相色谱(HP 5890 II)测定.测定条件为:进样口温度 100 °C,炉温 85 °C,检测器温度 320 °C.前置柱为 1 m × 0.3 cm 的不锈

钢 Porapak Q 柱,分析柱为 3 m × 0.3 cm 的不锈钢 Porapak Q 柱(填充剂为 80 ~ 100 目的 Porapak Q),载气为 95 % 氩气 + 5 % 甲烷,流速为 30 mL · min⁻¹.

1.5 数据分析

N_2O 通量、浓度结果用 3 个重复平均值及标准偏差表示,年均值是将各个重复的每次观测值平均,湖水与河水则以 3 个重复的年均值进行相互比较,不同时间表层、底层水样平均值进行双因素方差分析和杜肯多重比较.相关性的分析是用全部观测值进行的.

2 结果与讨论

2.1 太湖 N_2O 排放通量和水中溶解 N_2O 浓度

湖水 N_2O 排放通量和水中溶解 N_2O 浓度的时间变化曲线见图 1.其全年结果列入表 1 和表 3,相关性见表 2.太湖湖面 N_2O 排放通量和水中溶解 N_2O 浓度表现出明显的季节变化(图 1), N_2O-N 排放通量只有夏季较高,其他季节很低,从 10 月到次年 6 月平均只有 1.7 $\mu g / (m^2 \cdot h)$ 左右. N_2O-N 排放通量变化在 0.2 ~ 20 $\mu g / (m^2 \cdot h)$ 之间,年均值 3.53 $\mu g / (m^2 \cdot h)$ (表 1),夏季(7 ~ 9 月)的时间变化明显大于其他季节.

水中溶解 N_2O 浓度的时间变化与通量的变化基本一致, N_2O 的排放与溶解 N_2O 浓度呈显著正相关关系(表 2). N_2O-N 浓度普遍较低,平均值为 0.36 $\mu g / L$,在 0.19 ~ 0.78 $\mu g / L$ 间变动(表 1),其时间变化幅度要小于排放通量的时间变化.图 1 还表明,溶解 N_2O 浓度峰值出现在 N_2O 排放峰值之前约 1 个月; N_2O 排放通

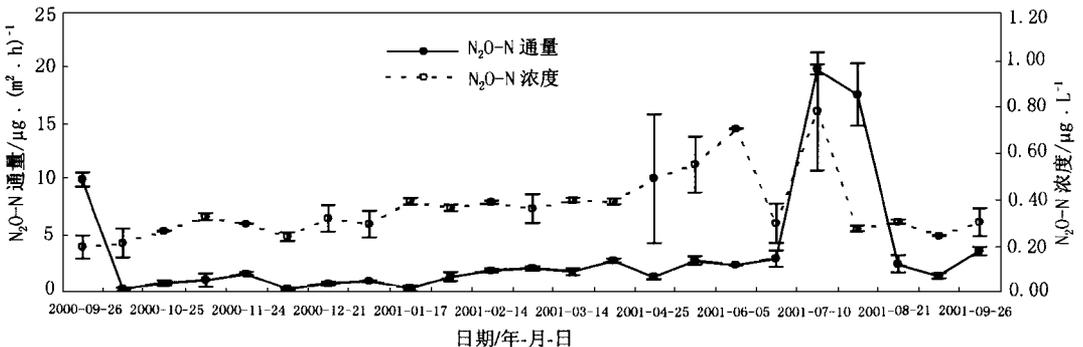


图 1 太湖 N_2O 排放通量和水中溶解 N_2O 浓度的时间变化

Fig. 1 Temporal variations of N_2O flux and dissolved N_2O concentration in lake Tai. Bars indicate SD ($n = 3$)

表 1 湖水及河水中 N₂O 通量和 N₂O 浓度年均值

Table 1 Annual averages of N₂O flux and dissolved N₂O concentrations in lake and river waterbodies

| 样品 | N ₂ O-N 通量/μg·(m ² ·h) ⁻¹ | | N ₂ O 浓度/μg·L ⁻¹ | |
|----|--|-----------|--|------------|
| | 平均值±标准差 | 全距 | 平均值±标准差 | 全距 |
| 湖水 | 3.53±0.16 B ¹⁾ | 0.20~20.0 | 0.36±0.01 B | 0.19~0.78 |
| 河水 | 122.5±1.62 A | 3.3~582.3 | 11.31±0.30 A | 0.56~62.99 |

1) 同一列中具有相同字母的平均值表示根据杜肯新复级差测验其差异在 α=0.01 水平上不显著。

量与溶解 N₂O 浓度的相对比值在夏季较高,其他季节低.这说明 N₂O 排放有滞后现象,同时由于夏季水温高,水中溶解 N₂O 向大气扩散速度增高,水中溶解度也降低^[12],导致 N₂O-N 排放从 6 月的 3 μg/(m²·h) 急剧增加到 7 月的 20.5 μg/(m²·h). N₂O 排放峰值的出现与春夏之交水温的升高一致(图 3);排放通量与水温呈显著正相关关系(表 2).

2.2 大运河 N₂O 排放通量和水中溶解 N₂O 浓度

河水 N₂O 排放通量和水中溶解 N₂O 浓度的时间变化曲线见图 2,其全年结果列入表 1 和

表 3,相关性分析见表 2.从图 2 明显可见,河水 N₂O 排放通量和水中溶解 N₂O 浓度表现出更为明显的时间变化,同样是夏季排放通量高于其他季节.同时排放通量在夏季(8~9 月)的时间变化也大于其他季节.N₂O-N 排放通量从 7 月的 41.3 μg/(m²·h) 急剧增加到 8 月中的 201.7 μg/(m²·h),8 月下旬又增为 535.4 μg/(m²·h).除 8~9 月外,N₂O-N 排放通量平均在 52.8 μg/(m²·h) 左右.N₂O-N 排放通量年均值 122.5 μg/(m²·h),变化在 3.3~582 μg/(m²·h) 之间(表 1).

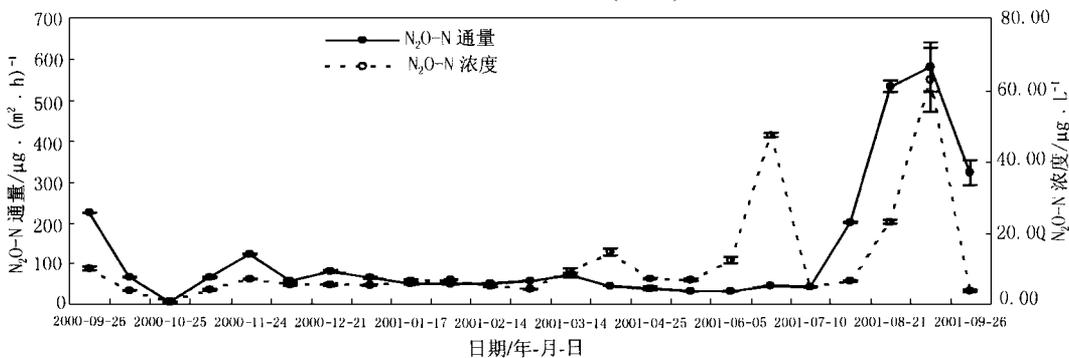


图 2 大运河 N₂O 排放通量和水中溶解 N₂O 浓度的时间变化

Fig.2 Temporal variations of N₂O flux and dissolved N₂O concentration in river Bars indicate SD (n=3)

表 2 N₂O 排放通量和溶解 N₂O 浓度及水温的相关系数

Table 2 Correlation coefficients between N₂O flux and concentrations of dissolved N₂O and water temperature

| 项目 | 湖水 | 河水 |
|--|-----------------------|----------------------|
| N ₂ O 通量与 N ₂ O 浓度 | 0.3043 ¹⁾ | 0.5729 ²⁾ |
| N ₂ O 通量与水温 | 0.55734 ²⁾ | 0.5924 ²⁾ |
| N ₂ O 浓度与水温 | 0.0651 | 0.3812 ²⁾ |

1) 和 2) 分别表示在 α=0.05 和 0.01 水平上的显著相关性 (n=69).

关系(表 2).水中溶解 N₂O-N 浓度在多数时间下较低,除出现 2 次峰值外,平均在 7.1 μg/L 左右.年均浓度 11.31 μg/L,在 0.56~63 μg/L 间变动(表 1).图 2 还表明,在 N₂O 排放峰值之前约 1 个月,溶解 N₂O 浓度就出现了峰值;N₂O 排放峰值的出现也与春夏之交水温的升高一致(图 3),排放通量及溶解 N₂O 浓度均与水温呈显著正相关(表 2).

2.3 太湖和大运河水体年均 N₂O 排放通量、溶解 N₂O 浓度及总量

溶解 N₂O 浓度与 N₂O 的排放呈显著正相

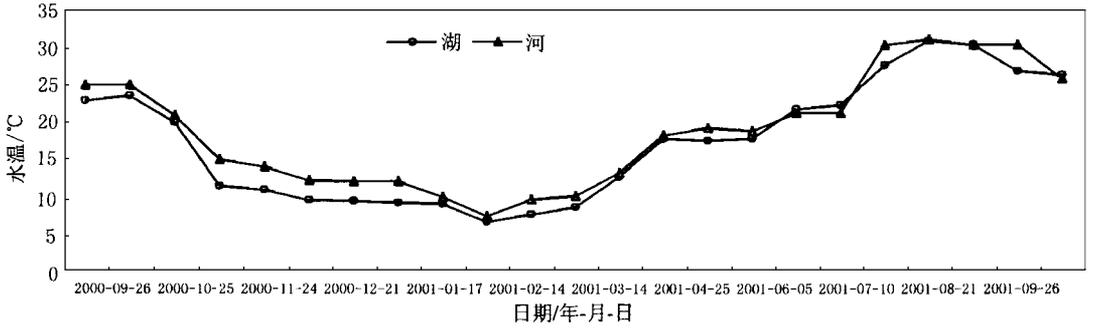


图 3 太湖和大运河水温的时间变化

Fig. 3 Temporal variations in average water temperature of lake and river (n = 3)

表 1 表明,河水 N_2O-N 通量年均高达 $122.5 \mu\text{g}/(\text{m}^2 \cdot \text{h})$,显著高于太湖;湖水很低,只有 $3.5 \mu\text{g}/(\text{m}^2 \cdot \text{h})$.河水中溶解 N_2O-N 年均浓度高达 $11.31 \mu\text{g}/\text{L}$,也显著高于湖水;湖水年均浓度只有 $0.36 \mu\text{g}/\text{L}$ (表 1).太湖为典型的浅水型湖泊,最大水深 3.33 m ,面积 2425 km^2 ,储水量 $5.09 \times 10^9 \text{ m}^3$.京杭大运河全长 1747 km ,流经太湖地区河段长 323.8 km ,宽 20 m ,深 $2 \text{ m}^{[13]}$.由此可计算出二者 N_2O-N 年总排放量及水中溶解 N_2O-N 总量.太湖水面辽阔,蓄水量极大,其 N_2O-N 年总排放量很高,为 74351 kg , N_2O-N 总储量也很大,达 2189 kg ;河水只计算了流经该地区且流域情况相似的京杭大运河江南河段, N_2O-N 年总排放量为 6949 kg , N_2O-N 总储量达 146.7 kg .仅此 2 项,水体 N_2O-N 年总排放量就高达 81300 kg ,溶解 N_2O-N 总储量为 2335.7 kg (表 3),是不可忽视的 N_2O 来源.

表 3 太湖地区水面 N_2O 年排放量及水体 N_2O 总储量

Table 3 The total N_2O in Taihu Region

| 项目 | 太湖 | 大运河 | 总计 |
|---|-----------------------|----------------------|--------|
| N_2O-N 年均通量/ $\mu\text{g} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{h})^{-1}$ | 3.5 | 122.5 | |
| 水域面积/ km^2 | 2425 | 6.48 | |
| 溶解 N_2O-N 浓度/ $\mu\text{g} \cdot \text{L}^{-1}$ | 0.43 | 11.33 | |
| 蓄水量/ L | 50.9×10^{11} | 1.3×10^{10} | |
| N_2O-N 年排放量/ kg | 74351 | 6949 | 81300 |
| N_2O-N 总溶解量/ kg | 2189 | 146.7 | 2335.7 |

2.4 湖水及河水 N_2O 浓度在不同深度水层中的变化

从表 4 和表 5 可以看出,不同深度湖水、河水 N_2O 浓度无显著差异,但不同时间采样差异显著.河水 N_2O 浓度的时间差异又大于湖水的时间差异.湖水 N_2O 浓度以春季最高,显著高于其他季节.河水时间差异在 4 季之间均达到显著水平,浓度从高到低依次为春、冬、夏、秋季采样.时间差异是季节变化、水位涨跌、微生物活性影响的综合结果. N_2O 浓度的时间变化均极大,一年内在何时采用将直接关系到分析结果的可信度,故宜采样一年多次采样求平均的方法.而不同深度水样间差异总体较小,接近底泥的水样(底层水)与水体水样(上层水)差异不大,表明了水体的均一性,底泥并无显著高于水体的氮素转化活性.而许多报道认为底泥与水体界面存在相当高的反硝化活性^[14,15],并进一步认为水体中的氮素主要是底泥中的反应产物继而扩散到上层水体中的结果^[16].有关底泥的作用机理还需进一步研究.

3 小结

- (1) 太湖地区水体是 N_2O 的重要来源,其排放量和水中溶解 N_2O 量不容忽视.
- (2) 太湖地区河水水体 N_2O 的排放通量和水中溶解的 N_2O 浓度有显著高于湖水.
- (3) 太湖地区水中 N_2O 的排放通量和水中溶解的 N_2O 浓度呈显著正相关关系,二者又都与水温呈显著正相关,具有明显的季节变化.
- (4) 不同层次水中溶解的 N_2O 浓度差异不明显,进一步说明水体本身就是 N_2O 的源.

表 4 湖水与河水中 N_2O N 浓度的单因素多重比较结果/ $\mu g \cdot L^{-1}$ Table 4 Multiple comparison of the average N_2O N concentrations of lake and river water

| 时间 | 湖水 | | 河水 | |
|------------|------------------------------|----------------|----------------|---------------|
| | 表层 | 底层 | 表层 | 底层 |
| 2001-02-01 | 0.36 ± 0.01 bc ¹⁾ | 0.37 ± 0.01 bc | 6.63 ± 0.15 b | 6.51 ± 0.26 b |
| 2001-04-25 | 0.49 ± 0.28 ab | 0.64 ± 0.02 a | 7.00 ± 0.22 ab | 7.21 ± 0.19 a |
| 2001-08-06 | 0.28 ± 0.01 bc | 0.26 ± 0.03 bc | 6.39 ± 0.32 bc | 5.98 ± 0.26 c |
| 2001-09-26 | 0.31 ± 0.06 bc | 0.17 ± 0.04 c | 3.98 ± 0.03 d | 3.62 ± 0.09 d |

1) 以平均值 ± 标准差 ($n=3$) 表示, 同一列中具有相同字母的平均值表示根据杜肯新复级差测验其差异在 $\alpha=0.05$ 水平上不显著。

表 5 湖水与河水中 N_2O N 浓度的双因素多重比较结果/ $\mu g \cdot L^{-1}$ Table 5 Multiple comparison of the average N_2O N concentrations of lake and river water according to 2-factorial arrangement

| 采样日期 | 湖水 | | | 河水 | | |
|--------------------|------|------|-----|------|------|----|
| | 表层 | 底层 | 时间 | 表层 | 底层 | 时间 |
| 2001-02-01 | 0.36 | 0.37 | Bbc | 6.63 | 6.51 | Bb |
| 2001-04-25 | 0.49 | 0.64 | Aa | 7.00 | 7.21 | Aa |
| 2001-08-06 | 0.28 | 0.26 | Bbc | 6.39 | 5.98 | Cc |
| 2001-09-26 | 0.31 | 0.17 | Bc | 3.98 | 3.62 | Dd |
| 水层位置 ¹⁾ | a | a | | a | a | |

1) 双因素试验的统计结果, 包括表层与底层水间的比较和不同时间间的比较, 有相同的大写/小写字母表示平均值间在 $\alpha=0.05/0.01$ 水平上差异不显著。

参考文献:

- Prinn R, Cunnold D, Rasmussen R et al. Atmospheric emissions and trends of nitrous oxide deduced from 10 years of ALE-GAGE data. *J. Geophys. Res.*, 1990, **95**: 18369 ~ 18385.
- IPCC. (Intergovernmental Panel on Climate Change/ Organization for Economic Cooperation and Development). Guidelines for National Greenhouse Gas Inventories. Paris: OECD/ OCDE, 1996.
- Xing GX. N_2O emission from cropland in China. *Nutr. Cycl. Agroecosyst.*, 1998, **52**: 249 ~ 254.
- Ronen D, Magaritz M, Almon E. Contaminated aquifers are a forgotten component of the global budget. *Nature*, 1988, **335**: 57 ~ 59.
- Seitzinger SP, Kroeze C, Styles RV. Global distribution of N_2O emissions from aquatic systems: natural emissions and anthropogenic effects. *Chemosphere-Global Change Science*, 2000, **2**: 267 ~ 279.
- Mosier A, Kroeze C. Potential impact on the global atmospheric N_2O budget of the increased nitrogen input required to meet future global food demands. *Chemosphere-Global Change Science*, 2000, **2**: 465 ~ 473.
- Bouwman AF, Hoek KW, Olivier JGJ. Uncertainties in the global sources distribution of nitrous oxide. *J. Geophys. Res.*, 1995, **100**: 2785 ~ 2800.
- Kroeze C, Seitzinger SP. The impact of land use on N_2O emissions from watersheds draining into the Northeastern Atlantic Ocean and European Seas. *Environmental Pollution*, 1998, **102**: 149 ~ 158.
- Hasegawa K, Hanaki K, Matsuo T et al. Nitrous oxide from the agricultural water system contaminated with high nitrogen. *Chemosphere-Global Change Science*, 2000, **2**: 335 ~ 345.
- Minami K. Emission of nitrous oxide (N_2O) from agroecosystem. *Japan. Agric. Res. Quart.*, 1987, **21**(1): 22 ~ 27.
- Terry RE, Tate III RL, Duxbury JM. The effect of flooding on nitrous oxide emissions from an organic soil. *Soil Science*, 1981, **132**(3): 228 ~ 232.
- Heincke M, Kaupenjohann M. Effects of soil solution on the dynamics of N_2O emissions: a review. *Nutr. Cycl. Agroecosyst.*, 1999, **55**: 133 ~ 157.
- 《中国地理概况》编写组. 中国地理概况. 上海: 东方出版中心, 1996. 210 ~ 219.
- Xing GX, Cao YC, Shi SL et al. N pollution sources and denitrification in waterbodies in Taihu Lake region. *Science in China (Series B)*, 2001, **44**(3): 304 ~ 314.
- Seitzinger SP. Denitrification in aquatic sediments. In: Revsbech N P, Sørensen J (eds.) *Denitrification in Soil and Sediment*. New York and London: Plenum Press, 1990. 301 ~ 321.
- Andersen J. Significance of denitrification on the strategy for preserving lakes and coastal areas against eutrophication. In: Golterman H L (ed.) *Denitrification in the Nitrogen Cycle*. New York: Plenum Press, 1985. 171 ~ 190.