

渗滤液灌溉土壤 N_2O 释放及氨挥发的研究

邵立明, 邱伟坚, 张后虎, 何晶晶*

(同济大学环境科学与工程学院, 污染控制与资源化研究国家重点实验室, 长江水环境教育部重点实验室, 上海 200092)

摘要: 选用 2 种供试土壤(S1 和 S2), 通过培养试验研究了渗滤液投加土壤后 N_2O 释放、氨挥发及矿物氮的转化, 并讨论了土壤理化性质对上述过程的影响. 土壤 pH 值较大幅度地决定了氨的挥发, 仅投加渗滤液的碱性土 S1 在培养期的前 5 d 内测到氨挥发, 通过氨挥发共损失了约 3.0‰ 的渗滤液氮. 投加同等含量的渗滤液后, 不同土壤可导致 N_2O 释放量近 20 倍的差异($p < 0.01$). 土壤含水率(WFPS)影响了土壤中硝酸盐氮的生成速率, 从而制约了 N_2O 释放通量的高低. 与 WFPS 为 46% 时相比, 投加蒸馏水的土壤 S1、投加渗滤液的土壤 S1 和土壤 S2 在 WFPS 为 70% 的条件下 N_2O 的释放通量均值分别提高了 6.5 ($p > 0.05$)、1.8 ($p > 0.05$) 和 2.2 倍($p < 0.05$). 渗滤液投加土壤在 10 d 培养期内, 土壤 S1 和 S2 因 N_2O 释放分别损失了 41.1‰ 和 2.3‰ 的渗滤液氮. 为此, 控制灌溉土壤的含水率($< 70\%$ WFPS), 并选用酸性土壤可有效地控制渗滤液灌溉下 N_2O 的释放和氨挥发.

关键词: N_2O 释放; 氨挥发; 渗滤液投加; 土壤理化特性; 含水率

中图分类号: X705 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2008)12-3520-05

N_2O Emissions and Ammonia Volatilization from Leachate Irrigated Soils

SHAO Li-ming, QIU Wei-jian, ZHANG Hou-hu, HE Pin-jing

(State Key Laboratory of Pollution Control and Resources Reuse, Key Laboratory of Yangtze River Water Environment, College of Environmental Science and Engineering, Tongji University, Shanghai 200092, China)

Abstract: The effect of soil properties on N_2O emissions and ammonia volatilization after leachate addition was investigated by soil S1 and S2 through incubation experiment. The conversions of soil NH_4^+ -N and NO_3^- -N contents after leachate addition were evaluated as well. Soil pH dominantly determines the ammonia volatilization after leachate addition and ammonia volatilization only happens by soil S1 of alkaline nature within the first 5-day during the 10-day incubation. Approximately 3.0‰ leachate ammonia-N is lost via ammonia volatilization from soil S1. After being added the same amount of leachate ammonia-N, there is an approximately 20-fold gap of N_2O emissions between two different soils: soil S1 and S2 ($p < 0.01$). Soil moisture content affects the net generation rate of NO_3^- -N contents substantially and N_2O fluxes are thus regulated accordingly. Compared with soils moisture content at water-filled pore space (WFPS) of 46%, N_2O fluxes are elevated by 6.5, 1.8, and 2.2 times from the leachate added soil S1 without leachate irrigation ($p > 0.05$), the leachate added soil S1 ($p > 0.05$), and the leachate added soil S2 ($p < 0.05$), respectively. During the 10-day incubation, N_2O emissions cause 41.1‰ and 2.3‰ leachate NH_4^+ -N loss from the leachate added soil S1 and S2, respectively. Therefore, avoiding excessively wet conditions ($< 70\%$ WFPS) and selecting acidic soil could minimize the potential N_2O emissions and ammonia volatilization under leachate irrigation.

Key words: N_2O emissions; ammonia volatilization; leachate addition; soil physicochemical property; moisture content

N_2O 是一种高效痕量的温室气体, 其增温潜势为 CO_2 的 296 倍, 对全球温室效应的贡献仅次于 CO_2 和 CH_4 ^[1], 还具有破坏臭氧层的能力. 自 1970 以来, N_2O 的释放增加了大约 50%, 当前 N_2O 释放占全球人为温室气体排放总量的 7.9%^[2].

垃圾填埋场渗滤液是一种常规生物技术难处理的污水, 而已有文献表明通过土壤灌溉, 可借助于土壤微生物的降解、腐殖质的截流、氨氮的植物吸收、水分的蒸腾蒸发等途径使之净化和减量^[3~5]. 然而, 渗滤液灌溉会引发土壤的干湿交替, 所含氨氮及有机碳能为土壤硝化反硝化和其它生物活动提供基质, 可能促进 N_2O 的释放^[6~10]. 目前, 渗滤液灌溉土壤后 N_2O 释放效应研究匮乏, 仅少数学者报道了我

国广州李坑垃圾填埋场渗滤液漫流灌溉填埋场覆土后 N_2O 释放的增长情况^[11,12], 但缺乏渗滤液灌溉填埋场覆土对 N_2O 释放影响及伴生的氨氮挥发^[13] 的系统研究.

土壤作为渗滤液灌溉的受体, 其理化性质对氨挥发及 N_2O 的释放起主要作用. 相关研究表明, 施加同量肥料后不同土壤的 N_2O 释放差异可达 1~2 个数量级^[14]; 甚至有监测发现, 某耕作土中投加污

收稿日期: 2007-12-11; 修订日期: 2008-03-04

基金项目: 国家高技术研究发展计划(863)项目(2001AA644010, 2003AA644020); 国家自然科学基金重点项目(50538080); 国家科技支撑计划项目(2006BAC06B05)

作者简介: 邵立明(1962~), 男, 博士, 教授, 主要研究方向为固体废物处理与资源化利用, E-mail: xhpjk@mail.tongji.edu.cn

* 通讯联系人, E-mail: solidwaste@mail.tongji.edu.cn

水厂污泥堆肥后, N₂O 的释放并无显著增加^[15], 可见土壤类型的选择对其添加碳、氮养分后的 N₂O 释放控制至关重要.

本研究考察了投加渗滤液后, 土壤氨挥发及 N₂O 释放的情况, 分析了土壤矿物氮的转变过程, 探索了土壤理化特性对 N₂O 释放量的影响, 以期为通过土壤选择控制渗滤液灌溉过程的 N₂O 释放提供依据.

表 1 供试土壤理化特性(*n* = 3)

Table 1 Physiochemical characteristics of the selected soils for incubation experiment (<i>n</i> = 3)									
土壤名称	pH	总氮 /%	有机质 /%	NH ₄ ⁺ -N /mg·kg ⁻¹	NO ₃ ⁻ -N /mg·kg ⁻¹	C/N	土壤质地/%		
							砂粒	壤粒	粘粒
土壤 S1	8.71	0.076	1.42	48.1	4.17	10.8	17.4	43.2	39.4
土壤 S2	5.99	0.060	0.66	71.4	1.76	6.4	52.1	25.0	22.9

1.2 培养试验

所有的培养实验在容积 250 mL 的具塞血清瓶内批式进行, 土壤样品经风干、过 2 mm 筛后, 精确称取 50 g 于瓶中, 投加渗滤液进行培养. N₂O 释放量测定实验操作参见文献[14]. 氮转化实验, 分别在投加渗滤液第 1 d 的第 2、6、12、24 h 以及在第 3、5 和 10 d, 同时测定 N₂O 的释放通量、氨挥发通量及土壤中 NH₄⁺ -N 和 NO₃⁻ -N 浓度; 试验分 3 种处理方式, 分别于土壤 S1 和 S2 中按 NH₄⁺ -N 当量 200 mg/kg 加入渗滤液, 及投加蒸馏水的土壤 S1 作空白; 各处理方式均分 2 组, 分别加入蒸馏水调节土壤孔隙含水率(water-filled pore space, WFPS)至 46% 和 70%, 前者仅投加 8 mL 渗滤液, 而后者投加 8 mL 渗滤液和 10 mL 蒸馏水, WFPS 计算方法具体参见文献[17]. 加入土壤、渗滤液和蒸馏水后, 培养瓶先在恒温(25℃)摇床上振荡 1 h, 使土壤与液体混合均匀, 再放入生化培养箱中 25℃下避光培养, 每个样品均设置 2 个平行样. 投加的渗滤液取自某生活垃圾填埋场调蓄池, 具有类长填龄渗滤液的水质特征^[18]: pH 为 7.4 ~ 7.8, COD 为 1 200 ~ 1 600 mg/L, BOD < 100 mg/L, NH₄⁺ -N 为 1 000 ~ 1 340 mg/L, NO₃⁻ -N < 10 mg/L.

1.3 N₂O 释放通量

N₂O 气体浓度用带有⁶³Ni 的 ECD 检测器和 GC-122 气相色谱仪(上海精密科学仪器有限公司)测定, 配填充 80/100 目 Porapak Q 的色谱柱, 柱温和检测器温度分别为 55℃和 330℃, 载气为 N₂, 流速 30 mL/min^[19]. N₂O 释放通量按单位时间内产生的量进行计算, 具体方法见文献[8].

1 材料与方法

1.1 供试土壤

2 种供试土壤(分别命名: 土壤 S1 和 S2)按文献[16]分别测定土壤质地、pH、有机质、总氮、NH₄⁺ -N、NO₃⁻ -N 及 C/N, 结果列于表 1. 土壤 S1 和 S2 投加了渗滤液后, 研究 N₂O 释放、氨挥发和矿物氮(NH₄⁺ -N 和 NO₃⁻ -N)的转化.

1.4 氨挥发测试

将处理后的土壤样品密闭至规定的时间: 前 4 组第 1 d 分别密闭 2、6、12、24 h 取样; 后 3 组第 3、5 和 10 d 均提前密闭 24 h 后取样. 取样时缓慢通入氮气 10 min, 置换瓶中气体进入盛有 10 mL 2 g/L 硼酸的烧杯中吸收, 吸收液用纳氏试剂分光光度法测定氨含量^[19], 检测下限为 0.2 mg/L. 所测氨含量除以密闭时间即为单位时间内土壤氨挥发的通量^[20], 每个样品均设置 2 个平行样.

1.5 统计方法分析

测试数据用 SPSS 14.0 软件进行处理, 组间进行显著性的 *t*-检验, *p* < 0.05, 差异显著; *p* < 0.01, 差异极显著.

2 结果与分析

2.1 氨挥发通量

投加渗滤液于土壤 S1 和 S2 后, 仅 S1 在前 5 d 内测得氨挥发(图 1). S1 在 WFPS 为 46% 和 70% 的培养条件下, 氨挥发通量均在 2 h 后取得最高值, 随着培养时间的延长, 氨挥发通量大幅降低; 在这 2 种 WFPS 培养条件下, 土壤 S1 在 24 h 内氨挥发量占 5 d 内挥发总量的 98% 以上; 70% WFPS 土壤 5 d 内氨挥发量比 46% WFPS 土壤高出 23.4% (*p* < 0.05); 以投加的渗滤液氨氮为基准, 在 46% 和 70% WFPS 下, 培养期前 5 d 氨挥发率分别为 2.6‰和 3.2‰.

2.2 N₂O 释放通量

渗滤液投加 2 种土壤后, N₂O 释放通量随时间的变化见图 2. 投加的渗滤液或单纯的水分(空白), 对土壤 N₂O 释放均具促进作用. N₂O 释放通量的峰值及持续时间与营养物投加水平有关, 投加渗滤液

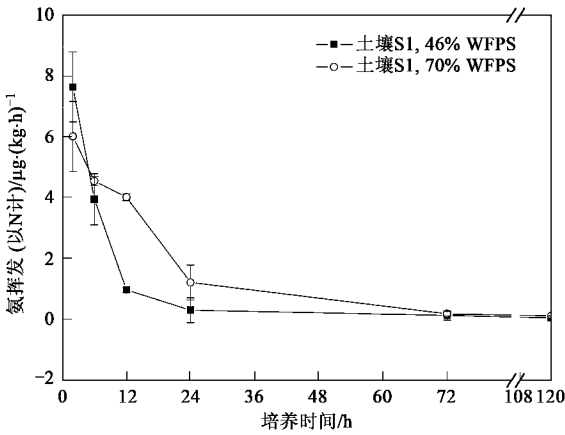


图1 培养期前5 d 土壤 S1 投加渗滤液后氨挥发通量变化

Fig.1 Ammonia volatilization from soil S1 after leachate addition within the first 5-day during the incubation

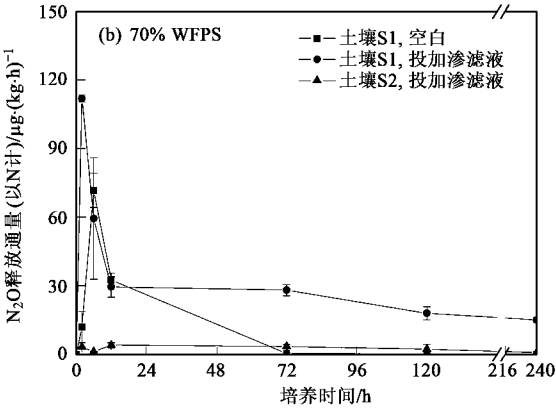
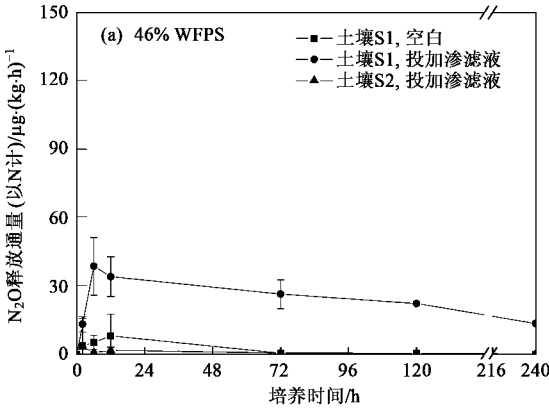


图2 10 d 培养期内渗滤液 N₂O 释放通量

Fig.2 N₂O emissions from leachate added soils during the 10-day incubation

量下降及 NO_3^- -N 含量上升的现象(图 3). 而土壤 S1 投加渗滤液后变化幅度最大, 培养至第 5 d 时, 不同 WFPS 条件下[图 3(a)和 3(b)], 土壤中 NH_4^+ -N 均低于 100 mg/kg , 而 NO_3^- -N 高于 100 mg/kg ; 土壤 S2 投加渗滤液后, NH_4^+ -N 和 NO_3^- -N 转化强度远低于土壤 S1, 培养至第 10 d 后, 其 NO_3^- -N 含量上升幅度甚至低于仅投加蒸馏水的土壤 S1[图 3(c)~3(f)].

3 讨论

3.1 土壤理化特性对氨挥发与 N₂O 释放的影响

渗滤液投加于土壤 S1 和 S2 后, 仅土壤 S1 测得氨挥发通量(图 1), 该现象主要源于土壤 pH 的显著差异(表 1). pH 可影响氨在土壤中存在的形态(NH_4^+ 、 NH_3), 而仅 NH_3 具有挥发的可能性; $\text{pH} > 7.2$ 后, 氨的形态向 NH_3 转化, 使氨挥发与土壤 pH 成正

与仅投加蒸馏水相比, 土壤 S1 的 N_2O 释放量约提高 3 倍($p < 0.05$); 而土壤质地的影响则更为显著, 同样是投加渗滤液, 2 种 WFPS 下土壤 S1 的 N_2O 释放通量均值为 $34.2 \mu\text{g} \cdot (\text{kg} \cdot \text{h})^{-1}$, 是土壤 S2 的 18 倍($p < 0.01$).

WFPS 与 N_2O 释放通量呈正比, 70% 与 46% WFPS 培养条件相比, 土壤 S1 加蒸馏水、土壤 S1 加渗滤液及土壤 S2 加渗滤液, 各处理组的 N_2O 平均释放通量分别提高了 6.5 ($p > 0.05$)、1.8 ($p > 0.05$) 和 2.2 倍($p < 0.05$). 渗滤液投加土壤培养 10 d 内, 土壤 S1 和 S2 中释放的 N_2O 分别占投加渗滤液氮氮的 41.1‰ 和 2.3‰.

2.3 矿物氮的转化

当渗滤液投加土壤后, 各土壤均出现 NH_4^+ -N 含

比^[21]. 因此, 仅有高 pH 的土壤 S1($\text{pH} = 8.71$)才在渗滤液投加后表现出明显的氨挥发; 同时, 由于土壤中氨随之发生硝化减量(图 3), 氨挥发通量也相应下降(图 1).

同样, 土壤 pH 也对 N_2O 的释放量有明显的影响. 酸性土壤 S2 的释放通量显著低于 S1, 与 Cheng 等^[14]对 11 种农业土壤投加 $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ 后观察的结果一致. 这是因为 pH 变化对土壤中反硝化过程有影响, 以 Wijler 和 Delwiche 为代表的众多学者认为土壤 pH 值中性至碱性为反硝化的最适范围^[14, 22, 23], 酸性条件限制了反硝化途径的 N_2O 产生.

除土壤 pH 值存在显著差异外, 土壤 S1 中总氮和有机质的含量均高于土壤 S2(表 1), 而相关研究成果表明, 上述因素有利于土壤中硝化和反硝化过程^[6, 14], 从而产生高 N_2O 释放通量. 另外, 土壤 S1 为

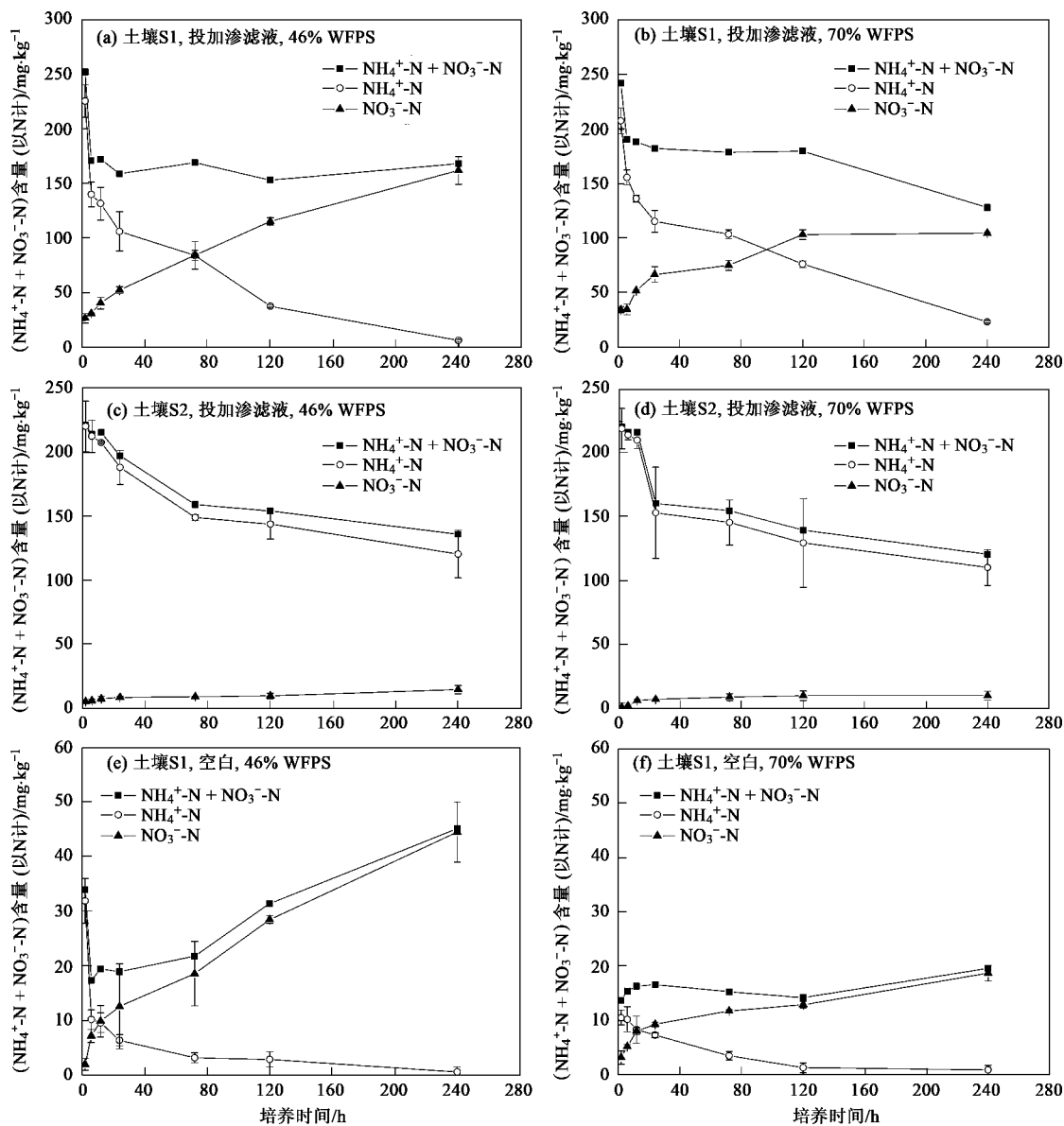


图 3 渗滤液投加于土壤后矿物氮(NH₄⁺-N 和 NO₃⁻-N)的转化

Fig.3 Soil mineralized-N (NH₄⁺-N and NO₃⁻-N) conversion after leachate addition

壤土,相对于砂性的土壤 S2,具有较强的保水保肥能力^[16],这也应该是导致 2 种土壤 N₂O 释放差异的原因。

3.2 渗滤液投加对 N₂O 释放的影响

渗滤液投加土壤后,通过增加水分与土壤氮代谢基质 2 种途径促进了 N₂O 的释放.首先,水分引发了土壤的干湿交替,大量研究结果认为,水分加入促进了土壤内营养物质的流动,降低了土壤中 O₂ 的含量,以上情况均利于通过反硝化过程增加 N₂O 的释放通量^[9,11].本研究中仅投加蒸馏水的试样,N₂O 释

放会同样增加,且各组的 N₂O 释放与 WFPS 呈正比,也均说明了这一点.其次,氨氮为硝化反硝化过程提供基质^[11,24],而渗滤液中有相当浓度(以 COD, BOD 表示)的有机碳,也可为土壤中异养微生物反硝化菌提供充足的碳源^[7],使其比仅投加蒸馏水者释放更多的 N₂O.

与此同时,以 WFPS 表示的含水率还影响了矿物氮的转化,WFPS 为 70% 与 46% 比较,在 NH₄⁺-N 转化量接近的条件下,70% 组的 NO₃⁻-N 的积累量明显小于 46% 组(图 3),其反硝化强度更高;同时,对

应的 N_2O 释放总量分别提高了 1.8 ~ 6.5 倍, 由此, 说明反硝化贡献对 N_2O 的释放量占主导地位. 相关研究普遍认为, 60% 含水率是土壤硝化反硝化过程的阈值, 当土壤含水率高于 60% 时, 土壤产 N_2O 以反硝化过程为主^[8,9,25], 而反硝化过程被公认为是土壤 N_2O 高释放通量的主要贡献途径^[11,14]. 由此可见, 渗滤液水分对土壤 N_2O 的释放作用比渗滤液氨氮等其它养分更为显著.

4 结论

(1) 渗滤液投加于土壤可引发氨挥发和促进 N_2O 的释放, 土壤理化性质决定了氨挥发和 N_2O 释放的强弱. 渗滤液投加后仅碱性土壤测得氨挥发, 10 d 培养期内氨挥发损失了约 3.0‰ 的投加渗滤液氨, 挥发主要发生在投加后的 24 h 内, 占挥发总量的 98% 以上. 而碱性壤土和酸性砂土投加渗滤液后的 N_2O 释放有明显差异, 2 种土壤 N_2O 释放损失的氮约分别占投加渗滤液氨氮的 41.1‰ 和 2.3‰.

(2) 土壤含水率制约了土壤中氨氧化和硝酸盐氮生成的速率, 从而影响了 N_2O 释放通量的高低. 土壤含水率与 N_2O 释放通量呈正比, 70% WFPS 与 46% WFPS 培养条件相比, 各处理组土壤的 N_2O 平均释放通量提高了 1.8 ~ 6.5 倍不等.

参考文献:

- [1] Houghton J T, Ding Y, Griggs D J, *et al.* Climate Change 2001: The Scientific Basis[R]. Cambridge: Cambridge University Press: IPCC, 2001.
- [2] Barker T, Bashmakov I, Bernstein L, 等. 气候变化 2007: 减缓气候变化[R]. 英国, 剑桥: 剑桥大学出版社; 美国, 纽约: 政府间气候变化专门委员会, 第四次评估报告第三工作组的报告, 2007.
- [3] Białowiec A, Wojnowska-Baryła I, Agopsowicz M. The efficiency of evapotranspiration of landfill leachate in the soil-plant system with willow *Salix amygdalina* L.[J]. Ecol Eng, 2007, **30**(4): 356-361.
- [4] Dimitriou I, Aronsson P, Weih M. Stress tolerance of five willow clones after irrigation with different amounts of landfill leachate[J]. Bioresour Technol, 2006, **97**: 150-157.
- [5] 何晶晶, 王如意, 邵立明, 等. 渗滤液场内处理的有机物去除特征和植物毒性评价[J]. 环境科学, 2007, **28**(1): 215-219.
- [6] Priemé A, Christensen S. Natural perturbation, drying-wetting and freezing-thawing cycles, and the emission of nitrous oxide, carbon dioxide and methane from farmed organic soils[J]. Soil Biol Biochem, 2001, **33**: 2083-2091.
- [7] Hui C H, So M K, Lee C M, *et al.* Nitrous oxide flux from landfill leachate-sawdust nitrogenous compost[J]. Chemosphere, 2003, **52**: 1547-1551.
- [8] Liu X J, Mosier A R, Halvorson A D, *et al.* Dinitrogen and N_2O emissions in arable soils: effect of tillage, N source and soil moisture[J]. Soil Biol Biochem, 2007, **39**(9): 2362-2370.
- [9] Ruser R, Flessa H, Russow R, *et al.* Emission of N_2O , N_2 and CO_2 from soil fertilized with nitrate: effect of compaction, soil moisture and rewetting[J]. Soil Biol Biochem, 2006, **38**: 263-274.
- [10] Watzinger A, Reichenauer T G, Blum W E H, *et al.* The effect of landfill leachate irrigation on soil gas position: methane oxidation and nitrous oxide formation[J]. Water, Air, Soil Pollut, 2005, **164**: 295-313.
- [11] Lee C M, Lin X R, Lan C Y, *et al.* Evaluation of leachate irrigation on nitrous oxide production in the Likang landfill, China[J]. J Environ Qual, 2002, **31**: 1502-1508.
- [12] Maurice C, Ettala M, Lagerkvist A. Effects of leachate irrigation on landfill vegetation and subsequent methane emissions[J]. Water, Air, Soil Pollut, 1999, **113**(1-4): 203-216.
- [13] van der Weerden T J, Jarvis S C. Ammonia emission factors for N fertilizers applied to two contrasting grassland soils[J]. Environ Pollut, 1997, **95**(2): 205-211.
- [14] Cheng W G, Tsuruta H, Chen G X, *et al.* N_2O and NO production in various Chinese agricultural soils by nitrification[J]. Soil Biol Biochem, 2004, **36**: 953-963.
- [15] Inubushi K, Goyal S, Sakamoto K, *et al.* Influences of application of sewage sludge compost on N_2O production in soils[J]. Chemosphere: Glob. Change Sci, 2000, **2**(3-4): 329-334.
- [16] 鲁如坤. 土壤农业化学分析方法[M]. 北京: 中国农业科技出版社, 2000. 13-195.
- [17] Lou Y S, Li Z P, Zhang T L, *et al.* CO_2 emissions from subtropical arable soils of China[J]. Soil Biol Biochem, 2004, **36**: 1835-1842.
- [18] 薛俊峰, 何晶晶, 邵立明, 等. 高氨氮难降解渗滤液电解氧化处理的特性[J]. 同济大学学报(自然科学版), 2005, **33**(12): 1630-1634.
- [19] 张后虎, 何晶晶, 瞿贤, 等. 卫生和生物反应器填埋场夏季 N_2O 释放的研究[J]. 环境科学研究, 2007, **20**(3): 108-112.
- [20] 周静, 崔键, 王国强, 等. 春秋季红壤旱地氨挥发对氮施用量、气象因子的响应[J]. 土壤学报, 2007, **44**(3): 499-507.
- [21] Huijsmans J F M, Hol J M G, Vermeulen G D. Effect of application method, manure characteristics, weather and field conditions on ammonia volatilization from manure applied to arable land[J]. Atmos Environ, 2003, **37**: 3669-3680.
- [22] Wijler J, Delwiche C C. Investigations on the denitrifying process in soil[J]. Plant Soil, 1954, **5**: 155-169.
- [23] Simek M, Jisova L, Hopkins D W. What is the so-called optimum pH for denitrification in soil[J]. Soil Biol Biochem, 2002, **34**: 1227-1234.
- [24] Kravchenko I, Boeckx P, Galchenko V, *et al.* Short and medium-term effects of NH_4^+ on CH_4 and N_2O fluxes in arable soils with a different texture[J]. Soil Biol Biochem, 2002, **34**: 669-678.
- [25] Davidson E A. Fluxes of nitrous oxide and nitric oxide from terrestrial ecosystems[A]. In: Rogers J E, Whitman W B (eds), Microbial Production and Consumption of Greenhouse Gases: Methane, Nitrogen Oxides and Halomethanes[C]. American Society of Microbiology, Washington, DC, 1991. 219-235.