

关于对流层大气 N_2O 氮、氧稳定同位素 负荷平衡的初步探讨*

徐文彬

(中国科学院地球化学研究所环境地球化学国家重点实验室, 贵阳 550002)

摘要 对流层大气 N_2O 的氮、氧稳定同位素负荷由地表和海洋释放的富轻同位素的 N_2O 与平流层回流的富重同位素的 N_2O 来平衡, 但 Kim 和 Craig 的计算方案无法使之平衡^[1]。笔者根据全球 N_2O 释放源最近的年释放量估算值, 对 Kim 和 Craig^[1] 的计算方案进行了初步改进, 在考虑土壤 N_2O 生成过程中氮、氧稳定同位素的分馏效应和氧同位素的纬度变化效应后, 推论出全球 N_2O 释放源最近的年释放量估算值能使对流层大气 N_2O 氮、氧稳定同位素负荷分别接近于平衡。并提出验证该推论的未来研究方向。

关键词 N_2O , 氮氧稳定同位素负荷, 全球源汇, 对流层, 平流层回流。

Improved Estimates for Nitrogen and Oxygen Isotope Budget Balance of Tropospheric N_2O *

Xu Wenbin

(State Key Lab. of Environ. Geochemistry, Institute of Geochemistry, Chinese Academy of Sciences, Guiyang 550002, China)

Abstract In steady state, the nitrogen and oxygen isotope budgets from the global N_2O sources which are uniformly depleted in heavy isotopes and isotopically lighter than the tropospheric N_2O are balanced respectively to the returned N_2O from stratosphere enriched in the heavy isotopes. Kim and Craig (1993)^[1] failed to make their estimated results balance. This paper improves Kim and Craig's estimation method based upon global N_2O sources and their emissions updated. When considering isotopic fractionation effects during N_2O producing in soils and the latitude effect for nitrogen and oxygen isotopic ratios of N_2O , the results can make nitrogen and oxygen isotopes budget of tropospheric N_2O approximately balance. Furthermore, this paper puts forward future studies which can validate above results.

Keywords N_2O , nitrogen and oxygen isotope budget, global sources and sinks, troposphere, returned N_2O from stratosphere.

N_2O 是关系到温室效应和平流层下部 O_3 层破坏的重要痕量气体。虽然有研究表明由于存在各种痕量气体间的“耦合关系”和“竞争效应”, 其它痕量气体的增长减少会影响 N_2O 的大气寿命和平流层消耗速率^[2], 同时太阳黑子活动的周期变化带来的太阳辐射的振荡变化, 对大气 N_2O 的消耗速率也存在潜在影响, 但最近国际上仍普遍采用 $10.6 \text{ Tg N (1 Terragram} = 1 \times 10^{12} \text{ g, 万亿 g)}$ 的平流层 N_2O 年消耗量和 3.5 Tg N 的对流层 N_2O 年积累量来作为全球 N_2O 源汇负荷平衡估算中的汇强^[1, 3~6]。

N_2O 在对流层中非常稳定, 与大气中其它含氮、氧化合物间无明显的氮、氧同位素交换^[7~8], 因此对流层大气中 N_2O 的氮、氧同位素组成主要取决于 N_2O 来源汇^[1]。据此, 若全球 N_2O 源汇负荷估算结果是平衡的, 且主要源的年释放量估算值是正确的, 则对流层大气 N_2O 氮、氧稳定同位素源汇负荷均应平衡。只要两者中有一种同位素源汇负荷不平衡, 就暗

* 国家自然科学基金资助项目 (Project Supported by the National Natural Science Foundation of China): 49873034
徐文彬: 男, 29 岁, 理学博士
收稿日期: 1998-12-02

示着还存有尚未被确定的 N_2O 源, 对某些重要源的释放量或/和对平流层的汇强度的估算值存在较大误差. Kim 和 Craig^[1] 在 1993 年的研究表明对流层 N_2O 氮、氧同位素源汇负荷均不能达到平衡, 提出只有当海洋 N_2O 年释放量达 200TgN, 或存有其它释放源时, 氮、氧同位素负荷才有可能分别达到平衡, 但 80 年代后的大量研究普遍得出海洋 N_2O 年释放量仅 2TgN 左右. Kim 和 Craig^[1] 计算方案的主要欠缺之处在于将热带森林土壤的 N_2O 年释放量作为全球土壤年释放量的替代值, 并仅考虑了土壤和海洋释放的 N_2O , 未考虑地表其它释放源.

本文对 Kim 和 Craig^[1] 的大气 N_2O 氮、氧同位素负荷方案提出初步改进, 证明全球 N_2O 释放源年释放量的最近估算值能使对流层大气 N_2O 氮、氧稳定同位素负荷分别接近于平衡.

1 全球 N_2O 释放源及其年 N_2O 释放量

采用与 Prasad^[6] 相同的方法, 表 1 和表 2 总结了全球 N_2O 释放源的最近释放量估算值, 得出全球 N_2O 年释放总量最近估算值约 14.7TgN, 与 Prasad^[6] 在 1997 年得到的

表 2 全球 N_2O 人类活动释放源年 N_2O 释放量(以 $\text{N}_2\text{O-N}$ 计)/Tg · a⁻¹

项目	施肥		N 污染		土地利用 状况变化	生物质燃烧		火力电 厂排放	工业生 产过程	污水 处理	垃圾 焚烧	汽车 排放	空中飞 行器排 放	全球 变暖 反馈
	N 肥	有机 肥	地下水 释放	N 沉降		直接 释放	后期 效应							
释放量	1.0	1.0	0.4	0.9	0.4	0.2	0.1	0.0	0.7	1.1	0.02	0.24	0.02	0.2
文献	[13]	[4]	[4]	[4]	[3, 12]	[4]	[4]	[3]	[4]	[3]	[14]	[15]	[16]	[17]

虽受气样中痕量 N_2O 氮、氧稳定同位素真空制样技术的影响, 迄今国际上还很缺乏各源释放的 N_2O 氮、氧稳定同位素的测量数据, 但已有的研究结果均表明除深层海水中溶解的 N_2O 外, 农业土壤、热带森林土壤、浅层海水中溶解的 N_2O 和其它释放源排放的 N_2O 其 $\delta^{15}\text{N}$ 和 $\delta^{18}\text{O}$ 值均低于对流层和平流层大气 N_2O (表 3). 海洋释放的 N_2O 主要来自浅层海水, 在浅层海区或好氧区, 海水中 N_2O 的 $\delta^{15}\text{N}$ 和 $\delta^{18}\text{O}$ 值与海面空气中 N_2O 的 $\delta^{15}\text{N}$ 和 $\delta^{18}\text{O}$ 值相近, 甚至略低于海面空气(表 3). 即

14.4TgN 的释放总量相近. 由于现今各源年释放量估算过程中的不确定因素主要集中在弱释放源上^[3,9], 年释放量的不确定性越高对应的释放强度也越弱, 因此, 得出的全球 N_2O 年释放总量误差范围并不大.

表 1 全球 N_2O 自然释放源年 N_2O 释放量
(以 $\text{N}_2\text{O-N}$ 计)/Tg · a⁻¹

项目	海洋	土壤			
		热带森 林土壤	温带森 林土壤	草原、草 地和牧场	农业土壤 背景释放
释放量	2.0	3.4	0.7	1.4	0.9
文献	[3, 4, 10]	[11, 12]	[10]	[4]	[12]

2 全球 N_2O 氮、氧稳定同位素特征

氮、氧稳定同位素在 N_2O 中的相对丰度 δ , 如 $\delta^{15}\text{N}$, 定义为:

$$\delta^{15}\text{N} \times \% = \frac{{}^{15}\text{N} / {}^{14}\text{N}_{\text{sample}} - {}^{15}\text{N} / {}^{14}\text{N}_{\text{standard}}}{{}^{15}\text{N} / {}^{14}\text{N}_{\text{standard}}} \times \%$$

$\delta^{15}\text{N}$ 的同位素标准为大气 N_2 , $\delta^{18}\text{O}$ 的同位素标准为标准平均海水(SMOW), 现已广泛使用大气 O_2 为标准.

使在某些有洋流强烈上升的海区, 表层海水中富轻同位素的 N_2O 也会缓冲抵消随洋流上升的深层海水中富重同位素的 N_2O . 因此海洋释放的 N_2O $\delta^{15}\text{N}$ 和 $\delta^{18}\text{O}$ 值可能与对流层大气中的 N_2O 相近, 甚至略低于对流层大气^[1], 这从海面空气中 N_2O 的 $\delta^{15}\text{N}$ 和 $\delta^{18}\text{O}$ 值略低于陆地对流层大气可以得到证实(表 3).

由于对流层大气中 N_2O 的氮、氧同位素组成主要取决于其 N_2O 来源, 基于全球主要 N_2O 源释放的 N_2O 相对于对流层大气 N_2O 富轻同位素, 因此必存在富重同位素的 N_2O

表3 土壤、海洋 N₂O 的氮、氧同位素比值及与对流层和平流层大气 N₂O 的比较¹⁾

N ₂ O 类型	气样位置	N ₂ O 浓度 ²⁾	δ ¹⁵ N‰	δ ¹⁸ O‰	文献
土壤释放	哥斯达黎加(热带雨林土壤), 巴西(农业土壤)	670~1340	- 25.0~- 7.1(中位 值等于- 15,n= 6)	3.6~12.3(中位值 等于+ 10.8,n= 6)	[1]
海水中 溶解的 N ₂ O	赤道太平洋东部(0m~200m)		3.3~6(+ 5.2±1.3)		[18]
	赤道太平洋东部(200m~ 500m)		7.3~14.3(+ 12.6±1.1)		[18]
	北太平洋西部(0m~4800m)		+ 3.4~+ 15		[19]
	太平洋(0m~4000m)		+ 5~+ 10	15~34	[20]
废水处理释放	纽约长岛			- 0.8	[21]
N 污染地下水	日本东京		- 5.8~- 21.3(- 14.8±3.1)		[22]
海面空气	热带太平洋东部		7.2±1.1		[18]
	北太平洋西都		6.8±0.7		[19]
	太平洋	303	7.0	20.7	[20]
陆地大气	纽约	310		22.6±0.1	[7]
	日本东京	310	8.1±1.0		[22]
平流层大气	12.8km 处(68 N)	284	12.8	29.1	[1]
	17.8km 处(68 N)	182	21.1	35.0	[1]

1) δ¹⁵N 和 δ¹⁸O 数据分别以大气 N₂ 和 O₂ 为同位素标准 2) N₂O 浓度×10⁻⁹ m³/m³.

来平衡地表释放的富轻同位素的 N₂O. 自平流层回流入对流层的 N₂O 是目前已知的最主要的富重同位素的 N₂O 源^[1,6,23], 在 68 N 12.8km 和 17.8km 高度处测得的平流层大气 N₂O 的 δ¹⁵N 和 δ¹⁸O 值反映出这种回流 N₂O 的氮、氧稳定同位素变化趋势^[1].

3 大气 N₂O 氮、氧稳定同位素源汇负荷平衡

若全球 N₂O 源汇负荷估算结果是平衡的, 且主要源的释放量估算值是正确的, 则地面源释放的 N₂O 对对流层 N₂O 氮、氧同位素负荷的贡献量应与平流层回流的贡献量绝对值相等, 方向相反. 若两者绝对值存在很大差异则说明还存有尚未被确定的 N₂O 源或对某些重要源的释放量估算存在较大误差.

在稳态条件下, 对流层大气 N₂O 的氮、氧稳定同位素负荷平衡方程由(1)式表示:

$$F_{\pm} \delta_{\pm} + F_{海} \delta_{海} + F_{平} \delta_{平} + \sum F_i \delta_i - F_{对} \delta_{对}$$
$$= \delta_{对} \times (F_{\pm} + F_{海} + F_{平} + \sum F_i - F_{对})$$

(1)

转换为: $F_{\pm} \Delta_{\pm} + F_{海} \Delta_{海} + F_{平} \Delta_{平} + \sum F_i \Delta_i$

= 0

(2)

其中 Δ_± = (δ_± - δ_对), δ_± 指土壤释放 N₂O 的氮、氧同位素比值(δ 值), δ_对 指对流层大气 N₂O 的 δ 值; Δ_海 = (δ_海 - δ_对), δ_海 指海洋释放 N₂O 的 δ 值; Δ_平 = (δ_平 - δ_对), δ_平 指平流层回流入对流层的 N₂O 的 δ 值; Δ_i = (δ_i - δ_对), i 指除土壤和海洋外的其它地表释放源. F_±、F_海、F_平 和 F_i 指对应源的年 N₂O 释放量. 上述各 FΔ 的单位均为 TgN‰·a⁻¹, 代表各源对对流层 N₂O 氮、氧同位素负荷的年贡献量. Kim 和 Craig^[1] 的平衡方程未包括 ∑ F_iΔ_i 项.

由于施肥、N 沉降、土地利用变化和生物质燃烧后期效应等释放源释放的 N₂O 均来自土壤中的细菌反硝化和硝化作用过程, 因此, 在总体上, 自然土壤和与土壤有关的释放源所释放 N₂O 的 δ¹⁵N 或 δ¹⁸O 值的变化范围应是一致的. N₂O 的 δ¹⁵N 和 δ¹⁸O 值暂采用 Kim 和 Craig^[1] 报道的热带地区农业土壤和森林土壤的中位值(因为数据呈非正态分布), 土

壤 N_2O 年释放量采用表 1 和表 2 中与土壤有关的所有源的释放量之和(包括热带森林土壤、温带森林土壤、草地和牧场、农业土壤背景释放、施肥、N 沉降、土地利用变化和生物质燃烧后期效应等),即 10.2TgN ,而非 Kim 和 Craig 采用的平均 $\delta^{15}\text{N}$ 和 $\delta^{18}\text{O}$ 值及仅热带森林土壤 4TgN 的年 N_2O 释放量^[1]. 海洋 N_2O 年释放量为 2TgN ,其 $\delta^{15}\text{N}$ 和 $\delta^{18}\text{O}$ 值与 Kim 和 Craig^[1]一样采用表层海水中 N_2O 的 $\delta^{15}\text{N}$ 和 $\delta^{18}\text{O}$ 值($\delta^{15}\text{N} = +5\text{‰}$, $\delta^{18}\text{O} = +15\text{‰}$),除土壤和海洋外,还有 2.5TgN 来自其它释放源如污水处理、地下 N 污染水体和工业排放等(表 2),但目前还很缺乏这些源释放 N_2O 的 $\delta^{15}\text{N}$ 和 $\delta^{18}\text{O}$ 数据(表 3),暂采用表 3 中地下 N 污染水体的 $\delta^{15}\text{N}$ 值和污水处理的 $\delta^{18}\text{O}$ 值分别作为这些源排放 N_2O 的平均 $\delta^{15}\text{N}$ 和 $\delta^{18}\text{O}$ 值,由于这部分源的 N_2O 释放量对全球总量的贡献率不高,因此引入的误差也不大.

平流层 N_2O 年回流量采用与 Kim 和 Craig^[1]及 McElroy 和 Jones^[23]相同的计算方法,即等于对流层向平流层的 N_2O 年扩散量减去平流层 N_2O 年消耗量. 根据目前 N_2O 大气浓度,对流层年扩散量约 60TgN ,平流层的光解和氧化反应每年约消耗 10.6TgN ,因此平流层年回流量为 49.4TgN ^[1,23]. 回流区约在 16km 处,相应的 N_2O 大气浓度为 $245 \times 10^{-9} \text{m}^3/\text{m}^3$ ^[1,23]. 因为 N_2O 主要是在热带地区上空进入平流层,而在高纬度地区回流入对流层的,因此 17.8km 高度处大气 N_2O 的 $\delta^{18}\text{O}$ 和 $\delta^{15}\text{N}$ 值(表 3)具全球代表性,而 12.8km 处的数据可能仅具区域特征^[1,23]. 按 17.8km 处大气和地面大气的 N_2O 浓度及相应的 $\delta^{15}\text{N}$ 和 $\delta^{18}\text{O}$ 值,以线性插值方式计算 16km 处大气 N_2O 的 $\delta^{15}\text{N}$ 和 $\delta^{18}\text{O}$ 值,该计算方法也与 Kim 和 Craig^[1]及 McElroy 和 Jones^[23]所采用的相同,只是他们采用海气中 N_2O 的 $\delta^{15}\text{N}$ 和 $\delta^{18}\text{O}$ 值来代替陆地对流层 N_2O . 得回流区 N_2O 的 $\delta^{15}\text{N}$ 和 $\delta^{18}\text{O}$ 分别为 14.7‰ 和 28.9‰ .

上述各组分平流层 N_2O 氮、氧同位素

负荷贡献量的计算结果见表 4. 地表和海洋释放源对对流层 N_2O 氮、氧同位素负荷的贡献量合计分别为 $-299.1\text{TgN‰} \cdot \text{a}^{-1}$ 和 $-193\text{TgN‰} \cdot \text{a}^{-1}$,平流层回流的贡献量分别为 $326.7\text{TgN‰} \cdot \text{a}^{-1}$ 和 $311.9\text{TgN‰} \cdot \text{a}^{-1}$,地表和海洋释放 N_2O 的氮同位素负荷贡献量略低于平流层回流,氧同位素负荷贡献量则相当于平流层回流的 $2/3$.

土壤释放 N_2O 的氮、氧同位素组成主要取决于硝化和反硝化作用过程的同位素分馏效应及反应基质(NO_3^- , NO_2^- 和 NH_4^+)的同位素组成. 研究表明对同一释放源,硝化作用产生的 N_2O 相对贫重同位素,反硝化作用产生的 N_2O 相对富重同位素^[18,19,24]. Kim 和 Craig^[1]报道的是热带地区土壤释放 N_2O 的 $\delta^{15}\text{N}$ 和 $\delta^{18}\text{O}$ 值,大量研究表明热带地区土壤释放的 N_2O 主要来自细菌的反硝化作用过程,而中高纬度地区土壤释放的 N_2O 来自硝化作用的比例高于热带地区土壤^[25],因此中高纬度土壤释放的 N_2O 其 $\delta^{15}\text{N}$ 值应略低于 Kim 和 Craig^[1]的报道值. 考虑该校正因素后,地表释放源对对流层 N_2O 氮同位素负荷的贡献量将与平流层回流贡献量基本平衡.

同时,土壤释放 N_2O 的氧主要来自环境中的 H_2O 和 O_2 ^[7],其氧同位素组成还取决于大气降水和 O_2 的氧同位素组成. 全球大气 O_2 的 $\delta^{18}\text{O}$ 值很稳定,而降水的 $\delta^{18}\text{O}$ 值则存在明显的纬度效应^[26],即从低纬到高纬, ^{18}O 逐渐减少,因此土壤释放 N_2O 的 $\delta^{18}\text{O}$ 值也应有相同的纬度效应. 若土壤释放 N_2O 的 $\delta^{18}\text{O}$ 值采用热带地区土壤的最小值即 3.6‰ ,各释放源对对流层氧同位素负荷的贡献量已达平流层回流的 85% 多(表 4). 由于从低纬度到高纬地区,降水的 $\delta^{18}\text{O}$ 值从 -20‰ 向 -80‰ 变化^[26](以大气 O_2 为标准),因此有理由相信,中高纬度土壤释放的 N_2O 其实际 $\delta^{18}\text{O}$ 值将低于 3.6‰ ,地表释放源对对流层氧同位素负荷的贡献量也将与平流层持平(表 4).

表4 地表、海洋和平流层回流 N₂O 对对流层 N₂O 氮、氧同位素负荷的贡献量(以 N 计)/ Tg · %₀ · a⁻¹

负荷类别	各源的贡献量(平流层 N ₂ O 年消耗量= 10. 6TgN)				负荷差额
	$F_{\pm} \Delta_{\pm}$	$F_{海} \Delta_{海}$	$\sum F_i \delta_i$	$F_{平} \Delta_{平}$	
$\delta^{15}N$ 负荷(土壤 $\delta^{15}N = -15\text{‰}$)	- 235. 6	- 6. 2	- 57. 3	326. 7	27. 6
$\delta^{18}O$ 负荷(土壤 $\delta^{18}O = 10. 8\text{‰}$)	- 119. 3	- 15. 2	- 58. 5	311. 9	118. 9
$\delta^{15}N$ 负荷(土壤最低 $\delta^{15}N = -25. 0\text{‰}$)	- 337. 6	- 6. 2	- 57. 3	326. 7	- 74. 4
$\delta^{18}O$ 负荷(土壤最低 $\delta^{18}O = 3. 6\text{‰}$)	- 193. 8	- 15. 2	- 58. 5	311. 9	44. 4
各源的贡献量(平流层 N ₂ O 年消耗量= 16TgN, $F_{\pm}$ 增加 5. 4TgN)					
	$F_{\pm} \Delta_{\pm}$	$F_{海} \Delta_{海}$	$\sum F_i \delta_i$	$F_{平} \Delta_{平}$	
$\delta^{15}N$ 负荷(土壤 $\delta^{15}N = -15\text{‰}$)	- 360. 4	- 6. 2	- 57. 3	290	- 133. 9
$\delta^{18}O$ 负荷(土壤 $\delta^{18}O = 10. 8\text{‰}$)	- 182. 5	- 15. 2	- 58. 5	277	20. 8
$\delta^{18}O$ 负荷(土壤最低 $\delta^{18}O = 3. 6\text{‰}$)	- 296. 4	- 15. 2	- 58. 5	277	- 93. 1
各源的贡献量(平流层 N ₂ O 年消耗量= 16TgN, $\sum F_i$ 增加 5. 4TgN)					
	$F_{\pm} \Delta_{\pm}$	$F_{海} \Delta_{海}$	$\sum F_i \delta_i$	$F_{平} \Delta_{平}$	
$\delta^{15}N$ 负荷(土壤平均 $\delta^{15}N = -15\text{‰}$)	- 235. 6	- 6. 2	- 203. 8	290	- 155. 6
$\delta^{18}O$ 负荷(土壤平均 $\delta^{18}O = 10. 8\text{‰}$)	- 119. 3	- 15. 2	- 208. 3	277	- 65. 8

上述是对平流层 N₂O 年消耗量采用 10. 6TgN 时的分析情况,但最近 Elkins 等^[27]认为平流层年 N₂O 消耗量为 16TgN,这 2 种平流层 N₂O 年消耗量都是理论推算值,尚无有效的方法来验证. 笔者认为对流层大气 N₂O 氮、氧稳定同位素负荷平衡与否是检验上述理论推算值正确与否的有效方法. 若平流层 N₂O 年消耗量为 16TgN,则全球 N₂O 年释放总量应在 20TgN 左右,其中土壤($F_{\pm}$)或地表其它释放源($\sum F_i$)的释放量应增加 5. 4TgN(因为海洋年 N₂O 释放量为 2TgN),同时平流层的 N₂O 年回流量也降为 44TgN. 计算结果得出无论是采用增加土壤 N₂O 释放量($F_{\pm}$)来平衡,还是采用增加地表其它源的释放量($\sum F_i$)来平衡,地表和海洋释放源对流层 N₂O 氮同位素负荷的贡献量均远超过平流层回流. 虽然氧同位素的负荷在土壤 N₂O 的 $\delta^{18}O$ 值采用 Kim 和 Craig^[1]报道的中位值时达到平衡,但在考虑 $\delta^{18}O$ 值的“双重”纬度效应后,和氮同位素一样,对流层氧同位素负荷同样处于不平衡状态. 因此 16TgN 的平流层年消耗量不应是对流层 N₂O 扩散入平

流层后的实际年消耗量.

4 结论

- (1) 根据全球 N₂O 释放源最近的释放量估算值,在包括了与土壤有关的所有释放源及地表其他释放源,并考虑了土壤释放 N₂O $\delta^{15}N$ 和 $\delta^{18}O$ 值的纬度效应后,初步推断对流层 N₂O 的氮、氧稳定同位素负荷基本平衡.
- (2) 未来进行中高纬度土壤释放 N₂O 的氮、氧同位素组成研究是验证上述氮、氧同位素比值纬度效应和同位素负荷平衡的关键.
- (3) 在冰期由于全球裸露土壤面积的减少而使 N₂O 大气浓度降低了 30%^[3],因此,可以推测在冰期,土壤源 N₂O 释放量的减少将导致当时对流层大气中 N₂O 的 $\delta^{15}N$ 和 $\delta^{18}O$ 的上升,这应在冰芯记录中得到验证.
- (4) N₂O 的氮、氧同位素测量数据给验证大气 N₂O 负荷估算结果是否平衡提供了一种有效的研究手段,在对源汇负荷平衡给出令人信服结论之前,我们需有更多释放源的 N₂O 氮、氧同位素及其在空间上变化的测量数据.

参 考 文 献

- Kim K R and Craig H. Nitrogen 15 and oxygen 18 characteristics of nitrous oxide: A global perspective. *Science*, 1993, **262**: 1855~1857
- Boering K A, Wofsy S C, Daube B C et al. Stratospheric mean ages and transport rates from observations of carbon dioxide and nitrous oxide. *Science*, 1996, **274**: 1340~1343
- Khalil M A K and Rasmussen R A. The global sources of nitrous oxide. *J. Geophys. Res.*, 1992, **97**: 14651~14660
- Bouwman A F. Estimated global source distribution of nitrous oxide. In: Minami K, Moisiser A R and Sass R L. CH₄ and N₂O: Global Emission and Controls from Rice Fields and Other Agricultural and Industrial Sources. Tokyo: Yokendo, 1994, 147~159
- Houghton J T, Miera Filho L G, Bruce J et al. Radiative Forcing of Climate Change and an Evaluation of the IPCC IS92 Emission Scenarios. New York: Cambridge Univ. Press, 1995
- Prasad S S. Potential atmospheric sources and sinks of nitrous oxide: 2. Possibilities from excited O₂ "embryonic" O₃ and optically pumped excited O₃. *J. Geophys. Res.*, 1997, **102**(D17): 21527~21536
- Wahlen M and Yoshinari T. Oxygen isotope ratios in N₂O from different environments. *Nature*, 1985, **13**: 780~782
- Yoshida N. Absence of equilibrium nitrogen isotope fractionation in the global cycle of nitrous oxide. In: Minami K, Moisiser A R and Sass R L. CH₄ and N₂O: Global Emission and Controls from Rice Fields and Other Agricultural and Industrial Sources, Tokyo: Yokendo, 1994, 141~146
- Bouwman A F, van der Hoek K W and Oliver J G J. Uncertainties in the global source distribution of nitrous oxide. *J. Geophys. Res.*, 1995, **100**: 2785~2800
- IPCC. Climate Change: The Supplementary Report to The IPCC Scientific Assessment, edited by Houghton J T, Callander B A and Varney S K. New York: Cambridge University Press, 1992
- Matson P A and Vitousek P M. Ecosystems approach to a global nitrous oxide budget. *Bioscience*, 1990, **40**: 667~672
- Bouwman A F, Fung I, Matthews E et al. Global analysis of the potential for N₂O production in natural soils. *Global Biogeochem. Cycles*, 1993, **7**(3): 557~597
- Matthews E. Nitrogenous fertilizers: Global distribution of consumption and associated emissions of nitrous oxide and ammonia. *Global Biogeochem. Cycles*, 1994, **8**(4): 411~439
- Moritomi H. N₂O emission from industrial facilities. In: Minami K, Moisiser A R and Sass R L. CH₄ and N₂O: Global Emission and Controls from Rice Fields and Other Agricultural and Industrial Sources. Tokyo: Yokendo, 1994, 161~179
- Berges M G M, Hofmann R M, Scharfee D et al. Nitrous oxide emissions from motor vehicles in tunnels and their global extrapolation. *J. Geophys. Res.*, 1993, **98**(10): 18527~18531
- Wiesen P, Kleffmann J, Kurtenbach R et al. Nitrous oxide and methane emissions from aero engines. *Geophys. Res. Lett.*, 1994, **21**(18): 2027~2030
- Khalil M A K and Rasmussen R A. Climate-induced feedbacks for the global cycles of methane and nitrous oxide. *Tellus*, 1989, **41**(B): 554~559
- Yoshida N, Hattori A, Saino T et al. ¹⁵N/¹⁴N ratio of dissolved N₂O in the eastern tropical Pacific Ocean. *Nature*, 1984, 442~444
- Yoshida N, Morimoto H, Hirano M et al. Nitrification rates and ¹⁵N abundances of N₂O and NO₃⁻ in the western North Pacific. *Nature*, 1989, **342**: 895~897
- Kim K R and Craig H. Two isotope characterization of N₂O in the Pacific Ocean and constraints on its origin in deep water. *Nature*, 1990, : 58~61
- Yoshinari T and Wahlen M. Oxygen isotope ratios in N₂O from nitrification at a wastewater treatment facility. *Nature*, 1985, **317**: 349~350
- Ueda S, Ogura N and Wada E. Nitrogen stable isotope ratio of groundwater N₂O. *Geophys. Res. Lett.*, 1991, **18**: 1449~1452.
- McElroy M B and Jones D B. Evidence for an additional source of atmospheric N₂O. *Global Biogeochem. Cycles*, 1996, **10**(4): 651~659
- Yoshida N. ¹⁵N-depleted N₂O as a product of nitrification. *Nature*, 1988, **335**: 528~529
- Williams E J, Hutchinson G L and Fehsenfeld F C. NO_x and N₂O emissions from soil. *Global Biogeochem. Cycles*, 1992, **6**(4): 351~388
- 魏菊英, 王光玉. 同位素地球化学. 北京: 地质出版社, 1991. 112~122
- Elkins J, Thompson T, Butler J et al. The global budget of atmospheric N₂O based on tropospheric, ocean, and stratospheric observations. *Eos. Trans., AGU*, 1994, **75**(44): 141