紫色土丘陵区农田源头沟渠一氧化氮排放的季节差异 及影响因素

田琳琳^{1 2 3},任光前^{2 4},朱波^{1 2*}

(1. 中国科学院水利部成都山地灾害与环境研究所,成都 610041; 2. 中国科学院山地表生过程与生态调控重点实验室, 成都 610041; 3. 中国科学院大学,北京 100049; 4. 江苏大学环境与安全工程学院,镇江 212013) 摘要:农田源头沟渠是农田养分迁移的重要水文通道和非常活跃的氮转化场所.本研究以紫色土丘陵区农田源头沟渠为对 象,在2014年12月~2015年11月,采用静态箱-化学发光法对其一氧化氮(NO)排放开展原位观测.结果表明,有自然植被 覆盖的农田源头沟渠生态系统(V)中的 NO 年累积排放量为 14. 17 g·($hm^2 \cdot a$)⁻¹,而无自然植被覆盖的对照处理(NV,代表 沟渠中的沉积物-水界面系统)则为 – 0.4 g·($hm^2 \cdot a$)⁻¹.总体而言,沟渠生态系统的年综合排放通量是 11. 27 g·($hm^2 \cdot a$)⁻¹, 全年平均排放通量为 0. 13 µg·($m^2 \cdot h$)⁻¹.农田源头沟渠仅在夏季是 NO 的排放源,且夏季 NO 累积排放量显著高于(P < 0.05)春季、秋季或冬季.沟渠上覆 水NO₃⁻-N浓度和温度是影响 NO 排放季节变化的主要控制因素.同时,沟渠生态系统中 植物存在可显著提高所观测的 NO 排放通量,但对全年 NO 累积排放量无显著影响.

关键词: 沟渠生态系统; 一氧化氮; 间接排放; 硝态氮; 小流域氮循环; 温度

中图分类号: X144; X171 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2018) 04-1952-10 DOI: 10.13227 / j. hjkx. 201707250

Seasonal Variation in Nitric Oxide Emission from an Agricultural Headwater Ditch in the Hilly Purple Soil Area and the Factors Influencing Emission

TIAN Lin-lin^{1,2,3}, REN Guang-qian^{2,4}, ZHU Bo^{1,2*}

(1. Institute of Mountain Hazards and Environment, Chinese Academy of Sciences, Chengdu 610041, China; 2. Key Laboratory of Mountain Surface Processes and Ecological Regulation, Chinese Academy of Sciences, Chengdu 610041, China; 3. University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China; 4. School of the Environment and Safety Engineering, University of Jiangsu, Zhenjiang 212013, China)

Abstract: Agricultural headwater ditches are important pathways of reactive nitrogen loss from adjacent croplands , and also act as hotspots for reactive nitrogen transformation. In this study , NO emissions from a typical agricultural ditch in the hilly area of central Sichuan Basin were measured by the closed static chamber-chemiluminescence method , from December 2014 to November 2015. The results showed that the cumulative NO emissions from the sediment-water interface without vegetation (NV) and the ditch ecosystem with natural vegetation (V) were $-0.4 \text{ g} \cdot (\text{ hm}^2 \cdot \text{a})^{-1}$ and 14. 17 g $\cdot (\text{ hm}^2 \cdot \text{a})^{-1}$, respectively. The combined annual NO emission flux for the agricultural headwater ditch ecosystem was 11. 27 g $\cdot (\text{ hm}^2 \cdot \text{a})^{-1}$, with a mean NO emission rate of 0. 13 μ g $\cdot (\text{ m}^2 \cdot \text{h})^{-1}$. A net source of NO from the ditch ecosystem only occurred in summer , which had a significantly higher cumulative NO emission than those in the other seasons. The seasonal variation in NO emissions was mainly regulated by the seasonal changes in NO₃⁻-N concentrations and temperature in the overlying water. Meanwhile , the presence of vegetation in the ditch ecosystem significantly increased NO emission rates , whereas it did not markedly influence the annual NO emission.

Key words: ditch ecosystem; nitric oxide; indirect emission; nitrate; nitrogen cycling in catchment; temperature

-氧化氮(NO) 在对流层中可与臭氧(O_3) 产生 光化学反应进而破坏臭氧^[1,2],同时也是酸沉降中 硝酸的生成源^[3~5],是一种比较活跃的活性氮气体 污染物^[6,7].氮氧化物(NO_x)是 NO 和二氧化氮 (NO₂)的统称,且以 NO 为主.自工业革命以来,全 球 NO_x 排放量呈不断增长趋势,2000 年的排放量 (42~47 Tg•a⁻¹)约为工业革命前(12 Tg•a⁻¹)的 3.5~4 倍^[8,9].

农田生态系统中大量化学氮肥施用是大气 NO_x 浓度增加的一个重要原因^[9~11].不过,需要指出的

是,随着氮肥施用量的持续增加,有相当部分的氮 素会随淋溶和地表径流损失,进而使得越来越多的 活性氮被迁移至农田附近的排水沟渠、溪流和河流 等水生态系统中^[12~14].数以万计的农田被排水沟 渠环绕,农田源头沟渠可汇集和传输大量径流以及 可溶性氮等营养物质,其不仅是连接农田与其毗邻

收稿日期: 2017-07-28; 修订日期: 2017-09-21

基金项目: 国家重点研发计划项目(2016YFD0200309)

作者简介:田琳琳(1987~),女,博士研究生,主要研究方向为农 业面源污染,E-mail:tianlin025@163.com

^{*} 通信作者 E-mail: bzhu@ imde. ac. cn

的水生生态系统的重要水文通道,也是氮素截留和 转化等活跃的生物化学作用的重要场所^[12,15~18]. 农业沟渠生态系统中的氮素可通过硝化和反硝化作 用产生温室气体氧化亚氮(N₂O),近年来研究人员 对其 N₂O 产生机理和排放特征的研究已取得了一定 的成果^[19~21],但是关于同为硝化和反硝化过程产物 的 NO 在农田源头沟渠生态系统中的排放还尤未可 知.有报道指出,富营养化水体可产生 NO 排放,如 薛超等^[22]用 Zafiriou 的半经验公式研究发现,富营 养化的胶州湾及其邻近海域的表层海水在春季是 NO 的释放源.同时,有研究发现含氮污水的硝化和反硝 化作用均可产生 NO^[1,23~28],但仅限于室内控制实验 的研究结果,而目前关于农田源头沟渠等含氮水体 中 NO 排放的原位观测研究还较少涉及.

四川盆地中部的紫色土丘陵区(川中丘陵区) 地处长江上游,是我国西南地区重要的农业中 心^[29]. 有研究发现,该区域内常规施氮量[280 $kg \cdot (hm^2 \cdot a)^{-1}$]的农田中每年通过径流、淋洗和泥 沙而损失的氮素可高达 44 kg•hm^{-2[30]}.并且该地 区紫色土耕地因淋溶产生的大部分壤中流和浅层地 下水的硝态氮(NO_3^--N)浓度也长期高于 10 mg•L^{-1[13,14,31]}.密集的农业生产和大量化肥施用已 在紫色土丘陵区造成了显著的农业非点源氮素污染 和区域水体富营养化问题^[13,32].该地区广泛存在着 服务于农田生产的排水沟渠,常年滞水、纵横交 错、密度较高,但一般以小流域为主、水深较浅. 值得注意的是,该农业区地表和地下水中较高的 NO₃-N含量不仅影响当地水环境质量和引用水安 全,也可能因流域尺度的氮素迁移造成非点源氮污 染的异地效应,进而加剧长江三峡库区的水环境压 力^[14,31,32].因此,本文以紫色土丘陵区的农田源头 沟渠为研究对象,开展 NO 排放的原位监测,明确 其季节和全年的排放通量及影响因素,以期为该地 区农业非点源氮污染的控制及地表水体中的氮转化 提供科学依据.

1 材料与方法

1.1 研究区概况

研究区位于四川盆地中北部盐亭县林山乡,本 实验依托于中国科学院盐亭紫色土农业生态试验站 (105°27′E,31°16′N)进行.该地处长江流域上游 的涪江支流弥江、湍江的分水岭地带,年均气温 17.3℃,极端最低和最高气温分别是 – 5.1℃和 40℃,无霜期295 d.属中亚热带湿润季风气候,四 季分明、气候温和,年降雨量在800~1200 mm之间,1981~2009年间的年平均降雨量为826 mm, 但降雨季节分配不均(春季6%、夏季66%、秋季 19%、冬季9%)^[13].区域土壤为典型石灰性紫色 土,因此该地称为紫色土丘陵区,主要农田为坡耕 地(坡度为3°~15°)和水稻田,平均土层厚度约60 cm^[13,33].该区域的小流域低洼处、丘陵中部和上部 主要依次分布有水旱田、旱地、林地^[32].农田主要 轮作方式是夏玉米-冬小麦和水稻-油菜,其中在10 月底至次年5月种植小麦和油菜,而在5月底或6 月初至9月(当地雨季)种植玉米和水稻.林地植被 以桤木和柏木为主.

1.2 实验设计

本研究的沟渠上游有紫色土旱地和水田分布, 基本上全年都处干滞水状态,是该地区典型的农田 源头沟渠,主要用于传输农田用水和雨季洪水.该 沟渠生态系统的植被主要有过江龙 [Diphasiastrum complanatum (L.) Holub.]、水草 [Fimbristylis milliacea (L.) Vahl.]、水花生 [Alternanthera philoxeroides (Mart.) Griseb.]、三叶草(Trifolium repens L.) 及少量杂草等,均在自然状态下生长,无 人工种植植物. 根据土壤农业化学分析方法^[34]所 测得的0~20 cm 底泥土壤的基本理化性质如下: pH 为 7.77、有机碳为 13.4 g•kg⁻¹、总氮为 1.64 g•kg⁻¹、铵态氮(NH₄⁺-N)为21.9 mg•kg⁻¹、NO₃⁻-N 为 0. 30 mg•kg⁻¹、砂粒为 41. 3%、粉粒为 36. 5%、 黏粒为 22.2%; 上述指标在 20~40 cm 的底泥土壤 中分别为 8.06、9.80 g•kg⁻¹、1.27 g•kg⁻¹、34.0 $mg \cdot kg^{-1}$, 0.31 $mg \cdot kg^{-1}$, 46.5%, 35.1%, 18.4% [21].

采用静态暗箱-气袋采气-化学发光氮氧化物分 析法^[67,10] 来测定 NO 排放通量.在所观测的沟渠 中,设置4对静态箱底座(作为4个重复),每对间 隔约 50 m.每对底座均设置一个在无植株区域 (NV,无自然植被覆盖的区域,代表沟渠中的沉积 物-水界面系统)和有植株区域(V,代表自然植被覆 盖的沟渠生态系统),两者间隔约 50 cm,同步采样 和观测,对比研究沟渠生态系统的 NO 排放.在观 测期间,无植被覆盖的区域约占整个沟渠面积的 20%(80%为有植株覆盖的区域),NV 底座内需要 随时人工拔掉箱内植被及根系,确保实验期间箱内 无任何植物.野外采气装置详见文献[35].

1.3 样品采集与分析

原位观测的气体样品采集自 2014 年 12 月 4 日

开始至 2015 年 11 月 30 日结束, 各监测点采样频 率为每周1~2次,集中降雨后在48h内采样.采 集气体样品固定在上午 09:00~11:00,采样时,先 将顶箱放置于底座上,确保底座凹槽内充有少量水 从而避免底座-顶箱密封平面处漏气. 打开采气箱 顶部平衡管的橡胶塞使采样箱内外压力平衡,用空 气压缩泵抽取定量的采气箱内气体(约2.5 L)在线 注入气袋(中国大连德霖气体包装有限公司),并记 录抽气结束时间,迅速关闭平衡管和气袋,待40 min 后再用同样方法抽取另一气袋样品并记录时 间. 气体采集后立即带回实验室测定, 所有气样均 在 24 h 内完成 NO 浓度分析,其测定使用化学发光 氦氧化物(NO-NO,-NO,)分析仪(型号 Thermo-Model 42i, Thermo Environmental Instruments Inc, USA). 同步于 NO 采集,在两次采集气袋样品之间 每隔7 min 采集一次气体入 50 mL 的医用注射器 (共5个气样),用以观测 N₂O和 CO₂的排放^[21].

同步于气体采集,每对底座附近需要采集底泥 样品(3点法采集后混匀),迅速装入自封袋并放入 装有冰袋的保温箱后及时带回实验室分析,如当天 不能分析则保存于4℃以下冰箱中并及时测定.鲜 底泥样主要分析NH₄⁺-N、NO₃⁻-N、可溶性有机碳 (DOC) 的含量, 用 0.5 mol·L⁻¹的 K₂SO₄溶液浸提 新鲜底泥样(水土比5:1,质量浓度),在恒温振荡 器(ZWY-1102C,上海智诚分析仪器制造有限公 司) 中于 300 r•min⁻¹、25℃下振荡 90 min 后静置, 再用 0.45 μm 微孔滤膜过滤,其滤液浓度由 AA3 流动分析仪(Auto Analyzer3HR, 德国 SEAL 公司) 测定. 底泥的含水量用烘干法测定. 采样同时,也 采集沟渠内底座处上覆水水样约 500 mL 装入洁净 的塑料瓶中,密封后迅速带回实验室干24h内完成 分析,如不能在当天测定,则在水样中加入1 mL 浓硫酸以酸化保存,放置在低于4℃的冰箱中并及 时测定. 水样测定的浓度有 NH_{4}^{+} -N、 NO_{3}^{-} -N和 DOC, 水样原液经 0.45 µm 微孔滤膜过滤后用 AA3 流动分析仪测定.

1.4 环境因子测定

同步于气体采集测定的环境因子有: 空气温度 (℃)、底泥-上覆水界面(0~5 cm) 温度(℃) 和底 泥湿度(体积含水率)、上覆水水深(cm)等. 在两 次采气时间间隔内,使用便携式测温度计(JM624, 上海自动化仪表公司)测定采气箱内空气温度、底 泥-上覆水界面温度(下文有涉及的部分都用 SWIT 表示).用便携式水分测定仪(MP-406,杭州托普仪 器有限公司) 测定底泥土壤的体积含水率(%).用 不锈钢尺测量上覆水的水深(cm)和水面到底座-顶 箱密封平面的基线高(cm,密封平面低于水面则基 线为负,反之为正).降雨量、大气压等气象数据则 由距观测点100 m 左右的气象场站(中国科学院盐 亭紫色土农业生态试验站内)获得.

1.5 数据计算与分析

1.5.1 气体排放通量

NO 的排放通量则采用其浓度随时间的变化来 计算^[6,10,11],计算公式如下:

$$F = \frac{M}{V_0} \times \frac{P}{P_0} \times \frac{T_0}{T} \times \frac{\mathrm{d}c}{\mathrm{d}t} \times H \times k$$

式中, *F* 为 NO 排放通量 [本研究以 NO 中 N 含量来 计算,单位 μ g·(m²·h)⁻¹], *M* 为气体的摩尔质量 (g·mol⁻¹), *V*₀、*P*₀和 *T*₀ 为标准状态下的气体摩尔 体积(22.41×10⁻³m³·mol⁻¹)、气压(1013 hPa) 和 温度(273 K), *P* 为采样时观测点的气压值(hPa), *T* 为采样时静态箱内的平均气温(K), *H* 为采样箱 高度与基线高之和(cm), dc/dt 为静态箱内 NO 浓 度变化速率(单位时间内第二次与第一次抽气浓度 的差值), *k* 为量纲转换系数. 根据观测期内 NO 的 排放速率,通过逐日内插法^[6]来计算其累积排放量 (g·hm⁻²).

1.5.2 数据统计与分析

本研究的原位观测时间持续一年整,根据天文 四季划分冬季(12月~次年2月)、春季(3~5 月)、夏季(6~8月)、秋季(9~11月).采用 Microsoft Excel 2010软件进行实验数据处理与计 算,统计分析用 SPSS 20.0软件(SPSS,Inc., USA)进行.采用 ANONA 单因素方差分析及多重比 较(LSD 检验,P < 0.05时有显著性)对比季节平均 值差异的显著性,运用配对分析比较 V 和 NV 处理 间差异的显著性(P < 0.05有显著性),采用 Pearson 偏相关系数法进行相关性分析.观测数据 运用 Origin 8.0(Origin Lab Ltd.)绘图.文中所示的 标准误差,如无特别说明,都是指4次重复测量的 结果所产生.观测期间内的 N₂O 和 CO₂ 通量引自 文献 [21].

2 结果与分析

2.1 温度和降雨

如图 1 所示,观测期内全年的日平均气温是 17.0℃(范围:-3.0~36.6℃),月平均气温最高为 7 月(26.1℃)、最低为 12 月(5.99℃). 冬、春、 夏、秋各季内的平均气温分别为 6.90、18.0、25.1 和 17.6℃,冬季、夏季与春季或秋季间均有显著差 异(P < 0.05). SWIT 的年均值为 17.2℃(范围:5.8 ~24.6℃),月平均 SWIT 最高为 8 月(23.1℃)、最 低为 1 月(6.70℃),冬、春、夏、秋各季内的平均 气温分别为 7.6、15.4、22.8 和 19.8℃,四季之间 差异显著(P < 0.05). 气温和 SWIT 的变化趋势比 较一致,且二者显著正相关(P < 0.001,r = 0.96). 实验期内年降雨量为 956 mm,比多年的平均降雨 量(826 mm)高出 15.7%,其中 6 月、8 月、9 月均 有较高的降雨量(分别为 257、198、228 mm),冬、 春、夏、秋各季节内降雨量分别是 18、153、496、 289 mm,分别占全年降雨量的 1.8%、16.0%、 51.9%和 30.3%,各季节降雨量呈显著差异(P < 0.05).



and cumulative rainfall

2.2 上覆水和底泥中活性碳氮指标的变化

本研究沟渠中活性碳氮($NO_3^{-}-N$ 、 $NH_4^{+}-N$ 、 DOC)指标的月平均值和季节平均值分别如图 2~4 所示. 底泥中 $NO_3^{-}-N$ 的全年平均含量为 0.86 mg·kg⁻¹,范围 0.06~2.21 mg·kg⁻¹,夏季和秋季 内平均含量显著低于冬季和春季(P < 0.05),但全 年内其含量显著低于 $NH_4^{+}-N$ 的含量(P < 0.05),但全 年内其含量显著低于 $NH_4^{+}-N$ 的含量(P < 0.05). $NH_4^{+}-N$ 的年均含量为 20.2 mg·kg⁻¹(范围: 3.30~ 55.3 mg·kg⁻¹),秋季平均含量显著低于其他季节 (P < 0.05),冬季、春季和夏季间无显著差异(P >0.05). DOC 的年均含量为 86.2 mg·kg⁻¹(范围: 17.8~214 mg·kg⁻¹),其中,春季内均值显著高于 冬季和夏季,而秋季则显著低于其他季节(P <



图 2 沟渠底泥中活性碳氮指标月均值的动态变化 Fig. 2 Dynamic changes in the monthly mean reactive

C and N indices of the sediment



Fig. 3 Dynamic variations in the monthly mean reactive C and N indices of the overlying water

0.05).

在观测期内,沟渠中上覆水持续存在,使其底 泥土壤湿度处于饱和状态,上覆水平均深度为4.6 cm(范围: 0.3~12.9 cm).上覆水中NH₄⁺-N的全年 平均浓度为0.13 mg·L⁻¹(范围: 0.02~0.49 mg·L⁻¹),全年内NH₄⁺-N的浓度显著低于NO₃⁻-N的 浓度(P < 0.05).NO₃⁻-N的全年平均浓度为1.11 mg·L⁻¹(范围: 0.02~6.97 mg·L⁻¹),其夏、秋季平 均浓度显著较高(P < 0.05).DOC 的平均浓度为 2.25 mg·L⁻¹(范围: 1.18~4.13 mg·L⁻¹),各季节 中平均浓度变化范围较小,仅春季平均浓度显著高 于冬季(P < 0.05).上覆水中 pH 的范围是7.26~ 7.81,全年平均值为7.58,春季最低,其他季节间



差异不显著(P>0.05).

2.3 NO 排放和 NO/N₂O 比值

如图 5 和图 6 所示, 观测期内 NV 处理的 NO 排放通量为 – 1. 81 ~ 0. 87 μ g·(m²•h) ⁻¹, 最小值和 最大值分别出现在 12 月和 3 月, 平均值为 – 4. 00 × 10⁻³ μ g·(m²•h) ⁻¹, 累 积 排 放 量 为 – 0.4 g·(hm²•a) ⁻¹. 春季和夏季有少量的 NO 排放,冬季 和秋季则是 NO 吸收,季节间无显著差异(*P* > 0. 05). V 处理的 NO 排放通量范围是 – 2. 67 ~ 2. 27 μ g·(m²•h) ⁻¹, 最小值出现在 12 月,最大值出现在 7 月,全年平均值为 0. 16 μ g·(m²•h) ⁻¹,年累积排 放量为 14. 17 g·(hm²•a) ⁻¹. 根据有、无植被覆盖 所占的面积比计算出该沟渠生态系统的整体累积排 放量(图 6 中 CDE) 是 11.27 g·(hm²•a)⁻¹,全年平 均值为 0.13 µg·(m²•h)⁻¹. 但本沟渠生态系统只 有在夏季(季节内累积排放 15.43 g•hm⁻²)才是 NO 的排放源,且该值显著高于(P < 0.05)其他季节, 而春季、秋季和冬季排放通量呈负值,是 NO 的 "汇". 统计分析表明,从观测的时间尺度上看,V 和 NV 每次观测的平均 NO 排放通量具有显著性差 异,V 明显高于 NV(P < 0.05);但观测期内两者的 季节和全年累积排放量却无显著差异(P > 0.05).

如表 1 所示, NV 处理下, 沟渠中 NO 通量和 N₂O 通量的量比 *n*(NO) /*n*(N₂O) 全年平均为 -0.003, 四季差异不显著(*P* > 0.05).在 V 处理 中, *n*(NO) /*n*(N₂O) 全年平均为 0.019, 四季亦无





CDE 表示沟渠生态系统综合的排放;不同小写字母(a、b)表示同一处理下的不同季节累积排放量的显著差异(*P* < 0.05) 图 6 沟渠中 NO 的季节和全年累积排放通量

Fig. 6 Seasonal and annual cumulative NO emission fluxes from the ditch

表1	沟渠 NO	通量和 N_2O	通量的量比 n(NO) /n	$(N_2 O)$)
表1	沟渠 NO	通量和 N_2O	通量的量比 n(NO) /n	(N_2C)	

Table 1 Mole ratio of NO fluxes to N_2 O fluxes in the ditch						
处理	冬	春	夏	秋	全年	
NV	-0.055	0.036	0.008	-0.016	- 0. 003	
V	-0.049	-0.026	0.054	-0.003	0.019	
沟渠整个区域内	-0.048	-0.017	0.050	-0.004	0.017	

显著差异(P > 0.05). 配对分析显示,两个处理间 的季节和年度差异也不显著(P > 0.05). 而在沟渠 整个区域内,其 $n(NO)/n(N_2O)$ 全年平均为 0.017,季节间无显著差异(P > 0.05).

2.4 NO 排放的影响因素

相关性分析结果如表 2, V 处理中的 NO 排放 通量与 CO₂ 排放通量(*r*=0.43, *P*<0.01)、N₂O 排 放通量(*r*=0.46, *P*<0.01)、温度(气温:*r*=0.55, P < 0.01; SWIT: r = 0.54, P < 0.01)、上覆水中 NO₃⁻-N浓度(r = 0.30, P < 0.05) 呈显著正相关,但 与上覆水水深(r = -0.25, P < 0.05) 和底泥中 NO₃⁻-N含量(r = -0.28, P < 0.05) 呈显著负相关. NV 处理的 NO 排放通量与 CO₂ 排放通量(r = 0.27, P < 0.05) 和温度(气温: r = 0.31, P < 0.05; SWIT: r = 0.30, P < 0.05) 呈显著正相关,与底泥中 NO₃⁻-N含量(r = -0.32, P < 0.01) 呈显著负相关.

表 2 沟渠 NO 排放通量与环境指标的相关关系¹⁾

Table 2 Correlations between ditch NO fluxes and other environmental indices							
	CO ₂ 通量	N ₂ 0 通量	气温	SWIT	水深	上覆水NO ₃ -N浓度	底泥NO3-N含量
处理	(n = 69)				(n = 64)		
NV	0. 27*	_	0.31*	0. 30*	—	—	-0.32**
V	0. 43 **	0. 46 **	0. 55 **	0. 54 **	-0.25*	0. 30*	- 0. 28 [*]

1) * 表示 P < 0.05, * * 表示 P < 0.01, 一表示无显著相关性

3 讨论

3.1 与国内外其他研究对比

与施肥处理下的紫色土丘陵区农田、成都平原 的稻麦轮作和江苏无锡的稻麦轮作农田生态系统相 比,本研究沟渠生态系统的 NO 平均排放通量较低 (表3).不过,该排放通量与富营养化的胶州湾及其 邻近海域表层海水的 NO 排放通量相近,且明显高于 成都平原不施氮肥的稻麦轮作农田中的 NO 排放通 量.尽管紫色土丘陵区的农田源头沟渠生态系统具 有相对较低的 NO 排放通量,但也是不容忽视的水体 排放源,其区域排放特征还需进一步研究加以明确.

表3 与其他相关研究的 NO 通量比较¹⁾

Table 3 Comparison of NO fluxes estimated in this study with those estimated in other similar studies

ᄪᅇᅫᅌᆓᇝᄴᇰ	NO 排放通量	** =*		
研九列家汉地思	平均值	范围		
川中丘陵区常规施肥的紫色土坡耕地(玉米-小麦轮作)	5.14	0 ~ 82.5	[6]	
江苏无锡常规施肥的稻麦轮作农田	5.2	/	[9]	
春季胶州湾及其邻近海域表层海水	0. 55	/	[22]	
成都平原稻-麦轮作农田(施氮量 150 ㎏•hm ⁻²)	5.5	-49.8 ~248	[36]	
成都平原稻-麦轮作农田(无施氮)	-0.8	/	[36]	
紫色土丘陵区农田源头沟渠 , 中国	0.13	- 2. 50 ~ 1. 83	本研究	

1) "/"表示文献中无数据提到

3.2 植株对 NO 排放的影响

有研究表明植物自身可以通过非酶促反应、固 氮作用、呼吸作用等产生 NO^[37],也可以通过植物 体内的酶促反应即在硝态氮还原酶(NR)催化作用 下以 NADPH 或 NADH 为电子供体还原 NO -N和 NO₂⁻-N而产生 NO^[38~40]. Yamasaki 等指出^[38], 植物 在对氮素的新陈代谢作用过程中可产生 NO,有研 究发现部分植物的气孔组织可以加速 NO 向大气扩 散^[4]. 观测期内 V 处理的 NO 排放通量显著高于 NV 对照处理(P<0.05),同时 V 处理的 CO2 排放 通量[10.3~97.4 mg·(m²·h)⁻¹]也明显高于(P< 0.05) NV 处理 [29.9~505 mg·(m²·h)⁻¹]^[21].相 关性分析显示, V 处理下 NO 排放通量和 CO。排放 通量呈显著正相关,表明沟渠植株的存在可促进 NO 的排放. 然而, NO 年累积排放通量在 V 和 NV 处理中并无显著差异,原因可能是植物生长对其生 态系统中活性氮的吸收降低了硝化-反硝化作用可 利用的氮素,植株与环境的相互作用增加了沟渠生 态系统中氮转化的复杂性和空间差异性[21,35],野外 原位观测较大的空间差异可能对于其累积排放通量 的统计分析后无显著差异的结果也存在影响.

3.3 NO 排放的季节差异和影响因素

本研究结果显示,NO 排放通量与上覆水中 NO₃⁻-N浓度显著正相关(表 2),表明上覆水中 NO₃⁻-N浓度的升高可促进 NO 排放.NO₃⁻-N是反硝 化发生的底物基础,DOC 则是反硝化微生物的能量 来源^[19 A1].本研究中,沟渠上覆水中 DOC 浓度相 对较稳定(图 3),且与 NO 排放通量不显著相关, 说明上覆水中 DOC 浓度并不是 NO 排放的限制因 素. $n(NO)/n(N_2O)$ 比是否大于1,一般用来判断 NO 和 N₂O 产生来自于硝化作用还是反硝化作 用^[42].Anderson 等^[5]发现,反硝化细菌作用下形成 的 $n(NO)/n(N_2O)$ 比值远小于1,郑循华等^[43]指出 反硝化产生的 $n(NO)/n(N_2O)$ 值通常约为0.01, 这十分接近于本研究所得 $n(NO) / n(N_2O)$ 的全年 平均值(表 1),此外,上覆水和底泥中的 NH_4^+ -N (硝化作用底物)均与 NO 排放通量不显著相关,因 此,笔者认为观测期内 NO 排放主要由上覆水中反 硝化作用产生. 在反硝化过程中, NO, -N作为更优 于 N₂O 的电子受体,在碳源充足时,水中NO₃-N浓 度的升高会使得 N₂O 比NO₃⁻-N更难被还原而出现 $N_{2}O$ 的积累并释放, 使 $N_{2}O$ 排放随 NO_{3}^{-} -N浓度的增 加而增加^[35,41]. Herrman 等^[20]在美国东北部农业源 头溪流中的研究发现NO。-N浓度的增加可加快其反 硝化的效率,与其一致的是,本研究的农田源头沟 渠上覆水中NO₃-N浓度和其 N₂O 排放通量显著线 性正相关^[21]. 同时, Schulthess 等^[44] 通过控制实验 研究发现,当NO,~-N作为首要电子受体时,N,O还 原酶的转化率小于 NO 还原酶的转化率, 而 NO 还 原酶的转化率也小于 NO₂⁻ 还原酶的转化率,进而 同时促进 N₂O 和 NO 的产生.因此,笔者认为,在 本研究的沟渠上覆水中NO。-N浓度的增加促进了该 生态系统中的反硝化作用, 使 NO 的排放量随 N₂O 排放量的增加而增加,即二者呈显著正相关(表 2). 在同一研究区域,研究发现农田源头沟渠上覆 水中的NO₃-N浓度与采样前 72h 内的累积降雨量显 著呈正相关($R^2 = 0.33$, P < 0.05, n = 10)^[21], 从而 进一步证实了 Zhu 等^[13]的研究结果,即降雨可促 使紫色土坡耕地农田中的NO,一N随地表径流和壤中 流迁移出农田进而汇集周边的沟渠水体中.因而, 降雨是沟渠水中NO3-N浓度升高的主要驱动因素, 夏季较多的降雨(雨量占观测全年的51.9%,图1) 和水中较高的 NO_3^{-} -N浓度[图 3(a) 和图 4(d)]促使 该季节产生较高的 NO 排放(图 5). 今后的研究中, 针对夏季集中降雨后的野外通量观测,其采样频率 还需要进一步提高而实现降雨过程中加密观测,进 一步减少估算误差,从而更为准确地探寻其雨后排 放通量和降雨量间的相关关系.

本研究发现 V 和 NV 两个处理的 SWIT 和气温 变化趋势呈高度极度一致(图1), 而 NO 排放通量 与二者都呈显著正相关(表2),说明温度也是影响 该生态系统中 NO 排放通量变化的重要因子. 水体 温度的升高可促使微生物参与的反硝化作用效率增 加^[20 ,41], Jenni 等^[45] 培养实验发现, 缓冲液中 NO 的产量亦随温度(10~30℃)升高而增加,与本研究 结果一致. 同时,夏季气温和 SWIT 均显著高于其 他季节(P < 0.05),且 NO 的季节排放通量也显著 高于其他季节,因此温度也是影响该沟渠生态系统 NO 排放季节变化的因素,这与郑循华等^[43]在华东 麦田研究的结果一致,即温度影响 NO 排放的季节 变化. 值得注意的是,本研究的沟渠中夏季的温度 显著高于秋季、但其水中NO、N浓度在这两个季节 中差异不显著 [图 4(d)], 而最终夏季 NO 季节排 放量显著高于秋季(图6),这说明在NO₃-N浓度较 高且差异不明显的时期,温度对 NO 排放的驱动作 用更加关键.

4 结论

(1)农田源头沟渠作为紫色土丘陵区农业的重要组成部分,在本观测期内,紫色土丘陵区农田源 头沟渠生态系统的全年累积排放量为11.27 g•(hm²•a)⁻¹,是个不容忽视的 NO 排放源.

(2) 紫色土丘陵区农田源头沟渠生态系统只有 在夏季才是 NO 的排放源,且夏季的累积排放量显 著高于其他季节.上覆水NO₃-N浓度和温度共同影 响着 NO 排放的季节变化.夏季中较多的降雨、较 高的温度和水中NO₃-N浓度促使该季节具有较高的 NO 累积排放量.

(3) 沟渠中植株的存在可提高所观测的 NO 排 放通量,但对全年 NO 累积排放量无显著影响. 参考文献:

- Zhu X Y, Chen Y G. Reduction of N₂O and NO generation in anaerobic-aerobic (low dissolved oxygen) biological wastewater treatment process by using sludge alkaline fermentation liquid [J]. Environmental Science & Technology, 2011, 45 (6): 2137-2143.
- [2] Zheng X H, Huang Y, Wang Y S, et al. Effects of soil temperature on nitric oxide emission from a typical Chinese ricewheat rotation during the non-waterlogged period [J]. Global Change Biology, 2003, 9(4): 601-611.
- [3] 蔡延江,丁维新,项剑. 土壤 N₂O 和 NO 产生机制研究进展
 [J]. 土壤, 2012, 44(5): 712-718.
 Cai Y J, Ding W X, Xiang J. Mechanisms of nitrous oxide and nitric oxide production in soils: a review [J]. Soils, 2012, 44 (5): 712-718.

- [4] 蔡延江,丁维新,项剑.农田土壤N₂O和NO排放的影响因素及其作用机制[J].土壤,2012,44(6):881-887.
 Cai Y J, Ding W X, Xiang J. Factors controlling N₂O and NO emissions from agricultural soils and their influencing mechanisms: a review[J]. Soils,2012,44(6):881-887.
- [5] Anderson I C, Levine J S. Relative rates of nitric oxide and nitrous oxide production by nitrifiers, denitrifiers, and nitrate respirers [J]. Applied and Environmental Microbiology, 1986, 51(5): 938–945.
- [6] 胡廷旭,刘韵,柯韵,等.紫色土夏玉米-冬小麦轮作农田的 NO 排放特征[J].农业环境科学学报,2015,34(7):1407– 1413.
 Hu T X, Liu Y, Ke Y, et al. Characteristics of NO emissions from purple soil under summer maize-winter wheat rotation [J]. Journal of Agro-Environment Science, 2015,34(7): 1407– 1413.
- [7] 杜雁冰,姚志生,邹建文,等.水稻覆膜节水种植对 NO 排放的影响[J]. 气候与环境研究,2015,20(2):235-244. Du Y B, Yao Z S, Zou J W, et al. Effect of water-saving ground cover rice production system on NO emission from a rice-fallow rotation cycle[J]. Climatic and Environmental Research, 2015, 20(2):235-244.
- [8] IPCC. Climate change 2007: the physical science basis. Contribution of Working Group I to the Fourth assessment report of the intergovernmental panel on climate change [R]. United Kingdom, New York, USA: Cambridge University Press, 2007.
- [9] Zhou Z X , Zheng X H , Xie B H , et al. Nitric oxide emissions from rice-wheat rotation fields in eastern China: effect of fertilization , soil water content , and crop residue [J]. Plant and Soil , 2010 , 336(1-2): 87-98.
- [10] Mei B L , Zheng X H , Xie B H , et al. Nitric oxide emissions from conventional vegetable fields in southeastern China [J]. Atmospheric Environment , 2009 , 43 (17) : 2762–2769.
- [11] Zheng X H , Huang Y , Wang Y S , et al. Seasonal characteristics of nitric oxide emission from a typical Chinese rice-wheat rotation during the non-waterlogged period [J]. Global Change Biology , 2003 , 9(2): 219–227.
- [12] Peterson B J, Wollheim W M, Mulholland P J, et al. Control of nitrogen export from watersheds by headwater streams [J]. Science, 2001, 292(5514): 86–90.
- [13] Zhu B , Wang T , Kuang F H , et al. Measurements of nitrate leaching from a hillslope cropland in the Central Sichuan Basin , China [J]. Soil Science Society of America Journal , 2009 , 73 (4): 1419–1426.
- [14] Wang T , Zhu B. Nitrate loss via overland flow and interflow from a sloped farmland in the hilly area of purple soil, China [J]. Nutrient Cycling in Agroecosystems, 2011, 90(3): 309–319.
- [15] Kröger R , Holland M M , Moore M T , et al. Hydrological variability and agricultural drainage ditch inorganic nitrogen reduction capacity [J]. Journal of Environmental Quality , 2007 , 36(6): 1646–1652.
- [16] Mulholland P J, Helton A M, Poole G C, et al. Stream denitrification across biomes and its response to anthropogenic nitrate loading [J]. Nature , 2008, 452(7184): 202–205.
- [17] Royer T V, Tank J L, David M B. Transport and fate of nitrate in headwater agricultural streams in Illinois [J]. Journal of Environmental Quality, 2004, 33(4): 1296–1304.

[18] 姜翠玲,崔广柏,范晓秋,等. 沟渠湿地对农业非点源污染物的净化能力研究[J]. 环境科学,2004,25(2):125-128.
 Jiang CL, Cui GB, Fan XO, et al. Purification capacity of

ditch wetland to agricultural non-point pollutants [J]. Environmental Science , 2004 , 25(2): 125–128.

- [19] Beaulieu J J, Arango C P, Tank J L. The effects of season and agriculture on nitrous oxide production in headwater streams [J]. Journal of Environmental Quality, 2009, 38(2): 637-646.
- [20] Herrman K S, Bouchard V, Moore R H. Factors affecting denitrification in agricultural headwater streams in Northeast Ohio, USA[J]. Hydrobiologia, 2008, 598(1): 305–314.
- [21] Tian L L, Zhu B, Akiyama H. Seasonal variations in indirect N₂O emissions from an agricultural headwater ditch [J]. Biology and Fertility of Soils , 2017 , 53(6): 651-662.
- [22] 薛超,刘春颖,杨桂朋,等. 胶州湾及邻近海域表层海水中 一氧化氮浓度分布及其影响因素探讨[J]. 环境科学,2012, 33(4): 1086-1090.
 Xue C, Liu CY, Yang GP, et al. Distribution and controlling

factors of nitric oxide concentrations in surface seawater of Jiaozhou Bay and adjacent waters [J]. Environmental Sciences, 2012, **33**(4): 1086–1090.

- [23] Stüven R, Bock E. Nitrification and denitrification as a source for NO and NO₂ production in high-strength wastewater [J]. Water Research , 2001 , 35(8): 1905–1914.
- [24] Kampschreur M J, Tan N C G, Kleerebezem R, et al. Effect of dynamic process conditions on nitrogen oxides emission from a nitrifying culture [J]. Environmental Science & Technology, 2008, 42(2): 429-435.
- [25] Kampschreur M J, van der Star W R L, Wielders H A, et al. Dynamics of nitric oxide and nitrous oxide emission during fullscale reject water treatment [J]. Water Research ,2008 ,42(3): 812-826.
- [26] Ahn J H, Kwan T, Chandran K. Comparison of partial and full nitrification processes applied for treating high-strength nitrogen wastewaters: microbial ecology through nitrous oxide production [J]. Environmental Science & Technology, 2011, 45 (7): 2734–2740.
- [27] Perez-Garcia O, Villas-Boas S G, Swift S, et al. Clarifying the regulation of NO/N₂O production in Nitrosomonas europaea during anoxic-oxic transition via flux balance analysis of a metabolic network model[J]. Water Research, 2014, 60: 267– 277.
- [28] 陈杰,周东,王亚宜.溶解氧水平对污水生物硝化过程 N₂O 和 NO 气体释放特性的影响 [J].四川环境,2016,35(1): 6-11.

Chen J , Zhou D , Wang Y Y. Impact of dissolved oxygen levels on N_2O and NO emissions during nitrification process of municipal wastewater [J]. Sichuan Environment , 2016 , **35**(1): 6–11.

- [29] 朱波,汪涛,徐泰平,等.紫色丘陵区典型小流域氮素迁移及其环境效应[J].山地学报,2006,24(5):601-606. Zhu B, Wang T, Xu T P, et al. Non-point-source nitrogen movement and its environmental effects in a small watershed in hilly area of purple soil[J]. Journal of Mountain Science, 2006, 24(5):601-606.
- [30] 朱波,彭奎,谢红梅.川中丘陵区典型小流域农田生态系统

氦素收支探析[J]. 中国生态农业学报,2006,14(1):108-111.

Zhu B , Peng K , Xie H M. Nitrogen balance of agro-ecosystem in a typical watershed in the hilly area of Central Sichuan Basin[J]. Chinese Journal of Eco-Agriculture , 2006 , **14**(1): 108–111.

- [31] 朱波,汪涛,况福虹,等. 紫色土坡耕地硝酸盐淋失特征
 [J].环境科学学报,2008,28(3):525-533.
 Zhu B, Wang T, Kuang F H, et al. Characteristics of nitrate leaching from hilly cropland of purple soil [J]. Acta Scientiae Circumstantiae, 2008,28(3):525-533.
- [32] 杨小林,朱波,董玉龙,等.紫色土丘陵区小流域非点源氮 迁移特征研究[J].水利学报,2013,44(3):276-283.
 Yang X L, Zhu B, Dong Y L, *et al.* Transport processes of diffuse nitrogen in typical catchments in the hilly area of purple soil[J]. Journal of Hydraulic Engineering, 2013,44(3):276-283
- [33] 朱波,周明华,况福虹,等.紫色土坡耕地氮素淋失通量的 实测与模拟[J].中国生态农业学报,2013,21(1):102-109.

Zhu B , Zhou M H , Kuang F H , *et al.* Measurement and simulation of nitrogen leaching loss in hillslope cropland of purple soil[J]. Chinese Journal of Eco-Agriculture , 2013 , **21** (1): 102–109.

[34] 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.

Lu R K. Analysis methods of soil agricultural chemistry [M]. Beijing: China Agricultural Science and Technology Press, 2000.

[35] 田琳琳,朱波,汪涛,等.川中丘陵区农田源头沟渠玉米季 中氧化亚氮排放及其影响因素[J].环境科学,2017,38 (5):2074-2083.

Tian L L , Zhu B , Wang T , *et al.* Nitrous oxide emissions and its influencing factors from an agricultural headwater ditch during a maize season in the Hilly Area of Central Sichuan Basin [J]. Environmental Science , 2017 , **38**(5): 2074–2083.

[36] 于亚军,王小国,朱波.成都平原水稻-小麦轮作系统NO排 放及其主要影响因素[J].生态学报,2015,35(9):2910-2916.

Yu Y J , Wang X G , Zhu B. NO emission and its main impacting factors in rice-wheat rotation system in Chengdu Plain of Sichuan Basin[J]. Acta Ecologica Sinica , 2015 , $\mathbf{35}(9)$: 2910–2916.

- [37] 王文重,高继国. NO 在植物体内产生的途径及其作用[J]. 东北农业大学学报,2006,37(4):546-551.
 Wang W Z,Gao J G. The source of endogenous NO and effect in plant[J]. Journal of Northeast Agricultural University,2006,37 (4):546-551.
- [38] Yamasaki H , Sakihama Y , Takahashi S. An alternative pathway for nitric oxide production in plants: new features of an old enzyme[J]. Trends in Plant Science , 1999 , 4(4): 128–129.
- [39] 赵晓刚,徐张红,何奕昆,等. NO 在植物中的调控作用[J]. 植物学通报,2004,21(1):44-51.
 Zhao X G, Xu Z H, He Y K, *et al.* The regulation of nitric oxide in plant[J]. Chinese Bulletin of Botany, 2004,21(1):44-51.
- [40] Gupta K J , Fernie A R , Kaiser W M , et al. On the origins of nitric oxide [J]. Trends in Plant Science , 2011 , 16(3): 160– 168.
- [41] Stow C A , Walker J T , Cardoch L , et al. $\rm N_2O$ emissions from

streams in the Neuse River Watershed , North Carolina [J]. Environmental Science & Technology , 2005 , 39(18): 6999–7004.

[42] 冯琪,王睿,郑循华,等. 厌氧条件下土壤反硝化气体(N₂, N₂O,NO)和 CO₂ 排放——氦环境培养—气体同步直接测定 法的应用初探[J]. 气候与环境研究,2013,18(3):297-310.

Feng Q , Wang R , Zheng X H , et al. Direct measurements of denitrification gas (N_2 , N_2O , NO) and CO_2 emissions using the gas-flow-soil-core technique with helium environment incubation [J]. Climatic and Environmental Research ,2013 ,18(3): 297–310.

[43] 郑循华, 王明星, 王跃思, 等. 华东稻麦轮作生态系统冬小

麦田 NO 排放观测研究[J]. 应用生态学报,2000,11(4): 577-581.

Zheng X H , Wang M X , Wang Y S , *et al.* NO emission from winter wheat fields of rice-wheat rotation ecosystem in southeast China [J]. Chinese Journal of Applied Ecology , 2000 , 11(4): 577–581.

- [44] Schulthess R V, Kühni M, Gujer W. Release of nitric and nitrous oxides from denitrifying activated sludge [J]. Water Research, 1995, 29(1): 215–226.
- [45] Jenni S , Mohn J , Emmenegger L , et al. Temperature dependence and interferences of NO and N₂O microelectrodes used in wastewater treatment [J]. Environmental Science & Technology , 2012 , 46(4): 2257–2266.