

中国东北区淡水沼泽湿地 N_2O 和 CH_4 排放通量及主导因子

于君宝^{①②*}, 刘景双^②, 孙志高^{①†}, 孙卫东^③, 王金达^②, 王国平^②, 陈小兵^①

① 中国科学院烟台海岸带可持续发展研究所, 烟台 264003;

② 中国科学院东北地理与农业生态研究所湿地生态与环境重点实验室, 长春 130012;

③ 中国科学院广州地球化学研究所同位素年代学和地球化学重点实验室, 广州 510640

* 联系人, E-mail: junbao.yu@gmail.com, jbyu@yic.ac.cn

† 同等贡献, E-mail: zgsun@yic.ac.cn

收稿日期: 2008-04-28; 接受日期: 2008-10-14

中国科学院百人计划、国家自然科学基金项目(批准号: 40873062, 40803023)和中国科学院知识创新工程项目(编号: KZCX2-YW-309, KZCX3-SW-332)资助

摘要 在中国东北三江平原沼泽湿地分布区(47°35'N, 133°31'E)内选择相邻的地表积水特征分别为季节性积水(SW)和地表常年无积水(NW)的小叶章(*Calamagrostis angustifolia*)湿地作为研究对象, 于 2002~2004 年采用静态箱法监测了湿地系统内氧化亚氮(N_2O)和甲烷(CH_4)的排放状况. 结果表明, 两种温室气体的日变化与季节变化与 5 cm 地温显著相关. 生长季期内, NW 湿地表现为 N_2O 的源和 CH_4 的汇, 而 SW 湿地为 N_2O 的汇和 CH_4 的源. 土壤氧化还原电位(Eh)在 200~400 mV 之间有利于 N_2O 排放, 而在 -300~-100 mV 之间有利于 CH_4 排放. 值得注意的是, 分别在 Eh 值 -300~-100 mV 和 300~400 mV 观测到 N_2O 和 CH_4 的另一排放峰值, 说明土壤中必然存在其他影响源决定着 7, 8 月份 N_2O 和 CH_4 排放峰值; 进一步研究证明, 因融化而致使冻层下累积的 N_2O 和 CH_4 集中释放是生长季 N_2O 和 CH_4 这一排放峰值的主要来源.

关键词

冻融区
淡水沼泽
 CH_4
 N_2O
主导因素

氧化亚氮(N_2O)和甲烷(CH_4)是重要的温室气体, 在全球大气环境中的辐射强迫能力仅次于二氧化碳(CO_2), 但其温室效应分别为 CO_2 的 300 倍和 20~30 倍^[1]. 1750~2005 年, 大气的 N_2O 和 CH_4 浓度分别增加 49 ppb (18.2%)(1 ppb=1 $\mu\text{g/L}$, 下同)和 1059 ppb (148.1%), 并且仍在持续升高^[1~4]. 除温室效应外, N_2O 在平流层可被进一步氧化为一氧化氮(NO), 这一途径是导致臭氧层破坏的主要原因之一. 因此, 关于 N_2O 和 CH_4 的研究备受关注, 且当前研究主要集中在土壤中 N_2O 和 CH_4 的形成与排放机制以及其在大气中

的损失过程.

湿地是全球生态系统中与温室气体排放密切相关的重要生态系统之一. 尽管湿地面积仅占全球陆地总面积的 5%, 但其 N_2O 和 CH_4 排放量分别占目前全球年排放总量的 20%和 25%^[5,6]. 总的来说, 土壤中 N_2O 和 CH_4 排放受诸多种因素共同作用的影响, 如温度、土壤湿度、氧化还原状况等^[7~13]. Zhang等^[7]在野外原位研究外源氮输入对淡水湿地生态系统土壤呼吸、 N_2O 和 CH_4 排放状况时发现, N_2O 和 CH_4 排放显著受外源氮数量的影响. 相关研究表明, 湿地系统中积

水深度和温度决定了N₂O和CH₄ 排放的空间分布^[13-15]。另外,有些学者已在三江平原温室气体研究中监测到了冬季沼泽湿地仍存在CH₄ 排放^[16-18]。

在本研究中,选择我国三江平原小叶章淡水沼泽湿地,在2002~2004年的植物生长季进行了N₂O和CH₄ 的野外通量监测,并在2003年10月至2004年7月进行了冻融期不同土壤深度N₂O和CH₄ 浓度监测。本研究的主要目的包括:(1)揭示我国温带地区淡水湿地N₂O和CH₄ 的排放规律;(2)评估温度、生物量、pH和Eh对N₂O和CH₄ 排放的影响;(3)深入了解冻融作用对温带冻融区湿地N₂O和CH₄ 排放的影响机制。

1 材料与方 法

1.1 研究区域

研究区域位于我国东北区黑龙江省的三江平原(45°01'~48°28'N, 130°13'~135°05'E)。三江平原是我国目前面积最大、分布连片的平原淡水湿地^[19],总面积约14800 km²^[20]。该区年降雨量在500~650 mm,主要集中在7和8月份。本区年均温1.9℃,1月份和7月份年均温度分别为-20和22℃。三江平原冻融期每年持续大约9个月,土壤在11月初开始冻结,在次年3月初开始融化,约在7月中旬完全融通。依据植被优势种类型,三江平原沼泽湿地可分为小叶章湿地、毛果苔草湿地、漂筏苔草湿地和乌拉苔草湿地^[19]。其中小叶章湿地面积约为湿地总面积的34%^[21],该湿地类型根据水分状况可进一步分为季节性积水湿地(SW)和地表常年无积水(NW)湿地。在SW湿地中,由于来自积雪融化和少量降雨,从3月份至7月中旬地表积水深度约为0~10 cm,自7月中旬土壤完全融通至11月初,积存的地表积水下渗,故此期间地表无积水。7,8月份,由于降雨集中,NW湿地和SW湿地土壤均处于水分饱和状态。除7和8月份,植物生长季内NW湿地表层0~5 cm土壤相对较干燥。

研究区内 SW 湿地的植物组成为纯小叶章,而

NW 湿地内约为 90%的小叶章和 10%的灌丛。土壤类型均为白浆土,土壤剖面自上而下可划分为草根层、泥炭层和白浆层 3 个层次。NW 湿地和 SW 湿地草根层厚度分别 15~20 和 20~30 cm,泥炭层厚度分别为 10~20 和 15~30 cm,白浆层位于泥炭层之下。小叶章湿地土壤剖面的养分状况详见表 1。

1.2 样品采集

N₂O和CH₄监测小区(10 m × 25 m)布设在中国科学院三江平原沼泽湿地生态试验站(47°35'N, 133°31'E)实验地小叶章分布范围内,NW 湿地和 SW 湿地的监测点相毗邻。每个湿地类型布设 5 个 N₂O 和 CH₄ 通量重复监测点,6 个冻层下不同土壤深度 N₂O 和 CH₄ 浓度监测点。为了减小采样时的人为干扰,在每个监测点位的采样一侧搭设木栈桥。

采用树脂玻璃静态箱在野外监测气体通量状况,其结构与Lindau所使用的静态箱相似^[23]。静态箱由金属底座(50 cm×50 cm×5 cm)和可移动箱体(50 cm×50 cm×70 cm)两部分组成。底座由 4 个支柱作支撑,在开始监测前,底座被永久的安装在采样点内,支柱底端约有 10 cm埋入土壤中,箱体底部开放,可直接安装到底座上,采样时底座与可移动箱体的缝隙采用水封。箱体顶部装有风扇、温度计以及带夹子的胶皮管作为取气口。静态箱于每年的 5 月初气体采样之前布设于各监测点。

冻层下不同土壤深度 N₂O 和 CH₄ 气体浓度监测采用带孔的 PVC 监测箱(图 1)。PVC 监测箱直径为 7.5 cm,长度依据监测深度分别设置为 25, 35, 55, 80, 100 和 140 cm(不含高出地表部分的预留长度),监测的土壤深度分别为 10~25, 25~35, 40~55, 60~80, 80~100 和 120~140 cm。在土壤冻结前,2 组 PVC 监测箱分别安装在 SW 和 NW 湿地临近通量监测点的监测小区内。监测箱的两端密封,顶部设有带夹子的胶皮管作为取气口,在底端相应的监测深度范围内设置长 15~20 cm,直径约为 0.8 cm 的集气孔 36~48 个(图 1)。

表 1 土壤剖面营养元素含量^{a)}

土壤剖面	TN/g·kg ⁻¹	NH ₄ -N/mg·kg ⁻¹	NO ₃ -N/mg·kg ⁻¹	TP/mg·kg ⁻¹	TOC/g·kg ⁻¹	TS/mg·kg ⁻¹	pH
根层	17.03~19.78	50.96~73.27	2.43~6.21	1356.23~2673.44	50.56~64.61	476.32~524.76	5.12~6.25
泥炭层	20.20~22.94	31.40~82.02	2.94~3.39	1987.43~2064.79	60.57~80.76	452.12~512.34	5.14~5.97
白浆层	7.04~8.05	16.92~28.25	0.57~1.26	364.85~759.05	7.44~15.99	299.34~401.43	5.67~6.26

a) TN, TP 和 TOC 数据来自文献^[22]

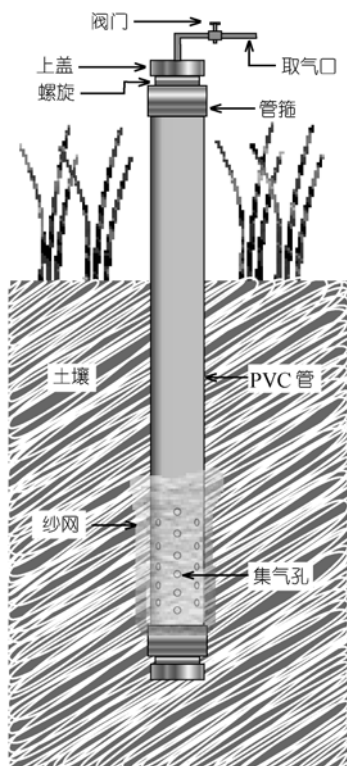


图 1 不同土壤深度 N_2O 和 CH_4 气体浓度监测装置示意图

植物生长季内 N_2O 和 CH_4 气体通量监测期为 2002~2004 年, 监测频次为 2 次/周, 分别在每周周六的 8:30~9:30 和 14:30~15:30 进行。每月的 18 日进行日变化监测, 监测频次 3 h/次, 全天共 8 次。每次采样时, 使用 50 mL 注射器分别在静态箱封闭后的 0, 30 和 60 min 采集气体样品, 然后迅速注射到真空袋中保存, 防止气体样品与外界气体发生交换。

不同土壤深度气体浓度监测期为 2003 年的 11 月至 2004 年的 8 月, 采样频次为 3 次/月, 分别在每月的 6, 16 和 26 日的 9:00~10:00 进行。采样时, 监测箱内气体被抽出后密封, 平衡 30 min 后, 采用 50 mL 注射器通过取气口取气, 并立即注射到真空袋中保存。所有气体样品于取样后 10 h 内在三江平原沼泽湿地生态试验站内分析。

在植物生长季的每月中旬于 6 个监测小区内测定植物生物量, 每次测定面积为 50 cm×50 cm。测定时, 将植物活体和立枯体齐地面收割, 地下部分挖掘至 60 cm 并去除泥土。

1.3 样品分析

N_2O 和 CH_4 浓度采用 Agilent 6820 气相色谱测定,

N_2O 浓度测定时配置 ^{63}Ni 电子捕获器和 3 m Poropak Q (60/80 目) 填充柱, 柱温、进样器和检测器温度分别为 55, 250 和 375 °C, 载气为 99.9995% 的高纯氮气, CH_4 浓度测定时配置氢火焰离子化检测器 (FID) 和 2 mL 3X 分子筛 (80/100 目), 柱温、进样器和检测器温度分别为 55, 200 和 330 °C, 载气为 99.9995% 的氦气。载气 (氮气或氦气) 流量为 60 mL·min⁻¹。每次气体分析前, 仪器均采用由国家标准物质研究所提供的 N_2O 和 CH_4 标准气体进行校正。

在实验室内人工分离植物活体和立枯体, 80 °C 下烘干 72 h 至恒重, 采用干物质重量作为生物量计算依据。

在气体监测的同时测定大气温度和地表 5 cm 地温。采用 pHB-4 型酸度计 (上海雷磁仪器厂) 原位测定土壤 pH 和氧化还原电位 (Eh)。Eh 测定时采用 Pt 电极 (2 次重复, 5 cm), Ag-AgCl 电极作参比电极, 将野外 Eh 测定结果加 199 mV 进行校正^[24]。

1.4 通量计算

采用如下公式计算 N_2O 和 CH_4 的排放通量: $F = \rho \times H \times (\Delta C / \Delta t) \times 273 / (273 + T)$, 其中, F 为气体排放通量, N_2O ($\mu g N_2O \cdot m^{-2} \cdot h^{-1}$), CH_4 ($mg CH_4 \cdot m^{-2} \cdot h^{-1}$); ρ 为标准状况下 N_2O 和 CH_4 气体密度 (N_2O : 1.96 kg·m⁻³, CH_4 : 0.71 kg·m⁻³); H 为静态箱高度 (m); $\Delta C / \Delta t$: 静态箱内 N_2O 或 CH_4 浓度变化速率, N_2O (ppb·h⁻¹), CH_4 (ppm·h⁻¹, 1 ppm=1 $\mu g/g$, 下同); T 为静态箱内的温度 (°C); $\Delta C / \Delta t$ 值采用最小二乘回归法确定。

2 结果与讨论

2.1 N_2O 和 CH_4 通量日变化

SW 和 NW 湿地 N_2O 和 CH_4 排放通量均表现为早晨较低, 13:00 达到最高值, 随后逐渐降低 (图 2(a)~(d)), 这主要是受温度日变化的影响。然而, N_2O 和 CH_4 排放通量最高值出现在 13:00, 这与每日温度最高值出现的时间 (一般在 14:00) 并不完全一致, 可能是由于在本研究中通量与温度为非连续监测 (两次监测间隔时间为 3 h) 而未监测到最高值所致。NW 湿地和 SW 湿地 5 cm 地温日变化趋势相似 (早晨开始升高, 峰值出现在 13:00, 随后逐渐下降), 其变化范围分别为 3.09~20.31 和 2.02~14.96 °C。相关分析表明,

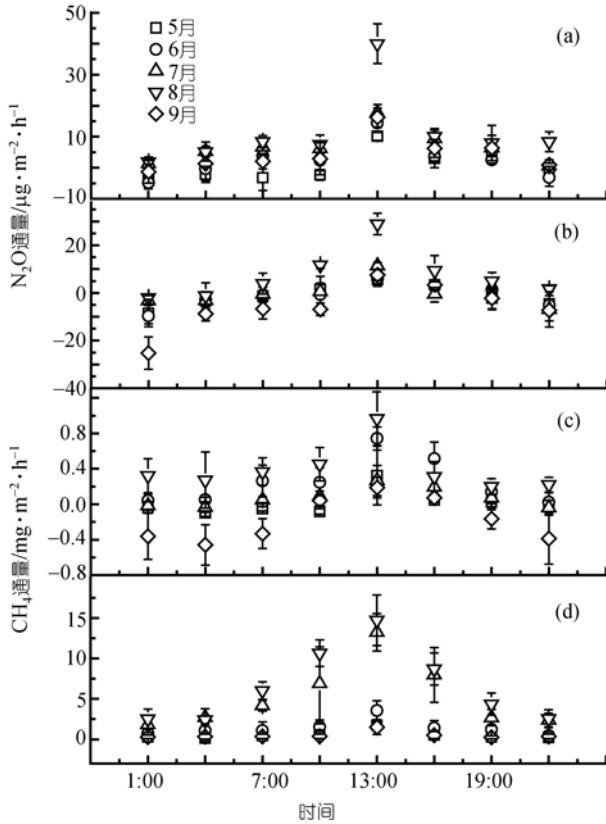


图2 N₂O ((a), (b))和 CH₄ ((c), (d))通量日变化
(a) NW; (b) SW; (c) NW; (d) SW

NW湿地和SW湿地的N₂O, CH₄ 排放通量与 5 cm地温均呈极显著正相关($P < 0.01$), 相关系数分别为 0.71^{**}, 0.65^{**} (NW, 图 3(a))和 0.46^{**}, 0.76^{**} (SW, 图 3(b)). 这主要是由于土壤微生物活性受控于土壤温度变化, 如酵母菌、甲烷氧化菌、硝化细菌, 特别是反硝化细菌的数量随着温度的升高而增加^[10]. 再者, 土壤中 N₂O和CH₄ 物理排放亦依赖于温度的变化. 5~9 月, SW湿地N₂O在每日的 13:00 表现为正排放, 其他时间尤其是夜晚则以吸收为主. 7 和 8 月, NW湿地全天持续排放N₂O, 而在其他月份的日变化趋势与SW相似(图 2(a), (b)).

与N₂O相比, 5~8 月, SW湿地全天持续排放CH₄, 仅在 9 月份观测到一天之中有少量的CH₄吸收. 而在NW湿地中, 除 7 月和 8 月份观测到全天排放CH₄外, 其他月份的CH₄ 排放均是在每天的 13:00 左右, 一天之内的其余时间则表现为CH₄ 的吸收(图 2(c)和(d)). 产生这种现象的原因主要与温度的季节性变化和土壤的冻融过程有关(详见下文讨论)^[25]. 分析表明, 小

叶章湿地N₂O和CH₄ 日变化与土壤pH和Eh的相关性并不显著, 可能是由于pH和Eh的日变化幅度过小所致.

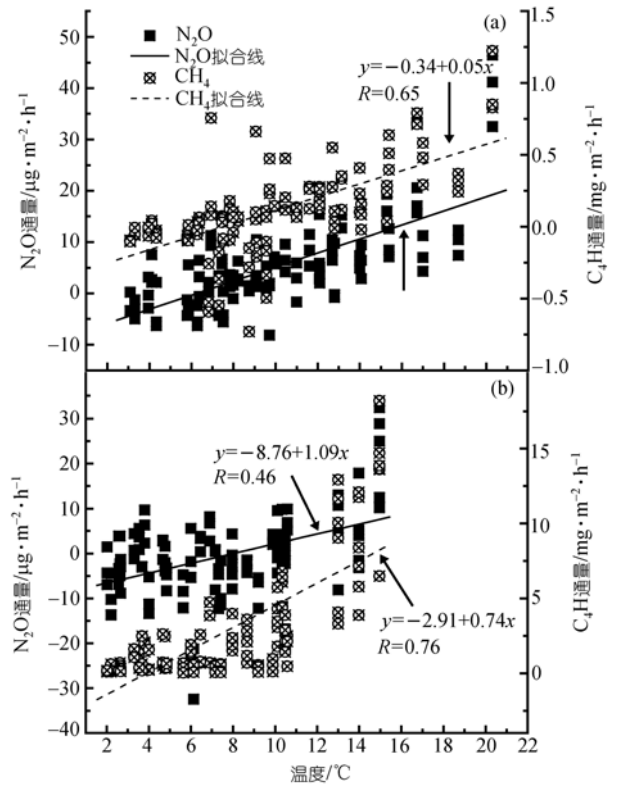


图3 N₂O 和 CH₄ 通量日变化与温度的关系
(a) NW; (b) SW

2.2 N₂O 和 CH₄ 排放通量季节变化

图 4 为小叶章湿地 N₂O 和 CH₄ 排放通量的季节变化情况. 由图 4 可见, NW 湿地和 SW 湿地 N₂O 和 CH₄ 排放通量峰值均出现在 7 月末到 8 月初这一时段. NW 湿地和 SW 湿地 N₂O 通量最高值分别为 66.34 和 46.88 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{h}^{-1}$, CH₄ 通量最高值分别为 8.99 和 31.21 $\text{mg}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{h}^{-1}$. NW 湿地自 6 月中旬至 9 月初表现为 N₂O 的正排放, 而 CH₄ 仅在 7 月末至 8 月初期间存在短暂的正排放. 由于 SW 湿地地表积水的季节性变化, 导致了该类湿地 N₂O 通量表现为吸收与排放的波动特征, 而在植物生长季 CH₄ 则几乎持续释放(图 4). 两种湿地对比可知, NW 湿地的 N₂O 排放通量明显高于 SW 湿地, 而 CH₄ 通量显著低于 SW 湿地. 在整个植物生长季, NW 湿地的 N₂O 和 CH₄ 通量平均值和中值分别为 4.65, 3.34 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{h}^{-1}$ 和 -0.16, -0.03

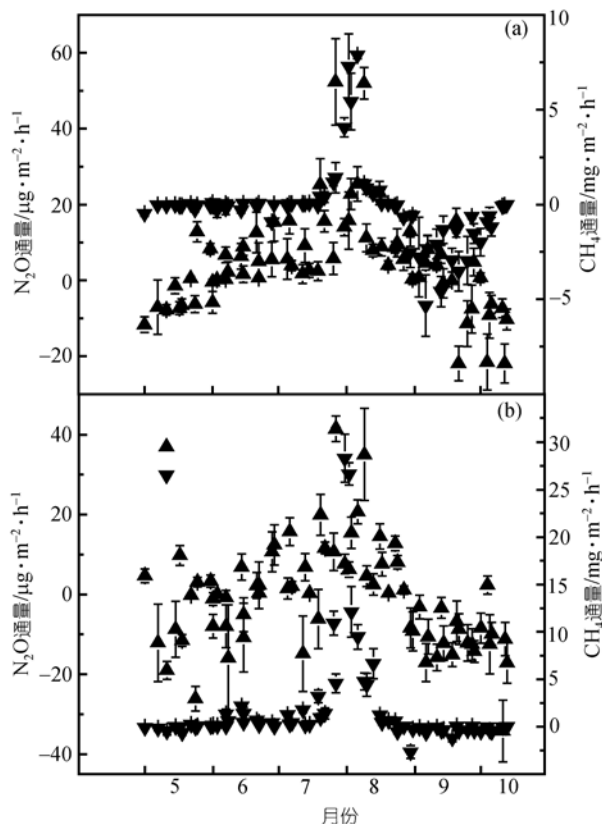


图 4 N₂O 和 CH₄ 的季节性变化
(a) NW; (b) SW. ▲ 示 N₂O, ▼ 示 CH₄

mg·m⁻²·h⁻¹, 而 SW 湿地的 N₂O 和 CH₄ 通量平均值和中值分别为 -1.24, 0.02 μg·m⁻²·h⁻¹ 和 1.71, 0.07 mg·m⁻²·h⁻¹. 对比研究发现, 地表积水有利于 CH₄ 的产生与排放, 但限制 N₂O 的生成. 总的来说, NW 湿地表现为 N₂O 的源和 CH₄ 的汇, 而 SW 湿地与之相反, 为 N₂O 的汇和 CH₄ 的源, 这主要是由于两种湿地不同的水文特征差异所致 [14,26~28]. 同其他地区湿地相比(表

2), 三江平原淡水沼泽湿地 N₂O 排放通量明显低于水稻田、芬兰泥炭湿地和构造型人工湿地, CH₄ 排放通量与我国东北辽河三角洲和爱沙尼亚南部的构造型人工湿地相近, 但低于水稻田、亚高山湿地和西伯利亚的木本沼泽. 与本区已有研究相比, 沼泽湿地生长期内的 N₂O 和 CH₄ 排放通量明显高于冬季 [16].

监测期内, NW 湿地和 SW 湿地植物生长期 5 cm 地温的变化范围分别为 5.4~24.4 和 4.2~23.7℃, 平均值分别为 15.1 和 14.1℃. 两种湿地土壤温度均自 5 月中旬开始升高, 在 8 月份达到峰值, 而 N₂O 和 CH₄ 通量与地温几乎同时在 8 月份达到最高值, 说明二者之间存在内在的关联性. 进一步分析表明, NW 湿地和 SW 湿地 N₂O 和 CH₄ 的通量季节变化与地温均呈显著正相关 ($P < 0.05$), 相关系数分别为 0.66*, 0.39* (NW, 图 5(a)) 和 0.58*, 0.42* (SW, 图 5(b)), 说明温度在湿地 N₂O 和 CH₄ 季节排放中起到重要作用. 这主要是由于温度的升高加速了有机质的分解与矿化速率 [36,37], 从而增强了 N₂O 和 CH₄ 的产生与排放 [38]. 另外, 硝化细菌、酵母菌和甲烷菌等微生物的活性和数量亦随着温度的升高而增高 [39,10], 进而促进了 N₂O 和 CH₄ 的产生. 同时, 温度升高还刺激了土壤的呼吸作用, 而氧气的消耗加深了土壤的缺氧条件, 进而导致反硝化作用增强 [40,41].

氧化还原电位(Eh)的野外观测结果表明, NW 湿地和 SW 湿地 Eh 范围分别在 30~510 mV 和 -430 ~ 390 mV 之间(图 6). 已有研究表明, 氧化条件较好的土壤 Eh 值范围一般在 400~700 mV, 而过湿的土壤由于缺氧和厌氧微生物的活动, 其 Eh 值可低达在 -300 mV [42]. 而我们观测到湿地中的大部分监测点 Eh 小

表 2 不同区域湿地中 N₂O 和 CH₄ 排放状况^{a)}

地点	湿地	N ₂ O 通量/μg·m ⁻² ·h ⁻¹	CH ₄ 通量/mg·m ⁻² ·h ⁻¹	数据来源
芬兰	泥炭湿地	5.78~17.36		[29]
中国东北	水稻田	-39~164	0~4.98	[30]
落基山脉南部	亚高山湿地		0.2~21.9	[31]
西西伯利亚	木本沼泽		0.88~9.7	[5]
中国东北辽河三角洲	芦苇湿地		-1~3	[32]
爱沙尼亚南部	构造型人工湿地	-0.4~58	0~0.265	[33]
中国东北三江平原 ^{a)}	沼泽湿地	<0	0.5	[16]
美国阿巴拉契亚南部	滨河湿地	0.28		[34]
爪哇岛西部	灌溉水稻田	22.65		[35]
中国东北三江平原	沼泽湿地	-1.24~4.65	-0.16~1.71	本研究

a) 监测期为冬季

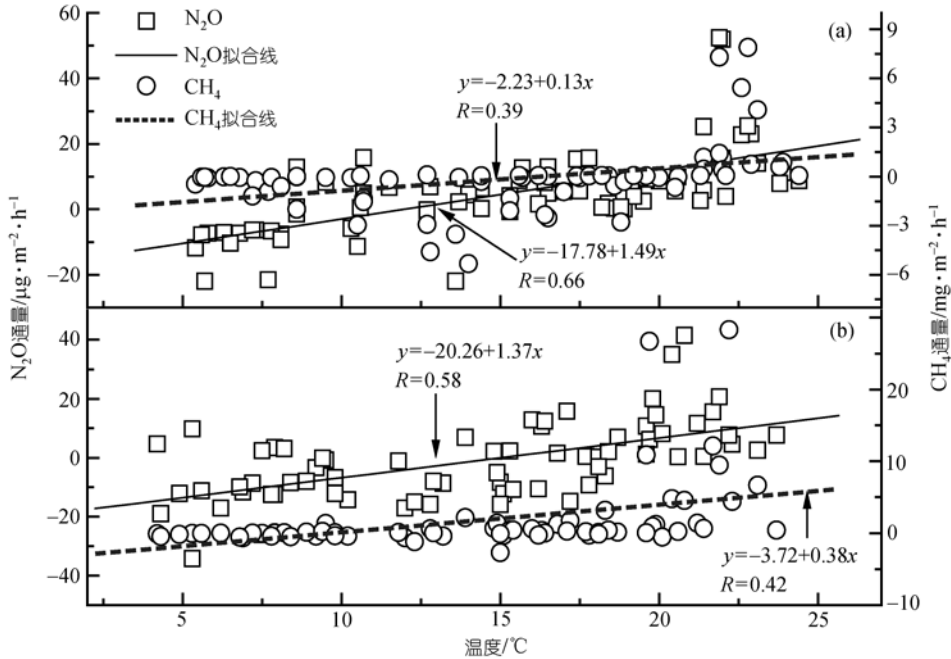


图5 N₂O 和 CH₄ 通量季节变化与土壤温度的关系
(a) NW; (b) SW

于 400 mV, 说明了湿地处于厌氧环境. 在植物生长季, NW湿地土壤Eh值随着时间的变化而逐渐升高, 其最低值出现在 5 月份, 而SW湿地土壤Eh值变化较强烈, 当地表积水时, Eh值迅速下降. 由于两种湿地不同的水分状况, NW湿地土壤Eh明显高于SW湿地. 研究中发现土壤Eh是湿地N₂O和CH₄排放的敏感因素(图 6), 最有利于湿地N₂O和CH₄产生与排放的Eh值区间分别在 200~400 mV(图 6(a))和-300~-100 mV范围内(图 6(b)). 这主要是由于自然生态系统中大部分N₂O是在厌氧条件下通过反硝化作用产生的^[43]. 已有研究证明, 当Eh值达到 400 mV时, 反硝化作用所产生的N₂O排放速率最高^[44]. 而CH₄的产生主要是缺氧还原条件下, 通过厌氧微生物还原二氧化碳这一过程实现的^[45].

值得注意的是, 研究中我们观测到了N₂O和CH₄集中排放的第二个Eh值区间, 分别为-300~-100 mV之间(图 6(a))和 300~400 mV(图 6(b)). 而实验室研究证明, Eh<-100 mV条件下几乎无N₂O产生, Eh>0 mV条件下几乎无CH₄产生^[46,9,10]. 因此, 土壤中必然存在其他的影响源决定着本研究中所观测到的这部分N₂O和CH₄. 进一步分析表明, 这部分N₂O和CH₄的排放主要发生在 7 月末至 8 月初, 即土壤冻层完全

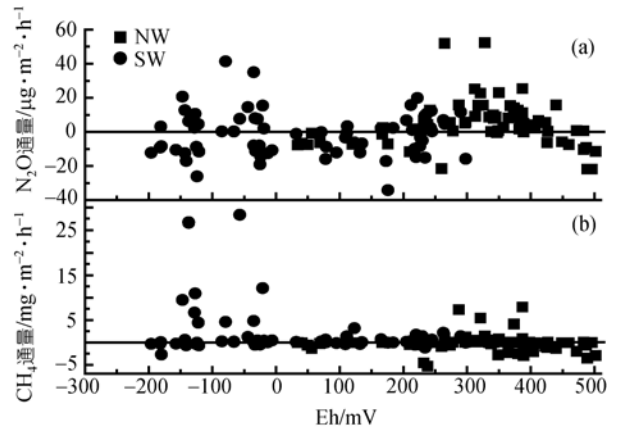


图6 不同氧化还原电位条件下 N₂O 和 CH₄ 的排放通量
(a) N₂O; (b) CH₄

融化后的几天之内, 因此, 我们认为冻融作用导致冻层下累积的 N₂O 和 CH₄ 集中释放很可能是这部分气体的主要来源.

生物量研究结果表明, 8 月份湿地植物活体的总生物量、地上生物量和地下生物量均明显高于其他月份. 8 月份 SW 湿地和 NW 湿地总生物量均值分别为 2100 和 3770 g·m⁻². 对于同一观测点, 同一月份的地下生物量高于地上生物量. 在自然生态系统中, N₂O 和 CH₄ 的产生主要来源于生物过程和化学过程, 有人

表 3 湿地 N₂O 和 CH₄ 通量与生物量的相关关系^{a)}

生物量	湿地类型	N ₂ O 通量均值	N ₂ O 通量最高值	CH ₄ 通量均值	CH ₄ 通量最高值
地上	NW	0.294	0.250	0.045	0.478
地上	SW	0.299	0.323	0.425	0.446
地下	NW	0.403	0.384	0.222	0.523
地下	SW	0.276	0.306	0.264	0.265
总量	NW	0.387	0.417	0.108	0.421
总量	SW	0.306	0.332	0.341	0.355

a) 气体通量与生物量之间的相关性不显著

认为 N₂O 和 CH₄ 的排放与生物量存在着极其显著的关系^[47]。然而, 尽管本研究观测到两种湿地植物的总生物量、地下生物量最高值与 N₂O、CH₄ 排放峰值同时出现在 8 月份, 但气体通量与生物量之间的相关性并不显著(表 3)。

土壤 pH 值在植物生长季内相对稳定, 变化范围在 5.20~6.20(土水比 1:5)之间。数据分析结果表明, N₂O 和 CH₄ 通量的季节变化与 pH 的相关关系不显著, 这可能是 pH 值季节变化较小的原因。

2.3 土壤冻融期冻层下 N₂O 和 CH₄ 浓度变化

关于温带地区 N₂O 的集中排放以前就有所报道, 并被认为是一个非常有意义的现象。据估算, N₂O 年总排放量的 70% 左右发生在融化过程^[16,48], 通常这种集中排放仅持续几天^[49]。对于这种自然现象存在一系列的争议, 有人认为主要是由于在土壤冻结期微生物可利用碳^[50,51]和从土壤中释放的 NO₃⁻增多^[50,52], 从而导致土壤融化期微生物新陈代谢增强的缘故。还有人认为冻融过程刺激了土壤中 NO₂⁻ 的化学反应^[52,53]或者加速了生物过程等^[48]。

以往关于低温下温室气体排放的研究大多报道了在融化过程中观测到排放峰值^[49,54,55]。为了探究我国温带湿地 N₂O 和 CH₄ 在 7 月末至 8 月初集中排放的来源, 我们在 2003~2004 年监测了冻层下不同土壤深度 N₂O 和 CH₄ 的浓度状况。结果表明, 冻结过程中冻层下不同土壤深度 N₂O 和 CH₄ 的最高浓度值随着冻深的增加而升高(图 7)。在整个监测周期内, NW 湿地冻层下 N₂O 和 CH₄ 的最高浓度值分别为 1600 ppb 和 5.15 ppm, SW 湿地冻层下该值分别为 1267 ppb 和 5.50 ppm, 该浓度值出现在 90~100 cm 监测深度上, 出现时间是 2 月初, 此时该区土壤已达到约 90 cm 的最大冻深。在冻土冻结初期, 冻层下 N₂O 和 CH₄ 集中分布在冻层下 20 cm 范围内(图 7)。随着土壤冻层的

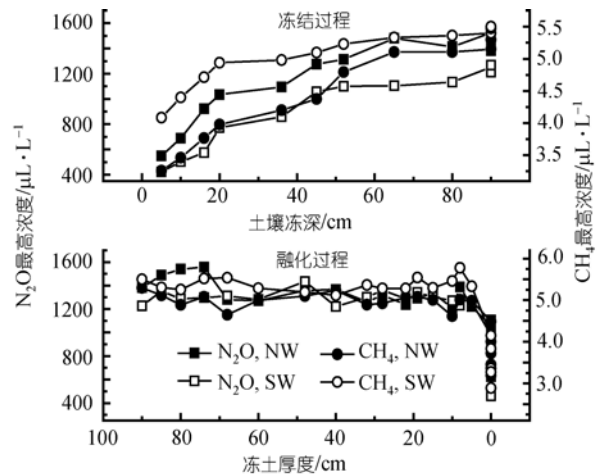


图 7 冻融过程中冻层下不同土壤深度 N₂O 和 CH₄ 最高浓度值的变化

加厚, N₂O 和 CH₄ 的这一富集层逐渐下移。由此可说明大量的 N₂O 和 CH₄ 是在冻层下产生的, 并且没有被封冻在冻土中。3 月初至 6 月中旬的土壤融化期内, 由于土壤母质层中有机物质较低, N₂O 和 CH₄ 最大浓度值保持稳定, 并且该富集层停留在 90~100 cm 深度范围内。当 7 月中旬土壤完全融通后, 冻层下各监测深度最高 N₂O 和 CH₄ 浓度值陡然下降(图 7)。在土壤冻层融化至 20 cm 时, N₂O 和 CH₄ 浓度峰值出现在 80~100 cm 土壤深度处(图 8), 在此之前我们没有观测到该浓度层的上移, 很可能与监测箱的监测深度范围(图 1, 15~20 cm)和土壤上层融化速度较快有关。首次观测到冻层下温室气体的上移是在土壤冻层厚度融化至 15 cm 时, 此时该冻层位于土壤下 50~70 cm 处。当土壤冻层完全融通, 由于气体的上移释放, 原冻层下 N₂O 和 CH₄ 浓度迅速下降(图 7, 8), 与此相对应, 约一周后观测到了 N₂O 和 CH₄ 的排放峰值。

如果说微生物在低温下仍有活性而导致其在冻层下的厌氧环境中产生 N₂O 和 CH₄^[56~58], 那么毫无

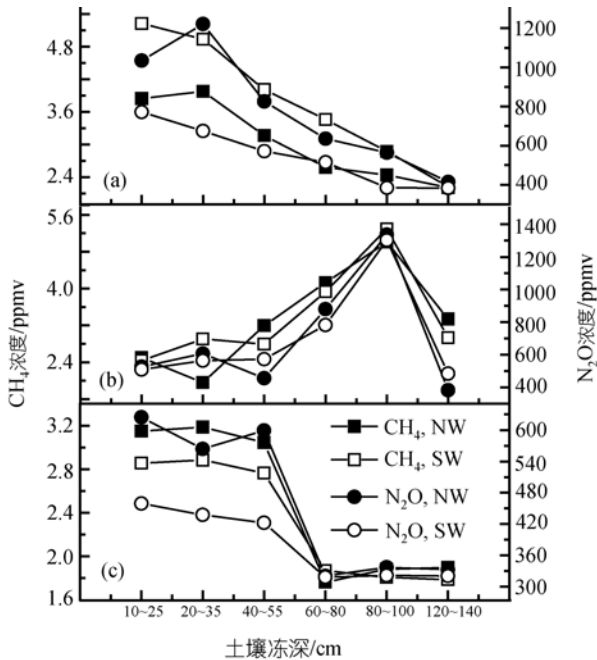


图8 不同土壤冻深或冻层厚度下冻层下不同土壤深度 N₂O 和 CH₄ 的浓度变化

(a) 冻结过程, 土壤冻深为 20 cm; (b) 融化过程, 冻层厚度约 20 cm; (c) 冻层完全融通

疑问, 冻层可以阻止大气中的氧气进入冻层以下, 冻层下由于生物活动不断的消耗氧气形成了缺氧环境^[25], 从而分别通过反硝化作用^[52,59]和有机碳的厌氧分解^[60]加速了 N₂O 和 CH₄ 的生成并在冻层下累积了较高的浓度。另外, 冷冻作用可以增加 NO₃⁻+NO₂⁻ 的供给^[52,61]和水中可溶性有机碳浓度^[50,51], 随着土壤冻深的增加, 这些营养物质下移至冻层以下, 从而为冻层下微生物活动提供了充足的物质来源并刺激了气体的产生。

本文的研究结果很好的支持了上述观点。首先, 尽管土壤温度与气体通量之间存在着较好的相关性, 但土壤温度并不能完全解释气体的排放峰值, 因为 7

月末至 8 月初的大部分 N₂O 和 CH₄ 通量数值点很明显的位于温度与通量相关直线之上(图 5)。其次, N₂O 和 CH₄ 通量与生物量相关性不显著, 因此生物量变化也无法解释气体排放峰值。极为重要的是, 研究中所观测到的部分 N₂O 排放峰值出现在土壤 Eh 值 -300~-100 mV 之间, 部分 CH₄ 排放峰值出现在 300~400 mV 之间(图 6), 这与报导的可产生温室气体 Eh 范围相差甚远^[9,10,46]。所有这些都说明冻融作用导致的冻层下累积的 N₂O 和 CH₄ 集中释放是生长季 N₂O 和 CH₄ 这一排放峰值的主要来源。

3 主要结论

研究表明, NW 湿地是 N₂O 的源和 CH₄ 的汇, 而 SW 湿地为 N₂O 的汇和 CH₄ 的源。NW 湿地和 SW 湿地 N₂O 通量最高值分别为 66.34 和 46.88 $\mu\text{g} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{h}^{-1}$, CH₄ 通量最高值分别为 8.99 和 31.21 $\text{mg} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{h}^{-1}$ 。N₂O 和 CH₄ 的日变化和季节变化与 5 cm 地温显著相关, 说明温度条件是气体排放的主导因子之一。5 cm 深度土壤 Eh 与气体通量相关性不显著, 这与以往的研究结果差异较大。值得注意的是, 研究中发现部分 N₂O 排放峰值出现在 5 cm 深度土壤 Eh 值 -300~-100 mV 之间, 部分 CH₄ 排放峰值出现在 300~400 mV 之间, 说明土壤中必然存在其他影响源决定着 7, 8 月份的 N₂O 和 CH₄ 排放峰值。进一步研究发现, 大量的 N₂O 和 CH₄ 累积在冻层之下, 冻层下 N₂O 和 CH₄ 浓度随着土壤冻结过程的深入而逐渐升高, 在 2 月初时达到最高值并停滞在 90~100 cm 深度范围内, 土壤冻层融通后, 累积的气体在短时间内迅速释放而导致 N₂O 和 CH₄ 的排放峰值。从而合理的解释了如上 Eh 范围内出现了 N₂O 和 CH₄ 排放的原因, 也证明了冻融作用所累积的 N₂O 和 CH₄ 是温带地区 N₂O 和 CH₄ 排放峰值的主要来源。

致谢 感谢三江平原沼泽湿地生态试验站对本研究野外工作的支持, 同时也感谢两名匿名审稿人对本文提出的具有建设性的意见和建议。

参考文献

- 1 Intergovernmental Panel on Climate Change. Synthesis Report. Contribution of Working Group I to the Fourth Assessment Report

- of the Intergovernment Panel on Climate Change. Cambridge: Cambridge University Press, 2007
- 2 Dlugokencky E J, Houweling S, Bruhwiler L, et al. Atmospheric methane levels off: temporary pause or a new steady-state? *Geophys Res Lett*, 2003, 30(19), doi: 10.1029/2003GL018126
 - 3 Dlugokencky E J, Myers R C, Lang P M, et al. Conversion of NOAA atmospheric dry air CH₄ mole fractions to a gravimetrically prepared standard scale. *J Geophys Res*, 2005, 110(D18), doi: 10.1029/2005JD006035
 - 4 Meure C M, Etheridge D, Trudinger C, et al. Law Dome CO₂, CH₄ and N₂O ice core records extended to 2000 years BP. *Geophys Res Lett*, 2006, 33(14), doi: 10.1029/2006GL026152
 - 5 Takeuchi W, Tamura M, Yasuoka Y. Estimation of methane emission from West Siberian wetland by scaling technique between NOAA AVHRR and SPOT HRV. *Remote Sens Environ*, 2003, 85(1): 21—29 [\[DOI\]](#)
 - 6 Whalen S C. Biogeochemistry of methane exchange between natural wetlands and the atmosphere. *Environ Eng Sci*, 2005, 22(1): 73—94 [\[DOI\]](#)
 - 7 Zhang L H, Song C C, Zheng X H, et al. Effects of nitrogen on the ecosystem respiration, CH₄ and N₂O emissions to the atmosphere from the freshwater marshes in northeast China. *Environ Geol*, 2007, 52(3): 529—539 [\[DOI\]](#)
 - 8 Lindau C W, Delaune R D, Jiraporncharoen S, et al. Nitrous-oxide and dinitrogen emissions from panicum-hemitomon S fresh-water marsh soils following addition of N-15 labeled ammonium and nitrate. *J Freshw Ecol*, 1991, 6(2): 191—198
 - 9 Yu K W, Patrick W H. Redox range with minimum nitrous oxide and methane production in a rice soil under different pH. *Soil Sci Soc Am J*, 2003, 67(6): 1952—1958
 - 10 Hou A X, Chen G X, Wang Z P, et al. Methane and nitrous oxide emissions from a rice field in relation to soil redox and microbiological processes. *Soil Sci Soc Am J*, 2000, 64(6): 2180—2186
 - 11 Abao E B, Bronson K F, Wassmann R, et al. Simultaneous records of methane and nitrous oxide emissions in rice-based cropping systems under rainfed conditions. *Nutr Cycl Agroecosys*, 2000, 58(1-3): 131—139 [\[DOI\]](#)
 - 12 Ding W X, Cai Z C, Tsuruta H. Cultivation, nitrogen fertilization, and set-aside effects on methane uptake in a drained marsh soil in Northeast China. *Glob Change Biol*, 2004, 10(10): 1801—1809 [\[DOI\]](#)
 - 13 Yu J B, Liu J S, Wang J D, et al. Nitrous oxide emission from *Deyeuxia angustifolia* freshwater marsh in northeast China. *Environ Manage*, 2007, 40(4): 613—622 [\[DOI\]](#)
 - 14 Ding W X, Cai Z C. Methane emission from natural wetlands in China: summary of years 1995—2004 studies. *Pedosphere*, 2007, 17(4): 475—486 [\[DOI\]](#)
 - 15 Ding W X, Cai Z C, Tsuruta H, et al. Key factors affecting spatial variation of methane emissions from freshwater marshes. *Chemosphere*, 2003, 51(3): 167—173 [\[DOI\]](#)
 - 16 Zhang J B, Song C C, Yang W Y. Cold season CH₄, CO₂ and N₂O fluxes from freshwater marshes in northeast China. *Chemosphere*, 2005, 59(11): 1703—1705 [\[DOI\]](#)
 - 17 Song C C, Wang Y S, Wang Y Y, et al. Emission of CO₂, CH₄ and N₂O from freshwater marsh during freeze-thaw period in Northeast of China. *Atmos Environ*, 2006, 40(35): 6879—6885 [\[DOI\]](#)
 - 18 Song C C, Zhang J B, Wang Y Y, et al. Emission of CO₂, CH₄ and N₂O from freshwater marsh in northeast of China. *J Environ Manage*, 2008, 88(3): 428—436 [\[DOI\]](#)
 - 19 赵魁义. 中国沼泽志. 北京: 科学出版社, 1999. 88—95
 - 20 刘兴土, 马学慧. 三江平原大面积开荒对自然环境影响及区域生态环境保护. *地理科学*, 2000, 20(1): 14—19
 - 21 何琏. 中国三江平原. 哈尔滨: 黑龙江科学出版社, 2000
 - 22 于君宝, 刘景双, 王金达. 三江平原泥炭沼泽沉积物中营养物质的分布规律. *湿地科学*, 2004, 2(1): 31—35
 - 23 Lindau C W. Methane emissions from louisiana rice fields amended with nitrogen fertilizers. *Soil Biol Biochem*, 1994, 26(3): 353—359 [\[DOI\]](#)
 - 24 Patrick W H, Gambrell R P, Faulkner S P. Redox measurements of soils. In: Sparks D L, ed. *Methods of Soil Analysis*. Madison, WI: SSSA Book Ser. 5, 1996. 1255—1273
 - 25 Yu J B, Sun W D, Liu J S, et al. Enhanced net formations of nitrous oxide and methane underneath the frozen soil in Sanjiang wetland, northeastern China. *J Geophys Res*, 2007, 112(D7), doi: 10.1029/2006JD008025
 - 26 Hargreaves K J, Fowler D. Quantifying the effects of water table and soil temperature on the emission of methane from peat wetland at the field scale. *Atmos Environ*, 1998, 32(19): 3275—3282 [\[DOI\]](#)
 - 27 Regina K, Silvola J, Martikainen P J. Short-term effects of changing water table on N₂O fluxes from peat monoliths from natural and

- drained boreal peatlands. *Glob Change Biol*, 1999, 5(2): 183—189[DOI]
- 28 Heikkinen J E P, Elsakov V, Martikainen P J. Carbon dioxide and methane dynamics and annual carbon balance in tundra wetland in NE Europe, Russia. *Glob Biogeochem Cycle*, 2002, 16(4): 62-1—62-9
- 29 Martikainen P J, Nykanen H, Crill P, et al. Effect of a lowered water-table on nitrous-oxide fluxes from Northern Peatlands. *Nature*, 1993, 366(6450): 51—53[DOI]
- 30 Chen G X, Huang G H, Huang B, et al. Nitrous oxide and methane emissions from soil-plant systems. *Nutr Cycl Agroecosys*, 1997, 49(1-3): 41—45[DOI]
- 31 Wickland K P, Striegl R G, Schmidt S K, et al. Methane flux in subalpine wetland and unsaturated soils in the southern Rocky Mountains. *Glob Biogeochem Cycle*, 1999, 13(1): 101—113[DOI]
- 32 Huang G H, Li X Z, Hu Y M, et al. Methane(CH₄) emission from a natural wetland of Northern China. *J Environ Sci Heal A*, 2005, 40(6-7): 1227—1238[DOI]
- 33 Mander U, Teiter S, Augustin J. Emission of greenhouse gases from constructed wetlands for wastewater treatment and from riparian buffer zones. *Water Sci Technol*, 2005, 52(10-11): 167—176
- 34 Walker T J, Geron D C, Vose M J, et al. Nitrogen trace gas emissions from a riparian ecosystem in southern Appalachia. *Chemosphere*, 2002, 49: 1389—1398[DOI]
- 35 Suratno W, Murdiyaso D, Suratmo G F, et al. Nitrous oxide flux from irrigated rice fields in West Java. *Environ Pollut*, 1998, 102(S1): 159—166[DOI]
- 36 Kirschbaum M U F. The Temperature-dependence of soil organic-matter decomposition, and the effect of global warming on soil organic-C storage. *Soil Biol Biochem*, 1995, 27(6): 753—760[DOI]
- 37 Er F, Ogut M, Mikayilov F D, et al. Important factors affecting biosolid nitrogen mineralization in soils. *Commun Soil Sci Plan*, 2004, 35(15-16): 2327—2343[DOI]
- 38 Renger M, Wessolek G, Schwarzel K, et al. Aspects of peat conservation and water management. *J Plant Nutr Soil Sc*, 2002, 165(4): 487—493[DOI]
- 39 Hellmann B, Zelles L, Palojarvi A, et al. Emission of climate-relevant trace gases and succession of microbial communities during open-window composting. *Appl Environ Microbiol*, 1997, 63(3): 1011—1018
- 40 Grant R F, Rochette P. Soil microbial respiration at different water potentials and temperatures——theory and mathematical-modeling. *Soil Sci Soc Am J*, 1994, 58(6): 1681—1690
- 41 Conrad R. Soil microorganisms as controllers of atmospheric trace gases (H₂, CO, CH₄, OCS, N₂O, and NO). *Microbiol Rev*, 1996, 60(4): 609—640
- 42 Patrick W H, Mahapatra I C. Transformation and availability to rice of nitrogen and phosphorus in waterlogged soils. *Adv Agron*, 1968, 20: 323—359[DOI]
- 43 Rice C W, Rogers K L. Denitrification in subsurface environments: potential source for atmospheric nitrous oxide. In: Rolston D E, Duxbury J M, Harper L A, et al, eds. *Agricultural Ecosystem Effects on Trace Gases and Global Climate Change*. ASA Special Publication, 1993. 121—132
- 44 Masscheleyn P H, Delaune R D, Patrick W H. Methane and nitrous-oxide emissions from laboratory measurements of rice soil suspension-effect of soil oxidation-reduction status. *Chemosphere*, 1993, 26(1-4): 251—260[DOI]
- 45 Vogels G D, Keltjens J T, van der Drift C. Biochemistry of CH₄ production. In: Zehnder A J B, ed. *Biology of Anaerobic Microorganisms*. Chichester: Wiley, 1988. 707—717
- 46 Yu K W, Wang Z P, Vermoesen A, et al. Nitrous oxide and methane emissions from different soil suspensions: effect of soil redox status. *Biol Fert Soils*, 2001, 34(1): 25—30[DOI]
- 47 Vann C D, Magonigal J P. Elevated CO₂ and water depth regulation of methane emissions: comparison of woody and non-woody wetland plant species. *Biogeochemistry*, 2003, 63(2): 117—134[DOI]
- 48 Rover M, Heinemeyer O, Kaiser E A. Microbial induced nitrous oxide emissions from an arable soil during winter. *Soil Biol Biochem*, 1998, 30(14): 1859—1865[DOI]
- 49 Christensen S, Tiedje J M. Brief and vigorous N₂O production by soil at spring thaw. *J Soil Sci*, 1990, 41(1): 1—4[DOI]
- 50 Muller C, Martin M, Stevens R J, et al. Processes leading to N₂O emissions in grassland soil during freezing and thawing. *Soil Biol Biochem*, 2002, 34(9): 1325—1331[DOI]
- 51 Sehy U, Dyckmans J, Ruser R, et al. Adding dissolved organic carbon to simulate freeze-thaw related N₂O emissions from soil. *J Plant*

- Nutr Soil Sc, 2004, 167(4): 471—478[DOI]
- 52 Usui T, Koike I, Ogura N. N₂O production, nitrification and denitrification in an estuarine sediment. *Estuar Coast Shelf Sci*, 2001, 52(6): 769—781[DOI]
- 53 Christianson C B, Cho C M. Chemical denitrification of nitrite in frozen soils. *Soil Sci Soc Am J*, 1983, 47(1): 38—42
- 54 Koponen H T, Martikainen P J. Soil water content and freezing temperature affect freeze-thaw related N₂O production in organic soil. *Nutr Cycl Agroecosys*, 2004, 69(3): 213—219[DOI]
- 55 Kammann C, Grunhage L, Muller C, et al. Seasonal variability and mitigation options for N₂O emissions from differently managed grasslands. *Environ Pollut*, 1998, 102: 179—186[DOI]
- 56 Holtan-Hartwig L, Dorsch P, Bakken L R. Low temperature control of soil denitrifying communities: kinetics of N₂O production and reduction. *Soil Biol Biochem*, 2002, 34(11): 1797—1806[DOI]
- 57 Oquist M G, Nilsson M, Sorensson F, et al. Nitrous oxide production in a forest soil at low temperatures—processes and environmental controls. *FEMS Microbiol Ecol*, 2004, 49(3): 371—378[DOI]
- 58 Kotsyurbenko O R, Nozhevnikova A N, Soloviova T I, et al. Methanogenesis at low temperatures by microflora of tundra wetland soil. *Antonie Van Leeuwenhoek*, 1996, 69(1): 75—86[DOI]
- 59 Stein L Y, Yung Y L. Production, isotopic composition, and atmospheric fate of biologically produced nitrous oxide. *Annu Rev Earth Planet Sci*, 2003, 31: 329—356[DOI]
- 60 Le Mer J, Roger P. Production, oxidation, emission and consumption of methane by soils: a review. *Eur J Soil Biol*, 2001, 37(1): 25—50[DOI]
- 61 Grogan P, Michelsen A, Ambus P, et al. Freeze-thaw regime effects on carbon and nitrogen dynamics in sub-arctic heath tundra mesocosms. *Soil Biol Biochem*, 2004, 36(4): 641—654[DOI]