

# 稻田土壤中甲烷产生率的实验研究

上官行健 王明星

(中国科学院大气物理研究所、北京 100029)

R. Wassmann H. Rennenberg W. Seiler

(联邦德国夫琅和费大气环境研究所)

## 提 要

本实验旨在研究稻田土壤中甲烷产生率对稻田  $\text{CH}_4$  排放的影响。观测结果表明：土壤各深度的甲烷产生率有很大的变化范围 ( $1 - 4639 \text{ ng} \cdot \text{h}^{-1} \cdot \text{g}^{-1} \text{ d. w.}$ )。主要的甲烷产生区域是  $7 - 17 \text{ cm}$  深的土壤层，其中以  $13 \text{ cm}$  深的土壤层上的生成速率最大。土壤中甲烷产生率与稻田  $\text{CH}_4$  排放率在水稻生长的某些阶段有较好的相关性，但它的季节变化却不能与排放的季节变化完全耦合。在水稻生长期，土壤中甲烷产生率随时间而增大，并在 8 月份水稻收割前达到最大，其日平均值在  $38 - 767 \text{ ng} \cdot \text{h}^{-1} \cdot \text{g}^{-1} \text{ d. w.}$  间变动。稻田土壤中甲烷产生率也存在日变化，一般在下午达到最大值，但却没有发现它与土壤温度有明显的关系。在不同施肥及水稻品种的稻田土壤中也观测到不同的甲烷产生率。在土壤中产生的甲烷最多只有 28.8% 被排放到大气中，而其余多于 71.2% 的则被氧化在土壤中。

关键词：甲烷产生率；稻田土壤；甲烷排放；日变化；季节变化。

## 一、引 言

甲烷是一种重要的温室效应气体；它还是一种化学作用很强的气体，涉及大气中许多重要的光化学反应形成许多反馈机制从而对地球气候有间接影响。稻田是大气甲烷最主要排放源之一，约占大气甲烷总来源的 20%<sup>[1]</sup>；稻田面积在过去几十年中的不断增加可能是导致大气甲烷浓度急剧上升的重要原因之一。但已观测到的稻田  $\text{CH}_4$  排放率有很大的时空变化。这主要是因为稻田甲烷的排放存在复杂的日变化及季节变化；全球范围内水稻品种、种植管理方式、土壤特征、温度及灌溉方式等许多影响因子复杂多样，这使估测的全球稻田甲烷排放总量还有较大的不确定范围。由于不可能做到对全球各种条件下的所有稻田进行实地观测，因此一种更可靠的估算全球稻田甲烷排放的方法是通过对稻田甲烷排放的观测，同时结合其控制过程及机制的研究，建立数学模型。

稻田甲烷排放是土壤中甲烷产生、再氧化及传输释放三个过程相互作用的结果。在过去的稻田  $\text{CH}_4$  排放野外观测中，我们发现稻田甲烷排放的日变化、季节变化、排放的温度效应及施肥效应都与土壤中的甲烷产生率息息相关；日本 Yagi 等人观测到稻田甲烷排放量与土壤中甲烷产生率两者的季节变化有很大的相关性 ( $R > 0.800$ )<sup>[2]</sup>；意大利稻田甲烷排放的季节变化也被认为是土壤有机质及产甲烷菌酶物质供应季节变化的结

1992 年 1 月 25 日收到，4 月 4 日收到修改稿。

果<sup>[3]</sup>。为了搞清观测到的甲烷排放的时空变化，有助于理解稻田甲烷的转化、输送等过程，从而更精确更经济地估测全球稻田甲烷排放量，稻田土壤中甲烷产生率的实地观测是十分必要的。

## 二、实验方法

本工作是1990年在意大利水稻研究所的实验田中进行的。关于实验田的土壤、水稻种植等情况已在文献中叙述过<sup>[3,4]</sup>。实验田被辟为四块，三块种植品种为罗马的水稻，施肥情况分别为不施肥、20.0g/m<sup>2</sup>的(NH<sub>4</sub>)<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>肥及68.6g/m<sup>2</sup>的K<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>；第四块田没有施肥，种植品种为丽都的水稻。

样品的采集是由一长为26cm，直径为7cm的钢筒来完成的。钢筒上部可盖有螺纹的盖子；钢筒下端尖锐，可以较容易地插入土壤深层而对样品环境的扰动较小；在筒身上每隔2cm打有直径为2cm的小孔，以抽取土壤各深度的样品。

实验开始时，首先用胶布将小孔覆盖密封，以保证钢筒中土壤能连同钢筒一起从土壤中拔出；将钢筒插入土壤直至顶端被稻田灌溉水淹没，盖上螺帽盖子，拔出钢筒并将下端用橡皮塞塞住，以防止氧气的侵入，然后打开密封胶布，用已切除针头部分的塑料针筒(10ml)取出各深度土壤子样品，放在已通N<sub>2</sub>的瓶中，用软性橡皮塞密封各瓶；用N<sub>2</sub>对瓶中培养环境进行五次冲刷并冲N<sub>2</sub>到一定压力，这是为了能确保土壤样品有一个厌氧环境及相同的压力条件；然后将瓶放在恒温器中，用精密取样针筒取瓶中气体，在装有氢焰离子探测器的气相色谱仪中分析(Shimazu GC-Mini 3)，每个样品至少分析三次，并用9.8ppmv的甲烷标准气体进行标定；实验结束前称出各样品的湿重及在108℃下烘24小时后的干重。

我们每两周对各实验田进行一次测量；有时还做平行实验及昼夜测量，以验证本实验的有效性并研究甲烷产生率的昼夜变化；同时测出各深度土壤的温度以研究甲烷产生率与温度的可能关系。

## 三、结果与分析

放置各深度土壤样品的瓶子，经N<sub>2</sub>五次冲刷后，已基本达到厌氧状态，在较小的时间尺度上(约24小时)，瓶中土壤将以常速率产生甲烷<sup>[4]</sup>。由于甲烷在土壤水中的溶解度很低(20℃时，一般大气条件下为24ml/l)，所以瓶中甲烷浓度在这段时间里是线性增加的(图1)。根据此线性增长速率( $\Delta c/\Delta t$ )、瓶的体积(V)、瓶中气压(p)以及土壤样品的干重(M)，即可求得土壤样品的甲烷产生速率(P)：

$$P = \frac{1}{M} \cdot \frac{\Delta c}{\Delta t} \\ = \left( \frac{V}{V_0} \right) \times \left( \frac{1}{P_0} \right) \times \left( \frac{T_0}{T} \right) \times \left( \frac{\mu}{M} \right) \times \frac{\Delta(P \times C)}{\Delta t}, \quad (1)$$

其中μ是甲烷的摩尔质量；V<sub>0</sub>=22.4 l/mol；P<sub>0</sub>为1大气压；T<sub>0</sub>=273K；T是瓶中气温，由于样品放置在25℃的恒温器中培养，故T应为298K。

图2是稻田土壤中甲烷产生率随深度的垂直廓线分布。由图可见到26 cm深处甲烷的产生率已极其微小,这说明所用取样钢筒的长度已覆盖了稻田土壤的主要甲烷产生区域。在离灌溉水层约1—2 cm厚度的土层属于耕作层的氧化层,灌溉水可溶氧的补给使之处于氧化状态,抑制了这个区域产甲烷菌及其它分解菌的活性,因而这一层土壤中的甲烷产生速率很低;土壤较深层(>20 cm)中肥力较差,取样时已发现土壤有干燥硬化现象,微生物活动在这里很弱,从而使这个区域的甲烷产生率也很低;图3是整个季节甲烷产生率随深度的平均分布,结果表明主要的甲烷产生区域是离地面深7—17 cm范围的土壤层,而13 cm深度是最重要的甲烷产生层。以上事实说明水稻土耕作层的还原层(深度为2—20 cm)是甲烷产生比较旺盛的土层;

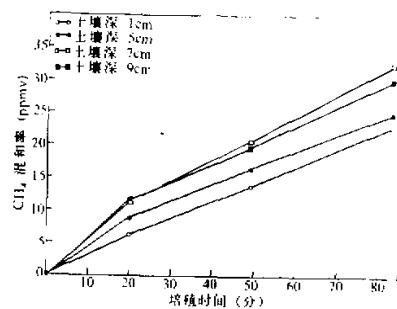


图1 培殖阶段CH<sub>4</sub>混和率随时间的增加  
(1990年8月8日)

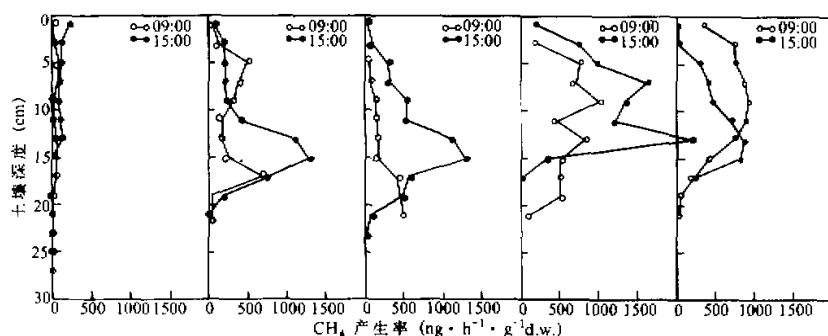


图2 稻田土壤中甲烷产生率随深度的垂直廓线分布,取样时间为5月30日、7月10日、7月24日、8月7日及8月21日(罗马,未施肥田)

耕作层是稻田土壤中肥力最集中的层次,也是稻根集中分布的范围,它很容易受耕作、排灌、施肥及气候因子的影响,因此甲烷排放的日变化、季节变化、施肥效应等都主要是由这一层土壤特性的变化引起的。

常规的观测是每日上午9时及下午15时定时进行的。在大部分情况下,各块稻田在下午的甲烷产生率比上午高(图2);但并没有发现甲烷产生率与实测温度的正相关性。因此我们不能单一地用下午土壤温度高来解释这个现象。以前所得出的温度对产甲烷活动有积极作用的结论是基于有机质供应无限制的条件上的。而在实际稻田土壤中,甲烷前体及其来源,产甲烷菌的活性及数量等因素在一天间不是一成不变的,有时某些因素对甲烷产生的影响很可能会超过温度效应。为了进一步搞清这个问题,我们曾在同一块田作24小时昼夜观测,测量03:00, 09:00, 15:00及21:00各时刻的土壤甲烷产生率

(图4). 观察到的结果是下午甲烷的产生率最大, 然后依次是09:00、03:00及21:00。以上结果给在意大利及我国稻田发现的下午出现甲烷排放最大值的现象提供了重要的前提。但是, 我们不能因此说甲烷排放高值完全是土壤甲烷产生率高的结果, 它可能在很大程度上取决于甲烷的排放途径是否畅通。在下午, 较高的空气温度及太阳辐射使水稻的呼吸及蒸腾作用比较强烈, 从而增强了水稻根茎空腔传输甲烷气体的能力; 较高土壤温度也会使甲烷气体更易形成气泡逸出土壤。对这个假设的检验必须建立在对甲烷产生率、植物体排放甲烷及甲烷排放量的同步观测的基础上。

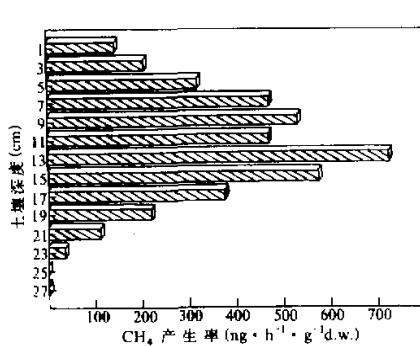


图3 甲烷产生率随稻田土壤深度的分布

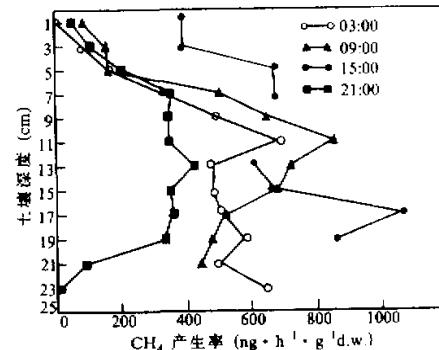


图4 24小时甲烷产生率的昼夜观测 (丽都, 未施肥田, 1990年8月20日)

为了了解稻田土壤中甲烷产生的空间不均匀性, 并验证本实验方法的可靠性, 我们在同一块稻田同一时间采集两个样品, 发现两个样品甲烷产生率在数量上有少许差异, 但其分布基本上是一致的(图5)。8月16日地点1土壤9 cm 深处有较大的甲烷产生率, 可能是这层土壤样品中含有一些特别物质(例水稻根、腐植物质), 也可能是实验中的偶而误差。稻田土壤中甲烷产生率的空间不均匀性主要是因为土壤有机养分分布的不均匀性。例如离水稻近的土壤在甲烷前体供应上具有优越性, 水稻根流出物提供了有机物质, 水稻根腐败物质也给土壤增加肥力, 从而提供了产甲烷菌更多的能量, 增强产甲烷活动, 图5说明我们这种测量方法在消除人为误差后的可靠性; 同时也表明要对实际稻田产甲烷活动有更精确的认识, 需要有相当数量的样本数以尽量减小随机性。

在整个水稻生长期, 水稻土壤中甲烷的产生速率有很大的变化范围( $1 - 4639 \text{ ng} \cdot \text{h}^{-1} \cdot \text{g}^{-1} \text{ d.w.}$ ), 其日平均在 $38 - 767 \text{ ng} \cdot \text{h}^{-1} \cdot \text{g}^{-1} \text{ d.w.}$ 间变动。图6及表1是各块田甲烷产生率日平均的季节变化和月平均。甲烷产生率在不同施肥和不同水稻品种的稻田土壤中有较大差异, 关于这个问题的确切说明还需要更多的实验。各块田中甲烷产生率随着水稻的生长呈明显的增长趋势, 到水稻生长末期8月份达到最大值, 此结果与Schütz等<sup>[4]</sup>少量的实验结果相一致, 但与他们观测到的意大利稻田甲烷排放的季节变化不完全一致。他们认为水稻生长过程中甲烷排放出现极大值主要是土壤中甲烷前体供给的变化即土壤中甲烷产生率的变化引起的。本实验证明这个结论可能不完全正确, 我们认为稻田甲烷排放的季节变化是土壤中甲烷产生率、其在土壤中的再氧化及其向大气传输这三个过程相互作用的结果。

果，只有当土壤中甲烷积累到一定程度，它在土壤中及排放过程中被氧化的较少而又有

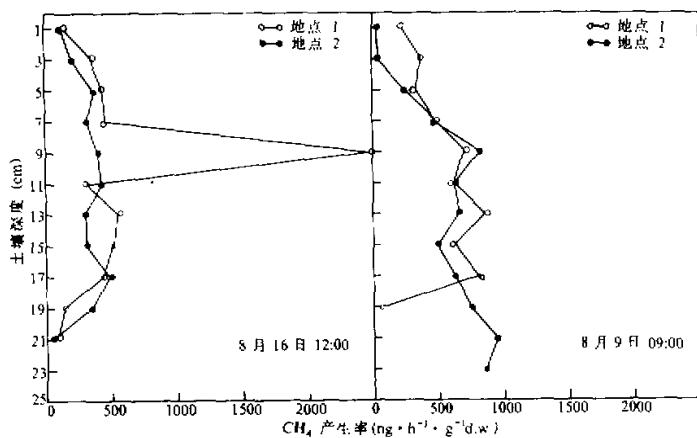


图 5 甲烷产生率的平行测量 (样品分别取在8月16日12时及8月9日9时)

表 1 稻田土壤甲烷产生率的月平均 [ $\text{ng} \cdot \text{h}^{-1} \cdot \text{g}^{-1} \text{d.w.}$ ]

品 种 月 份 施 肥	罗 马			各 田 平 均
	无施肥	$(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$	$\text{K}_2\text{SO}_4$	
5月	51.2	331.5	79.4	152.3
6月	137.0	430.9	318.6	252.9
7月	339.3	299.2	317.2	370.9
8月	523.1	524.5	611.7	548.1
季节平均	262.7	396.5	331.2	344.9

较通畅的排放路径时才会出现大的排放通量。因此甲烷排放的季节变化不能以土壤中甲烷产生率单独来说明，它可能在水稻生长的某些阶段起主要作用。在水稻种植初期，由于水稻植物体没有介入甲烷排放过程这个体系，在没有异常的农业操作及气候因子的条件下，以土壤甲烷产生率来说明排放显然很合理；在水稻生长后期，土壤甲烷产生率较高而排放却很低<sup>[4]</sup>，这显然是土壤氧化甲烷能力增加的结果。为此，水稻植物体的存在是一个关键因素，它既有助于土壤中的甲烷气体向大气中排放；还能以根流出物质的方式给土壤提供额外的有机质；但是它也能通过光合作用、呼吸作用给水稻根部区域带去能破坏甲烷的氧气。由于对水稻植物体的生理状态、其传输甲烷及氧气的能力的季节变化知之甚少，我们还不能仅以甲烷产生这个结果来解释甲烷排放的季节变化。但本实验结果给我们的启发是：甲烷再氧化及传输过程，特别是水稻植物对土壤性质、甲烷氧化及传输过程的影响，必须和甲烷产生实验同步进行观测，这样才能更全面地搞清稻田甲烷排放的季节变化。

通过分析仅有的6月份甲烷排放的日平均值与相应的土壤甲烷产生速率，发现在一定条件下甲烷排放与产生有较好的正相关性（图7）。这种类似的情况在分析我国稻田甲

烷排放与土壤(空气)温度的关系时也发现到, 例: 在早稻 5 月底到 6 月下旬, 甲烷排放通量与土壤(空气)温度有较好的相关性。对此我们认为在水稻生长的某些阶段, 稻田土壤中有机质供应充足, 水稻生理状态也没有很大起落, 甲烷排放路径比较畅通时, 甲烷排放将很大程度上取决于土壤中甲烷的产生量, 这种良好的相关状态会随时因水稻的生长发育、农业上的异常操作(例排灌、晒田等)以及气候因子的变化而破坏。

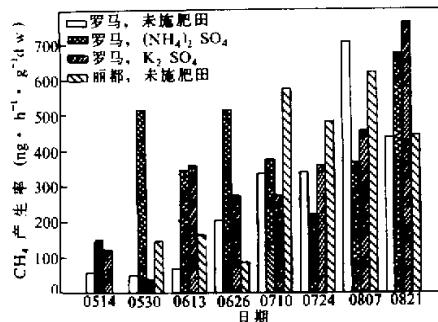


图 6 各块稻田甲烷产生率的季节变化趋势

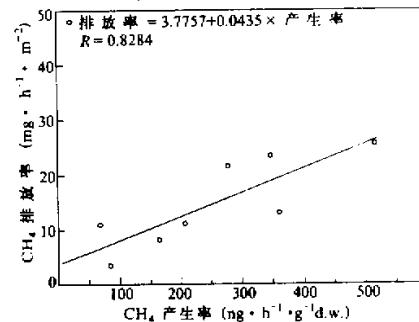


图 7 甲烷产生率与排放的关系 (1990 年 6 月)

在整个水稻生长季节中, 四块稻田的甲烷产生率平均为  $344.9 \text{ ng} \cdot \text{h}^{-1} \cdot \text{g}^{-1} \text{d.w.}$ , 按 Koyama<sup>[5]</sup> 的全球稻田土壤干重与种植面积的比率, 那么意大利单位面积上稻田甲烷产生速率为  $0.972 \text{ g} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{d}^{-1}$ , 考虑到取子土壤样品时并没有取出这个深度的全部土壤, 这个值只代表土壤甲烷产生率的下限, 这说明了稻田土壤产生的甲烷最多只有 28.8% 被排放出来, 而其余多于 71.2% 则被再次氧化在土壤中, 由此可见甲烷在土壤中再氧化对其排放的巨大影响。假设以这样的百分比推算全球其它地区的甲烷产生量, 全球稻田土壤的甲烷产生量的下限可达  $312 \text{ Tg} \cdot \text{a}^{-1}$  ( $240 \text{ Tg} \cdot \text{a}^{-1}$ — $385 \text{ Tg} \cdot \text{a}^{-1}$ )<sup>[16]</sup>。这个巨大的“真正”源给稻田对全球气候与环境的影响以及对稻田甲烷排放的控制带来了很大的潜力。

致谢: 作者感谢 Wolfgang Lindig 先生、Helmut Schütz 博士和 Klaus Butterbach 先生在本实验工作中所提供的帮助。

## 参 考 文 献

- [1] Cicerone R. J. and Oremland R. S., 1988, Biogeochemical aspects of atmospheric methane, *Global Biogeochemical Cycle*, **2**, 299—327.
- [2] Yagi K. et al., 1990, Emission and production of methane from paddy fields, *Paper for 14th International Congress of Soil Science, Kyoto, Japan, August*, 12—18.
- [3] Schütz H. et al., 1989, A 3-year continuous record on the influence of daytime, Season, and fertilizer treatment on methane emission rates from an Italian rice paddy field, *J. Geophys. Res.*, **94**, No. D13, 16405—16416.
- [4] Schütz H. et al., 1989, Processes involved in the formation and emission of methane in rice paddies, *Biogeochemistry*, **7**, 33—53.
- [5] Koyama T., 1963, Gaseous metabolism in lake sediments and paddy soils and the production of atmospheric methane and hydrogen, *J. Geophys. Res.*, **68** (13), 3971—3973.

- [6] Wang M.X. et al., 1990. CH<sub>4</sub> emission from a chinese rice paddy field, Hangzhou, China. *Acta Meteorol. Sin.*, 4(3)265 — 274.

## Experimental Study for Methane Production Rate in Rice Paddy Soil

Shangguan Xingjian Wang Mingxing

(Institute of Atmospheric Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100029)

R.Wassmann H.Rennenberg W.Seiler

(Fraunhofer Institute for Atmospheric Environmental Research, Germany)

### Abstract

This experiment was conducted to study the influence of methane production rate in paddy soil on CH<sub>4</sub> emission from rice paddies. The measurement results show that, the methane production rates at different soil depths are in a very large range (1—4639 ng · h<sup>-1</sup> · g<sup>-1</sup>d.w.). The main methane production area in soil is the layer of 7—17 cm below the surface, while the highest at 13 cm. Good correlation between CH<sub>4</sub> emission and production rate in soil is found in a short period in the rice growing season, but the seasonal variation of CH<sub>4</sub> production rate can not completely explain the CH<sub>4</sub> emission variation in the whole vegetation period. During the rice growing season, methane production in soil increases with time and reaches a maximum in August. The daily average of methane production rates varies from 38 to 767 ng · h<sup>-1</sup> · g<sup>-1</sup>d.w. diurnal variation of methanogenesis in paddy soil is also observed, normally with the highest value in the afternoon. But we cannot find obvious relationship between soil temperature and CH<sub>4</sub> production rate. Different methane production rates are found in the paddy fields treated by different fertilizers and rice varieties. Of all the amount of methane produced in soil, only less than about 28.8% is emitted to the atmosphere while the other 71.2% or more is reoxidized in soil.

**Key words:** Methane production rate; Paddy soil; Methane emission; Diurnal variation; Seasonal variation.