

华东稻麦轮作农田 CH_4 、 N_2O 和 NO 排放特征

周再兴^{1,2} 郑循华¹ 王明星¹ Klaus Butterbach-Bahl³

1 中国科学院大气物理研究所, 北京 100029

2 中国科学院研究生院, 北京 100049

3 Institute for Meteorology and Climate Research, Karlsruhe Research Center,
Krueckbahnstrasse 19, D-82467, Garmisch-Partenkirchen, Germany

摘要 利用同步自动观测系统对华东稻麦轮作农田的 CH_4 、 N_2O 和 NO 排放进行了长期连续观测, 分析了这3种气体排放的季节特征及决定因素, 结果表明, 华东稻麦轮作农田的 CH_4 、 N_2O 和 NO 排放具有完全不同的季节变化形式。 CH_4 的排放发生在水稻生长期, 其他阶段排放不明显, 土壤水分状况是决定整个轮作周期内 CH_4 排放变化的主要因素。 N_2O 排放具有“冬季无, 水田少, 旱地多”的季节变化特点, 尤其以旱地阶段的排放为主, 土壤水分状况和温度共同决定着 N_2O 排放的季节变化形式。 NO 排放具有“冬季无, 水田很少, 春季旱地多于秋季旱地”的季节分布特点, 轮作周期内 $97.3\% \pm 0.6\%$ 的 NO 排放都发生在除冬季以外的旱地阶段, NO 排放的季节变化形式由土壤水分状况和温度共同决定。大多数情况下稻田 CH_4 和 N_2O 排放呈互为消长的关系, 但在烤田期间, 二者却有时甚至同时出现高排放。在 N_2O 日平均排放通量小于 $5 \text{ mg} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{h}^{-1}$ 时, 稻麦轮作农田的 N_2O 和 NO 排放呈明显的互为消长关系, 但大于 $5 \text{ mg} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{h}^{-1}$ 时, N_2O 排放很强, 同时 NO 排放也很强。

关键词 CH_4 N_2O NO 稻麦轮作 同步自动观测 华东

文章编号 1006-9585 (2007) 06-0751-10 **中图分类号** X142 **文献标识码** A

CH_4 , N_2O and NO Emissions from a Rice-wheat Rotation Cropping Field in East China

ZHOU Zai-Xing^{1,2}, ZHENG Xun-Hua¹, WANG Ming-Xing¹,
and Klaus Butterbach-Bahl³

1 State Key Laboratory of Atmospheric Boundary Layer Physics and Atmospheric Chemistry,
Institute of Atmospheric Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100029

2 Graduate University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049

3 Institute for Meteorology and Climate Research, Karlsruhe Research Center,
Krueckbahnstrasse 19, D-82467, Garmisch-Partenkirchen, Germany

Abstract CH_4 , N_2O and NO emissions from a rice-wheat rotation cropping field were investigated simultaneously with an automatic observation system in East China. Based on one and half year data, the following conclusions were drawn. The three gases had different seasonal emission patterns from the fields. CH_4 emission occurred approximately during the rice season relating to the special water regime. Soil water content was the main environmental factor affecting CH_4 emission during an entire rotation. N_2O emission was high during the upland period, rela-

收稿日期 2006-04-16 收到, 2007-07-28 收到修定稿

资助项目 国家自然科学基金 49675270

作者简介 周再兴, 男, 1977 年出生, 博士, 助理研究员, 从事地气交换实验和模型研究。E-mail: zzx@dq.cern.ac.cn

tively low during rice season, sometimes not being able to detect. The seasonal dynamic of N_2O emission had dependency on both soil water content and soil temperature. NO had different emission characteristic that the flux was relatively high from upland soil, low during rice season, seldom detected in winter, and much higher in spring than that in the fall during upland period. $97.3\% \pm 0.6\%$ of NO emission in a rotation occurred during upland period excluding winter. NO emission was dependent on both soil water content and soil temperature like N_2O . Generally, CH_4 and N_2O emissions from rice field had a tradeoff relation. During the drainage period, however, the two gas species sometimes were not certain to have such a tradeoff relation, but released at high rates of flux simultaneously. When daily N_2O emission flux was less than $5 \text{ mg} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{h}^{-1}$, N_2O and NO emissions had a obvious tradeoff relation as well. On the contrary, NO emission was also high while N_2O emission occurred high with a rate of more than $5 \text{ mg} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{h}^{-1}$.

Key words CH_4 , N_2O , NO, rice-wheat rotation, simultaneously continuous observations, East China

1 引言

大气 CH_4 、 N_2O 和 NO 均是强烈地受人为活动直接影响的大气温室气体成分。前二者直接产生温室效应,后者却能通过对流层大气的光化学反应产生 O_3 间接地产生温室效应,此外,NO 也影响着大气的环境质量。水稻种植、化肥施用、矿物燃料燃烧等人为活动导致的大气 CH_4 和 N_2O 浓度增加对全球温室效应增强的贡献占全部长寿命温室气体的 $20\% \sim 25\%$ [1],同时,因人为活动排放的 NO 而增加的对流层 O_3 所致的正辐射强迫与大气 CH_4 浓度增加所致的正辐射强迫相当(大约相当于长寿命温室气体的 15%) [1]。中国的稻谷产量和化肥消耗量各占世界总量的 38% 和 27% 。在过去 20 年间,中国化学氮肥用量增加了 1 倍多,因此我国大气 CH_4 、 N_2O 和 NO 排放问题一直受到国内外的广泛关注。2005 年《京都议定书》已经生效,如何更加准确估算我国温室气体排放清单,认识我国各种温室气体的排放规律和不同温室气体排放之间的关系,制定我国温室气体减排措施,是我国科研人员面临的重大挑战和任务。

对于农田中 CH_4 、 N_2O 和 NO 排放的研究,国内外近 20 年来开展了大量的工作,但主要是针对单一的气体进行研究。虽然对于每种气体排放规律的认识在不断深入,但田间同步原位地对这 3 种气体进行连续自动观测研究缺乏报道,不同微量气体相互关系的研究也相对缺乏。正是基于此,本研究利用自行研制的农田 CH_4 、 N_2O 和 NO 同步自动观测系统,对农田 CH_4 、 N_2O 和 NO 排放

进行高频地同步观测,研究这 3 种气体的季节排放特征及相互关系。

2 材料与方法

2.1 气体排放检测方法

本研究采用了 Zheng 等 [2,3] 描述的自动观测系统,基于箱法定法进行 CH_4 、 N_2O 和 NO 排放的同步观测。该系统由田间采样装置、室外控制装置和室内控制及分析装置 3 大部分组成。田间采样装置安装在田间,由 9 个 $70 \text{ cm} \times 70 \text{ cm} \times 90 \text{ cm}$ 的自动采样箱和相应的电、气路组成。室内部分安装在距离田间采样箱大约 50 m 的临时实验室内,由中心控制设备、样品前处理、分析和信号及数据处理设备组成。室外控制部分是二级控制,它直接接受中心控制发出的自动控制指令,负责控制采样箱自动开关、采集气样的气路切换及温度数据采集。该系统可以同步地观测 9 个点位的 CH_4 、 N_2O 和 NO 排放。系统运行过程中,每 3 个箱子为 1 组,依次进行观测,每组采样箱每 4 h 观测 1 次,每组采样箱的每次观测持续 80 min。进行 1 组采样箱的观测时,3 个采样箱同时关闭和打开,关箱时间为 1 h。关箱后,每间隔 15 min 各采样箱抽取 1 次气样分析 CH_4 、 N_2O 和 NO 体积浓度(摩尔比,下同),总共采样分析 4 次。两组采样箱开闭之间有 20 min 的间隔,用于标准气体分析。NO 浓度采用 Trace Level 42C NO- NO_2 - NO_x 化学发光式分析仪(美国 Thermo Environmental Instruments 公司出品)测定,观测期间定期进行标定,NO 体积浓度的响应线性范围为 $(0 \sim 500) \times 10^{-9} \text{ mol} \cdot \text{mol}^{-1}$, CH_4 和 N_2O 浓度采用

Varian 3400 气相色谱仪测定, 气相色谱采用单点外标法标定, CH₄ 标气来自于德国 Fraunhofer 大气环境研究所, 其浓度为 $9.8 \times 10^{-6} \text{ mol} \cdot \text{mol}^{-1}$, 该标气单点标定的 CH₄ 浓度有效范围为 (1~100) $\times 10^{-6} \text{ mol} \cdot \text{mol}^{-1}$ 。N₂O 标气为澳大利亚 Csiro 公司出品, 其浓度为 $310 \times 10^{-9} \text{ mol} \cdot \text{mol}^{-1}$, 标定的浓度范围为 (100~5 000) $\times 10^{-9} \text{ mol} \cdot \text{mol}^{-1}$ 。本研究中实际气体样品的 CH₄ 浓度一般不会大于 $50 \times 10^{-6} \text{ mol} \cdot \text{mol}^{-1}$, N₂O 浓度一般不会超过 $1 \times 10^{-6} \text{ mol} \cdot \text{mol}^{-1}$, NO 浓度不会超过 $500 \times 10^{-9} \text{ mol} \cdot \text{mol}^{-1}$ 。因此, 适合使用单点外标法进行浓度的标定。目标气体的排放通量计算公式如下:

$$F = 60 \times 10^{-5} \frac{273}{273 + T} \frac{p}{p_0} H \rho \frac{dc}{dt}, \quad (1)$$

式中, F 为 CH₄、N₂O 或 NO 排放通量 (单位: $\text{mg} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{h}^{-1}$, 以 CH₄、N₂O 或 NO 计, 下同), T 为采样时的箱内平均气温 (单位: $^{\circ}\text{C}$), p 为观测点的实际大气压, p_0 为标准大气压, H 为采样箱内的气室高度 (单位: cm), ρ 为标准状况下的各气体的密度 (单位: $\text{g} \cdot \text{L}^{-1}$), c 为 CH₄、N₂O 或 NO 的体积浓度 (单位: $10^{-9} \text{ mol} \cdot \text{mol}^{-1}$), t 为关箱时间 (单位: min)。

该系统检测 CH₄、N₂O 和 NO 浓度的误差分别为 $\pm 12 \times 10^{-9}$ 、 $\pm 4.5 \times 10^{-9}$ 和 $\pm 1.4 \times 10^{-9} \text{ mol} \cdot \text{mol}^{-1}$, 用该误差范围估计的观测系统对 3 种气体排放通量的检测下限值与采样箱高度成正比。对于本研究采用的箱内气室实际高度 (大约 90 cm), 3 种气体排放通量的检测下限分别为 18.8、19.4 和 4.4 $\mu\text{g} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{h}^{-1}$ 。大多数情况下, 稻麦轮作农田的 N₂O 及 NO 排放通量及水稻生长季的 CH₄ 排放通量一般都要高于该系统的排放通量检测下限。因此, 本研究中采用的观测系统检测排放通量的灵敏度在大多数情况下都能满足测定要求。另外, 对比实验结果表明, 对于单个排放通量, 人工观测方法与本观测系统的自动连续观测测量 3 种气体排放通量的相对误差通常不大于 5%^[4]。因而, 该系统的测定结果与其他研究者用人工方法获得的田间测量结果具有一定可比性。

除了观测排放通量外, 该系统具有 8 个温度测定探头, 可以同时记录箱内外气温和土壤温度。其中箱内气温直接用于计算排放通量。

2.2 田间实验设计

1996 年 11 月至 1998 年 1 月, 利用上述观测系统在江苏苏州 ($31^{\circ}16'\text{N}$, $120^{\circ}38'\text{E}$) 的稻麦轮作农田进行了 CH₄、N₂O 和 NO 排放的同步自动连续观测研究。选择华东稻麦轮作农田作为研究对象的原因主要是: 一方面, 稻麦轮作农田是中国南方亚热带季风气候下的典型作物种植系统, 代表的农田面积较大; 另一方面, 此农田受人为干扰强, 阶段性地发生剧烈的干湿交替, 有利于农田中这 3 种气体原位排放过程的机理研究, 同时可以更好地研究人为减排措施对这些气体的综合影响。

本研究中, 水稻 (品种太湖粳) 于每年 6 月 20 日左右插秧, 10 月下旬收割, 冬小麦于 11 月初播种, 次年 5 月底收割。通常水稻插秧前淹水泡田 3 天, 插秧前耕翻耙匀。实行当地常规水肥管理方式: 在水稻分蘖盛期和拔节期, 进行两次为期大约 1 周的烤田, 并同时追施氮肥; 水稻开花期后, 实行间歇灌溉; 水稻收割前半个月, 完全停止灌水, 田间自然落干; 除了在插秧前几天灌水泡田, 非水稻生长季的其他阶段不灌溉。田间施肥设 3 种处理方案: 无肥对照 (CK), 常规化肥 (CF), 常规化肥 + 有机堆肥 (CM)。氮肥用量为每季作物 192 $\text{kg} \cdot \text{hm}^{-2}$ (以纯 N 计, 下同), 分一次基肥和两次追肥施用。有机堆肥 [水稻施用堆腐半年的水稻秸秆, 小麦施用堆腐半年的小麦秸秆, 约相当于 30 $\text{kg} \cdot \text{hm}^{-2}$ (N)] 全部在水稻插秧前或小麦播种前作为基肥施到田间。因自动观测系统管线长度限制, 观测地面积有限, 同时考虑到对很小面积稻田采用小区重复施肥实验设计的实际操作较难, 且边际效应产生的误差太大, 本研究采用大区无重复设计, 即将一块平整且土壤条件均一的稻田, 平均划为 3 个 8 $\text{m} \times 12 \text{ m}$ 的小区, 每小区采用一种施肥方案, 在每个小区内随机设置 3 个重复观测点进行气体排放观测 (有关田间实验的处理, 详见参考文献 [2, 3])。

3 结果与讨论

3.1 CH₄ 排放的季节变化特征及其决定因素

图 1 显示的是观测期间的土壤温度 (1997 年 6 月 8 日之前为 2 cm 深的土温, 之后为 5 cm 深的

土温)和降水变化情况,当地的降水主要发生在夏季的水稻生长季。由图 2 可知,CH₄排放的季节变化与 N₂O (图 3) 和 NO (图 4) 完全不同。CH₄排放完全发生在水稻生长期,其他阶段没有明显排放。在水稻生长前期和中期的 CH₄排放最强烈,80%以上的总排放量都发生在此阶段,后期的排放相对微弱。在水稻生长旺盛期的 7 月下旬(插秧后 36 天)和 8 月中旬(插秧后 60 天)发生的 2 个 CH₄排放低谷及排放低谷出现之前的脉冲式排放峰值,是按照当地常规水、肥管理方式进行 2 次为期 7 天左右中期烤田的结果。如果在整个水稻生长期实行持续淹水,就不会在水稻生长旺盛期发生明显的 CH₄排放低谷,也不会发生由于烤田引起的脉冲式 CH₄排放尖峰^[5],Yagi 等^[6]也曾观测到稻田排水引起的脉冲式 CH₄排放尖峰。这种脉冲式排放通常发生在稻田烤田初期,即当田面覆盖的水层降低到 0~1 cm 时。烤田时发生 CH₄脉冲式排放,很可能是两方面的原因:一是淹水期间土壤中闭蓄了大量的 CH₄气泡,随着田面水层变薄,施加在气泡上的压力减小,气泡很容易溢出水面;二是随着田面水层变薄,采样箱覆盖的地面表层土壤容易被加热,加热作用既提高了 CH₄的产生速率,同时也提高了从产生地点向大气的传输速率,从而导致了较高的 CH₄排放速率。但随着稻田水被进一步排干,土壤中的 CH₄产生受到抑制,表现为稻田 CH₄排放迅速下降。当田间恢复淹水,CH₄排放又逐渐回升。

通过对比可以发现,华东麦茬稻田的 CH₄排放季节变化与四川麦茬稻田,湖南^[7]、浙江^[8]、广州^[9]的双季晚稻田以及沈阳的单季稻田^[10]的 CH₄排放季节变化有类似的规律性。至于田间开始淹水后半个月左右是否会发生一个明显的 CH₄排放峰,主要取决于前茬作物还田残茬的类型与数量以及施加有机肥的种类和数量。在本研究中,残留麦茬大约为小麦生物产量的 5%~10%,施作基肥的有机肥为经堆腐半年左右的麦秸,能观测到这个排放峰,但不太明显(图 2)。在较干旱的草原和森林生态系统,通常观测到大气 CH₄被土壤吸收的现象^[11,12],但在华东稻麦轮作农田,却没有检测到旱地阶段发生明显的 CH₄吸收通量,这可能是农田土壤 N 含量相对比较高,从而抑制了土壤中高亲合性 CH₄氧化细菌活性的缘故^[13]。

就整个稻麦轮作周期而言,CH₄排放的季节变化主要是由土壤水分状况决定的。在旱地阶段,缺乏有利于 CH₄产生的厌氧条件,因而不会发生明显的 CH₄排放。而在田间水分充足到可以广泛形成厌氧条件的水稻生长期,既有利于 CH₄的产生,又不太利于 CH₄的氧化消耗,因而,CH₄排放强烈。另外,对于水稻阶段而言,除水分外,还有温度和水稻植株的传输能力也会影响 CH₄排放的逐日变化形式^[8,14]。

3.2 N₂O 排放的季节变化特征及其决定因素

N₂O 排放的季节变化表现出“冬季无,水田

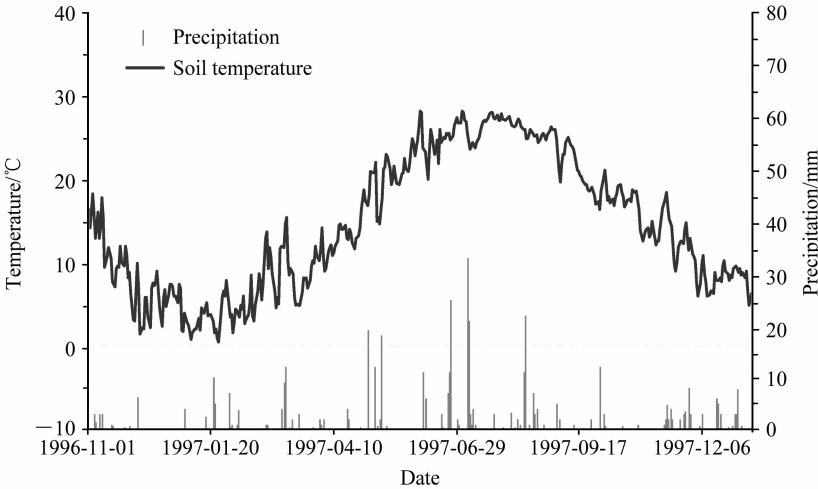


图 1 观测期间的土壤温度和降水变化
Fig. 1 Variations of soil temperature and precipitation

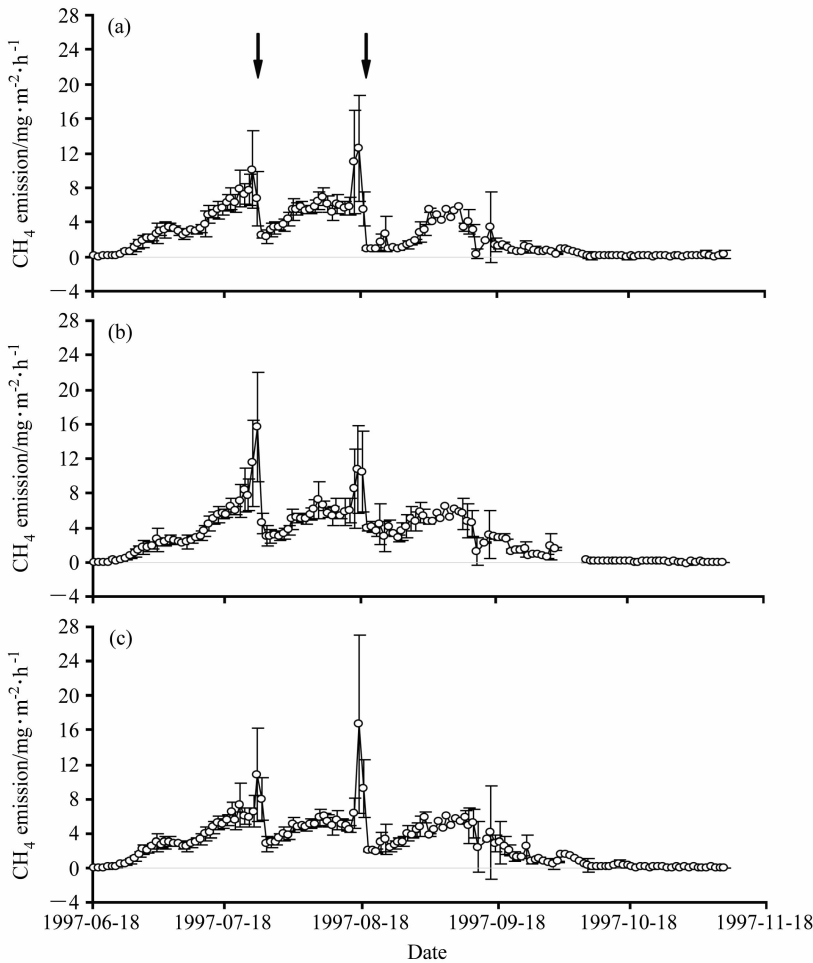


图2 不同施肥处理的日平均CH₄排放通量的逐日变化：(a) 化肥；(b) 化肥+秸秆堆肥；(c) 不施氮肥对照。箭头表示中期烤田，(a) 和 (b) 的数据引自文献 [15]

Fig. 2 Daily variations of CH₄ emissions as affected by the treatments of Nitrogen fertilization: (a) chemical fertilization; (b) chemical fertilization with manure amendment; (c) treatment without Nitrogen fertilizer. The arrows indicate the mid-season drainage. Data in plot (a) and plot (b) are cited from Wang [15]

少，旱地多”的特点，尤其以旱地阶段的排放为主（如图3）。对于实行当地常规水、肥管理方式的华东稻麦轮作农田，水稻生长期的N₂O排放主要发生在排水烤田阶段，其排放量约占整个轮作周期排放总量的30%±10%。对于以同样方式烤田却没有施肥的对照农田，水稻生长期的N₂O排放在整个轮作周期中所占的比重较小，仅为7.7%±1.0%。在淹水阶段，即使追施氮肥，N₂O排放也不明显^[2]。在东北稻田的淹水阶段，曾观测到的N₂O被吸收现象^[10]，在本研究中却没有检测到（图3），这可能是由于两地的土壤性质和淹水持续时间不同所致。在第二个冬季旱地阶段（1997年12月1日以后），N₂O排放表现得异常强烈，施肥

处理的平均排放通量达1.05±0.46 mg·m⁻²·h⁻¹，无肥对照处理的平均排放通量达0.06±0.02 mg·m⁻²·h⁻¹，然而，在第一个冬季同期的旱地阶段（1996年12月1日至1997年1月7日），N₂O排放通量却通常低于或接近观测设备的检测下限（图3），这可能是由于降水第一个冬天明显少于第二个冬天（如图1）。在温度适宜的其他旱地阶段，N₂O排放十分明显，尤其在某些情况下，甚至可以达到与稻田CH₄排放相当的强度。

不同施肥处理对N₂O排放季节变化的影响主要表现在明显增大排放强度，尤其在旱地阶段（图3）。在旱地转变为水田时进行人为淹水，能激发N₂O爆发式排放^[2]，但排放的强度施肥田却远

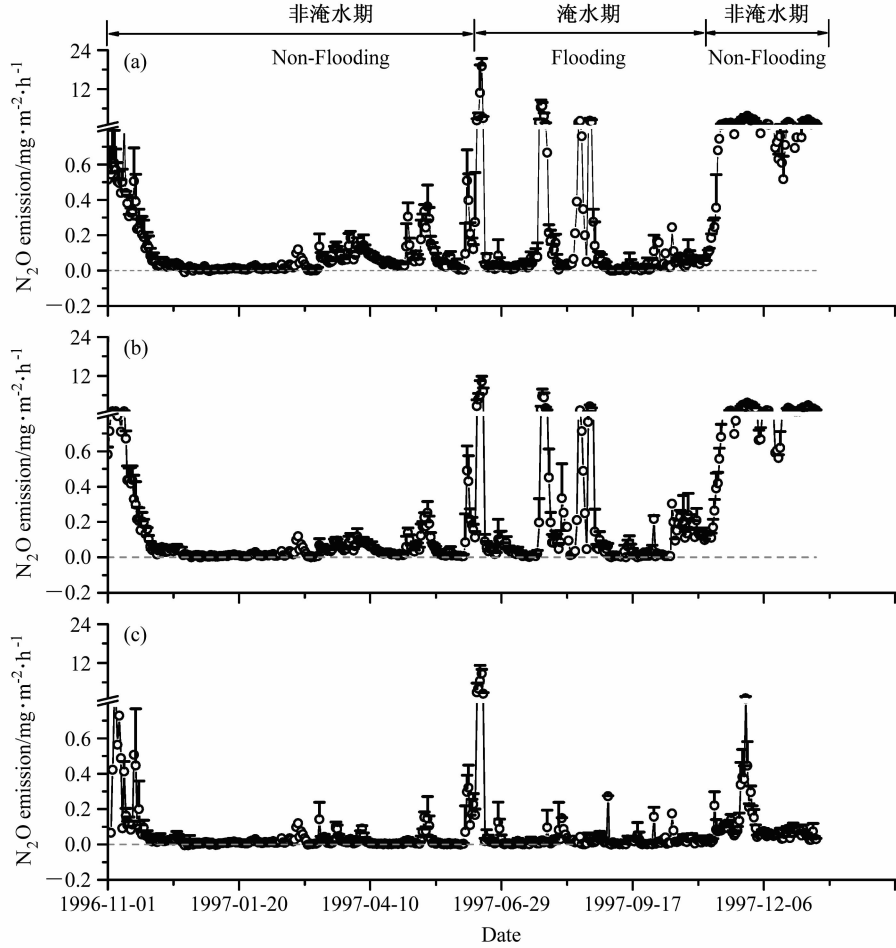


图3 不同施肥处理的日平均 N₂O 排放通量逐日变化：(a) 化肥；(b) 化肥+秸秆堆肥；(c) 不施氮肥对照。1996 年 11 月 1 日至 1997 年 11 月 20 日的数据引自文献 [16~18]

Fig. 3 Daily variations of N₂O emissions as affected by the treatments of Nitrogen fertilization: (a) chemical fertilization, (b) chemical fertilization with manure amendment, (c) treatment without Nitrogen fertilizer. Data from Nov 1, 1996 to Nov 20, 1997 are cited from Zheng et al^[16~18]

高于对照田，其日平均排放通量分别为 13.85 ± 4.56 和 $10.20 \pm 0.79 \text{ mg} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{h}^{-1}$ ，前者比后者高 36%。对整个稻麦轮作周期（1996 年 11 月 1 日至 1997 年 10 月 31 日）而言，施肥田和对照田的 N₂O 排放总量分别为 18.44 ± 6.00 和 $10.41 \pm 1.61 \text{ kg} \cdot \text{hm}^{-2} \cdot \text{a}^{-1}$ ，日平均排放通量分别为 0.210 ± 0.069 和 $0.119 \pm 0.018 \text{ mg} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{h}^{-1}$ ，前者比后者高 77%。本研究中，稻麦轮作农田的氮肥年施用量为 $384 \text{ kg} \cdot \text{hm}^{-2} \cdot \text{a}^{-1}$ ，整个稻麦轮作周期内农田施用氮肥的 N₂O-N 排放系数（定义为施入农田的肥料氮一年内通过 N₂O 排放损失的比率）为 $1.34\% \pm 0.73\%$ 。尽管施肥可以增强稻麦轮作农田旱地阶段的 N₂O 排放强度，但却并

不能改变主要排放峰发生的时间和季节分布格局（图 3）。稻麦轮作农田的每个重要 N₂O 排放峰都发生在田间水分状况发生剧烈变化的时候，如从旱地到水田或从水田到旱地的变化，或者自然降雨等，都能引起土壤水分剧烈变化从而导致 N₂O 的爆发式排放脉冲^[2]。在除冬季以外的旱地阶段，温度的影响之所以很不明显，可能是因为此时剧烈的水分变化决定着 N₂O 排放的变化形式。

3.3 NO 排放的季节变化特征及其决定因素

实验观测表明，华东稻麦轮作农田的 NO 排放表现出“冬季无，水田很少，春季旱地多于秋季旱地”的季节分布形式（图 4）。水稻生长期的 NO 排放仅占整个稻麦轮作周期排放总量的大约

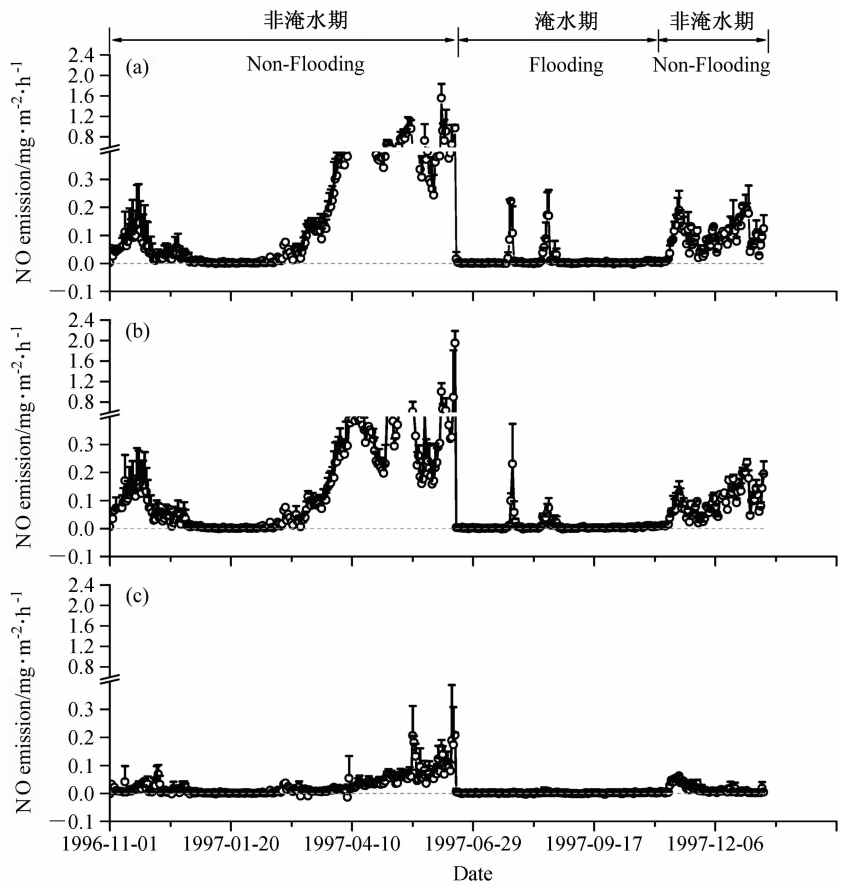


图 4 不同施肥处理的日平均 NO 排放通量逐日变化：(a) 化肥；(b) 化肥+秸秆堆肥；(c) 不施氮肥对照。1996 年 11 月 1 日至 1997 年 6 月 17 日的数据引自文献[18~20]

Fig. 4 Daily variations of NO emissions as affected by the treatments of Nitrogen fertilization from Nov 11, 1996 to Jan 7, 1998: (a) chemical fertilization, (b) chemical fertilization with manure amendment, (c) treatment without Nitrogen fertilizer. Data from Nov 1, 1996 to Jun 17, 1997 are cited from Zheng et al[18~20]

3%，且主要发生在排水烤田且同时施肥的阶段，淹水阶段基本检测不到明显的 NO 排放。轮作周期内 NO 排放总量大约 97% 都发生除夏季以外的旱地阶段。其中秋季（从 11 月初小麦播种到次年 1 月初进入越冬期之前）和春季（2 月底小麦开始返青到 6 月中旬淹水种稻之前）的排放分别占轮作周期排放总量的大约 10% 和 87%。对于按当地常规方式进行施肥的稻麦轮作农田（只施用化肥），水稻生长期、秋季和春季的排放通量分别为 0.009 ± 0.001 、 0.056 ± 0.008 和 0.298 ± 0.062 $\text{mg} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{h}^{-1}$ ，整个轮作周期的平均排放通量为 0.112 ± 0.023 $\text{mg} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{h}^{-1}$ 。

施肥田与对照田的 NO 年排放总量分别为 9.59 ± 2.35 和 1.47 ± 0.65 $\text{kg} \cdot \text{hm}^{-2} \cdot \text{a}^{-1}$ ，前者约为后者的 6.5 倍。整个轮作周期施用氮肥的

NO-N 排放系数（定义同 N₂O-N 排放系数）为 $0.98\% \pm 0.29\%$ ，若将旱地阶段和水稻生长期分开考虑，则 NO-N 的排放系数分别为 $1.91\% \pm 0.55\%$ 和 $0.05\% \pm 0.02\%$ 。可见，施肥可以使旱地阶段的 NO 排放大幅度地增加。在旱地阶段，温度对 NO 排放的季节变化形式起着重要作用^[20]，其中施肥田和对照田的 NO 排放对表层土壤温度的依赖性可以用如下两个回归方程分别描述：

$$F = 0.0223t - 0.0717,$$
$$(n = 229, r^2 = 0.59, P < 0.01) \quad (2)$$

$$F = 0.0041t - 0.0170,$$
$$(n = 229, r^2 = 0.56, P < 0.01) \quad (3)$$

公式 (2) 为施氮肥田，公式 (3) 为对照田。式中，F 为 NO 排放通量（单位： $\text{mg} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{h}^{-1}$ ），t 为温度（单位： $^{\circ}\text{C}$ ），n 为观测数据样本数，r 为

相关系数, P 指示 F 检验的概率。

以上分析表明, 田间水分状况和温度共同决定着整个轮作周期 NO 排放季节变化的基本形式, 施肥的作用虽然也可以改变 NO 排放峰的形状, 但其主要作用还是在于增加 NO 排放的强度。在水稻生长期, 施肥对 NO 排放的响应相对于旱地阶段小很多。

3.4 CH₄ 和 N₂O 排放的相互关系

许多研究表明, 稻田 CH₄ 和 N₂O 排放呈互为消长的关系^[10,15], 本研究在大多数情况下也观测到同样现象 (图 5b)。但是, 对于中期烤田并同时追施氮的稻田, 在烤田期间, 二者却不总是互为消长, 有时甚至同时呈现高排放 (图 3 和图 5a)。烤田期间同时出现 CH₄ 和 N₂O 高排放的原因可能为: 1) 排水烤田初期, 随着田面水层变薄到 0~1 cm, 通常会发生持续 1~2 天的脉冲式 CH₄ 高排放^[4,6]; 2) 因田间淹水急剧减少, 提供给硝化作用过程的 O₂ 相对供应比较充足, 加上施肥提供了高浓度的 NH₄⁺, 致使硝化作用强烈发生, 但因土壤湿度较大, 可能增加 N₂O 在硝化作用产物中的比重^[21]; 2) 硝化作用提供了丰富反应底物可使反硝化发生, 从而也可能增加反硝化过程产生的 N₂O。最终, 可能 3 种因素综合导致了烤田初期的 N₂O 高排放。但是, 随着烤田时间延长, 田间水分减少导致 CH₄ 产生过程减弱, 同时因土壤通气状况改善和施肥提供了大量 NH₄⁺ 而使得 CH₄ 氧化过程增强^[22], 从而导致 CH₄ 排放迅速降低。同时, N₂O 排放也因土壤水分含量减少而继续增强, 直到施肥提供的反应底物被逐渐消耗或恢复灌溉而抑制了硝化作用过程 (如图 3)。

3.5 N₂O 和 NO 排放的相互关系

观测显示, 在稻麦轮作农田的 N₂O 日平均排放通量小于 5 mg · m⁻² · h⁻¹ 时, N₂O 和 NO 排放呈明显的互为消长关系 (图 6b), 这可能主要是因为产生这两种气体的过程不同。稻麦轮作农田排放的 NO 主要来源于微生物硝化作用^[23], 而其排放的 N₂O 却是微生物硝化和反硝化作用共同作用的结果^[20]。前者是发生在土壤湿度较低、通气状况良好的条件下, 而后者通常发生在土壤湿度相对较高的情况下。有研究表明, 对于一般非酸性土壤, 当排放的 NO 和 N₂O 的摩尔比大于 1 时 (如 1997 年 3 月 10 日~6 月 8 日, 施肥农田的

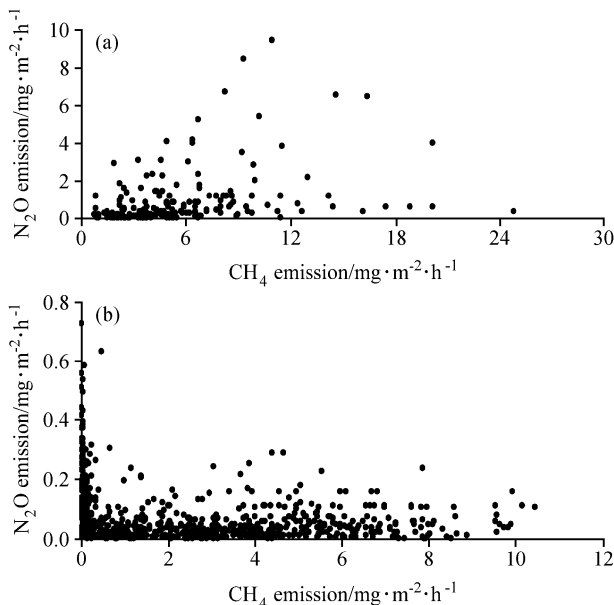


图 5 水稻生长季稻田 CH₄ 和 N₂O 排放的相互关系: (a) 两次烤田期间 N₂O 和 CH₄ 日平均排放通量; (b) 两次烤田期之外的水稻生长季 N₂O 和 CH₄ 日平均排放通量

Fig. 5 Relationship between CH₄ emission and N₂O emission during the rice season in 1997; (a) the two mid-season drainages; (b) the rest

NO 和 N₂O 排放摩尔比大约为 14), 两者主要产生于微生物硝化作用; 当 NO 和 N₂O 排放的摩尔比小于 1 时, 其值越低 (如稻田淹水阶段的情形), 表明反硝化作用越占优势^[24]。因而, 非酸性土壤 (如本研究的对象) 的 NO 和 N₂O 排放通常呈互为消长关系 (如图 6b)。但 NO 和 N₂O 的摩尔比越接近 1, 表明硝化和反硝化过程的协同作用越强, 此时 N₂O 和 NO 排放都相对较强 (图 6a), 例如, 在水稻插秧前的灌水泡田 (1997 年 6 月 1~12 日) 阶段, NO 平均排放通量为 0.64 mg · m⁻² · h⁻¹, 而 N₂O 平均排放通量也高达 5.99 mg · m⁻² · h⁻¹, 二者的摩尔比为 0.4。此阶段同时发生 NO 和 N₂O 强排放的原因可能为: 在此前较长一段时间, 土壤比较干燥, 反硝化作用被抑制, 高 NO 排放通量 (平均 0.33 mg · m⁻² · h⁻¹) 表明这时发生着较强烈的硝化作用过程; 当经过长期干燥相对积累了较多硝化作用产物 NO₃⁻ 的土壤因灌水而被湿润后, 一方面, NO₃⁻ 被反硝化作用还原而释放出 N₂O 和 NO, 另一方面, 土壤湿润过程可激发土壤有机氮矿化, 矿化氮的硝化也有利于 NO 和 N₂O 的生成和释放。

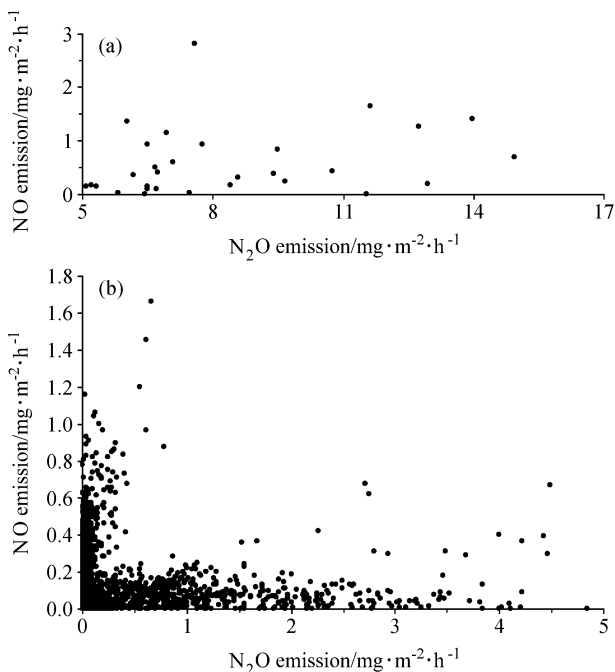


图 6 稻麦轮作 NO 和 N_2O 排放相互关系: (a) N_2O 日平均排放通量小于 $5 \text{ mg} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{h}^{-1}$; (b) N_2O 日平均排放通量大于 $5 \text{ mg} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{h}^{-1}$

Fig. 6 The relationship between NO emission and N_2O emission: (a) N_2O emission is less than $5 \text{ mg} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{h}^{-1}$; (b) N_2O emission is more than $5 \text{ mg} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{h}^{-1}$

4 结论

华东稻麦轮作农田的 CH_4 、 N_2O 和 NO 排放具有完全不同的季节变化形式。

CH_4 排放完全发生在水稻生长季, 其他阶段没有明显排放, 且 80% 以上排放都发生在水稻生长的前期和中期, 后期的排放相对微弱。整个稻麦轮作周期中, 土壤水分状况是决定 CH_4 排放季节变化的主要因素。

N_2O 排放的季节变化表现出“冬季无, 水田少, 旱地多”的特点, 尤其以旱地阶段的排放为主。水稻生长期的 N_2O 排放主要发生在排水烤田阶段, 约占轮作周期排放总量的 $30.4\% \pm 9.7\%$, 淹水阶段即使追施氮肥, N_2O 排放也不明显。施肥可以增强稻麦轮作农田旱地阶段的 N_2O 排放强度, 但并不影响 N_2O 排放的季节变化形式, 土壤水分状况和温度共同决定着 N_2O 排放的季节变化形式。

NO 排放表现为“冬季无, 水田很少, 春季旱地多于秋季旱地”的季节变化形式。水稻生长期的 NO 排放主要发生在排水烤田并同时施肥的阶段, 且排放量小, 而淹水阶段基本检测不到明显的 NO 排放。一个轮作周期内, NO 排放总量的 $97.3\% \pm 0.6\%$ 都发生在除冬季以外的旱地阶段, 其中秋季和春季的排放分别占总量的 $10.3\% \pm 3.2\%$ 和 $86.5\% \pm 3.8\%$ 。整个稻麦轮作周期中, 土壤水分是决定 NO 排放季节变化形式的主要因素, 但在旱地阶段, 温度却对 NO 排放的季节变化形式起着重要作用, 施肥仅增加 NO 排放强度, 并不明显影响 NO 排放的季节变化形式。

大多数情况下, 稻田 CH_4 和 N_2O 排放呈互为消长的关系, 但在烤田期间, 二者却有时同时出现高排放。在稻麦轮作农田的 N_2O 日平均排放通量小于 $5 \text{ mg} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{h}^{-1}$ 时, N_2O 和 NO 排放呈明显的互为消长关系, 但大于 $5 \text{ mg} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{h}^{-1}$ 时, N_2O 排放很强, 同时 NO 排放也很强。

致谢 感谢中国科学院大气物理研究所王跃思研究员、刘广仁高工和张文高工等给本研究提供的技术支持和帮助!

参考文献 (References)

- [1] IPCC. *Climate Change 2001: The Scientific Basis*. Contribution of Working Group I to the Third Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change. Houghton J T, Ding Y, Griggs D J, et al. Ed. NY, USA: Cambridge University Press, 2001
- [2] Zheng Xunhua, Wang Mingxing, Wang Yuesi, et al. Impacts of soil moisture on nitrous oxide emission from croplands. *Chemosphere-Global Change Sciences*, 2000, **2**: 207~224
- [3] Zheng Xunhua, Huang Yao, Wang Yuesi, et al. Seasonal characteristics of nitric oxide emission from a typical Chinese rice-wheat rotation during the non-waterlogged period. *Global Change Biology*, 2003, **9** (2): 219~227
- [4] Zheng Xunhua, Wang Mingxing, Wang Yuesi, et al. Comparison of manual and automatic methods for measurement of methane emission from rice paddy fields. *Advances in Atmospheric Sciences*, 1998, **15** (4): 569~579
- [5] Cai Zucong, Xu Hua, Zhang Hanhui, et al. Estimate of methane emission from rice paddy fields in Taihu region. *China Pedosphere*, 1994, **4** (4): 279~306

- [6] Yagi K, Tsuruta H, Kanda K, et al. Effect of water management on methane emission from a Japanese rice paddy field; Automated methane monitoring. *Global Biogeochemical Cycles*, 1996, **10** (2): 255~267
- [7] 上官行健, 王明星, 沈壬兴. 稻田 CH_4 的排放规律. 地球科学进展, 1993, **8** (5): 23~36
Shangguan Xingjian, Wang Mingxing, Shen Renxing. Regularity of methane emission from rice paddy fields. *Advance in Earth Sciences* (in Chinese), 1993, **8** (5): 23~36
- [8] Wang Mingxing, Shangguan Xingjian. CH_4 Emission from various rice fields in P. R. China. *Theoretical and Applied Climatology*, 1996, **55**: 129~138
- [9] 沈壬兴, 上官行健, 王明星, 等. 广州地区稻田 CH_4 排放及中国稻田 CH_4 排放的空间变化. 地球科学进展, 1995, **10** (4): 387~392
Shen Renxing, Shangguan Xingjian, Wang Mingxing, et al. Methane emission from rice fields in Guangzhou region and the spatial variation of methane emission in China. *Advance in Earth Sciences* (in Chinese), 1995, **10** (4): 387~392
- [10] 陈冠雄, 黄国宏, 黄斌, 等. 稻田 CH_4 和 N_2O 排放及养萍和施肥的影响. 应用生态学报, 1995, **6** (4): 378~382
Chen Guanxiong, Huang Guohong, Huang Bin, et al. CH_4 and N_2O emission from a rice field and effect of Azolla and fertilization on them. *Chinese Journal of Applied Ecology* (in Chinese), 1995, **6** (4): 378~382
- [11] Butterbach-Bahl K, Papen H. Four years continuous record of CH_4 -exchange between the atmosphere and untreated and limed soil of a N-saturated spruce and beech forest ecosystem in Germany. *Plant and Soil*, 2002, **240**: 77~90
- [12] 王跃思, 王明星, 胡玉琼, 等. 半干旱草原温室气体排放/吸收与环境因子的关系研究. 气候与环境研究, 2002, **7** (3): 295~310
Wang Yuesi, Wang Mingxing, Hu Yuqiong, et al. Study on relationship between the variations of greenhouse gases efflux/uptake and the key environmental factors in Mongolia semi-arid grasslands. *Climatic and Environmental Research* (in Chinese), 2002, **7** (3): 295~310
- [13] Reay D S, Nedwell D B. Methane oxidation in temperate forest soils; Effects of inorganic N. *Soil Biology and Biochemistry*, 2004, **36**: 2059~2065
- [14] Zheng Xunhua, Wang Mingxing, Wang Yuesi, et al. N_2O and CH_4 emission from rice paddies in Southeast China. *Chinese Journal of Atmospheric Sciences*, 1997, **21** (2): 167~174
- [15] 王明星. 中国稻田甲烷排放. 北京: 科学出版社, 2001. 199
Wang Mingxing. *China Methane Emission* (in Chinese). Beijing: Science Press, 2001. 199
- [16] Zheng Xunhua, Wang Mingxing, Wang Yuesi, et al. Characters of greenhouse gas (N_2O , NO , CH_4) emissions from croplands of Southeast China. *World Resource Review*, 1999, **11** (2): 229~245
- [17] Zheng Xunhua, Wang Mingxing, Wang Yuesi, et al. Impacts of soil moisture on nitrous oxide emission from croplands; A case study on the rice-based agro-ecosystem in Southeast China. *Chemosphere-Global Change Science*, 2000, **2**: 207~224
- [18] Zheng Xunhua, Wang Mingxing, Wang Yuesi, et al. Mitigation options for methane, nitrous oxide and nitrous oxide emissions from agricultural ecosystems. *Advances in Atmospheric Sciences*, 2000, **17** (1): 83~92
- [19] Zheng Xunhua, Huang Yao, Wang Yuesi, et al. Seasonal characteristics of nitric oxide emission from a typical Chinese rice-wheat rotation during the non-waterlogged period. *Global Change Biology*, 2003, **9** (2): 219~227
- [20] Zheng Xunhua, Huang Yao, Wang Yuesi, et al. Effects of soil temperature on nitric oxide emission from a typical Chinese rice-wheat rotation during the non-waterlogged period. *Global Change Biology*, 2003, **9** (4): 601~611
- [21] Davidson E A. Soil water content and the ratio of nitrous oxide to nitric oxide emitted from soil. In: *The Biogeochemistry of Global Change: Radiatively Active Trace Gases*. Oremland R S, Ed. New York: Chapman & Hall, 1992. 56~66
- [22] Bodelier P L E, Laanbroek J H. Nitrogen as a regulatory factor of methane oxidation in soils and sediments. *FEMS Microbiology Ecology*, 2004, **47**: 265~277
- [23] Williams E J, Hultchinson G L, Fehsenfeld F C. NO_x and N_2O emissions from soil. *Global Biogeochemical Cycles*, 1992, **6**: 351~388
- [24] Yamulki S, Goulding K W T, Webster C P, et al. Studies on NO and N_2O fluxes from a wheat field. *Atmos. Environ.*, 1995, **29**: 1627~1635