林 菲,刘春岩,胡晓霞,等.青藏高原种植饲草农田一氧化氮周年排放特征[J].农业环境科学学报,2019,38(2):466-475. LIN Fei, LIU Chun-yan, HU Xiao-xia, et al. Year-round measurements of nitric oxide emissions from a typical forage grass cropland in the Qinghai-Tibetan Plateau, China[J]. *Journal of Agro-Environment Science*, 2019, 38(2): 466-475.

青藏高原种植饲草农田一氧化氮周年排放特征

林 菲^{1,2}, 刘春岩^{1*}, 胡晓霞^{1,2}, 付永锋^{1,2}, 张 伟¹, 王 寄¹, 姚志生¹, 郑循华^{1,2} (1.中国科学院大气物理研究所大气边界层物理和大气化学国家重点实验室, 北京 100029; 2.中国科学院大学, 北京 100049)

摘 要:为了解农田土壤一氧化氮(NO)周年排放特征,对高原气候区青藏高原东缘种植饲草(燕麦)农田NO排放通量和主要环境 因子进行了周年连续定量研究,施肥(F)和不施肥处理(UF)周年累积排放量分别为0.80±0.06 kg N·hm⁻²·a⁻¹和0.18±0.04 kg N· hm⁻²·a⁻¹,翻耕施肥期和冻融期NO排放显著贡献了全年累积排放量(F和UF分别为85%和65%)。土壤温度、湿度、无机氮和水浸 提有机碳含量显著影响NO排放通量的季节变化,采用土壤湿度、铵态氮、硝态氮和水浸提有机碳含量作为指前因子的指数方程拟 合这些土壤变量对NO通量的影响,决定系数高达92%,能够很好地表征碳氮底物有效性、微生物活性和氧气有效性(土壤温度和 湿度)对NO排放的协同效应,由此得到NO排放通量对表层(5 cm)土壤温度的敏感性指数(*Q*₀)值为2.4(F)和2.5(UF),这意味着 全球增温对NO排放的促进效应将远低于施肥量增加对NO排放的促进作用。该燕麦农田NO直接排放因子为0.93%±0.10%,有别 于其他区域、全国和全球的平均状况,因此不宜采用缺省排放因子计算高原气候区粗放管理方式下农田NO排放清单。考虑到青 藏高原地区降水量存在巨大的年际变幅,未来应加强典型农田NO排放的多年际连续观测研究。

关键词:一氧化氮;土壤冻融;温度敏感系数;直接排放因子;燕麦

中图分类号:X511 文献标志码:A 文章编号:1672-2043(2019)02-0466-10 doi:10.11654/jaes.2018-0424

Year-round measurements of nitric oxide emissions from a typical forage grass cropland in the Qinghai-Tibetan Plateau, China

LIN Fei12, LIU Chun-yan1*, HU Xiao-xia12, FU Yong-feng12, ZHANG Wei 1, WANG Rui 1, YAO Zhi-sheng1, ZHENG Xun-hua12

(1. State Key Laboratory of Atmospheric Boundary Layer Physics and Atmospheric Chemistry, Institute of Atmospheric Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100029, China; 2. University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China)

Abstract: Fertilized soils are major sources of atmospheric nitric oxide (NO). However, year-round measurements of NO emissions from croplands are still scarce and exclusively concentrated in the temperate and subtropical monsoon regions of China. In this study, year-round measurements of NO fluxes and environmental factors were conducted in a typical forage grass (oat) cropland in the Qinghai-Tibetan Plateau, which has a plateau climate. The annual NO emissions from the fertilized (F) and unfertilized (UF) treatments were 0.80 ± 0.06 kg N·hm⁻²·a⁻¹ and 0.18 ± 0.04 kg N·hm⁻²·a⁻¹, respectively. The cumulative emissions from the tillage-fertilization and freeze-thaw periods dominated the annual totals. The fitting equations between environmental factors and NO fluxes well characterized the integrated effects of substrate availability, oxidation-reduction condition, and microbial activity on NO emissions ($r^2 = 0.92$). The sensitivity coefficients of NO emissions were much lower than the promoted effects of fertilization on the emissions. The direct emission factor (EF_d) was calculated as $0.93\%\pm0.10\%$ in the alpine oat field, which was higher than that of the regional, national, and global averages. Thus, the default EF_d provided by other studies should not be applied to estimate NO emissions from croplands in a plateau climate. Considering the huge variation of precipitation across the plateau, multi-year continuous measurements are essential for quantifying the interannual variations of cumulative emissions and EF_d .

Keywords: nitric oxide; soil freeze-thaw; sensitivity coefficient of temperature; direct emission factor; oat

收稿日期:2018-04-02 录用日期:2018-06-27

*通信作者:刘春岩 E-mail:lcy@post.iap.ac.cn

作者简介:林 菲(1984—),女,山西太原人,博士研究生,从事大气物理学与大气环境研究。E-mail:lin_269@163.com

基金项目:国家自然科学基金项目(41375152,41603075)

Project supported: The National Natural Science Foundation of China (41375152,41603075)

一氧化氮(NO)具有极强的活性,参与一系列大 气化学过程,显著影响对流层臭氧浓度、二次气溶胶 生成、酸雨形成和大气氮沉降过程。对流层NO主要 来自于化石燃料燃烧,然而土壤排放在全部排放源中 贡献显著(约15%)^{III},在农业区占绝对主导。

我国陆地土壤NO排放量粗略估计为588~2132 Gg N·a⁻¹,其中旱地农田土壤排放量占比超过1/3^[2]。 关于我国农田土壤NO排放清单估算仍存在较大的 不确定性,主要有三方面的原因:第一,缺乏典型气候 区代表性耕作制度农田NO排放通量观测数据。我 国现有农田NO排放通量观测研究都集中于东部温 带和亚热带季风区域,主要关注农业集约化程度较高 的玉-麦、稻-麦轮作农田和蔬菜地。1950年以来,大 规模草地开垦使得温带大陆性气候区农田面积迅速 增加,现有农田面积约1/5来自于草地开垦3。开垦 后的农田主要用于粮食和饲料生产,然而这部分农田 NO 排放通量观测未见报道。第二,很多农田 NO 排 放通量观测研究仅关注施肥期和生长季,已有研究表 明,季节性冻土区土壤冻融过程促进土壤矿化4,无 机碳氮底物浓度增加是否会促进非生长季 NO 排放, 非生长季累积排放量对周年排放总量的重要性等问 题尚待评估。第三,农田NO排放清单估算大都基于 直接排放因子和统计模型方法[2],由于缺少无氮对照 处理和相关环境变量同步观测,典型农业区NO直接 排放因子水平和影响NO排放的主控环境因子仍缺 乏系统研究。此外,NO排放通量具有很高的季节变 异特点,土壤类型、气候条件、种植制度和管理方式等 多种因素显著影响 NO 排放过程和直接排放因子水 平[5-6],采用缺省排放因子(或者国外研究结果)和简 化的统计模型(如:土壤温度和NO排放的关系)^[7],导 致我国农田NO排放清单存在较大的不确定性。

主要分布于青藏高原的高寒草甸是我国面积最大的草地类型^[8]。20世纪60年代以来,随着放牧强度的迅速增加,高寒草甸普遍遭到过度放牧影响,为了维持高的放牧强度并解决饲草季节不平衡问题,大量草甸被开垦成农田种植饲草。燕麦(Avena sativa L.)在我国种植历史悠久,在青藏高原地区因受高原气候限制而无法成熟,因此,一般于生长季末收获地上部分晒干后作为放牧家畜冬春季饲草。燕麦的种植面积约占青藏高原人工饲草种植总面积的70%,是该地区种植的最主要饲草^[9],由于经济欠发达,青藏高原

本研究在青藏高原东缘高寒草甸开垦后种植燕 麦的农田上,开展了周年NO排放通量、直接排放因 子和相关环境因子的同步观测研究,该研究将:(1)填 补我国草地开垦后种植饲草农田NO排放量和直接 排放因子研究的缺失;(2)定量评估土壤季节性冻融 对NO排放的影响,以及寒温带大陆性气候区农田非 生长季NO排放对年排放总量的重要性;(3)探寻影 响寒温带大陆性气候区农田NO排放的主控环境因 子,预估未来气候变化对NO排放的影响程度。

1 材料与方法

1.1 试验设计

燕麦地(37°37′58″N,101°17′58″E,海拔3040 m)位于青海省海北州门源县境内,距中国科学院海 北高寒草甸生态系统实验站约6km,样地面积2hm², 地形平坦,为典型的高原气候,2012-2015年的年均 气温和降雨量分别为-0.3 ℃和524 mm,土壤类型为 草毡寒冻雏形土[12]。该样地于1965年由放牧高寒矮 嵩草草甸[主要优势植物有矮嵩草(Kobresia humilis)、 垂穗披碱草(Elymus nutans)、异针茅(Stipa aliena)、麻 花艽(Gentiana straminea Maxim)等]开垦而来,其后一 直用于种植饲草燕麦。1980-2009年施化肥和羊 粪,2010年以后只施用化肥。2014年5月22日翻耕 (深度 20 cm);5月 26 日将种子(375 kg·hm⁻²)、尿素 (67 kg N·hm⁻²)和磷酸氢二铵(10 kg P·hm⁻²)混合均 匀后,使用旋耕机翻入土中(深度 3~5 cm);10月2日 人工收获地上生物质,捆扎晾干后堆放,留待冬季作 为家畜(藏系羊和牦牛)饲草。该样地属于粗放管理 的雨养农业,无灌溉、喷洒杀虫剂和除草剂等管理措 施。

本研究的田间试验期为2014年5月3日至2015 年5月2日,其间,设置施肥(F)和不施肥处理(UF), 每个处理随机布设4个5m×5m的空间重复样方。 UF处理设置2m的缓冲带以免受到边际效应影响和 施肥干扰,仅观测试验当年不施用化肥,其他的管理 活动(如翻耕、播种和收获等)与F处理相同。

1.2 NO排放通量观测方法

本研究采用静态暗箱采样-化学发光分析方法 测定陆地生态系统-大气界面NO交换通量^[7,13-14],观 测频率通常为每星期1~2次,翻耕施肥期和冻融期观 测频率增加至每日或每2d一次。静态暗箱(长50 cm×宽50 cm×高40 cm,有顶无底)由304不锈钢(厚 度1 mm)制成,箱体外覆盖发泡隔热材料(厚度1 cm),隔热材料外表面粘贴反光锡箔纸,以降低罩箱 采样过程中箱内温度的剧烈变化。当燕麦生长高度 超过50 cm时,增加中段采样箱(长50 cm×宽50 cm× 高40 cm,无底无顶)。在试验开始前一周将不锈钢基 座(长50 cm×宽50 cm×高15 cm,板厚3.0 mm)埋设入 土壤中,除必要的农田管理活动(如:翻耕)外,整个观 测期基座一直埋设在土壤中,基座上缘粘贴有6 mm 厚的橡胶材料,以确保采样时静态暗箱与基座之间的 密封性。每个静态箱顶部安装有气压平衡管(内径 7.4 mm,长度12 cm),目的是平衡罩箱和采样过程中 静态箱内外气压。罩箱和采样过程中,平衡管打开, 其余罩箱时间处于关闭状态。

为了定量罩箱期间静态暗箱内NO浓度累积速 率,罩箱前后各采集一个气体样品,罩箱前先采集本 底空气,测定结果代表箱内空气初始浓度(C_0),罩箱 后大约10min,从箱内抽取第二个气体样品。采集气 体样品时,用抽气泵(N86KNDC, KNF Neuberger, Inc., Freiburg, Germany) 抽取 1.5 L 气体样品(抽气泵 采样流速约2L·min⁻¹),储存在铝复合膜气体采样袋 (LB301, Dalian Delin Gas Packing Co., Ltd, China)中, 采样结束后2h内,采用基于化学发光原理的NO-NO₂-NO_x分析仪(model 42i, Thermo Environmental Instruments Inc., Franklin, USA)测定 NO 和二氧化氮 (NO_2) 的体积混合比浓度 $(1 nL \cdot L^{-1})$, NO-NO₂-NO_x分 析仪每两个月进行一次NO浓度梯度标定。采集罩 箱后的气体样品时,损失的箱内空气通过静态暗箱顶 部安装的气压平衡管补充,因此,需要通过以下公式 矫正罩箱后箱内实际的NO 和NO₂浓度:

$C_{t}' = \frac{\left[C_{t}(V_{c} + V_{s}) - C_{0}V_{s}\right]}{V_{c}}$

式中: C_i '为矫正的罩箱后箱内空气的 NO 或 NO₂浓 度; C₀和 C_i为罩箱前、后测定的 NO 或 NO₂浓度; V_e和 V_s 为静态箱体积(100 L或 200 L)和采集气体样品的体 积(1.5 L)。基于采样箱内气体浓度呈线性累积的假 设,根据同步测定的罩箱前、后的 NO 和 NO₂浓度(C₀ 和 C_i')、箱内气温、大气压力、采样箱高度和罩箱时间 计算得到 NO 和 NO₂的交换通量^[13],由于土壤无产生 和排放 NO₂的机制,罩箱期间 NO₂浓度累积(NO₂正通 量)主要来自于土壤排放的 NO 与臭氧反应生成,因 此,当 NO₂通量计算值为正值时,NO 与 NO₂交换通量 之和代表土壤 NO 排放通量^[14]。气体样品采集时间为 上午 8:00—10:00,该时段测定的气体交换通量能够 最大程度代表日平均交换通量,季节和周年累积排放 通量计算方法详见蒙世协等[15]。

1.3 环境因子测量方法

本研究在观测NO排放通量的同时,还同步测定 了降水量(包括降雨和降雪)、空气温度(T.1.5 m)、土 壤温度 $(T_s, 5 \text{ cm})$ 、土壤(0~6 cm)体积含水量,以及表 层土壤(0~10 cm)的铵态氮(NH[‡])、硝态氮(NO⁵₃)和水 浸提有机碳(WEOC)含量等环境因子。主要气象因 子观测地点位于中国科学院海北高寒草甸生态系统 实验站内, 日降水和降雪量分别由自动(RG13H, Vaisala, Finland) 和手动雨量筒测定, 空气温度 (HMP155, Vaisala)以10 min间隔自动记录。气体通 量测定当天,手动记录采样时箱内空气温度,以及周 围环境的土壤温度(JM624, Jin Ming Instrument Co., Ltd., China)和土壤体积含水量(ML2x, ThetaKit, Delta-T Devices, Cambridge, UK)。非生长季土壤冻结后, 采用环刀采样称重法测定土壤体积含水量。每个处 理用土钻采集4个空间重复土壤样品,去根,混合后 过2mm筛,再从中取3个重复样品(每个样品湿土质 量 24 g), 加入 100 mL 1 mol·L⁻¹的氯化钾溶液浸提, 浸提液用于测定NH4和NO3含量,水土比5:1、振荡1 h,定性滤纸过滤,聚对苯二甲酸类塑料瓶储存样 品,-18℃左右冷冻保存;另外取3个重复样品,用去 离子水浸提,浸提液用于测定WEOC含量,水土比5: 1,振荡1h,6000 r·min⁻¹离心5 min,0.45 µm 孔径的聚 醚砜膜过滤上清液,聚对苯二甲酸类塑料瓶储存样 品,-18℃左右冷冻保存。冷冻的浸提液样品在4℃ 条件下解冻24h后,采用流动分析仪(Skalar Analytical B.V., Breda, Netherlands)测定浸提液中NH4、NO3 和WEOC含量。

除上述动态环境因子,试验期间还采用重铬酸钾容量法-外加热法和凯氏定氮法¹¹⁶测定了土壤有机碳和总氮含量(0~20 cm),采用马尔文激光粒子分析法¹¹⁷测定土壤机械组成(即黏粒、粉粒和砂粒含量,0~20 cm),水土比2.5:1测定土壤pH(0~10 cm,PHS-3C,INESA,Shanghai,China),环刀采样称重法于生长季始末测定土壤容重(0~6 cm),生长季末收获植物地上部分,105℃杀青1h后,60℃烘干48h至恒质量,测定地上部分生物量,见表1。

1.4 数据处理与统计分析

土壤充水孔隙度指土壤体积含水量与总孔隙度 的百分比,计算公式如下:

WFPS=
$$\frac{VMC}{1 - BD/2.65}$$

表1 施肥和不施肥处理土壤理化性质和地上生物量

Table 1 Soil properties and aboveground biomass of the fertilized and unfertilized treatments

项目 Items	F	UF
质地(0~20 cm)Soil texture		
砂粒(0.05~2 mm)Sand/%	15.7±0.7	15.9±0.2
粉粒(0.002~0.05 mm)Silt/%	67.0±0.6	66.8±0.3
黏粒(< 0.002 mm)Clay/%	17.3±0.3	17.5±0.5
有机碳(0~20 cm)SOC/g C · kg ⁻¹ 干土	34.3±1.1	34.3±0.6
总氮(0~20 cm)TN/g N·kg ⁻¹ 干土	3.5±0.1	3.4±0.04
$pH(H_2O, 0~10 \text{ cm})$	8.5±0.02	8.5±0.03
土壤容重(0~6 cm)Bulk density/g·cm ⁻³	0.91±0.08	0.93±0.05
地上生物量 Aboveground biomass/g·m ⁻²	892.3±37.7	578.7±13.8

式中:WFPS为土壤充水孔隙度,%;VMC为土壤体积 含水量,%;BD为土壤容重,g·cm⁻³;矿质土壤的平均 土壤密度值为2.65g·cm⁻³。

直接排放因子指施肥导致的NO直接排放量(不 含淋溶和气态氮排放后沉降到农田导致的间接排放) 与氮肥施用量的百分比,计算公式如下:

 $EF_{\rm d} = \frac{E_{\rm F} - E_{\rm UF}}{F_{\rm N}}$

式中: EF_a 为直接排放因子,%; E_F 和 E_{UF} 为施肥和当年 不施肥处理周年累积NO排放量,kgN· $hm^{-2}\cdot a^{-1}$, F_N 为 氮肥施用量,kgN· $hm^{-2}\cdot a^{-1}$ 。

土壤翻耕至燕麦收获期定义为生长季(GS),其 余时期定义为非生长季(NGS)。翻耕及其后三周定 义为翻耕施肥期(TFP)。冬春转换季节,空气温度持 续在-10~0℃之间的时期定义为冻融期(FTP),具体 时间见表2。

F和UF处理之间NO交换通量、NH4、NO3和WEOC含量的差异显著性检验采用重复设计的方差分析方法,土壤属性和地上生物量及不同季节之间NO交换通量和环境变量的差异显著性检验采用两个

表 2 生长季、非生长季、翻耕施肥期和>	冻融期定义
----------------------	-------

 Table 2 Definitions of growing and non-growing seasons and

 tillage-fertilization and freeze-thaw periods

tillage leitillization and neeze thaw perious				
时期 Period	起止日期 Starting and ending date	时长 Time/d		
生长季 Growing season	2014-05-22-10-02	134		
非生长季 Non-growing season	2014-05-03-05-21 2014-10-03-2015-05-02	231		
翻耕施肥期 Tillage-fertilization period	2014-05-22-06-11	21		
冻融期 Freeze-thaw period	2015-03-01-04-21	52		

独立样本的非参数检验方法。NO通量与环境变量之间的相关关系采用非线性回归方法(F检验)。SPSS 19.0 (SPSS Inc., Chicago, USA)和 Origin 8.0 (Origin Lab Corporation, USA)用于以上统计数据分析和图形的制作。

2 结果与分析

2.1 环境因子

研究区域年平均空气温度-0.6 °C,最大、最小月平均空气温度分别出现在7月(10.6 °C)和12月(-14.0 °C)。年降水量(雨和雪合计)603.8 mm,78%的降水集中在生长季。由图1可知,土壤温度与空气温度表现出相同的季节变化趋势,F和UF处理间无显著差异。F处理年平均WFPS(47.8%±2.5%)略高于UF处理(44.6%±2.6%),但差异并不显著,两个处理非生长季WFPS显著高于生长季(P<0.01,表3)。土壤NH4、NO5和WEOC含量(0~10 cm)受管理活动(翻耕与施肥)和土壤冻融过程影响表现出明显的季节变化,翻耕施肥期和冻融期土壤NH4、NO5和WEOC含量较高。除翻耕施肥期外,土壤无机氮以NO5形态为主,化肥氮施用显著增加F处理NH5和NO5含量(P<0.01)。尽管F处理收获的地上生物量显著高于UF处理(P<0.01),但

2.2 NO排放与直接排放因子

施肥导致 F处理 NO 地气界面交换通量的变异范 围(-0.5~553.2 μg N·m⁻²·h⁻¹)远大于 UF 处理(-0.5~ 62.9 μg N·m⁻²·h⁻¹,图 2),偶尔观测到的负通量全部出 现在最冷的 12 月份,负通量值(-0.5~-0.1 μg N·m⁻²· h⁻¹)大都位于观测系统检测下限值(±0.4 μg N·m⁻²· h⁻¹)以内,这表明负通量有可能代表 NO 的沉降,也可 能是仪器的检测嗓音。F和 UF 处理最高的排放通量 均出现在翻耕施肥期,除此之外,冻融期 NO 排放通量 较冬季显著增加(图 2)。F和 UF 处理翻耕施肥期 NO 平均排放通量显著高于生长季平均值,冻融期平均排 放通量同样显著高于非生长季平均值(P<0.01)。

F和UF处理全年累积NO排放量分别为0.80± 0.06 kg N·hm⁻²·a⁻¹和0.18±0.04 kg N·hm⁻²·a⁻¹,前者显 著高于后者(P<0.01,表4),周年NO直接排放因子为 0.93%±0.10%。翻耕施肥期和冻融期合计73 d,两个 关键期NO累积排放量之和占F和UF处理全年累积 排放量的85%和65%,周年累积NO排放主要集中在 这两个关键期。此外,非生长季累积NO排放量占F 和UF处理全年累积排放量的13%和45%,因此,非生 470

长季连续观测对于准确定量UF处理累积排放量和 NO直接排放因子至关重要。

2.3 环境因子对NO排放通量的影响

单因子分析结果显示:*T*_{*}、WFPS、底物浓度(NH₄、 NO₅和WEOC含量)和NO排放通量均呈现显著指数 相关(*P*<0.01,表5)。随着*T*_{*}和反应底物浓度的增加 NO排放通量指数增长,然而,随着WFPS的增加,NO 排放通量呈现先增后减的趋势,F处理较高的NO排 放通量出现在WFPS 25%~30%之间(图3)。

单因子分析无法准确描述生物地球化学循环复

杂的物理、化学和生物过程及环境因子之间的相互作 用与协同效应,当把T。和NO排放通量指数相关方程 中指前因子由常数变成变量进行多因子分析时,结果 显示:T。、WFPS和底物浓度(NHt、NO3和WEOC含量) 共同作用并极显著影响NO排放通量,多因子分析拟 合方程的决定系数由单因子分析的25%~86%增加到 92%(表5),这表明NO排放通量受T。、WFPS和反应 底物浓度的共同影响,这些因子与NO排放通量的简 单统计分析模型,能够较好地表征NO排放通量季节 变化规律与环境调控机制(决定系数为0.92)。

农业环境科学学报 第38卷第2期



Figure 1 Year-round dynamics of environmental factors at the fertilized and unfertilized treatments

2019年2月

菲,等:青藏高原种植饲草农田一氧化氮周年排放特征

表 3 施肥与不施肥处理降水量和土壤变量的季节和周年平均值

Table 3 Seasonal and annual averages of precipitation and soil factors at the fertilized and unfertilized treatments

处理	时期	降水量	土壤温度	充水孔隙度	铵态氮	硝态氮	水浸提有机碳
Treatment	Period	Precipitation/mm	$T_{\rm s}/{ m C}$	WFPS/%	NH47mg N・kg ⁻¹ 十土	NO ₃ /mg N・kg ⁻¹ 十土	WEOC/mg C·kg ⁻¹ 十主
F	GS	468.2	9.1±0.7	47.8±2.5	4.2±1.3	12.2±2.3	48.0±2.1
	TFP	73.1	11.4±2.3	33.3±4.7	10.6±3.3	23.0±2.9	54.2±4.6
	NGS	135.6	-2.1±1.0	59.1±2.6	1.7±0.3	15.2±1.8	41.5±1.7
	FTP	34.0	1.9±1.4	58.9±3.6	2.1±0.7	18.0±2.8	45.1±3.3
	А	603.8	2.9±0.9	53.4±1.9	2.8±0.6**	13.8±1.4**	44.5±1.4
UF	GS	468.2	9.2±0.7	44.6±2.6	2.0±0.6	6.5±1.4	48.5±2.9
	TFP	73.1	10.8±2.2	29.1±5.0	3.9±1.9	13.4±2.8	56.3±9.2
	NGS	135.6	-2.2±1.0	62.5±2.7	1.9±0.4	11.9±1.3	43.5±2.4
	FTP	34.0	1.8±1.4	63.0±3.7	2.0±0.7	13.4±1.4	46.3±4.6
	А	603.8	2.9±0.9	53.6±2.2	1.9±0.3**	9.4±1.0**	45.7±1.9

注:A.周年=GS+NGS;**表示施肥和不施肥处理间差异显著(P<0.01)。下同。

Note: A. Annual=GS+NGS; **indicates significant differences at the 0.01 level between F and UF treatments. The same below.



Figure 2 Year-round dynamics of NO fluxes and cumulative emissions at the fertilized and unfertilized treatments

表4 施肥与不施肥处理季节和周年累积NO排放量

Table 4 Seasonal and annual cumulative NO emissions from the fertilized and unfertilized treatments

处理 Treatment	时期 Period	平均通量 Average flux/ µg N·m ⁻² ·h ⁻¹	累积通量 Cumulative flux/ kg N・hm ⁻²	对年总量的贡献率 Ration to annual total/%
F	GS	36.1±18.3	0.70 ± 0.06	87±3
	TFP	137.2±63.1**	0.60±0.05**	75±5
	NGS	3.1±0.7	0.11±0.01	13±3
	FTP	6.6±1.2	0.08 ± 0.01	10±4
	А	19.4±9.2**	0.80±0.06**	—
UF	GS	4.7±2.0	0.10 ± 0.01	55±5
	TFP	14.9±7.1	0.06 ± 0.01	36±3
	NGS	2.3±0.4	0.08 ± 0.01	45±5
	FTP	4.2±0.4	0.05 ± 0.01	29±4
	А	3.5±1.0	0.18±0.04	_

温度敏感性指数(Q_{10})指温度每升高10 ℃化学反 应速率增加的倍数,生物地球化学循环研究常用 Q_{10} 值表征气体排放速率对温度的敏感性。如果采用单 因子分析方法,指数方程中指前因子为常数的方程形 式计算得到的NO排放通量对 T_s 的敏感系数 Q_{10} 值为 8.8(F)和8.3(UF);如果采用多因子分析方法,指数方 程中指前因子为变量的方程形式计算得到的NO排 放通量对 T_s 的敏感系数 Q_{10} 值为2.4(F)和2.5(UF),可 见利用不同数据构建的差异化数学分析和经验模型, 计算得到的NO排放通量对 T_s 的敏感系数 Q_{10} 值差异 显著(表5)。

3 讨论

3.1 青藏高原种植饲草农田NO排放量与排放因子 我国农田NO排放通量周年观测研究较少,已报

农业环境科学学报 第38卷第2期

道的10余个研究地点都集中于东部温带和亚热带季风区域。本研究观测的高原气候区青藏高原东缘种 植饲草农田的施肥量(67 kg N·hm⁻²·a⁻¹)和NO排放通 量(0.80±0.06 kg N·hm⁻²·a⁻¹)均远低于东部温带和亚 热带季风区域农田施肥量(85~1156 kg N·hm⁻²·a⁻¹)和 NO排放通量(1.66~6.59 kg N·hm⁻²·a⁻¹)^[2]。不施肥处 理的排放量通常被称为农田背景排放,本研究燕麦农田NO背景排放量(UF:0.18±0.04 kg N·hm⁻²·a⁻¹)同样显著低于全国平均水平(0.57 kg N·hm⁻²·a⁻¹)18; 0.54 kg N·hm⁻²·a⁻¹12),这表明青藏高原地区粗放管理的饲草农田NO排放量与其他区域有显著差异,高原气候区极低的年平均温度(<0°C)和低施肥量(50~



Figure 3 Correlations between soil factors and NO fluxes at the fertilized and unfertilized treatments

表5	施肥和不施肥处理土壤变量与NC)排放通量的相关关系
----	-----------------	------------

Table 5 Relationships between soil factors and NO fluxes at the fertilized and unfertilized tr	reatment
--	----------

处理Treatment		拟合方程/Fitting equations	决定系数r ²	样本数n	Р	Q_{10}
F	T_{s}	$F_{\rm N0} = 2.18 \exp(0.22 T_{\rm s})$	0.86	65	< 0.01	8.8
	WFPS	$F_{\rm N0} = \exp(-125.69 + 9.80 \rm WFPS - 0.18 \rm WFPS^2)$	0.48	62	< 0.01	_
	IN	$F_{\rm NO} = 0.001 \exp(0.24 {\rm IN})$	0.80	55	< 0.01	—
	WEOC	$F_{\rm NO} = 2 \times 10^{-11} \exp(0.36 \text{WEOC})$	0.80	55	< 0.01	—
	多因子	$F_{\rm N0} = (-0.36 \rm WFPS + 1.04 \rm NH_4^+ + 0.24 \rm NO_3^- + 0.42 \rm WEOC) \cdot \exp(0.09T_{\rm s})$	0.92	55	< 0.01	2.4
UF	T_{s}	$F_{ m N0} = 0.36 { m exp}(0.21 T_{ m s})$	0.84	65	< 0.01	8.3
	WFPS	$F_{\rm N0} = \exp(24.55 - 1.26 \rm WFPS - 0.01 \rm WFPS^2)$	0.42	62	< 0.01	—
	IN	$F_{\rm NO} = 0.59 \exp(0.111 \mathrm{N})$	0.25	55	< 0.01	—
	WEOC	$F_{\rm NO} = 0.11 \exp(0.06 \text{WEOC})$	0.83	55	< 0.01	—
	多因子	$F_{\rm N0} = (-0.03 \rm WFPS - 0.02 \rm NH_4^+ + 0.13 \rm NO_3^- + 0.04 \rm WEOC) \cdot \exp(0.09 T_{\rm s})$	0.92	55	< 0.01	2.5

注:F_{N0}:一氧化氮通量 Nitric oxide fluxes(μg N·m⁻²·h⁻¹);*T*_{*}:土壤温度 Soil temperature(℃);WFPS:土壤充水孔隙率 Water-filled pore space(%); IN:土壤无机氮含量 Soil inorganic N content(mg N·kg⁻¹ 干土);NH^{*}:土壤铵态氮含量 Soil ammonium content(mg N·kg⁻¹ 干土);NO₅:土壤硝态氮含量 Soil nitrate content(mg N·kg⁻¹ 干土);WEOC:土壤水浸提有机碳含量 Soil water-extractable organic carbon content(mg C·kg⁻¹ 干土);*Q*₁₀:温度敏感性 系数 The change ratios of nitric oxide fluxes per a 10 ℃ increase of soil temperatures。 70 kg N·hm⁻²·a⁻¹)是造成饲草农田 NO 周年累积排放 量偏小的主要原因。

排放因子方法被广泛应用于全球农田 NO 排放 清单和排放总量的估算[2,18-19],排放因子方法估算结 果的可靠性依赖于活动数据和排放因子数据的准确 性和代表性。缺少周年的、代表性区域的和背景排放 的观测,导致农田NO排放因子数据和排放清单估算 结果存在不确定性。Yan等^[18]和 Huang等^[2]估算了我 国旱地农田NO直接排放因子平均值为0.48%和 0.67%, Liu 等⁶报道我国低碳石灰性土壤旱地农田 NO直接排放因子为0.22%~0.54%,这些结果都低于 本研究测定的燕麦农田(0.93%±0.10%)。表明高原 气候区低温和低施肥量的特点导致其农田NO周年 累积排放量低于我国东部温带和亚热带季风区域,但 是当温湿度条件适宜,如本研究测定年份平均温度和 降水量(-0.6 ℃和603.8 mm)高于近30年平均值 (1980-2012:-1.3 ℃和 527.9 mm, Zhang 等^[20])的情况 下,翻耕施肥期和冻融期表现出较高的NO排放通 量,并显著贡献于全年累积排放总量(85%),种植燕 麦农田NO直接排放因子高于我国石灰性土壤地区 和全国的平均状况,同时略低于全球平均值 (1.16%)[21],因此,采用缺省排放因子方法(如采用我 国东部观测数据、国外研究结果、全国或全球平均状 况)将给高原气候区农田NO排放清单估算造成偏 差,加强高原气候区代表性农田(燕麦、青稞和油菜 等)周年NO排放量和直接排放因子观测十分必要。

3.2 NO排放的关键时期及环境因子影响

已有的研究广泛报道了翻耕施肥期高NO排放 通量对周年累积排放量的显著贡献,翻耕导致土壤通 透性增加,有利于土壤矿化和硝化过程,施肥提升无 机氮底物浓度并促进微生物硝化和反硝化过程,这两 个因素共同作用促进了翻耕施肥期农田气态氮(NO、 N₂O和氮气)排放,然而,对于不同形态气态氮排放的 促进程度则取决于土壤水分条件。位于我国汾渭平 原石灰性土壤的玉-麦轮作农田和棉花田,其周年高 频NO排放通量观测结果显示,翻耕施肥显著促进农 田N₂O和NO排放,然而施肥后紧跟着的灌溉措施,导 致WFPS显著增加,气态氮损失以N₂O为主,翻耕施 肥对NO排放的促进作用受到高土壤水分条件抑制, 翻耕施肥期(1个月时间)NO排放量仅占全年累积排 放量的不到30%[22-23]。高原气候区农田主要采取粗 放型管理方式,基本无灌溉设施,以雨养农业和化肥 一次性基肥全部施用为主,翻耕施肥期(5月)与集中 降雨期(7月和8月)不同季,因此翻耕施肥期土壤含 水量偏低,这有利于有机质矿化、微生物硝化以及NO 的产生和排放。本研究燕麦农田F和UF处理翻耕施 肥期平均WFPS仅为33.3%±4.7%和29.1%±5.0%,这 样低的土壤水分含量下气态氮的损失以NO排放为 主(WFPS<40%^[24];WFPS:24%~30%^[25]),因此,本研究 观测到的低施肥量燕麦农田NO排放峰值(553 μg N· m⁻²·h⁻¹)达到汾渭平原石灰性土壤高施肥量农田的排 放水平,翻耕施肥期NO排放主导了燕麦农田周年累 积排放量(75%)。

除翻耕施肥期外,冻融期可能是高原气候区农田 NO排放的另外一个关键期,土壤冻融过程是季节性 冻土区典型的自然现象,冻融交替不仅能够改变土壤 的水热条件、理化性质,而且会显著影响地气界面气 体交换过程。本研究在青藏高原季节性冻土农田观 测到土壤冻融过程对 NO 排放的促进作用,冻融期 (52 d)NO 排放量占到燕麦农田周年背景排放量的 29%,在日本季节性冻土农田同样观测到冻融期微弱 的促进效应[26],在芬兰季节性冻土农田则未观测到任 何促进效应^[25]。本研究对燕麦农田冻融期土壤 NH4、 NO₅和 WEOC 浓度以及 WFPS 的观测结果表明, 冻融 期碳氮底物含量和 WFPS 均显著高于非生长季平均 状况,一方面,反应底物含量增加促进微生物硝化速 率以及NO排放,另一方面,高土壤水分条件导致厌 氧环境增加,促进微生物反硝化过程,气态氮的损失 以N2O和氮气为主,可能削弱了NO排放,所以,土壤 冻融过程对NO产生和排放的影响是这两个过程平 衡的结果。高原气候区种植饲草农田冻融期 NO 排 放显著贡献于(29%)周年背景排放,因此,冻融期连 续观测对于准确定量季节性冻土农田背景排放量和 直接排放因子至关重要。

受极大值的影响,单因子和多因子分析结果中较高的决定系数值并不代表土壤环境因子(*T*_s、WFPS、无机氮和WEOC)能够完全表征NO排放通量的季节动态,但相关分析能够很好地展现触发土壤NO高峰排放所需的必要环境条件,此外,单因子分析计算得到的*Q*₁₀值也常被用于简单评估气候变化对NO排放的可能影响。不同类型生态系统或者利用不同数据构建的差异化数学分析和经验模型,计算得到的*Q*₁₀ 值差异非常显著。自然生态系统可者利用不同数据构建的差异化数学分析和经验模型,计算得到的*Q*₁₀ 值差异非常显著。自然生态系统中(如森林和草地), NO排放通量对土壤温度的敏感性系数*Q*₁₀值一般在 2~5之间^[5,27-28],当*Q*₁₀值接近10时,非生物的化学反硝 化过程可能起主导作用^[5]。本研究采用指数方程拟

合环境因子与NO排放通量的相关关系,当指前因子 为常数仅拟合T。与NO排放通量相关关系时,计算得 到的 Q10 值为 8.8(F) 和 8.3(UF)。燕麦农田高 pH 值、 低NO5和NO5含量的特点,显然不符合化学反硝化发 生并主导 NO 产生的基础条件。实际上, NO 排放通 量对T。的敏感性一般都是通过长期野外原位测定获 得,实际野外条件下,除T。以外,土壤WFPS会影响水 溶性碳氮底物和氧气的扩散,碳氮底物浓度显著影响 微生物硝化和反硝化过程。农田生态系统中,由于管 理活动(灌溉和施肥)造成环境条件的剧烈变化,温带 大陆性气候区农田水(降水)、热(高温)、肥(施肥)同 季的特点导致环境条件对NO排放具有协同增长效 应,采用指前因子为常数仅拟合T。与NO排放通量相 关关系时,会得到较高的Q10值,因此,忽视其他环境 因子影响,仅考虑T。对NO排放通量的影响,或者说采 用指前因子为常数的指数方程计算 010值具有很大的 局限性。实际上,关于采用Arrhenius方程拟合温度 和土壤微生物过程产物产生速率关系局限性的讨论 一直存在,在模型拟合过程中把产物产生速率和温度 敏感性的变异都归因于活化能的变化似乎过分强调 了化合物间活化能的差异^[29], Arrhenius 方程指前因子 为常数的拟合方法无法体现底物浓度和土壤氧化还 原环境对反应速率常数的影响。

本研究对 Arrhenius 方程进行改进,将指前因子 变为包含WFPS和碳氮底物浓度的变量,改进后的拟 合方程极好地表征了NO排放通量的季节变化,计算 得到的Q10值(F和UF处理分别为2.4和2.5)在一个合 理的区间(2~5)[5,27-28]。青藏高原过去50年气温的增 加幅度约为每10年0.2℃^[30],考虑到T_s的增幅远小于 气温,青藏高原种植饲草农田NO排放对T。的敏感系 数 Q_{10} 值仅为2.4~2.5,因此,全球增温对NO排放的促 进效应将远小于施肥导致碳氮底物浓度增加对NO 排放的促进效应。然而,全球变化导致极端降雨事件 频发,青藏高原地区年降水量变幅较大(326~850 mm·a⁻¹)^[20],降水量的变化影响土壤水分条件、翻耕施 肥期气态氮损失形态、冻融效应的发生程度和持续时 间,可能导致NO排放通量出现较大的年际变幅,因 此,应当开展种植饲草农田NO排放和相关环境因子 多年际连续观测,以准确评估NO周年累积排放量和 直接排放因子的年际动态特征。

田NO排放通量进行了周年连续定量研究, 粗放管 理方式下低施肥量燕麦农田NO排放通量和背景排 放量均低于我国东部温带和亚热带季风区集约化 管理农田排放量,T_s、WFPS、NH^t、NO⁵和WEOC含量 共同影响燕麦农田 NO 排放通量季节动态,翻耕施 肥期和冻融期高碳氮底物含量和适宜的水分条件 促进了土壤 NO 排放,这两个关键期的排放主导了 周年累积排放(65%~85%),冻融期和非生长季NO 排放显著贡献了农田背景排放(29%和45%),因 此,周年连续观测研究对于准确定量高原气候区季 节性冻土农田背景排放量和直接排放因子至关重 要。采用指前因子为变量(包含 WFPS、NH4、NO3和 WEOC 的影响)的指数方程拟合T_s与NO 排放通量 的相关关系,能够很好地表征底物有效性(无机氮 和水浸提有机碳含量)、微生物活性和氧气扩散性 (土壤温度和湿度)对NO排放的协同影响,计算得 到 NO 排放对 T₆的敏感性系数(O_{10})仅为 2.4~2.5,这 意味着全球增温对NO排放的促进效应将远低于施

参考文献:

[1] Hudman R C, Moore N E, Martin R V. A mechanistic model of global soil nitric oxide emissions : Implementation and space based-constraints[J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2012, 12:3555-3594.

肥量增加对NO排放的促进作用。

- [2] Huang Y, Li D. Soil nitric oxide emissions from terrestrial ecosystems in China: A synthesis of modeling and measurements[J]. Scientific Reports-UK, 2014, 4:7406.
- [3] 苏 和, 刘桂香, 何 涛. 草原开垦及其危害[J]. 中国草地, 2005, 27 $(6) \cdot 61 - 63.$

SU He, LIU Gui-xiang, HE Tao. Reclamation of grassland and its harm [J]. Grassland of China, 2005, 27(6):61-63.

- [4] Gao D, Zhang L, Liu J, et al. Responses of terrestrial nitrogen pools and dynamics to different patterns of freeze-thaw cycle: A meta-analysis [J]. Global Change Biology, 2018, 24(6):2377-2389.
- [5] Pilegaard K. Processes regulating nitric oxide emissions from soils[J]. Philosophical Transactions of the Royal Society of London, 2013, 368 (1621):20130126.
- [6] Liu C, Yao Z, Wang K, et al. Effects of increasing fertilization rates on nitric oxide emission and nitrogen use efficiency in low carbon calcareous soil[J]. Agriculture, Ecosystems & Environment, 2015, 203:83-92.
- [7] Tie X, Li G, Ying Z, et al. Biogenic emissions of isoprenoids and NO in China and comparison to anthropogenic emissions[J]. Science of the Total Environment, 2006, 371(1/2/3):238-251.
- [8] Piao S, Fang J, Zhou L, et al. Changes in biomass carbon stocks in China's grasslands between 1982 and 1999[J]. Global Biogeochemical Cycles, 2007, 21(2):GB2002.

4

结论

本研究对高原气候区典型种植饲草(燕麦)农

[9] 赵桂琴, 师尚礼. 青藏高原饲用燕麦研究与生产现状、存在问题与

2019年2月 林 菲,等:青藏高原种植饲草农田一氧化氮周年排放特征

对策[J]. 草业科学, 2004, 21(11):17-21.

ZHAO Gui-qin, SHI Shang-li. The current situation of oat research and production, problems and strategy in Tibetan Plateau[J]. *Pratacultural Science*, 2004, 21(11):17–21.

[10] 曲祥春, 何中国, 郝文媛, 等. 我国燕麦生产现状及发展对策[J]. 杂 粮作物, 2006, 26(3):233-235.

QU Xiang-chun, HE Zhong-guo, HAO Wen-yuan, et al. Productive status and developing countermeasure of oat in China[J]. *Rain Fed Crops*, 2006, 26(3):233-235.

- [11] 德科加,周青平,刘文辉,等.施氮量对青藏高原燕麦产量和品质的影响[J].中国草地学报,2007,29(5):43-48.
 DE Ke-jia, ZHOU Qing-ping, LIU Wen-hui, et al. Effects of nitrogen application on the yield and quality of oat in Qinghai-Tibetan Plateau [J]. *Chinese Journal of Grassland*, 2007, 29(5):43-48.
- [12] Cao G, Xu X, Long R, et al. Methane emissions by alpine plant communities in the Qinghai–Tibet Plateau[J]. *Biology Letters*, 2008, 4(6): 681–684.
- [13] Mei B, Zheng X, Xie B, et al. Nitric oxide emissions from conventional vegetable fields in southeastern China[J]. *Atmospheric Environment*, 2009, 43(17):2762–2769.
- [14] Liu C, Holst J, Yao Z, et al. Sheepfolds as "hotspots" of nitric oxide (NO) emission in an Inner Mongolian steppe[J]. Agriculture, Ecosystems & Environment, 2009, 134(1/2):136-142.
- [15]蒙世协,刘春岩,郑循华,等.小麦秸秆还田量对晋南地区裸地土 壤-大气间甲烷、二氧化碳、氧化亚氮和一氧化氮交换的影响[J]. 气候与环境研究,2012,17(4):504-514.

MENG Shi-xie, LIU Chun-yan, ZHENG Xun-hua, et al. Effects of the applied amount of wheat straw on methane, carbon dioxide, nitrous oxide, and nitric oxide fluxes of a bare soil in South Shanxi[J]. *Climatic and Environmental Research*, 2012, 17(4):504–514.

- [16] 鲍士旦. 土壤农化分析[M]. 北京:中国农业出版社, 2000.
 BAO Shi-dan. Soil agricultural chemistry analysis[M]. Beijing: China Agricultural Publishing House, 2000.
- [17] 杨金玲,张甘霖,李德成,等.激光法与湿筛-吸管法测定土壤颗粒 组成的转换及质地确定[J].土壤学报,2009,46(5):772-780. YANG Jin-ling, ZHANG Gan-lin, LI De-cheng, et al. Relationship of soil particle size distribution between sieve-pipette and laser diffraction methods[J]. Acta Pedologica Sinica, 2009, 46(5):772-780.
- [18] Yan X, Akimoto H, Ohara T. Estimation of nitrous oxide, nitric oxide and ammonia emissions from croplands in East, Southeast and South Asia[J]. *Global Change Biology*, 2003, 9(7):1080–1096.

- [19] Bouwman A F, Boumans L J M, Batjes N H. Emissions of N₂O and NO from fertilized fields: Summary of available measurement data[J]. *Global Biogeochemical Cycles*, 2002, 16(4):1058.
- [20] Zhang W, Liu C, Zheng X, et al. The increasing distribution area of zokor mounds weaken greenhouse gas uptakes by alpine meadows in the Qinghai–Tibetan Plateau[J]. Soil Biology & Biochemistry, 2014, 71: 105–112.
- [21] Liu S, Lin F, Wu S, et al. A meta-analysis of fertilizer-induced soil NO and combined NO + N₂O emissions[J]. Global Change Biology, 2016, 23(6):2520-2532.
- [22] Liu C, Zheng X, Zhou Z, et al. Nitrous oxide and nitric oxide emissions from an irrigated cotton field in northern China[J]. *Plant and Soil*, 2010, 332(1/2):123-134.
- [23] Liu C, Wang K, Zheng X. Responses of N₂O and CH₄ fluxes to fertilizer nitrogen addition rates in an irrigated wheat-maize cropping system in northern China[J]. *Biogeosciences*, 2011, 9:839–850.
- [24] Davidson E A, Rogers J E, Whitman W B. Fluxes of nitrous oxide and nitric oxide from terrestrial ecosystems[M]//Rogers J, Whitman W, et al. Microbial production and consumption of greenhouse gases: Methane, nitrogen oxides and holomethanes, Washington, USA: American Society for Microbiology, 1991.
- [25] Luo G J, Brüggemann N, Wolf B, et al. Decadal variability of soil CO₂, NO, N₂O, and CH₄ fluxes at the Höglwald forest, Germany[J]. *Biogeo-sciences*, 2012, 9:1741–1763.
- [26] Katayanagi N, Hatano R. N₂O emissions during the freezing and thawing periods from six fields in a livestock farm, southern Hokkaido, Japan[J]. Soil Science and Plant Nutrition, 2012, 58(2):261-271.
- [27] Yu J, Meixner F, Sun W, et al. Biogenic nitric oxide emission from saline sodic soils in a semiarid region, northeastern China: A laboratory study[J]. Journal of Geophysical Research, 2008, 113:G04005.
- [28] Li C, Aber J, Stange F, et al. A process-oriented model of N₂O and NO emissions from forest soils: 1. Model development[J]. *Journal of Geophysical Research*, 2000, 105:4369–4384.
- [29] 栾军伟,刘世荣. 土壤呼吸的温度敏感性:全球变暖正负反馈的不确定因素[J]. 生态学报, 2012, 32(15):4902-4913. LUAN Jun-wei, LIU Shi-rong. Temperature sensitivity of soil respiration: Uncertainties of global warming positive or negative feedback[J]. Acta Ecologica Sinica, 2012, 32(15):4902-4913.
- [30] Chen H, Zhu Q, Peng C, et al. The impacts of climate change and human activities on biogeochemical cycles on the Qinghai (Tibetan Plateau[J]. *Global Change Biology*, 2013, 19(10):2940-2955.