

人为活动 N 对太湖地区水体中溶解 N₂O 的影响

熊正琴, 邢光熹, 沈光裕, 施书莲, 钱 薇

(中国科学院南京土壤研究所物质循环与开放实验室, 江苏 南京 210008)

摘 要:从 2000 年 9 月到 2001 年 9 月, 每月两次采样连续监测太湖地区湖、河和井水水体中溶解的 N₂O 浓度、NO₃⁻ - N 和 NH₄⁺ - N 浓度及水温的变化, 研究了湖、河、井水体 NO₃⁻ - N 和 NH₄⁺ - N 浓度对水中溶解 N₂O 浓度的影响。结果表明, 湖、河和井水中溶解的 N₂O 浓度与 NO₃⁻ - N 浓度呈显著正相关关系, 也与水温呈正相关, 而与 NH₄⁺ - N 浓度无显著相关关系。结果还表明, 浅水型水体高浓度 NO₃⁻ - N 和 NH₄⁺ - N 的存在均是 N₂O 产生的源; 水体反硝化作用和硝化 - 反硝化均是水中产生 N₂O 的重要途径。

关键词:太湖地区; 水中溶解 N₂O; 人为活动 N; 水体

中图分类号:X131.2 **文献标识码:**A **文章编号:**1000 - 0267(2002)05 - 0389 - 04

Impacts of Anthropogenic N on Dissolved N₂O Concentrations in Aquatic Systems of Taihu Lake Region

XIONG Zheng-qin, XING Guang-xi, SHEN Guang-yu, SHI Shu-lian, QIAN Wei

(Laboratory of Material Cycling in Pedosphere, Institute of Soil Science, Chinese Academy of Sciences, Nanjing 210008, China)

Abstract: The anthropogenic N has greatly influenced the dissolved nitrous oxide (N₂O) in aquatic systems. N₂O concentrations dissolved in lake, river and well water in Taihu Lake region and N₂O fluxes from these water surfaces were monitored twice a month in three replicates during the period of Sept. 26, 2000 to Sept. 26, 2001 along with concentrations of NO₃⁻ - N and NH₄⁺ - N and water temperature. Results also indicated that there existed significantly positive relationship between dissolved N₂O concentration and NO₃⁻, contributing to the high concentration of NO₃⁻ - N and NH₄⁺ - N, both could contribute to high concentration of dissolved N₂O. Our results indicated that the dissolved N₂O has been derived from the high concentration of anthropogenic N and both nitrification and nitrification - denitrification contribute to N₂O production in the aquatic systems.

Keywords: Taihu Lake region; dissolved N₂O; anthropogenic N; aquatic system

近年来, 人为活动极大地改变了自然界中的氮循环, 陆地生态系统中人为活动氮的数量已远远超过了生物固定的氮^[1], 导致地下水的硝酸盐污染及地面水富营养化, 对环境的影响已引起国内外学者广泛关注^[2-7]; 同时氮污染水体也是 N₂O 不可忽视的来源之一^[8]。N₂O 既是一种重要的温室气体, 又是破坏臭氧层的重要参与者。其在大气中的浓度以平均每年 0.8×10^{-9} (体积比) 的速度增加^[9]。目前对 N₂O 全球收支平衡账还知之甚少^[10], 对 N₂O 产生及其排放的研究也多集中在农田土壤^[3, 8], 而淡水及海岸生态系统水体 N₂O 排放量估计达 $1.9 \text{ Tg N} \cdot \text{a}^{-1}$ ^[11], 其量可与耕地、草地、动物排泄物相当^[12]。水体 N₂O 主要受人活动的影 响, 人为活动氮的增加将促进 N₂O 在

大气中浓度的进一步增加^[13-15]。

太湖地区包括长江以南的江苏东南部、上海市和浙江北部的有关县市, 是长江三角洲最重要的经济发达地区, 人口密度高达 $850 \text{ 人} \cdot \text{km}^{-2}$ (1995 年统计)。该地区农业种植水平高, 为一年两熟区, 主要为水稻 - 小麦、油菜或其他冬作轮作体系, 施氮水平平均高达 $550-600 \text{ kg N} \cdot \text{hm}^{-2} \cdot \text{a}^{-1}$ (1995 年统计), 是研究人为活动对环境影响的典型区域。其地面水及地下水的 N 污染问题也引起国内学者的普遍关注。该地区水系以太湖为主体, 有众多河流及地下井水。太湖 (北纬 $30^{\circ}56'$ — $31^{\circ}34'$, 东经 $119^{\circ}54'$ — $120^{\circ}36'$) 是我国著名的淡水湖之一, 为典型的浅水型湖泊, 最大水深 3.33 m , 面积 2425 km^2 , 储水量 $5.09 \times 10^9 \text{ m}^3$ 。京杭大运河全长 1747 km , 流经太湖地区河段长 323.8 km , 宽 20 m , 深 2 m ^[16]。地下井水是村民们家庭用水的主要来源, 井深通常在地下水位之下, 是研究农业高

收稿日期: 2001 - 12 - 13

基金项目: 国家自然科学基金重大项目 (39790110)

作者简介: 熊正琴 (1973—), 女, 中国科学院南京土壤研究所博士研究生, 主要从事土壤氮循环对环境的影响研究。

度发达地区地下水质量的典型区域。但对该地区湖、河、井 NO₃⁻ 和 NH₄⁺ 浓度对水中 N₂O 浓度影响的连续监测结果未见报道^[7]。

本文报道了 2000 年 9 月到 2001 年 9 月间, 湖、河、井水 NO₃⁻ 和 NH₄⁺ 浓度及水中溶解 N₂O 浓度的变化, 初步探讨了影响水中溶解 N₂O 浓度变化的因素及产生机理。

1 材料与方 法

1.1 采样地点

湖水采集点位于太湖中心区域吴县扬午村石贡山附近, 河水选择京杭大运河吴县河段为代 表, 采集点位于吴县农业科学研究所附近, 井水则选在吴县太湖东路 85 号附近。每月采样 2 次, 测定水中溶解 N₂O 浓度、NO₃⁻ 和 NH₄⁺ 的浓度, 同时测定水温、水位。水样采自水下 0.3—0.5 m 处。所有样品均重复 3 次。

1.2 NO₃⁻ 和 NH₄⁺ 分析

每瓶取 20—30 mL 水样, 立即放入保冰瓶中运回实验室冰冻保存。NO₃⁻ 和 NH₄⁺ 的浓度用 Astoria 流动分析仪测定。

1.3 水中溶解 N₂O 水样采集、计算

根据 Terry 等^[17] 的方法, 用注射器将 5 mL 水样注入 18.5 mL 的真空瓶(日本国立农业环境研究所提供)中, 立即充入当时当地空气, 使与外界大气平衡。立即放入保冰瓶中运回实验室冰冻保存, 再在 4 ℃—5 ℃ 下平衡 24 h, 抽取瓶内上部空气测定该气体中 N₂O 浓度。根据 Terry 等(1981)提供的公式计算水中溶解 N₂O 的浓度, 采用 5 ℃ 下的 Bunsen 吸收系数(α) 1.06。

1.4 N₂O 测定

N₂O 样品用带十通阀控制的反吹装置和 ⁶³Ni 电子捕获器的气相色谱(HP 5890 II)测定。测定条件为:

进样口温度 100 ℃, 炉温 85 ℃, 检测器温度 320 ℃。前置柱为 1 m × 0.3 cm(od) 的不锈钢 Porapak Q 柱, 分析柱为 3 m × 0.3 cm(od) 的不锈钢 Porapak Q 柱, 填充剂 Porapak Q 为 80—100 目。载气为 95% 氩气 + 5% 甲烷, 流速为 30 mL · min⁻¹。

1.5 数据分析

结果用 3 个重复平均值及标准偏差表示, 年均值是将各个重复的每次观测值平均, 湖、河、井则以 3 个重复的年平均值进行多重比较, 相关性的分析是用全部观测值进行的。

2 结果与讨论

2.1 太湖湖水 NO₃⁻ 和 NH₄⁺ 浓度与水中溶解 N₂O 浓度的关系

太湖 NO₃⁻ 和 NH₄⁺ 浓度及水中溶解 N₂O 浓度表现出明显的季节变化(图 1)。NO₃⁻ 浓度及水中溶解 N₂O 浓度表现出同样的时间变化模式, 二者呈显著正相关关系(表 1)。但与 NH₄⁺ 浓度变化无明显相关, 与水温也无明显相关(表 1)。这表明湖水 N₂O 主要来自反硝化作用, 底物(NO₃⁻)浓度越高, 产物(N₂O)浓度越高。由于底物浓度普遍偏低, 反硝化作用主要受底物浓度

表 1 湖河井水中 N₂O 浓度和 NO₃⁻、NH₄⁺、温度的相关系数

Table 1 Correlation coefficients between dissolved N₂O concentrations, nitrate, and NH₄⁺ concentrations and water temperature

相关项目	湖水	河水	井水
N ₂ O 浓度与 NO ₃ ⁻ 浓度	⁽¹⁾ 0.666 4**	⁽²⁾ 0.394 1**	0.511 6**
N ₂ O 浓度与 NH ₄ ⁺ 浓度	-0.235 7	-0.216 6	0.075 3
N ₂ O 浓度与水温	0.065 1	0.381 2**	0.324 2**
NO ₃ ⁻ 浓度与水温	-0.082 6	-0.426 2**	0.009 5
NH ₄ ⁺ 浓度与水温	-0.226 7	-0.109 8	-0.241 6

(1): * 和 ** 分别表示在 α = 0.05 和 0.01 水平上的显著相关性 (n = 69)。

(2): 该项只包括从 3 月到 9 月间的数据, 样本容量 (n) 为 36。

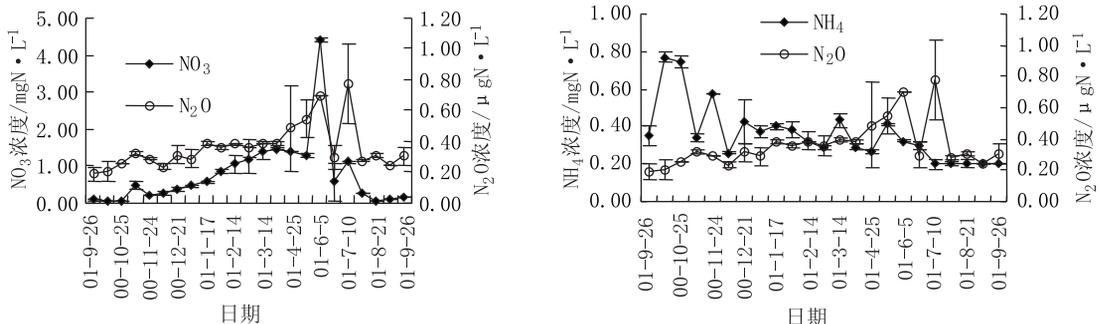


图 1 太湖湖水 NO₃⁻ 和 NH₄⁺ 浓度与水中溶解 N₂O 浓度的关系

Figure 1 Temporal variations in (a) NO₃⁻ and dissolved N₂O concentration, and (b) NH₄⁺ and dissolved N₂O concentration in lake Bars indicate SD (n = 3)

的限制,因而未表现出受温度的明显影响。

2.2 河水 NO_3^- 和 NH_4^+ 浓度与水中溶解 N_2O 浓度的关系

大运河 NO_3^- 和 NH_4^+ 浓度及水中溶解 N_2O 浓度表现出明显的季节变化(图 2)。从 3 月—10 月温度较高期间, NO_3^- 浓度及水中溶解 N_2O 浓度表现出同样的时间变化模式,二者呈显著正相关关系(表 1)。水中溶解 N_2O 浓度与水温也呈明显正相关,但与 NH_4^+ 浓度变化呈一定的负相关关系。而 NO_3^- 浓度与温度呈明显负相关(表 1)。这表明河水 N_2O 主要来自 NH_4^+ 的硝化—反硝化作用,在温度较高时直接受反硝化底物

NO_3^- 浓度的影响。底物(NO_3^-)浓度越高,产物(N_2O)浓度越高。由于底物 NH_4^+ 浓度普遍较高,硝化作用也不受温度的影响,故硝化作用产物在温度较低时保持较高浓度,在温度较高时则反硝化作用旺盛, NO_3^- 维持在较低水平; NO_3^- 和 NH_4^+ 总浓度基本保持一致,呈彼此消长的关系,但其后的反硝化作用既受温度的影响,又受 NO_3^- 浓度的制约。因而水中溶解 N_2O 浓度与温度呈明显正相关,在温度较高时表现出受 NO_3^- 浓度的明显影响。可以看出,反硝化作用及硝化—反硝化均是河水中产生 N_2O 的重要途径,而硝化—反硝化途径中的反硝化过程则更有利于 N_2O 的产生。

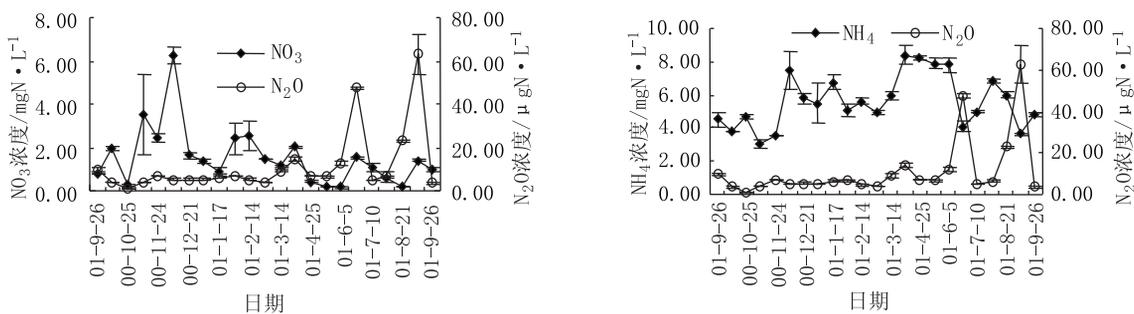


图 2 河水 NO_3^- 和 NH_4^+ 浓度与水中溶解 N_2O 浓度的关系

Figure 2 Temporal variations in (a) NO_3^- and dissolved N_2O concentration, and (b) NH_4^+ and dissolved N_2O concentration in river Bars indicate SD ($n = 3$)

2.3 井水 NO_3^- 和 NH_4^+ 浓度与水中溶解 N_2O 浓度的关系

井水 NO_3^- 和 NH_4^+ 浓度及水中溶解 N_2O 浓度表现出明显的季节变化(图 3)。 NO_3^- 浓度及水中溶解 N_2O 浓度表现出同样的时间变化模式,二者呈显著正相关关系(表 1)。也与水温呈明显正相关,但与 NH_4^+ 浓度变化无明显相关(表 1)。这表明井水 N_2O 主要来自反硝化作用,底物(NO_3^-)浓度越高,产物(N_2O)浓度越

高。由于底物浓度普遍较高,反硝化作用主要还受温度的影响,因而表现出与温度的明显正相关。 NH_4^+ 浓度变化与水中溶解 N_2O 浓度表现出相似的时间变化模式,但 NH_4^+ 浓度变化有一定的滞后现象(图 3),因而二者无显著正相关关系(表 1)。

2.4 河湖井水中 NO_3^- 和 NH_4^+ 浓度及水中溶解 N_2O 浓度的比较

从表 2 可知,井水中 NO_3^- 浓度,显著高于河水中

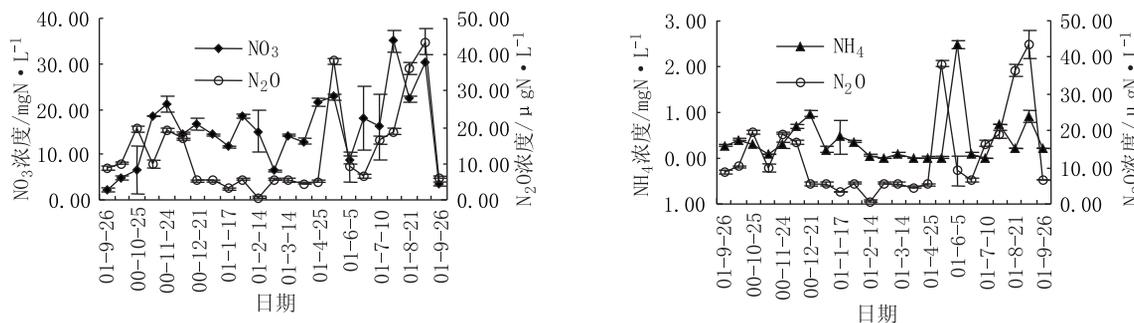


图 3 井水 NO_3^- 和 NH_4^+ 浓度与水中溶解 N_2O 浓度的关系

Figure 3 Temporal variations in (a) NO_3^- and dissolved N_2O concentration, and (b) NH_4^+ and dissolved N_2O concentration in well bars indicate SD ($n = 3$)

浓度,以湖水中浓度最低。NH₄⁺ 浓度则以河水最高,显著高于井水、湖水。无机氮浓度则井水最高,河水次之,湖水最低。水中溶解 N₂O 浓度以井水最高,河水次之,湖水最低,三者之间均达到极显著差异。从表 2 还可看出,浅水型水体高浓度 NO₃⁻ - N 和 NH₄⁺ - N 的存在均是 N₂O 产生的源,井水 N₂O 的产生以 NO₃⁻ - N 反硝化为主,河水 N₂O 的产生以 NO₃⁻ - N 反硝化和 NH₄⁺ - N 硝化 - 反硝化作用为主;因此水体反硝化作用和硝化 - 反硝化均是水中产生 N₂O 的重要途径。

表 2 湖河井水中溶解 N₂O 和 NO₃⁻ 及 NH₄⁺ 年均浓度

Table 2 Annual averages of concentrations of dissolved N₂O, NO₃⁻, and NH₄⁺ in lake, rivers, and well water - bodies

	N ₂ O 浓度 /μg N · L ⁻¹	NO ₃ ⁻ 浓度 /mg N · L ⁻¹	NH ₄ ⁺ 浓度 /mg N · L ⁻¹	无机氮浓度 /mg N · L ⁻¹
湖水	0.36 ± 0.01C	0.78 ± 0.04C	0.36 ± 0.01Bb	1.14 ± 0.03C
河水	11.31 ± 0.30B	1.53 ± 0.06B	5.63 ± 0.14Aa	7.17 ± 0.20B
井水	13.09 ± 0.17A	15.47 ± 0.26A	0.38 ± 0.02Bb	15.81 ± 0.24A
F 值	2 866.501	9 080.183	2 278.067	5 008.987

3 结论

(1) 太湖地区太湖、大运河和井水中溶解的 N₂O 浓度与 NO₃⁻ - N 浓度呈显著正相关关系,也与水温呈正相关,而与 NH₄⁺ - N 浓度无显著相关关系。

(2) 水体反硝化作用和硝化 - 反硝化均是水中产生 N₂O 的重要途径,其区别在于:湖水、井水以反硝化为主,河水以硝化 - 反硝化作用为主。

(3) 浅水水体高浓度 NO₃⁻ - N 和 NH₄⁺ - N 的存在均是 N₂O 产生的重要源。

参考文献:

- [1] Galloway J N, Schlesinger W H, Levy I H, et al. Nitrogen fixation: anthropogenic enhancement - environmental response[J]. *Global Biogeochem Cycles*, 1995, 9: 235 - 252.
- [2] Xing G X & Zhu Z L. An assessment of N loss from agricultural fields to the environment in China[J]. *Nutr Cycl Agroecosyst*, 2000, 57: 67 - 73.
- [3] Xing G X. N₂O emission from cropland in China[J]. *Nutr Cycl Agro-*

ecosyst, 1998, 52: 249 - 254.

- [4] Howarth RW, Bilien G, Swaney D, et al. Regional nitrogen budgets and riverine N and P fluxes for the drainages to the North Atlantic Ocean: Natural and human influences[J]. *Biogeochemistry*, 1996, 35: 75 - 139.
- [5] 马立珊,钱敏仁. 太湖流域水环境硝态氮和亚硝态氮污染的研究[J]. *环境科学*, 1987, 8(2): 60 - 65.
- [6] 马立珊,汪祖强,张水铭,等. 苏南太湖水系农业面源污染及其控制对策研究[J]. *环境科学学报*, 1997, 17(1): 39 - 47.
- [7] Xing G X, Cao Y C, Shi S L, et al. N pollution sources and denitrification in waterbodies in Taihu Lake region[J]. *Science in China (Series B)*, 2001, 44(3): 304 - 314.
- [8] Ronen D, Magaritz M, Almon E. Contaminated aquifers are a forgotten component of the global budget[J]. *Nature*, 1988, 335: 57 - 59.
- [9] IPCC. (Intergovernmental Panel on Climate Change/Organization for Economic Cooperation and Development). Guidelines for National Greenhouse Gas Inventories. Paris: OECD/OCDE, 1996.
- [10] Bouwman A F, Taylor J A, Kroeze C. Testing hypotheses on global emissions of nitrous oxide using atmospheric models[J]. *Chemosphere - Global Change Science*, 2000, 2: 475 - 492.
- [11] Seitzinger S P, Kroeze C, Styles R V. Global distribution of N₂O emissions from aquatic systems: natural emissions and anthropogenic effects[J]. *Chemosphere - Global Change Science*, 2000, 2: 267 - 279.
- [12] Mosier A and Kroeze C. Potential impact on the global atmospheric N₂O budget of the increased nitrogen input required to meet future global food demands[J]. *Chemosphere - Global Change Science*, 2000, 2: 465 - 473.
- [13] Bouwman A F, Hoek K W, Olivier J G J. Uncertainties in the global sources distribution of nitrous oxide[J]. *J Geophys Res*, 1995, 100: 2 785 - 2 800.
- [14] Kroeze C, Seitzinger S P. The impact of land use on N₂O emissions from watersheds draining into the Northeastern Atlantic Ocean and European Seas[J]. *Environmental Pollution*, 1998, 102: 149 - 158.
- [15] Hasegawa K, Hanaki K, Matsuo T, et al. Nitrous oxide from the agricultural water system contaminated with high nitrogen[J]. *Chemosphere - Global Change Science*, 2000, 2: 335 - 345.
- [16] 本书编写组. 中国地理概况[M]. 上海: 东方出版中心, 1996. 210 - 219.
- [17] Terry R E, Tate III R L, Duxbury J M. The effect of flooding on nitrous oxide emissions from an organic soil[J]. *Soil Science*, 1981, 132(3): 228 - 232.

补充说明

《农业环境保护》2002 年第四期第 289 至 292 页的《黄土高原陡坡耕地土壤侵蚀对土壤性质的影响》联系人为华珞(邮编 100037 北京西三环北路 105 号 首都师范大学地理系)。