

DOI: 10.5846/stxb202004291048

邓欧平,唐祺超,叶丽,邓良基.川西平原小流域不同水体 N_2O 排放特征及驱动因素.生态学报,2021,41(23):9305-9314.

Deng O P, Tang Q C, Ye L, Deng L J. Characteristics and driving factors of N_2O emission from different waters in a small watershed of the Western Sichuan Plain. Acta Ecologica Sinica, 2021, 41(23): 9305-9314.

川西平原小流域不同水体 N_2O 排放特征及驱动因素

邓欧平,唐祺超,叶丽,邓良基*

四川农业大学资源学院, 成都 611130

摘要: 氧化亚氮(N_2O)是一种潜在的、强大的温室气体,应该根据京都议定书规定开展监测和削减。河流、水库、鱼塘和沟渠等受人类影响的小流域水生生态系统是氮素生物地球化学循环的活跃区域,更是 N_2O 重要的源和汇。然而,同一流域不同水体 N_2O 的排放特征差异及其驱动因素尚不清楚。因此,选择川西平原西河流域作为研究区,于 2016 年 6 月到 2017 年 5 月连续监测不同水体水气界面的 N_2O 排放强度,并结合聚类分析解析 N_2O 排放特征的驱动因素。结果显示,不同水体的 N_2O 年排放通量差异显著,沟渠的 N_2O 年排放通量最高($(52.68 \pm 36.09) \mu g m^{-2} h^{-1}$),城市段河流和鱼塘次之($(34.16 \pm 23.97) \mu g m^{-2} h^{-1}$ 和 $(29.03 \pm 31.41) \mu g m^{-2} h^{-1}$),乡镇段和农区段河流再次($(8.32 \pm 28.60) \mu g m^{-2} h^{-1}$ 和 $(8.52 \pm 9.43) \mu g m^{-2} h^{-1}$),水库最低($(-16.45 \pm 29.76) \mu g m^{-2} h^{-1}$)。除水库表现为 N_2O 的汇,其他水体均表现为 N_2O 的排放源。另外,不同水体 N_2O 排放的季节特征差异显著,农区段河流和农业沟渠表现为夏天最高,冬春最低($P < 0.05$),而其他水体均表现为冬春显著高于夏秋($P < 0.05$)。根据 N_2O 排放季节特征及其驱动因素可将西河流域水体分为四类:第一类农业类水体的 N_2O 排放季节特征受气象因素和农业活动的联合驱动;第二类城乡类河流和第三类鱼塘分别受控于人类活动和养殖活动,与降雨温度等气象指标关系较弱;第四类水库主要受控于气象因素。并且,第一类农业类水体已成为大气 N_2O 排放的重要源,农业氮素管控是区域控制 N_2O 排放的重点。

关键词: 水-气界面;氧化亚氮;通量;驱动因素;时间变异

Characteristics and driving factors of N_2O emission from different waters in a small watershed of the Western Sichuan Plain

DENG Ouping, TANG Qichao, YE Li, DENG Liangji*

College of Resources, Sichuan Agricultural University, Chengdu 611130, China

Abstract: Nitrous oxide (N_2O) is a powerful, long-lived greenhouse gas that should be monitored and reduced under the Kyoto Protocol. Aquatic ecosystem in small and human-impacted watershed, including river, reservoir, fishpond and ditch, is the vital area for biogeochemical cycle of nitrogen as well as the important source and sink for N_2O . However, flux, seasonal patterns and driving factors of N_2O emission from different aquatic ecosystems are still unknown. To help address this knowledge gap, monthly flux of N_2O emission from different aquatic ecosystems were measured from June 2016 to May 2017, and driving factors of N_2O seasonal emission pattern were researched by Cluster analysis and Pearson correlation analysis in Xihe watershed, west of Sichuan Province, China. The results show that annual flux of N_2O emission varied from different aquatic ecosystems, which were ranged as follow: ditch ($(52.68 \pm 36.09) \mu g m^{-2} h^{-1}$) > urban river ($(34.16 \pm 23.97) \mu g m^{-2} h^{-1}$) > fish pond ($(29.03 \pm 31.41) \mu g m^{-2} h^{-1}$) > rural and agricultural river ((8.32 ± 28.60) and $(8.52 \pm 9.43) \mu g m^{-2} h^{-1}$) > reservoir ($(-16.45 \pm 29.76) \mu g m^{-2} h^{-1}$). Ditch, river and fish pond, which were influenced by human

基金项目:国家自然科学基金资助项目(42007212)

收稿日期:2020-04-29; 网络出版日期:2021-07-24

* 通讯作者 Corresponding author. E-mail: auh6@sicau.edu.cn

activities, were sources of N_2O emissions. While, reservoir, which was hardly affected by human beings, was the sink of N_2O . In addition, seasonal pattern of N_2O emission varied from different aquatic ecosystems. Mean N_2O emissions during summer were higher than winter and spring in agricultural river and ditches significantly ($P < 0.05$). While, mean N_2O emissions during winter and spring were higher than summer and fall in other rivers, fish pond and reservoir significantly ($P < 0.05$). Finally, the aquatic ecosystems were divided into four types in terms of seasonal patterns and drivers of N_2O emission. Agricultural river and ditches were the type I aquatic ecosystems, and their seasonal patterns of N_2O emission were driven by meteorological indicators and agricultural activities. Rural-urban rivers and fishpond were the type II and type III aquatic ecosystems, and their seasonal patterns of N_2O emission showed weak relationship with precipitation and temperature, but were driven by rural-urban activities and aquaculture management, respectively. Reservoir was the type IV aquatic ecosystems, and its seasonal patterns of N_2O emission had negative relationship with temperature significantly ($P < 0.05$), suggesting that it was driven by meteorological indicators. In this study, the type I aquatic ecosystems (agricultural river and ditches) has become the most important source of N_2O emission, and N loss control during agricultural activities was the most important measure for N_2O emission control.

Key Words: air-water interface; N_2O ; flux; drivers; temporal variation

氧化亚氮(Nitrous oxide, N_2O)是京都议定书规定应该监测和削减的温室气体,虽然 N_2O 大气浓度远小于二氧化碳(Carbon dioxide, CO_2)和甲烷(Methane, CH_4),但具有显著的增温效应(其增温潜势是 CO_2 的 298 倍,是 CH_4 的 12 倍),还对平流层下部臭氧层具有破坏作用^[1-2]。近年来,受人类生活、生产的影响,大气中 N_2O 浓度持续增长,研究表明近 260 年大气 N_2O 浓度增长 19%,其中人为排放占到 35%—45%^[3]。近年来,因 N_2O 浓度增加带来的全球变暖等一系列环境生态问题引起了人们对其来源的关注^[2]。

受人类影响的小流域水生生态系统,包括河流、水库、鱼塘和沟渠等,即是陆地与水域营养物质、能量交换的重要通道,也是氮素生物地球化学循环十分活跃的热点区域,更是 N_2O 重要的源和汇^[4-5]。近年来研究发现,流域人类活动,如农业活动、城市排污、河道改造和修筑堤坝等,均是驱动流域不同水体水气界面 N_2O 排放特征发生变化的重要因素^[6-8]。目前,围绕人类活动对水生生态系统 N_2O 排放的影响研究主要集中在城市发展、农业活动、土地利用变化和水文工程对河流排放的影响^[7,9-11];农业活动对农业沟渠排放的影响^[8];以及水产养殖对人工池塘和天然湖泊的影响^[12-13]等方面。涉及研究水体较单一,因不同研究之间采样方法、气候和地理特征的差异,使得不同水体的 N_2O 排放特征及影响因素难以对比,尚没有针对一个小流域开展的多种水体 N_2O 排放特征对比研究。对比同一小流域多种水体的温室气体排放特征,有助于理解不同水生生态系统温室气体排放的机制,对完善水生生态系统温室气体通量排放清单有一定的理论和现实意义。

川西平原是我国西南最重要的粮农产区,也是西部最大城市成都所在地,区域人口密度为 500—1700 人/ km^2 ,受人类活动影响深刻^[8]。近年来,以成都为核心的川西平原经济区发展势头迅猛,成都及周边城市迅速城镇化,分布在川西平原及周边地区的工业企业众多,给川西平原小流域内的水生生态系统带来了丰富的外源性碳氮物质,增大了区域水体温室气体的排放潜力。研究区地表水资源丰富,地表水生态系统以河流、沟渠、水库和养殖水体为主,是对比研究不同水体 N_2O 排放规律的适宜区域。因此,本研究选择川西平原西河流域作为研究区,期望通过调查西河小流域不同水体温室气体排放强度和时间变异特征,对比分析影响其排放特征的原因,帮助理解不同水生生态系统温室气体排放的机制,为完善水生生态系统温室气体通量排放清单提供数据支持。

1 材料与方法

1.1 研究区与采样点概况

西河为岷江上游的一级支流,全长 109km,发源于成都市崇州鸡冠山,从西北往东南流穿崇州全区,跨越

森林-农村-城市过渡带(图 1)。西河流域面积达 1080 km², 属亚热带湿润季风气候区, 四季分明, 春秋短, 冬夏长, 雨量充沛, 日照偏少, 无霜期较长。年平均气温 15.9 °C, 年平均日照时数为 1161.5 h, 年平均降雨量 1012.4 mm。平原区水系纵横交错, 河网密度达 1.22 km/km²[14]。

在西河流域布设 6 个采样点, 包括河流采样点 3 个, 水库、鱼塘和农业沟渠采样点各 1 个(表 1, 图 1)。河流采样点分别位于崇州市街安、金坡源和徐家渡, 采样河段的水文条件基本一致, 其采样点附近土地利用类型分别为乡镇、农区和城市。水库采样点位于向阳水库西北边缘, 距岸边 1m 处(表 1, 图 1)。向阳水库属于西河中游支流罗汉河, 水库正常库容为 690 万 m³, 坝址以上控制流域集雨面积为 2.0 km²。其主要功能是为下游崇州 15 个乡镇提供饮用和灌溉用水, 灌溉面积 7100 hm²。鱼塘采样点位于崇州市桤泉镇, 样点设置在鱼塘东边缘 0.5—1 m 处(表 1, 图 1)。采样鱼塘为典型的生态养殖鱼塘, 主要功能为垂钓和养殖, 春天投放草鱼、鲢鱼和鲤鱼鱼苗, 于春、夏和秋季不定时投放饵料, 饵料以粗粮为主。鱼塘水深 2—4 m, 面积约 0.13 hm²。截至 2016 年底, 成都市水产养殖面积达 1.848 万 hm², 其中池塘养殖面积占 9300 hm²[15]。沟渠采样点位于崇州市桤泉镇, 与西河下游相联, 宽 8 m, 深 1.5 m。

表 1 采样点基本情况介绍

Table 1 Sites descriptions

采样点 Sites	水体类型 Type of water	土地利用 Landuse	海拔 Altitude/m	经度 Longitude	纬度 Latitude	年降雨量 Annual rainfall/mm	气温 Temperature/°C	风速 Wind velocity/ (m/s)
乡镇段河流 Rural River	河流	乡镇	620	东经 103° 37' 14"	北纬 30° 43' 43"	1080.40	15.18	0.99
农区段河流 Agricultural River	河流	农区	534	东经 103° 39' 07"	北纬 30° 39' 14"	878.40	16.77	1.09
城市段河流 Urban River	河流	城市	513	东经 103° 40' 27"	北纬 30° 35' 13"	812.40	17.00	0.45
鱼塘 Fishpond	养殖	农区	509	东经 103° 40' 22"	北纬 30° 33' 43"	761.57	16.75	1.53
向阳水库 Xiangyang Reservoir	水库	林区	590	东经 103° 35' 40"	北纬 30° 40' 09"	891.72	16.76	0.98
沟渠 Ditch	沟渠	农区	512	东经 103° 37' 49"	北纬 30° 35' 02"	761.57	16.75	1.53

1.2 水-气界面 N₂O 的采集和分析

水-气界面气样的采集和分析采用静态漂浮箱法进行原位监测。静态漂浮箱为中空正六面体(50 cm×50 cm×50 cm), 距离漂浮箱底部 15 cm 处安装聚苯乙烯浮子(10 cm×65 cm×65 cm), 顶部装有小风扇, 确保采样过程中箱体内存空气均匀。采样前, 排净气体采样袋内的空气, 把采样箱体在通风处倒置, 使箱内气体混合均匀。采样时, 将箱体至于水面上, 用配有三通阀的注射器和 0.5 L 镀铝内膜气体采样袋采集水-气界面大气样, 分别于箱体下水后 0、7、14、21 和 28 分钟采集, 缓慢抽推注射器数次以混合采样管和箱内的气体后抽取 200 mL 气样, 气体样品在一周内分析完毕。采样时间为 2016 年 6 月—2017 年 5 月, 每月 12 日左右 9:00—12:00。每个采样点设置 3 个平行。结合室内分析法对 N₂O 温室气体的浓度使用气相色谱仪(Agilent 7890, Santa Clara, CA, 美国)进行测定。水-气界面 N₂O 排放通量采用以下公式计算[14]:

$$F = \rho V \frac{dC}{dt} \frac{1}{A} = \frac{mP}{R(273+T)} \frac{V dC}{A dt} = H \frac{mP}{R(273+T)} \frac{dC}{dt} \quad (1)$$

式中, F 为排放通量(mg m⁻² h⁻¹), ρ 为 N₂O 的密度(g/L), V 为箱内体积(L), dC/dt 是箱内气体浓度随时间变化率(mol L⁻¹ min⁻¹), m 为 N₂O 的摩尔质量, A 为采样箱横截面积, H 为水面至箱顶的有效高度(m), R 为普适气体常数(8.314 J mol⁻¹ K⁻¹), T 为采样时箱内平均气温(°C)。 P 为采样点标准大气压($P=1.013 \times 10^5$ Pa)。

1.3 表层水样采集与测定

与采集气样同一天, 采用聚乙烯采水器(1 L, 豫垣, 中国)采集表层水水样, 用 100 mL 带盖塑料瓶收集运回实验室, 当天测定相关水质指标。现场采样时, 用常规温度计测定水温, 用便携式多参数水质测定仪(Multi

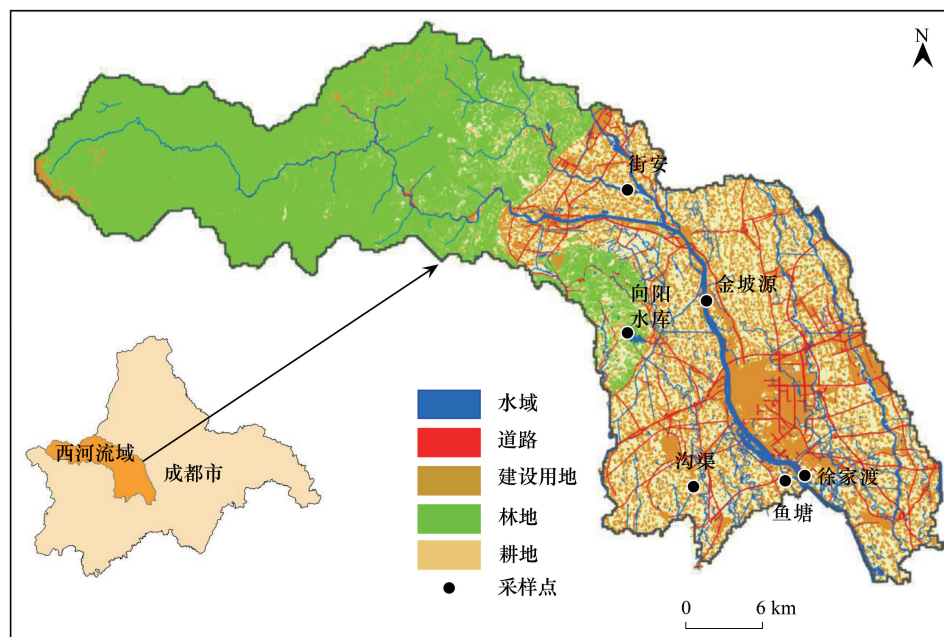


图1 采样点分布图

Fig.1 Location of the sampling sites

街安、金坡源和徐家渡分别代表乡镇段、农区段和城市段河流

350i,德国)测定溶解氧(Dissolved oxygen, DO)和 pH。

水样运回实验室后先过滤(Jinteng, 孔径 30 μm , 中国),再用分光光度计(UV-1100, Meipuda, 中国)测定全氮(Total nitrogen, TN)、硝态氮(Nitrate, NO_3^-)、铵态氮(Ammonium, NH_4^+)、全磷(Total phosphorus, TP)、化学需氧量(Chemical oxygen demand, COD)和叶绿素 a(Chlorophyll a, Chl-a)。TN 和 NO_3^- 采用碱性过硫酸钾法测定, NH_4^+ 采用靛酚蓝比色法测定。TP 采用硫酸钾法测定, COD 采用重铬酸钾法测定, Chl-a 采用乙醇法测定。可溶性有机碳(Dissolved organic carbon, DOC)利用 DOC 分析仪(TOC-L, SHIMADZU, 日本)进行测定。

1.4 气象数据来源

各采样点的气象数据均来自于当地气象站,采样点与气象站的直线距离小于 4 km。分析涉及气象数据包括降水量、空气温度和风速的月数据。

1.5 数据处理方法

原始数据使用 Excel 2010 进行标准化处理和计算,使用 SPSS 19 平台进行 Pearson 相关分析和 One-way ANOVA 分析,使用 R(Version 3.4.4)平台的 heatmap 函数进行聚类分析并绘制热图,其他图件在 Origin 2019 上绘制。

2 结果

2.1 环境参数描述

研究区属亚热带湿润季风气候区,所有采样点的降雨和温度均表现出一致的季节变异。最大降雨量出现在 8—9 月,为 203.1—306.3 mm,最小降雨量出现在 12—1 月,为 13.1—19.5 mm;而最高气温和最低气温分别出现在 7 月和 12—1 月,变化范围为 23.0—25.8 $^{\circ}\text{C}$ 和 5.8—9.4 $^{\circ}\text{C}$ 。川西平原风速普遍较小,最小风速出现在 10—11 月,为 0.3—1.3 m/s,最大风速出现在 2—5 月,为 0.8—1.8 m/s。

所有采样点表层水 NH_4^+ 、 NO_3^- 、TN、TP、COD 和 DOC 和 Chl-a 的浓度均表现为冬春高,夏秋低,变化范围分

别为 0.07—8.83, 0.22—3.69, 0.48—15.62, 0.04—0.65, 6.55—53.19, 0.99—24.52 和 0.10—13.95 mg/L。pH 没有表现出明显一致的季节变异, 其变化范围为 6.22—8.54。

2.2 不同水体 N₂O 的排放特征

不同水体水气界面 N₂O 排放通量的月变异存在差异(图 2)。农区段和沟渠的月 N₂O 排放变化较相似, 均呈单峰型, 峰值出现在 8 月, 谷值出现在 11—1 月, 且全年表现为 N₂O 的排放源, 月均排放通量的变化范围分别为 0.52—35.31 $\mu\text{g m}^{-2} \text{h}^{-1}$ 和 7.01—126.25 $\mu\text{g m}^{-2} \text{h}^{-1}$ 。城市段河流也表现为 N₂O 的全年排放源, 且月排放呈双峰型变化, 峰值出现在 9 月和 3 月 (52.67—92.06 $\mu\text{g m}^{-2} \text{h}^{-1}$) 谷值出现在 1 月 (9.06—14.88 $\mu\text{g m}^{-2} \text{h}^{-1}$)。乡镇段河流和鱼塘除 10—11 月外, 其他月份均表现为 N₂O 的排放源, 峰值出现在 2—3 月, 月均排放通量的变化范围分别为 -59.06—70.98 $\mu\text{g m}^{-2} \text{h}^{-1}$ 和 -37.12—88.25 $\mu\text{g m}^{-2} \text{h}^{-1}$ 。而水库主要表现为 N₂O 的汇, 只有 12—2 月排放 N₂O, 其月均排放通量的变化范围为 -82.25—27.38 $\mu\text{g m}^{-2} \text{h}^{-1}$ 。

从水气界面 N₂O 排放的季节通量来看, 农区段和农业沟渠表现为夏天最高, 冬春最低 ($P < 0.05$), 而其他水体均表现出相反的季节排放规律, 即冬春显著高于夏秋 ($P < 0.05$, 表 2)。

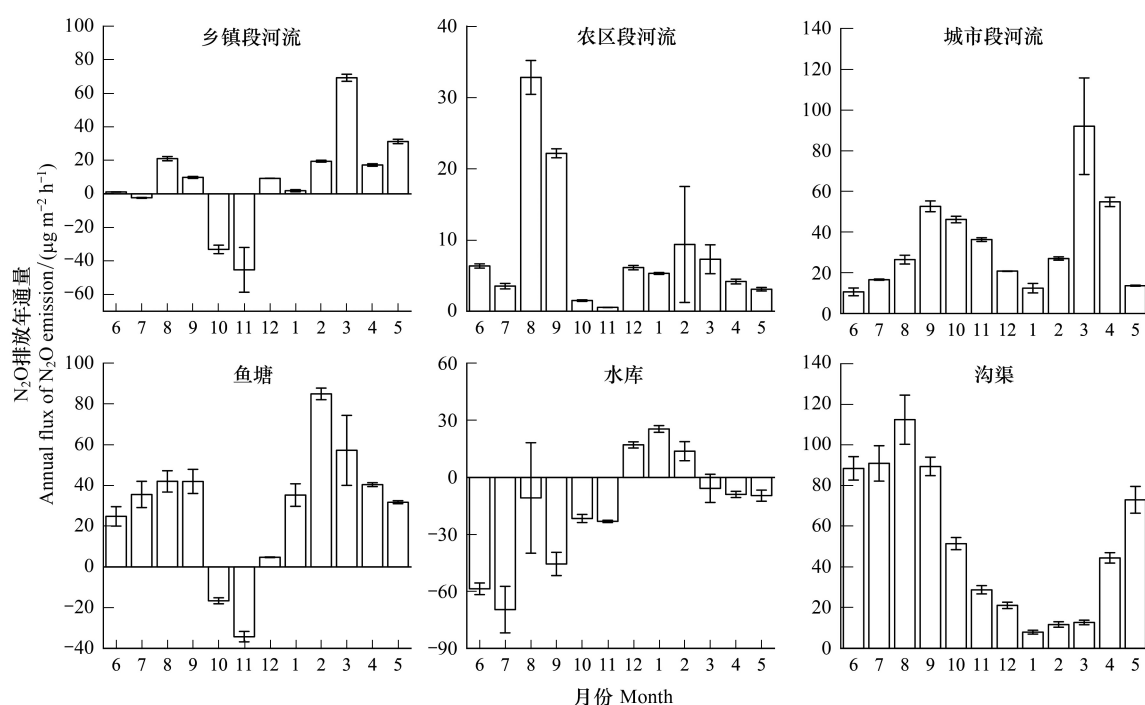


图 2 2016 年 6 月—2017 年 5 月不同水体 N₂O 排放月通量特征

Fig.2 Monthly flux of N₂O emission from different waters from June 2016 to May 2017

表 2 不同水体 N₂O 排放季节通量对比

Table 2 Seasonal flux of N₂O emission from different water

季节 Season	春 Spring	夏 Summer	秋 Autumn	冬 Winter
乡镇段河流 Rural River	39.28±1.38Ab	6.62±0.44Bc	-22.85±3.78Ce	10.23±0.32Bed
农区段河流 Agricultural River	4.86±0.86Cc	14.24±0.96Ac	8.07±0.26Bc	6.93±2.60BCd
城市段河流 Urban River	53.53±7.89Aa	17.93±0.78Bc	45.07±1.14ABb	20.12±0.82Bb
鱼塘 Fishpond	43.19±6.17Ab	34.17±2.55Bb	-2.95±1.52Cd	41.73±2.54Aa
向阳水库 Xiangyang Reservoir	-8.11±3.99Bd	-46.35±13.39Dd	-30.12±1.31Cf	18.80±2.78Ab
沟渠 Ditch	43.38±2.67Cb	97.22±6.02Aa	56.53±1.13Ba	13.60±1.10Dc

大写字母不同代表同一水体在不同季节差异显著, 小写字母不同表示不同水体差异显著, 显著性水平 $P < 0.05$

监测期内,乡镇段、农区段和城市段河流、鱼塘、水库和沟渠的年均 N_2O 排放通量分别为 (8.32 ± 28.60) , (8.52 ± 9.43) , (34.16 ± 23.97) , (29.03 ± 31.41) , (-16.45 ± 29.76) , $(52.68 \pm 36.09) \mu\text{g m}^{-2} \text{h}^{-1}$, 且表现为沟渠 > 城市段河流 和 鱼塘 > 乡镇段和农区段河流 > 水库 ($P < 0.05$, 图 3)。

2.3 不同水体 N_2O 的排放通量与环境指标的关系

不同水体 N_2O 排放月通量与月环境因子的聚类相关性分析见图 4。根据聚类相关性分析,研究区水体可以被分为四类,第一类是农区河流和沟渠,第二类是城市河流和乡镇河流,第三类是鱼塘,第四类是水库。环境因子可以被分为三类:第一类是气象指标,包括降雨量、风速、气温、水温和 pH;第二类是养分指标,包括表层水 Chl-a 、 NH_4^+ 、 NO_3^- 、TN 和 TP 浓度;第三类是代谢指标,包括表层水 COD、DOC 和 DO 浓度。可以看出农区段河流与沟渠的相关性分析较为一致,此类水体 N_2O 排放月通量与气象指标(降雨量和水温)呈显著正相关 ($P < 0.05$),与表层水部分养分指标(NH_4^+ 和 TN)和代谢指标(DO)浓度呈显著负相关 ($P < 0.05$)。乡镇和城市段河流 N_2O 排放月通量与部分表层水代谢指标(DOC)呈显著正相关 ($P < 0.05$)。鱼塘的 N_2O 排放月通量与表层水养分指标(Chl-a 、 NH_4^+ 、 NO_3^- 和 TN)浓度呈显著正相关 ($P < 0.05$)。水库的 N_2O 排放月通量与气象指标(降雨量和水温)呈显著的负相关 ($P < 0.05$),与表层水的养分指标均呈显著正相关 ($P < 0.05$)。

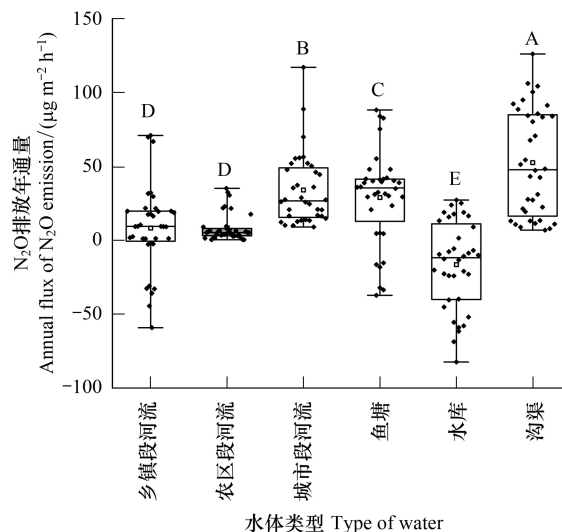


图 3 不同类型水体 N_2O 的年排放通量

Fig.3 Annual fluxes of N_2O in different waters

大写字母不同表示不同水体在 $P < 0.05$ 水平上存在显著的差异

3 讨论

3.1 不同水体 N_2O 排放的季节变异性及原因分析

本研究通过水体 N_2O 排放时间特征及其与环境指标的聚类相关分析,将研究区水体分为四种类型。第一类是农业段河流和农业沟渠,其水气界面 N_2O 排放通量表现出夏季高,冬春季低的季节特征,且与气象指标(降雨量和水温)呈显著正相关 ($P < 0.05$, 图 4)。以往研究证明,夏季水体 N_2O 排放通量高是因为高温有助于提高相关微生物活性,降雨有助于驱动氮素从土壤移动到水体,促进 N_2O 的生产和排放^[7, 16]。其次,研究区的夏天是水稻生长和收获的季节,大量土壤、肥料和植物中的营养元素在夏季暴雨的作用下从陆地迁移到毗邻水体,加上研究区农业生产广泛采用漫灌方式,也促进了营养元素的迁移^[17],最终促进 N_2O 的排放。再次,夏天河流和沟渠的流量、流速均高于其他季节,水流动力作用有助于水体中溶解性 N_2O 的排放^[8]。可见气象因子和农业活动联合驱动了农业段河流和农业沟渠的 N_2O 排放时间变异特征。

第二类乡镇和城市段河流水气界面的 N_2O 排放通量均表现为春季最高,且前者与风速显著正相关,后者与表层水 DOC 和 DO 浓度显著正相关 ($P < 0.05$, 图 4)。有研究认为,枯水季水体的 NO_3^- 浓度和 N_2O 饱和度高于丰水季,并且风速较大加快了 N_2O 从水体向大气运动^[18-20],这可以解释本研究中乡镇段河流的季节变异特征。另一方面,与农业段河流具有典型的季节来源(施肥等)不同,乡镇和城市段河流 N_2O 的来源,包括城乡排污、城市地表径流和清淤等,具有非季节性和复杂性^[21]。因此,此类河流 N_2O 排放不是受控于降雨和气温,而是受控于沉积物和水体中可用于 N_2O 生产的碳氮等营养底物,与城乡人类活动密切相关。

第三类鱼塘水气界面的 N_2O 排放通量表现为冬春季显著高于秋季,且与表层水养分指标(Chl-a 、 NH_4^+ 、 NO_3^- 和 TN)浓度呈显著正相关 ($P < 0.05$, 图 4)。原因有二,首先该生态鱼塘的饵料投放时间为春、夏季,提高了鱼塘的养分浓度,促进了 N_2O 的生产和排放;其次,冬春排放量高还与低温时,鱼类新陈代谢较弱,对水体

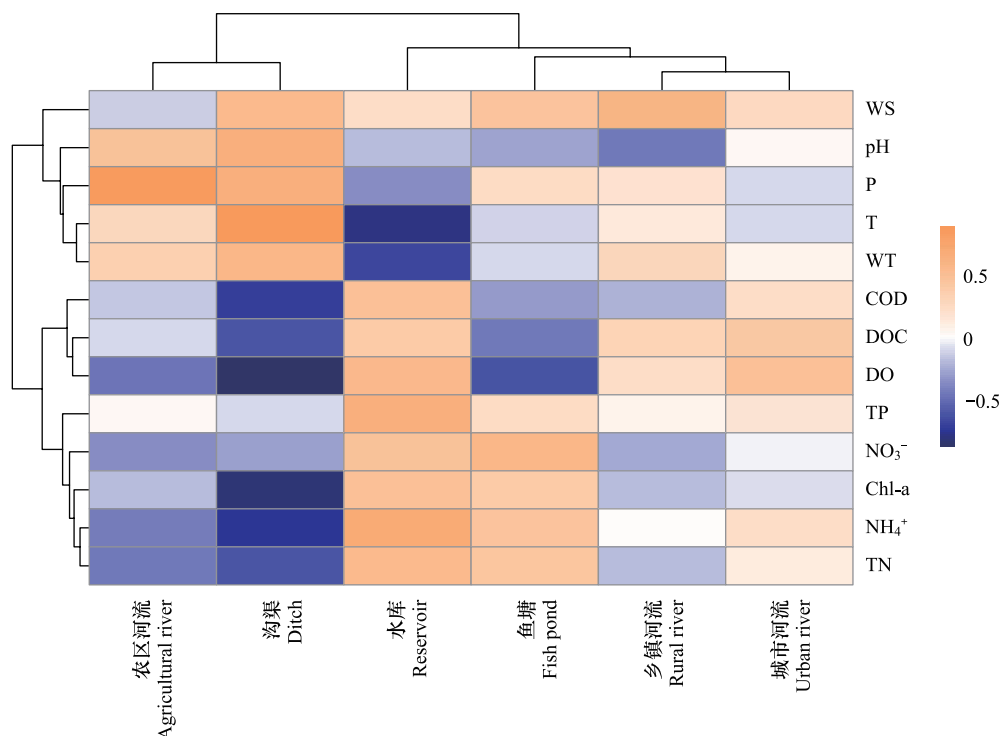


图 4 不同水体 N₂O 月排放通量与环境指标的 Pearson 相关系数聚类分析

Fig.4 Pearson correlation coefficient between monthly fluxes of N₂O and environmental indicators in different waters

橙红色表示相关系数为正,蓝色表示为负,灰色斜杠表示在 $P < 0.05$ 水平上存在显著的相关性;COD:化学需氧量,Chemical Oxygen Demand;DOC:可溶性有机碳,Dissolved organic carbon;DO:溶解氧,Dissolved oxygen;TP:全磷,Total phosphorus; NO_3^- :硝态氮,Nitrate nitrogen;Chl-a:叶绿素 a,Chlorophyll a; NH_4^+ :铵态氮,Ammonium nitrogen;TN:全氮,Total nitrogen

浮游植物的捕食强度降低,浮游植物生长较快,促进排放 N₂O^[22],因此表层水 Chl-a 与 N₂O 排放通量显著相关($P < 0.05$)。可见,鱼塘 N₂O 排放的时间变异主要受控于饵料投放和浮游植物的新陈代谢。

第四类向阳水库只有 3 个月表现为 N₂O 的源,2016 年 3—11 月均表现为 N₂O 的汇,且夏季“汇”的作用最强。并且,水库的 N₂O 排放月通量与气象指标(降雨量和水温)呈显著的负相关($P < 0.05$),与表层水的养分指标均呈显著正相关($P < 0.05$,图 4)。与河流、沟渠不同,水库具有深水环境和流速较缓的静水特征,水中的浮游生物碎屑和其他颗粒态有机物更易聚集、沉降,更易形成较厚的沉积物系统^[23]。也与鱼塘不同,水库没有季节性的养分人为输入。夏季水库沉积物中的微生物活性强、生长快;水生动植物新陈代谢、旺盛生长速度快,均对碳氮等养分需求大,因此对 N₂O 的吸收作用最强;而冬季水生动物新陈代谢较弱,对水体浮游植物的捕食强度降低,浮游植物生长较快,促进了 N₂O 的生产和排放^[23]。水库 N₂O 排放的时间变异特征主要受控于气象因素和水库生态系统的代谢活动。

综上所述,研究区不同水体水气界面 N₂O 排放的时间变异性及其驱动机制均不同。农业类水体的 N₂O 排放通量表现为夏高冬低,受气象指标和农业活动的联合驱动;城乡类河流和鱼塘的 N₂O 排放无一致性规律,主要受控于人类活动和养殖活动,均与降雨温度等气象指标关系较弱;水库主要表现为 N₂O 的吸收汇,只在冬季表现为排放源,主要受控于气象因素。

3.2 不同水体 N₂O 排放通量比较

研究区不同水体水气界面 N₂O 排放年通量存在差异,其中沟渠的 N₂O 排放年均通量($(52.68 \pm 36.09) \mu\text{g m}^{-2} \text{h}^{-1}$)显著高于其他水体($P < 0.05$,图 3),这是因为(1)沟渠受农业生产影响最剧烈,且直接与农田毗邻,降雨时来自于土壤、植物和肥料的氮素能更快的迁移到沟渠中^[24];(2)沟渠的流量和沉积物量远低于河流,对人

为输入氮素的稀释和同化作用更弱^[8]。与国内外研究相比较,川西平原农业沟渠水气界面 N_2O 的排放通量高于国内丘陵山区沟渠($6.56 \mu\text{g m}^{-2} \text{h}^{-1}$, 8),也高于英国($1.43\text{—}4.49 \mu\text{g m}^{-2} \text{h}^{-1}$, 26)和美国($35.2 \mu\text{g m}^{-2} \text{h}^{-1}$, 19)的平原区沟渠。这与该区域农业生产过程中养分面源流失较严重、氮沉降剧烈有关^[8],暗示农业氮素管控是该区域控制 N_2O 排放的重点。

城市段河流水气界面的 N_2O 排放年通量,仅次于沟渠,显著高于乡镇段和农区段河流($P<0.05$,图 3),这与国内外关于人类活动对河流温室气体排放影响的研究结果一致^[10, 21, 25],再次证明受城市工业、生活排污的影响,城市对河流 N_2O 排放的促进作用显著。川西小流域城市段河流水气界面的 N_2O 排放通量为(34.16 ± 2.16) $\mu\text{g m}^{-2} \text{h}^{-1}$,低于国内大部分城市段河流,如上海河网($79.6 \mu\text{g m}^{-2} \text{h}^{-1}$, 22; $184.8 \mu\text{g m}^{-2} \text{h}^{-1}$, 28)、南京河网($62.2\text{—}176.0 \mu\text{g m}^{-2} \text{h}^{-1}$, 29);重庆黑水滩河($113.7 \mu\text{g m}^{-2} \text{h}^{-1}$, 10);也低于部分国外的城市段河流,如西班牙 Guadalete 河($170.1 \mu\text{g m}^{-2} \text{h}^{-1}$, 7);瑞士($108.0 \mu\text{g m}^{-2} \text{h}^{-1}$, 30);美国 Kalamazoo 河($37.0 \mu\text{g m}^{-2} \text{h}^{-1}$, 19)。因此,从更大的尺度来看,河流不是研究区 N_2O 排放的热点区域。

向阳水库的 N_2O 年排放通量(-16.45 ± 29.76) $\mu\text{g m}^{-2} \text{h}^{-1}$ 显著低于是研究区内其他水体,表现为 N_2O 的汇($P<0.05$,图 3)。有研究显示,水库最易受入库河流和流域土地利用类型的影响^[26],向阳水库位于川西平原边缘的林区,其上游流域以林地为主,为水源地一级保护区,相对于其他采样点,受农业生产和城市排污等人为活动的影响最小。与国内其他报道相比,向阳水库 N_2O 年排放通量低于江西白云山水库($0.29 \mu\text{g m}^{-2} \text{h}^{-1}$, 31)、唐山大黑汀水库($13.6 \mu\text{g m}^{-2} \text{h}^{-1}$, 32)、九龙江水库($15.9 \mu\text{g m}^{-2} \text{h}^{-1}$, 33)。这是因为(1)研究区水库上游域以林地为主,养分的人为输入较小;(2)研究区土壤类型以有机质、肥力都较低的红壤为主,通过径流作用迁入水库的养分浓度也较低。向阳水库的 TN、TP 和 TC 分别为 1.22, 0.09 和 5.46 mg/L,均比其他水库低^[26-27]。

综上,研究区河流和水库的 N_2O 排放通量低于国内其他地区,而农业沟渠高于其他地区,农业氮素管控是该区域控制 N_2O 排放的重点。

3.3 不同水体 N_2O 产生和排放机制比较

水体和沉积物的硝化和反硝化作用是产生和消耗 N_2O 最主要的过程,决定着水气界面最终 N_2O 的排放通量。DO 浓度是沉积物和水体发生硝化和反硝化作用的关键化学因子,决定着两者产生和消耗 N_2O 的平衡^[28]。过去的研究显示,当水体 DO 浓度较低时, N_2O 主要来自于硝化作用;DO 浓度较高时, N_2O 主要来自于反硝化作用,但是 DO 浓度的分界线是多少并不清楚。Kester 等^[29]发现 DO 浓度为 1%时,8%的 NH_4^+ 转化为 N_2O ;DO 浓度为 80%时, NH_4^+ 的硝化速率降低到 0.15%。Ronner^[30]认为水体 DO 饱和度为 5%—110%时, N_2O 主要通过硝化反应产生,当 DO 饱和度大于 110%时,反硝化起主导作用。

本研究观察到鱼塘和沟渠的表层水 DO 浓度($3.47 \mu\text{g/L}$ 和 $4.51 \mu\text{g/L}$)均显著低于其他采样点($>5.3 \mu\text{g/L}$),且与 N_2O 的排放通量表现出显著相关性($P<0.05$),暗示着消耗氧气的硝化作用可能是此类水体生成 N_2O 的主要途径,这与过去普遍认为的水体表面 N_2O 主要来自于反硝化作用不同^[18, 31]。此类水体受农业施肥和投放饵料等影响, NH_4^+ 浓度显著高于其他水体($P<0.05$),为硝化作用提供了营养底物,同时硝化作用消耗表层水中的溶氧,导致 DO 浓度显著低于其他水体^[32]。Wang 等^[10]发现高 NH_4^+ 水体中, NH_4^+ 浓度和 DO 消耗速率具有显著相关性,证明了高 NH_4^+ 、低 DO 水体中硝化作用是 N_2O 产生的主要途径。这可能也是鱼塘和沟渠 N_2O 排放通量显著高于其他水体的重要原因。有趣的是,城市河流的 N_2O 排放通量与鱼塘非常接近,但排放机制却不同。城市河流的 TOC 浓度($14.37 \mu\text{g/L}$)显著高于鱼塘($10.8 \mu\text{g/L}$, $P<0.05$),而 NH_4^+ 浓度($0.55 \mu\text{g/L}$)显著低于鱼塘($5.2 \mu\text{g/L}$, $P<0.05$)。丰富的有机质为城市河流体反硝化提供了营养底物,暗示着城市河流的 N_2O 排放主要来自于反硝化作用。总的来说,不同水体受可利用反应物浓度和反应环境的影响,产生 N_2O 的途径并不一样,在 NH_4^+ 浓度较高,DO 浓度较低的水域以反硝化作用为主;在 DOC 和 DO 浓度较高的水域以硝化作用为主,且前者可能带来更高的 N_2O 排放通量。

4 结论

(1) 西河流域不同水体的 N_2O 排放特征及其驱动因素均不同, 可分为四类。第一类农业类水体的 N_2O 排放通量表现为夏高冬低, 受气象指标和农业活动的联合驱动; 第二类 and 第三类城乡类河流和鱼塘的 N_2O 排放无一致性规律, 主要受控于人类活动和养殖活动, 而与降雨温度等气象指标关系较弱; 第四类水库主要表现为 N_2O 的吸收汇, 主要受控于气象指标。

(2) 不同水体的 N_2O 年排放通量差异显著, 沟渠最高, 城市段河流和鱼塘次之, 乡镇段和农区段河流再次, 水库最低。并且, 而农业沟渠的 N_2O 排放通量高于国内其他地区, 农业氮素管控是该区域控制 N_2O 排放的重点。

(3) 不同水体的营养构成导致 N_2O 的产生途径并不一样。在 NH_4^+ 浓度较高, DO 浓度较低的水域以反硝化作用为主, 如沟渠和鱼塘; 而在 DOC 和 DO 浓度较高的水域以硝化作用为主, 如城市河流。

参考文献 (References):

- [1] Ravishankara A R, Daniel J S, Portmann R W. Nitrous oxide (N_2O): the dominant ozone-depleting substance emitted in the 21st century. *Science*, 2009, 326(5949): 123-125.
- [2] IPCC. Climate Change 2013: The Physical Science Basis. Cambridge: Cambridge University Press, 2013.
- [3] 谭永洁, 王东启, 周立旻, 陈振楼. 河流氧化亚氮产生和排放研究综述. *地球与环境*, 2015, 43(1): 123-132.
- [4] 杨平, 全川. 淡水水生生态系统温室气体排放的主要途径及影响因素研究进展. *生态学报*, 2015, 35(20): 6868-6880.
- [5] Due N T, Silverstein S, Lundmark L, Reyier H, Crill P, Bastviken D. Automated flux chamber for investigating gas flux at water-air interfaces. *Environmental Science & Technology*, 2013, 47(2): 968-975.
- [6] Burgos M, Sierra A, Ortega T, Forja J M. Anthropogenic effects on greenhouse gas (CH_4 and N_2O) emissions in the Guadalete River Estuary (SW Spain). *Science of the Total Environment*, 2015, 503-504: 179-189.
- [7] Tian L L, Akiyama H, Zhu B, Shen X. Indirect N_2O emissions with seasonal variations from an agricultural drainage ditch mainly receiving interflow water. *Environmental Pollution*, 2018, 242: 480-491.
- [8] Deng O P, Li X, Xiao Y L, Zhang S R, Deng L J, Lan T, Luo L, Gao X S, Zhou W, Zhang J, Ling J. Emission of nitrous oxide from plain multi-ditch system and its impact factors. *Environmental Science and Pollution Research*, 2019, 26(16): 16596-16605.
- [9] 龚小杰, 王晓锋, 袁兴中, 刘婷婷, 侯春丽. 城镇快速发展对河流温室气体溶存及扩散通量的影响——以重庆市黑水滩河流域城镇为例. *生态学报*, 2019, 39(22): 8425-8441.
- [10] Wang J N, Chen N W, Yan W J, Wang B, Yang L B. Effect of dissolved oxygen and nitrogen on emission of N_2O from rivers in China. *Atmospheric Environment*, 2015, 103: 347-356.
- [11] 刘小龙, 汪福顺, 白莉, 李思亮, 王宝利, 刘丛强, 王中良. 河流梯级开发对乌江中上游水体溶存 N_2O 释放的影响. *上海大学学报: 自然科学版*, 2015, 21(3): 301-310.
- [12] 胡志强. 稻田与蟹/鱼养殖湿地甲烷和氧化亚氮排放的观测比较研究[D]. 南京: 南京农业大学, 2015.
- [13] 孙小溪, 蒋宏忱. 湖泊微生物硝化过程研究进展. *微生物学报*, 2020, 60(6): 1148-1161.
- [14] 冯香荣, 邓欧平, 邓良基, 吴铭, 姚昆, 杨泽鹏. 成都平原不同类型沟渠 CO_2 、 CH_4 和 N_2O 排放通量特征及其影响因素. *环境科学*, 2017, 38(12): 5344-5351.
- [15] 文可绪, 刘家星, 张小丽, 陈霞, 曹英伟. 成都市现代渔业发展现状及对策. *现代农业科技*, 2017, (10): 276-277.
- [16] Griffis T J, Chen Z C, Baker J M, Wood J D, Millet D B, Lee X H, Venterea R T, Turner P A. Nitrous oxide emissions are enhanced in a warmer and wetter world. *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America*, 2017, 114(45): 12081-12085.
- [17] Guo L, Ma K M. Seasonal dynamics of nitrogen and phosphorus in water and sediment of a multi-level ditch system in Sanjiang Plain, Northeast China. *Chinese Geographical Science*, 2011, 21(4): 437-445.
- [18] Beaulieu J J, Arango C P, Hamilton S K, Tank J L. The production and emission of nitrous oxide from headwater streams in the Midwestern United States. *Global Change Biology*, 2008, 14(4): 878-894.
- [19] 张晓萌, 杨扬, 蔡楠, 刘旺, 乔永民. 广东省入库河口 N_2O 分布和通量的时空变化. *生态科学*, 2012, 31(3): 306-311.
- [20] 张羽, 秦晓波, 廖育林, 范美蓉, 李悦, 郝敏, 李玉娥, 万运帆. 亚热带农业小流域水系 N_2O 扩散通量及其影响因素. *农业工程学报*, 2016, 34(7): 215-223.

- [21] Yu Z J, Deng H G, Wang D Q, Ye M W, Tan Y J, Li Y J, Chen Z L, Xu S Y. Nitrous oxide emissions in the Shanghai river network: implications for the effects of urban sewage and IPCC methodology. *Global Change Biology*, 2013, 19(10): 2999-3010.
- [22] 杨平, 仝川, 何清华, 黄佳芳. 闽江口鱼虾混养塘水-气界面温室气体通量及主要影响因子. *环境科学学报*, 2013, 33(5): 1493-1503.
- [23] Lal R. Soil erosion and the global carbon budget. *Environment International*, 2003, 29(4): 437-450.
- [24] Deng O P, Zhang S R, Deng L J, Zhang C L, Fei J B. Wet nitrogen deposition across the urban-intensive agricultural-rural transect of a small urban area
- [25] 刘伟婷, 姚晓龙, 薛惊雅, 赵中华, 张路, 王晓龙, 蔡永久. 长江中下游沿岸带水体温室气体释放的时空分布特征. *长江流域资源与环境*, 2019, 28(11): 2718-2726.
- [26] 姜星宇, 张路, 姚晓龙, 徐会显, 李敏. 江西省水库温室气体释放及其影响因素分析. *湖泊科学*, 2017, 29(4): 1000-1008.
- [27] Chen J S, Cao W Z, Cao D, Huang Z, Liang Y. Nitrogen loading and nitrous oxide emissions from a river with multiple hydroelectric reservoirs. *Bulletin of Environmental Contamination and Toxicology*, 2015, 94(5): 633-639.
- [28] Smith M S, Zimmerman K. Nitrous oxide production by nondenitrifying soil nitrate reducers. *Soil Science Society of America Journal*, 1981, 45(5): 865-871.
- [29] Kester R A, De Boer W, Laanbroek H J. Production of NO and N₂O by pure cultures of nitrifying and denitrifying bacteria during changes in aeration. *Applied and Environmental Microbiology*, 1997, 63(10): 3872-3877.
- [30] Rönner U. Distribution, production and consumption of nitrous oxide in the Baltic Sea. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 1983, 47(12): 2179-2188.
- [31] Beaulieu J J, Tank J L, Hamilton S K, Wollheim W M, Hall Jr R O, Mulholland P J, Peterson B J, Ashkenas L R, Cooper L W, Dahm C N, Dodds W K, Grimm N B, Johnson S L, McDowell W H, Poole G C, Valett H M, Arango C P, Bernot M J, Burgin A J, Crenshaw C L, Helton A M, Johnson L T, O'Brien J M, Potter J D, Sheibley R W, Sobota D J, Thomas S M. Nitrous oxide emission from denitrification in stream and river networks. *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America*, 2011, 108(1): 214-219.
- [32] Casciotti K L, McIlvin M, Buchwald C. Oxygen isotopic exchange and fractionation during bacterial ammonia oxidation. *Limnology and Oceanography*, 2010, 55(2): 753-762.