

DOI: 10.20103/j.stxb.202301040030

全川, 罗敏, 谭季. 湿地甲烷代谢对氮输入响应的复杂性及其机制分析. 生态学报, 2024, 44(4): 1324-1335.

Tong C., Luo M., Tan J. Complexity of effects of nitrogen input on methane metabolism in wetlands and mechanism analysis. Acta Ecologica Sinica, 2024, 44(4): 1324-1335.

湿地甲烷代谢对氮输入响应的复杂性及其机制分析

全 川^{1,2,*}, 罗 敏³, 谭 季²

1 湿润亚热带生态-地理过程教育部重点实验室, 福州 350117

2 福建师范大学地理科学学院, 福州 350117

3 福州大学环境与安全工程学院, 福州 350116

摘要: 氮素是影响湿地甲烷代谢过程的重要因素之一。氮输入是否影响湿地甲烷排放, 增加全球气候变暖的风险, 一直受到科学界的高度关注。目前关于氮输入对湿地甲烷排放影响的几篇 meta-analysis 文章的主要结论均为氮输入促进湿地甲烷排放, 但是多篇研究性论文的结果为氮输入抑制或不影响湿地甲烷排放, 由此可见氮输入对湿地甲烷排放的影响十分复杂。湿地甲烷代谢包括湿地甲烷产生、氧化和传输过程以及最终的甲烷排放, 综述不同形态氮输入对水稻田、内陆湿地和滨海湿地甲烷排放通量影响的复杂性; 分析湿地甲烷产生速率和途径、甲烷好氧氧化和硝酸盐/亚硝酸盐型厌氧甲烷氧化对不同形态氮输入的响应及机制。硝态氮输入对湿地甲烷产生具有抑制作用已成共识, 然而其它形态氮输入对湿地土壤甲烷产生的影响具有较大的不确定性, 氮输入影响湿地甲烷产生的机制主要包括电子受体-底物竞争机制、离子毒性机制、促进植物生长-碳底物供给增加机制以及 pH 调控机制等。氮输入对湿地好氧甲烷氧化影响的研究多集中在水稻田和泥炭湿地, 影响的结果包括促进、抑制或影响不显著; 氮输入促进湿地土壤硝酸盐/亚硝酸盐型厌氧甲烷氧化。着重分析氮输入对湿地甲烷代谢影响不确定性的成因, 指出湿地甲烷代谢对氮输入的响应是一个生态系统层面的生物地球化学过程, 并提出氮输入是最具争议效应的驱动因素之一, 其对甲烷代谢的影响很难得出明确的模式, 可能需要考虑湿地土壤特征(本底氮含量、有机碳含量、土壤 C:N 值等)以及植物群落类型和特征, 最后提出今后在氮输入对湿地甲烷代谢影响方面应加强的研究领域。

关键词: 氮输入; 甲烷通量; 甲烷产生和氧化; 不确定性; 生态系统特征; 湿地

Complexity of effects of nitrogen input on methane metabolism in wetlands and mechanism analysis

TONG Chuan^{1,2,*}, LUO Min³, TAN Ji²

1 Key Laboratory of Humid Sub-tropical Eco-geographical Process of Ministry of Education, Fuzhou 350117, China

2 School of Geographical Science, Fujian Normal University, Fuzhou 350117, China

3 College of Environment and Safety Engineering, Fuzhou University, Fuzhou 350116, China

Abstract: Nitrogen (N) is one of the key factors that profoundly impact the global methane (CH₄) metabolism in wetlands. Whether nitrogen input would increase methane emission from wetlands and risk of global climate warming has been paid much attention. However, the magnitude and direction of methane emission rates in response to nitrogen input on a global scale are still unclear. The main study conclusion in the published meta-analysis papers was that nitrogen input increased methane emission from wetlands. But the conclusions also included nitrogen input decrease and did not affect methane emission from wetlands in lots of research papers. Nitrogen input is the driver with the most controversial effects, for which it is difficult to draw univocal patterns. Wetland methane metabolism includes methane production (methanogenesis), methane oxidation, methane transport, and their final result of methane emission. This paper reviewed the complexity of

基金项目: 国家自然科学基金项目(42177213); 国家重点研发计划项目(2022YFC3105401)

收稿日期: 2023-01-04; **网络出版日期:** 2023-12-01

* 通讯作者 Corresponding author. E-mail: tongch@fjnu.edu.cn

effects of nitrogen input on the methane emission from paddy field, inland wetlands, and coastal wetlands. We also analyzed the responses of the rate and pathway of methane production, aerobic methane oxidation, and nitrate/nitrite-dependent anaerobic methane oxidation to nitrogen input, and their mechanism. $\text{NO}_3\text{-N}$ input demonstrated inhibition on methane production, however the effects of input of other forms of nitrogen on methane production showed an uncertainty. The main controlling mechanisms of nitrogen input on methane production included ionic toxicity, promoting plant growth-increasing carbon substrate (such as plant litter, root exudates, sloughed-off cells, and roots etc.) supply, electron acceptors-carbon substrate competition, and pH regulation. The studies of nitrogen input on aerobic methane oxidation mostly focused on the rice fields and peatlands, and the effects included increase, decrease and no-effects on methane oxidations. Nitrogen input increased the nitrate/nitrite-dependent anaerobic methane oxidation. We emphatically analyzed the reasons of different influences of nitrogen input on methane metabolism, and proposed that the response of methane metabolism to nitrogen input was a biogeochemistry process at ecosystem level. We also provided a conceptual model that included microbial processes and ecosystem traits factors to predict effects of nitrogen input on methane emissions from wetlands. Finally, we proposed some basic research domains that needed to strengthen in study of effects of nitrogen input on wetland methane metabolism. Overall, our review shed light on the complexity and mechanism of effects of nitrogen input on methane metabolism in wetlands and will help improve ecosystem models for predicting wetland methane flux caused by nitrogen input.

Key Words: nitrogen input; CH_4 flux; CH_4 production and oxidation; uncertainty; ecosystem traits; wetlands

湿地是大气中甲烷(CH_4)主要的天然排放源,全球排入大气的甲烷 18%—41%来自于湿地生态系统^[1]。湿地甲烷排放是湿地甲烷产生、氧化和传输过程的最终结果,以上关键过程共同构成湿地甲烷代谢(methane metabolism)^[2]。诸多生物和非生物因子的改变均对湿地甲烷代谢产生影响^[3-4],其中,氮素是影响湿地甲烷代谢过程的重要环境因子之一。氮输入是否会提高湿地甲烷排放,增加全球气候变暖的风险,一直受到科学界的高度关注^[5-10]。氮输入对各类湿地甲烷代谢的影响是全球变化以及湿地碳循环研究中亟需解决的重要科学问题之一^[11-12]。然而,从目前的研究结果看,复杂性和不确定性是湿地甲烷产生、氧化和排放对氮输入的响应特性。氮输入影响湿地甲烷代谢的主要机制是什么?如何深入地认识氮输入对湿地甲烷产生、氧化和排放影响不确定性背后的成因,对于今后继续开展氮输入对湿地甲烷代谢影响的研究具有重要的指导意义。本文认为湿地甲烷代谢对于氮输入的响应,除了受到氮输入形态和水平的影响以外,还受到包括湿地土壤本底氮(N)含量、碳(C)含量及 C:N 比值、湿地植物群落类型、枯落物质量、湿地植物与甲烷代谢功能微生物对于氮素需求的竞争等湿地土壤属性和湿地植物属性的多因素调控,是一个在生态系统层面上、微生物介导的生物地球化学过程。

1 氮输入对湿地甲烷排放影响的复杂性

1.1 Meta-analysis 文章的主要结论

目前国际上已发表的两篇关于氮输入对陆地生态系统甲烷排放和吸收通量影响的 meta-analysis 文章,其中 1 篇涉及人工湿地(厌氧农业系统, anaerobic agricultural system)^[12],另外 1 篇涉及湿地(没有区分不同湿地类型)^[13],此外还有两篇专门分析氮输入对湿地生态系统(包括淡水湿地、滨海湿地和水稻田)甲烷排放影响的 meta-analysis 文章^[14-15]以及 1 篇专门分析施加氮肥对水稻田甲烷排放影响 meta-analysis 文章^[5],这些 meta-analysis 文章得出的主要结论归纳总结见表 1,主要的结论是氮输入增加湿地甲烷排放通量(表 1)。

1.2 施氮对水稻田湿地甲烷排放影响的复杂性

虽然目前已发表的 meta-analysis 文章得出的结论为氮输入增加湿地甲烷排放通量,但是 meta-analysis 计算和展示的结果只是所有文献的数据“整体呈现”的结论,实际上较多文献研究结果表明氮输入抑制或不影响湿地甲烷排放通量,只是这样的研究结果在 meta-analysis 计算中被“隐藏”了。施氮肥(nitrogen addition, nitrogenous fertilizers addition, nitrogen fertilization)对人工湿地-水稻田甲烷排放通量影响的研究报道最多。施

氮肥对水稻田甲烷排放通量影响的研究中,氮形态以尿素($\text{CO}(\text{NH}_2)_2$)和磷酸二氢铵($\text{NH}_4\text{H}_2\text{PO}_4$)为主。Banger 等^[5]收集了 33 篇关于施氮对水稻田甲烷排放通量影响的文献,共 155 对数据,meta-analysis 的结果发现在施氮水平为 28—406 kg N/hm² 的情况下,63% 的数据显示施氮促进水稻田甲烷排放通量,37% 的数据显示抑制或无影响。一项在水稻田 4 年原位施加磷酸二氢铵的研究结果表明:施氮水平为 250 kg N/hm² 的处理显著降低水稻田甲烷排放通量,减少幅度达 35%—53%^[16]。Yao 等^[17]通过 3 年的水稻田原位施加尿素的研究发现:施加水平为 150、250 kg N/hm² 的处理均显著降低水稻田甲烷排放通量,减少幅度分别为 27% 和 53%,然而 Morris 等^[18]水稻田原位施加尿素研究结果却是施加氮肥并未对甲烷排放通量产生影响。纵观已发表的施加氮肥对水稻田甲烷排放影响的 meta-analysis 综述性文章^[5]以及研究性论文,可以看出施氮对水稻田甲烷排放通量的影响具有明显的复杂性和不确定性,影响的结果包括促进、抑制和无影响。目前,科学界对于施氮对于水稻田甲烷排放的影响还未到达共识^[5,19]湿地甲烷排放是湿地甲烷产生、氧化和传输过程的最终结果,氮输入通过影响微生物介导的甲烷产生和甲烷氧化过程,甚至甲烷传输过程均有可能最终决定其对于甲烷排放通量的影响。

表 1 氮输入对湿地甲烷排放通量影响的 meta-analysis 结果

Table 1 Results of meta-analysis of the effects of nitrogen input on methane fluxes from wetlands

文献来源 Sources	观测数据 Number of data pairs	主要结论 Main Conclusions
Banger 等 ^[5]	155	1. 98 份数据显示施加氮肥增加水稻田甲烷排放通量,排放因子 (emission factor) 为 (0.27 ± 0.06) per ¹ kg N hm ⁻² a ⁻¹ ; 57 份数据显示施加氮肥抑制或不影响水稻田甲烷排放通量 2. 氮肥施加量 140 kg N/hm ² 为临界值,小于该值的氮输入量造成的甲烷排放通量增加值显著高于大于该值氮输入造成的甲烷排放量的增加值 3. 施加尿素对于水稻田甲烷排放的促进作用大于硫酸铵
Liu 等 ^[12]	9	1. 氮输入厌氧农业系统增加甲烷排放通量,排放因子 (emission factor) 为 (0.01 ± 0.004) per ¹ kg N hm ⁻² a ⁻¹
Chen 等 ^[14]	72	1. 铵态氮、硝态氮单独输入增加湿地(淡水湿地、泥炭湿地、高山湿地、盐沼等)甲烷放通量 2. 低水平氮输入量 $(0-50 \text{ kg hm}^{-2} \text{ a}^{-1})$ 比高水平氮输入量 $(>50 \text{ kg hm}^{-2} \text{ a}^{-1})$ 更显著地提升湿地甲烷排放通量
Wu 等 ^[15]	254	1. 同年限、各形态氮输入均显著增加湿地(淡水湿地、滨海湿地和水稻田)土-大气界面甲烷排放通量,其中对淡水湿地和滨海湿地甲烷排放通量的促进作用大于对水稻田的影响 2. 硝态氮输入对湿地甲烷排放通量的促进作用最显著 3. 长期氮输入对湿地甲烷排放通量的促进作用大于短期氮输入 4. 湿地甲烷排放通量对于氮输入的响应与氮输入水平无关 5. 有机氮输入对天然湿地甲烷排放通量的促进效应大于无机氮输入
Deng 等 ^[13]	18	1. 氮输入湿地增加甲烷排放通量,排放因子为 (0.91 ± 0.53) per ¹ kg N hm ⁻² a ⁻¹

Banger 等^[5]推测施氮对于水稻田甲烷排放通量的抑制可能是由于施氮激发甲烷氧化菌活性进而增加水稻田土壤甲烷氧化能力,并最终减少甲烷排放通量。施氮对于水稻田甲烷排放通量的促进效果可能是由于施加氮肥增加作物的生长和产量,刺激有机碳底物的产生(包括植物枯落物、根系分泌物和死亡根系等),进而激发了甲烷产生过程^[20]。施氮造成的水稻植物根区氧化还原电位的降低可能也是造成水稻田甲烷排放通量增加的原因^[21]。

水稻田种植年限、方式、水文和施肥管理模式复杂多样,均可能是造成施氮对水稻田甲烷排放通量影响具有很大复杂性和不确定性的原因。氮肥施加对具有 10 年种植史的水稻田甲烷排放通量无影响,而提升了种植仅 1 年的水稻田的甲烷排放通量^[22]。冬水稻田水稻生长季施氮不仅促进水稻生长期甲烷排放通量,随后的水淹休耕期甲烷排放通量仍高于未施肥的水稻田^[23]。施氮激发水稻田土壤甲烷氧化菌并减低甲烷排放的结果受到连续浇水灌溉限制氧气供给而改变^[5]。单纯氮肥施加显著增加水稻田甲烷排放通量,而氮磷钾复合肥施加对水稻田甲烷排放通量无显著影响^[24]。

1.3 氮输入对内陆湿地、滨海湿地甲烷排放影响的不确定性

氮沉降(nitrogen deposition)对于内陆泥炭湿地和沼泽湿地甲烷排放通量的影响也有较多的文献报道,以

模拟硝酸铵 (NH_4NO_3) 沉降以为主。与水稻田一样,氮输入对甲烷排放的影响同样具有不一致性。欧洲 5 国开展了 3 年的硝酸铵输入对泥炭湿地 (mires) 甲烷排放通量影响的研究,结果为硝酸铵输入显著降低英国泥炭湿地甲烷排放通量,然而对芬兰、荷兰和瑞典泥炭湿地甲烷排放通量无显著影响^[25]。不同优势植物泥炭湿地甲烷排放对于氮沉降增加的响应似乎不同。连续 6 年输入量分别为 30, 100 $\text{kg NH}_4\text{NO}_3\text{N hm}^{-2}$ 的处理未显著改变北方锈色泥炭藓+小叶泥炭藓 (*Sphagnum fuscum*+*Sphagnum angustifolium*) 泥炭湿地甲烷排放通量,但输入量为 100 $\text{kg NH}_4\text{NO}_3\text{N hm}^{-2}$ 的处理显著增加锈色泥炭藓 (*Sphagnum fuscum*) 泥炭湿地甲烷排放通量^[26]; 输入硝酸铵或尿素显著抑制苔草 (*Carex* sp.) 沼泽湿地甲烷排放通量^[27-28], 而输入硝酸铵显著增加小叶樟 (*Deyeucia angustifolia*) 沼泽湿地甲烷排放通量^[29]。

氮富集或氮负荷增加 (nitrogen enrichment, increased nitrogen loading) 虽然是全球河口湿地面临的最主要环境问题之一,但是由于研究的艰难性及复杂性,特别是潮汐作用的影响,使得目前国际上关于氮负荷增加于河口/滨海湿地甲烷代谢过程和甲烷排放通量影响的研究报道相对偏少。综合分析目前国际上已开展氮输入对滨海/河口湿地甲烷排放影响的研究报道,氮输入量均设定在较高的水平,且施加的含氮化合物形态多样,包括硝酸铵、硝态氮 (NO_3^- -N) 或铵态氮 (NH_4^+ -N) 及尿素等,与水稻田湿地和内陆淡水湿地相同,氮输入对于滨海/河口湿地甲烷排放通量的影响同样具不确定性,已发表文献初步结论是氮输入对甲烷排放影响的结果包括促进、抑制和无影响,影响的结果似乎与输入氮的形态有关, NH_4NO_3 输入以增加和无影响为主,铵态氮输入以增加为主,硝态氮输入以无影响为主 (表 2)。

表 2 氮输入对滨海感潮沼泽湿地甲烷排放通量的影响

Table 2 Effects of nitrogen input on methane fluxes from coastal tidal marshes

优势植物 Dominant Species	氮输入形态 Nitrogen input type	氮输入水平 Nitrogen input level	氮输入频率和方式 Nitrogen input frequency and method	对甲烷排放影响 Impact on CH_4 emission	参考文献 References
<i>Carex chordorrhize</i> 泥炭藓 <i>Sphagnum</i>	NH_4NO_3	$6.4 \text{ g N m}^{-2} \text{ a}^{-1}$	5—9 月喷洒, 原位实验	无影响	[30]
芦苇, 碱蓬 <i>Suaeda salsa</i> , 裸滩, 糙叶苔草 <i>Carex scabrifolia</i> ,	NH_4NO_3	每千克土壤施加 100 毫克氮	添加 1 次, microcosm 实验	显著增加 (碱蓬, 裸滩) 无影响 (芦苇, 糙叶苔草)	[7]
短叶荳蔻 <i>Cyperus malaccensis</i>	NH_4NO_3	0, 24, 48, 96 $\text{g N m}^{-2} \text{ a}^{-1}$	每月喷洒 1 次, 原位实验	NH_4NO_3 输入增加河口感潮淡水沼泽湿地甲烷排放通量, 轻度抑制河口半咸水沼泽湿地甲烷排放通量	[31]
短叶荳蔻	NH_4NO_3 , NH_4Cl , KNO_3	$24 \text{ g N m}^{-2} \text{ a}^{-1}$	每月喷洒 1 次, 原位实验	NH_4NO_3 和 NH_4Cl 输入显著增加甲烷排放通量, KNO_3 输入无影响	[6]
芦苇+翅碱蓬 <i>Phragmites australis</i> + <i>Suaeda heteroptera</i> Kitag	NH_4NO_3 KNO_3 NH_4Cl	$100 \text{ g N m}^{-2} \text{ a}^{-1}$ $50 \text{ g N m}^{-2} \text{ a}^{-1}$ $50 \text{ g N m}^{-2} \text{ a}^{-1}$	每月喷洒 1 次 原位实验	NH_4Cl 输入增加甲烷排放通量, KNO_3 输入无影响	[32]
盐角草 <i>Salicornia virginica</i>	尿素	0, 10, 20, 40, 80, 160, 320 $\text{g N m}^{-2} \text{ a}^{-1}$	埋管缓释, 10 d 1 次, 原位实验	增加甲烷排放通量	[10]
短叶荳蔻	NH_4NO_3	$3, 6 \text{ g N m}^{-2}$	喷洒 1 次 原位实验	高氮输入增加甲烷通量, 低氮氮输入 24 h 后增加甲烷通量, 氮输入 192 h 降低甲烷通量	[33]
互花米草 <i>Spartina alterniflora</i> 碱蓬 <i>Suaeda salsa</i>	NH_4NO_3	2.7 g N m^{-2}	5—10 月添加, 共 12 次, mesocosm 实验	显著增加 (互花米草) 无影响 (碱蓬)	[34]

2 湿地甲烷产生速率和途径对不同形态氮输入的响应

2.1 湿地甲烷产生速率对不同形态氮输入的响应

湿地土壤甲烷产生是决定湿地甲烷排放通量高低的重要基础。在氮输入对湿地甲烷产生速率影响的研究中,输入氮的形态包括硝酸铵、硝态氮、铵态氮以及尿素,输入方式包括原位输入和土壤微宇宙实验(microcosm)输入等。从目前研究结果看,湿地甲烷产生速率对不同形态氮输入的响应不同。

不论是人工湿地还是天然湿地,硝态氮输入对湿地土壤甲烷产生速率具有抑制作用是较多研究的共同结论^[5,35-38]。但是,目前关于铵态氮输入对湿地土壤甲烷产生速率的影响报道较少,且结论具有明显的不确定性,包括抑制^[39]和无影响^[40-41]。此外,硝酸铵也是常见的氮输入形态,但其影响的结果可能与湿地植物群落类型有关,一项滨海湿地土壤微宇宙培养实验研究发现硝酸铵输入造成碱蓬湿地土壤甲烷产生速率提升高达3500%,芦苇湿地和糙叶苔草湿地土壤甲烷产生速率无显著变化^[7]。长达12年的北方泥炭湿地原位硝酸铵输入研究结果为甲烷产生速率增加34%,并推测甲烷产生速率增加的原因是长期氮输入改变湿地植物群落结构,虽然泥炭藓(*Sphagnum* spp.)盖度明显降低,但是多年生草本白毛羊胡子草(*Eriophorum vaginatum*)和矮灌木仙女越橘(*Andromeda polifolia*)盖度明显增加,进而增加了甲烷产生底物数量的供给^[42]。此外,尿素也是一些研究中氮输入的形态,影响的结果也不尽相同,10年原位尿素输入研究的结果是显著增加河口感潮淡水沼泽湿地土壤甲烷产生速率^[43],而在水稻田开展的尿素输入实验的结果为抑制表层土壤甲烷产生速率,促进深层土壤甲烷产生速率^[44]。

目前关于氮输入对湿地甲烷产生影响的机制分析主要包括电子受体-底物竞争机制、离子毒性机制、促进植物生长-碳底物供给增加机制和pH调控机制。电子受体-底物竞争机制和离子毒性机制主要用以解释已成共识的硝态氮输入抑制湿地土壤甲烷产生的结果。电子受体-底物竞争机制的主要内容:作为一个重要的电子受体,硝酸根参与的硝酸盐还原过程与甲烷产生过程相比较,具有明显的底物利用热动力学优势,Berner^[45]报道湿地土壤有机碳厌氧矿化反应式及对应的自由能,硝酸盐异化还原反应式为: $5\text{CH}_2\text{O} + 4\text{NO}_3^- \rightarrow 2\text{N}_2 + \text{CO}_2 + 4\text{HCO}_3^- + 3\text{H}_2\text{O}$,自由能为-448 kJ/mol,高于甲烷产生途径的自由能(-58 kJ/mol),硝态氮输入激发湿地土壤硝酸盐异化还原,与甲烷产生竞争有机碳底物,从而使得甲烷产生底物浓度降低到产甲烷菌无法利用的程度,最终限制甲烷产生^[38]。离子毒性机制: NO_3^- 离子毒性和硝态氮反硝化过程的产物(NO_2^- , NO 及 N_2O)对产甲烷菌活性具有毒性作用^[35]。促进植物生长-碳底物供给增加机制主要用以解释氮输入增加湿地甲烷产生速率的成因,即氮输入增加提升湿地土壤中氮可利用性或减缓一些湿地植物生长的氮限制,促进湿地植物生产力,通过植物凋落物、有机根系分泌物、脱落的细胞和根系等过程增加湿地土壤有机碳输入量,为甲烷产生提供了更多的底物供给^[5,46]。考虑到土壤pH可能影响湿地植物对于氮素的吸收、甲烷产生底物的供给^[47]以及土壤微生物群落结构^[48-49],故pH调控机制也被提出,即氮输入影响湿地土壤pH值,进而调控湿地甲烷产生速率。氮输入对湿地土壤甲烷产生速率影响的不确定性和复杂性可能的原因是:一方面,氮输入促进氮素为生长限制因子的湿地植物地上、地下生物量的增加,进而增加甲烷产生底物的供给;另一方面,硝酸根又是重要的电子受体并具有毒性,可抑制湿地甲烷产生,铵态氮对土壤酶活性也具有抑制作用^[50]。氮输入对湿地土壤甲烷产生速率影响的最终“走向”可能取决于哪个过程起主导作用,或是否相互“平衡”抵消。

2.2 乙酸营养型和氢营养型产甲烷途径对氮输入的不同响应

乙酸营养型和氢营养型是湿地土壤甲烷产生的两个主要途径,这两个甲烷产生途径对于氮输入的响应是否存在差异也开始引起关注。一项在佛罗里达大沼泽湿地的研究发现:湿地土壤氮含量高低对甲烷产生的影响不仅表现在甲烷产生速率上,同时还显著影响甲烷产生途径,氮贫瘠湿地土壤乙酸营养型(或称乙酸发酵型)产甲烷途径甲烷产生量占甲烷产生总量的75%,氢营养型(或称 H_2/CO_2 型)产甲烷途径仅占25%;而氮富集湿地土壤甲烷产生速率增加4倍,其中 H_2/CO_2 产途径甲烷产生量贡献率增至50%^[51]。铵态氮含量高的黄河三角洲滨海湿地土壤氢营养型产甲烷菌分布较多,如甲烷杆菌科(Methanobacteriaceae)、甲烷微菌科

(Methanomicrobiaceae)等氢营养型产甲烷菌,并推测铵态氮输入可激发氢营养型产甲烷途径的速率^[32]。

实际上一些厌氧消化反应微生物学研究已表明不同形态氮对于产甲烷菌多样性,甚至甲烷产生途径具有影响,但是研究结果并不一致,包括高铵氮环境明显抑制乙酸型产甲烷菌^[52],或乙酸型产甲烷菌适应更高浓度的铵氮环境^[53],以及 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 对乙酸产甲烷途径的抑制作用高于 H_2/CO_2 产甲烷途径^[54-56]。Fotidis 等^[57] 研究发现 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 浓度为 5 g/L 时,氢营养产甲烷菌为最主要的产甲烷菌,而 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 浓度为 7 g/L,可利用乙酸的兼性产甲烷菌甲烷八叠球菌属(*Methanosarcinaceae*)成为主要的产甲烷菌。硝态氮输入对产甲烷菌的影响的结论较为一致,如硝态氮输入降低产乙酸菌活性,进而降低乙酸产生量,削弱乙酸营养型产甲烷途径中产甲烷底物的供给^[58],以及硝态氮 NO_3^- 输入抑制乙酸型产甲烷菌中的马氏甲烷八叠球菌(*Methanosarcina mazei*)活性^[59]。在对甲烷产生途径影响方面,一些研究结果表明铵态氮对乙酸产甲烷途径的抑制作用高于 H_2/CO_2 产甲烷途径^[54-56]。

3 氮输入对湿地好氧和厌氧氧化的影响及微生物机制

湿地甲烷氧化是控制湿地甲烷排放的重要环节^[60]。湿地甲烷氧化一般是指好氧甲烷氧化(aerobic methane oxidation),即在氧气和甲烷共同参与下的甲烷氧化过程^[61-62]。湿地好氧甲烷氧化主要发生在湿地土壤/沉积物-水界面或土壤/沉积物-大气界面以及湿地植物根际环境,主要是通过好氧甲烷氧化细菌完成^[63]。随着科学家发现在深海厌氧沉积物中存在着另一类甲烷氧化过程,即厌氧甲烷氧化(anaerobic oxidation of methane)^[64],目前关于湿地厌氧氧化的研究逐渐增多,驱动湿地厌氧甲烷氧化的途径包括硫酸盐还原介导的厌氧甲烷氧化、硝酸盐/亚硝酸盐还原介导的厌氧甲烷氧化以及铁锰还原介导的厌氧甲烷氧化^[65-67]。

3.1 氮输入对湿地好氧氧化的影响及其机制

湿地好氧甲烷氧化(以下简称为甲烷氧化)遵循动力学模式为“低”亲和力甲烷消耗模式(low-affinity methane consumption),TypeI 型和 TypeII 型甲烷氧化菌(methane-oxidizing bacteria)均可驱动湿地土壤甲烷氧化过程。相对于甲烷产生,国际上关于氮输入对湿地甲烷氧化影响的研究成果较多,氮输入的形态包括硝酸铵、尿素、铵态氮和硝态氮等。氮输入对湿地甲烷氧化速率影响的研究多集中在水稻田,从目前的研究看影响的结果不尽一致,包括促进和抑制效应,具有较大的不确定性^[41,44,68-73]。氮输入增加水稻田土壤甲烷氧化速率多从微生物机制和养分限制理论角度解释。甲烷氧化是微生物介导的生物地球化学过程,甲烷氧化菌一般需要相对较高的氮素供给,其生长和活性一般受氮素限制^[11],因此,施加尿素或铵态氮均有助于提高水稻田土壤甲烷氧化菌活性,并促进水稻田土壤甲烷氧化速率^[41,44,68-70]。此外,已有文献研究表明 TypeI 型和 TypeII 型甲烷氧化菌对于氮输入的响应并不一致,如向水稻土施加 NH_4Cl 和 KNO_3 以及 ^{13}C 标记的甲烷气体,结果表明:铵态氮和硝态氮均促进 TypeI 型甲烷氧化菌生长并提高甲烷氧化速率,然而却抑制 TypeII 型甲烷氧化菌^[74];Alam 和 Jia^[75] 研究则表明,只有当施加铵态氮量达到 200 $\mu\text{g N/g}$ 时,铵态氮才对甲烷氧化菌产生影响,其中 TypeI 型甲烷氧化菌丰度增加,TypeII 型甲烷氧化菌丰度无变化;长期施加尿素仅显著地增加水稻土 TypeI 型甲烷氧化菌拷贝数^[76]。

关于氮输入对于内陆湿地(包括北方泥炭湿地、淡水沼泽湿地等)土壤甲烷氧化的影响也有报道,影响的结果主要包括无影响或抑制作用。5—6 年硝酸铵输入并未显著改变北方泥炭湿地土壤甲烷氧化速率^[26]。另外,从目前发表的文献看,不同形态输入对内陆湿地甲烷氧化的影响不尽一致,铵态氮输入对低位沼泽湿地、水淹平原湿地和北方苔原湿地土壤甲烷氧化速率没有显著影响^[40,77-78],对排干泥炭湿地土壤甲烷氧化速率具有抑制作用^[79];然而,硝态氮和亚硝态氮输入对北方泥炭湿地甲烷氧化均具有较明显的抑制作用,推测原因为硝态氮和亚硝态氮毒害作用所致^[80],当然硝态氮只有在高浓度时才可能产生毒害效应^[11]。氮输入对内陆湿地土壤甲烷氧化具有抑制作用的解释机制主要是一些在细胞水平或化学方面的推测,如铵态氮输入抑制湿地土壤甲烷氧化是由于 NH_4^+ 离子对甲烷氧化菌的渗透胁迫作用^[81]。王智平等^[82] 从酶基质竞争的角度

加以解释,认为 NH_4^+ 和 CH_4 具有相似的分子结构,可竞争甲烷氧化菌酶系统相同的位点或降低甲烷氧化酶活性,从而起到抑制甲烷氧化的作用。铵态氮输入对内陆湿地土壤甲烷氧化速率无影响的解释较为困难,一个可能的推测是铵态氮输入改变甲烷氧化菌群落结构,如氨耐受甲烷氧化细菌 (ammonium-tolerant) 和氨非耐受 (ammonium-intolerant) 甲烷氧化细菌间的转化等^[11]。

3.2 氮输入对湿地硝酸盐/亚硝酸盐型厌氧甲烷氧化的影响

近年来氮输入对湿地硝酸盐/亚硝酸盐介导的厌氧甲烷氧化 (nitrate/nitrite-dependent anaerobic methane oxidation, n-damo) 的影响开始受到关注。Shi 等^[83] 研究表明:施加尿素显著促进泥炭湿地土壤亚硝酸盐型厌氧甲烷氧化速率,与不施肥对照相比增加 221%。关于氮输入对湿地土壤硝酸盐/亚硝酸盐型厌氧甲烷氧化影响的微生物学机制,有研究表明氮肥 (nitrogen fertilizer) 输入水稻田和滨海湿地土壤显著增加介导硝酸盐/亚硝酸盐型厌氧甲烷氧化微生物数量^[84],淡水水体沉积物中亚硝酸盐型厌氧甲烷氧化活性以及 NC10 门细菌群落组成和丰度均随着水体氮素含量增加而显著增加^[85-86],然而,也有研究表明施加氮肥对水稻+冬季小麦轮作田土壤介导硝酸盐/亚硝酸盐型厌氧甲烷氧化菌的影响与土壤深度有关,对 0—40 cm 无影响,显著减少 40—60 cm 厌氧甲烷氧化 NC10 门细菌数量^[87]。Chen 等^[88] 研究表明:河口和潮间带湿地土壤铵态氮含量是影响 *Methyloirabilis oxyfera* 等介导硝酸盐/亚硝酸盐型厌氧甲烷氧化细菌数量主要土壤因子,然而, *Methanoperedens nitroreducens* 等介导硝酸盐/亚硝酸盐型厌氧甲烷氧化的古菌数量与土壤铵态氮含量无关。

4 氮输入对湿地甲烷代谢影响不确定性的思考

综上所述,目前已发表的关于氮输入对湿地土壤甲烷产生、氧化和排放影响的研究结果具有明显的复杂性和不确定性,除了硝态氮输入抑制湿地土壤甲烷产生已是共识,解释的机制主要为电子受体-底物竞争机制和离子毒性机制以外,其它影响的结果均较复杂,影响机制包括多个方面,图 1 总结了铵态氮和硝态氮输入对湿地甲烷产生、氧化和排放通量的影响的机制及不确定性。

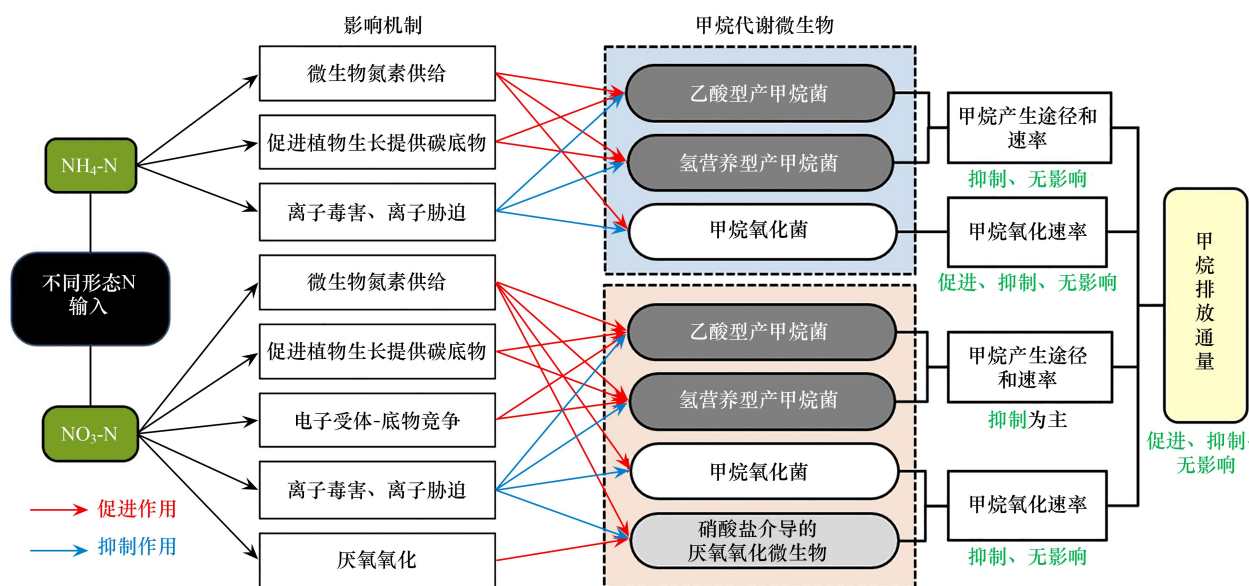


图 1 铵态氮和硝态氮输入对湿地甲烷产生、氧化和排放通量影响的机制和不确定性

Fig.1 Mechanism and uncertainty of effects of ammonium and nitrate inputs on CH_4 production, oxidation and emission in wetlands

目前已发表的两篇专门分析氮输入对湿地 (包括淡水湿地、滨海湿地和水稻田) 甲烷排放影响 meta-analysis 文章的结论均是硝态氮单独输入增加湿地甲烷排放通量^[14-15],这显然无法从硝态氮输入抑制湿地土壤甲烷产生的共识结论加以解释。本文认为可能有以下几个方面的原因:(1) 氮输入对湿地甲烷排放通量的影响是甲烷产生、氧化和传输 3 个环节影响的最终结果,而不是由其中某一个环节决定;(2) 目前鲜见同步测

定氮输入对湿地甲烷排放通量以及土壤甲烷产生和氧化速率影响的研究,即氮输入对甲烷排放通量影响研究,与氮输入对甲烷产生和氧化影响的研究多是各研究各的;(3)目前鲜见氮输入对湿地甲烷传输(植物体传输、气泡传输和扩散传输)能力影响的文献报道等。

陆地生态系统的 C、N 循环密切相互关联,Cotrufo 等^[89]认为资源限制是生物地球化学过程的主要制约因素,植物 vs 微生物活动的限制是决定土壤 C 周转和 N 循环的关键因素。本文认为湿地生态系统特征(包括土壤特征、植物特征)共同参与调控湿地甲烷产生、氧化和排放对于氮输入的响应。一方面,氮输入对于湿地土壤甲烷产生、氧化和排放通量的影响可能与不同研究区域湿地土壤本底氮含量、土壤有机碳含量及有机碳组分、土壤 C:N 生态化学计量特征有关,即研究样地土壤本底氮含量、碳含量和组成及 C:N 生态化学计量特征可能调控湿地土壤甲烷产生、氧化和排放对于氮输入的响应。我们假设在氮限制严重的湿地土壤,特别是微生物活动受到 N 限制严重的湿地土壤,氮输入可激发微生物活性,随后促进湿地土壤有机碳分解,产生较多低分子量有机碳,最终在产甲烷菌的作用下,提升了湿地甲烷产生速率;而在 N 限制相对较弱(甚至 N 过剩)的湿地土壤,氮输入并不一定改变微生物的活性,进而对湿地土壤甲烷产生速率的影响较小甚至无影响。此外,湿地土壤其它理化指标(氧化还原电位、pH、3 价铁含量等)甚至土壤深度等因素也可能调控着湿地土壤甲烷产生、甲烷氧化过程对于氮输入的响应。同时,研究样地的湿地植物群落类型、群落特征(地上/地下生物量、根系深度等)、植物枯落物质量、湿地植物与甲烷代谢功能微生物对于氮素需求的竞争等也可能调控湿地土壤甲烷产生、甲烷氧化过程对于氮输入的响应。图 2 为我们提出的湿地生态系统土壤特征、植物特征调控湿地甲烷产生、氧化和排放对于氮输入响应的概念图。

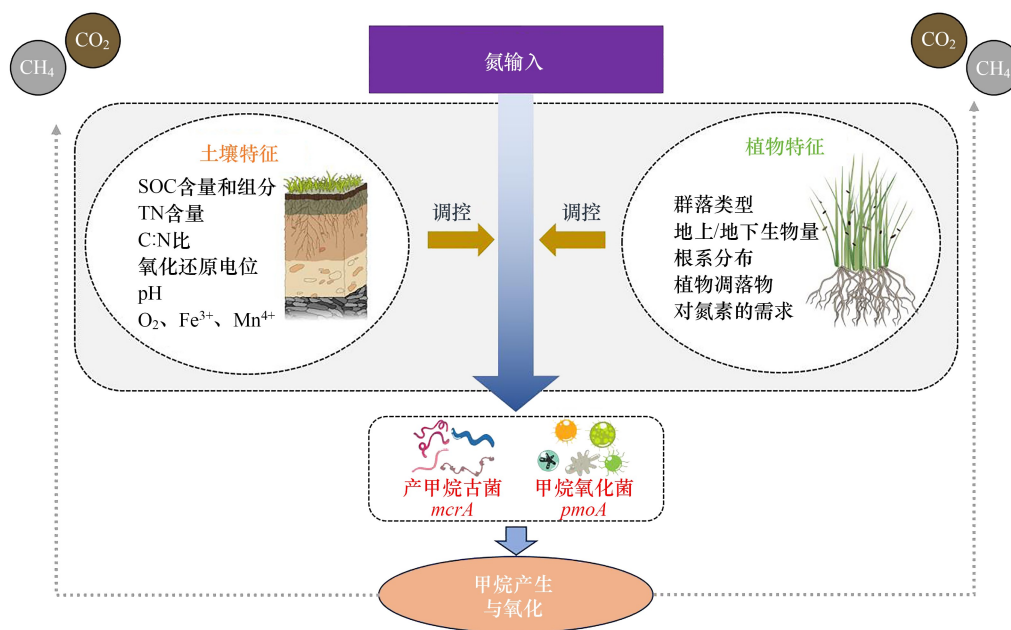


图 2 湿地生态系统特征调控氮输入对于湿地甲烷排放影响的概念图

Fig.2 Conceptual framework for ecosystem traits controlling effects of nitrogen input on CH₄ emissions from wetlands

SOC: 土壤有机碳, TN: 总氮, *mcrA*: 甲基辅酶 M 还原酶基因, *pmoA*: 甲烷单加氧化酶基因

5 未来研究展望

基于以上分析,本文认为今后关于氮输入对湿地甲烷代谢的研究应该在以下几个方面开展更加全面和深入的研究,以期科学地认识氮输入对湿地甲烷产生、氧化、传输和最终排放的影响及其机制,包括湿地生态系统特征在调控湿地甲烷代谢对氮输入的响应中的角色和机制,得出一些明确的、规律性的结论。

(1) 同步开展测定氮输入对湿地甲烷排放通量、甲烷产生和氧化速率以及甲烷传输能力影响的“整体性”研究,以期更好的回答氮输入情景下,湿地甲烷排放通量与湿地甲烷产生、氧化速率和甲烷传输能力的关系;

(2) 在继续开展氮输入对湿地甲烷产生速率和氧化速率的研究中,应加强对于影响机制的研究,包括电子受体-底物竞争机制、离子毒性机制、促进植物生长-碳底物供给增加机制以及 pH 调控机制等;

(3) 在减少氮输入对湿地甲烷排放通量影响的不确定性方面“下功夫”,力争取得氮输入对湿地甲烷排放通量影响的一些具有共识性、规律性的结论;

(4) 开展湿地生态系统土壤因子在调控湿地甲烷代谢对氮输入响应中的作用的研究,如湿地土壤 N 本底值、C 本底值、C:N 值、盐度和 pH 等因素在湿地甲烷代谢对氮输入响应中的调控作用;

(5) 开展湿地生态系统植物属性在调控湿地甲烷代谢对氮输入响应中的作用的研究,如植物群落类型、植物群落特征(密度、地上/地下生物量、根系深度等)、植物枯落物质量、植物与甲烷代谢功能微生物对于氮素需求的竞争等生物因子在湿地甲烷代谢对氮输入响应中的调控作用;

(6) 湿地生态系统遭受的环境影响往往是多因子、多过程的共同作用,以往的研究多集中于单一因子的影响,如氮输入对湿地甲烷代谢的影响,然而实际情况往往是氮输入增加与全球变暖、海平面上升等不同影响因子同时影响着内陆湿地、滨海湿地的甲烷代谢过程,因此,今后应加强双因子、多因子全球变化和人类活动过程对湿地甲烷代谢影响的研究。

参考文献(References):

- [1] Zhu Q A, Peng C H, Chen H A, Fang X Q, Liu J X, Jiang H, Yang Y Z, Yang G. Estimating global natural wetland methane emissions using process modelling: spatio-temporal patterns and contributions to atmospheric methane fluctuations. *Global Ecology and Biogeography*, 2015, 24 (8): 959-972.
- [2] Buckley D H, Baumgartner L K, Visscher P T. Vertical distribution of methane metabolism in microbial mats of the Great Sippewissett Salt Marsh. *Environmental Microbiology*, 2008, 10(4): 967-977.
- [3] Ström L, Tagesson T, Mastepanov M, Christensen T R. Presence of *Eriophorum scheuchzeri* enhances substrate availability and methane emission in an Arctic wetland. *Soil Biology and Biochemistry*, 2012, 45: 61-70.
- [4] Bridgman S D, Cadillo-Quiroz H, Keller J K, Zhuang Q L. Methane emissions from wetlands: biogeochemical, microbial, and modeling perspectives from local to global scales. *Global Change Biology*, 2013, 19(5): 1325-1346.
- [5] Banger K, Tian H Q, Lu C Q. Do nitrogen fertilizers stimulate or inhibit methane emissions from rice fields? *Global Change Biology*, 2012, 18 (10): 3259-3267.
- [6] Hu M J, Wilson B J, Sun Z G, Ren P, Tong C. Effects of the addition of nitrogen and sulfate on CH₄ and CO₂ emissions, soil, and pore water chemistry in a high marsh of the Min River Estuary in southeastern China. *Science of the Total Environment*, 2017, 579: 292-304.
- [7] Kim J, Chaudhary D R, Kang H. Nitrogen addition differently alters GHGs production and soil microbial community of tidal salt marsh soil depending on the types of halophyte. *Applied Soil Ecology*, 2020, 150: 103440.
- [8] Kim S Y, Veraart A J, Meima-Franke M, Bodelier P L E. Combined effects of carbon, nitrogen and phosphorus on CH₄ production and denitrification in wetland sediments. *Geoderma*, 2015, 259/260: 354-361.
- [9] Larmola T, Leppänen S M, Tuittila E S, Aarva M, Merilä P, Fritze H, Tirola M. Methanotrophy induces nitrogen fixation during peatland development. *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America*, 2014, 111(2): 734-739.
- [10] Lucía V, Irvine Irina C, Martiny Jennifer B H. Nonlinear responses in salt marsh functioning to increased nitrogen addition. *Ecology*, 2015, 96 (4): 936-47.
- [11] Bodelier P L E, Laanbroek H J. Nitrogen as a regulatory factor of methane oxidation in soils and sediments. *FEMS Microbiology Ecology*, 2004, 47 (3): 265-277.
- [12] Liu L L, Greaver T L. A review of nitrogen enrichment effects on three biogenic GHGs: the CO₂ sink may be largely offset by stimulated N₂O and CH₄ emission. *Ecology Letters*, 2009, 12(10): 1103-1117.
- [13] Deng L, Huang C B, Kim D G, Shanguan Z P, Wang K B, Song X Z, Peng C H. Soil GHG fluxes are altered by N deposition: new data indicate lower N stimulation of the N₂O flux and greater stimulation of the calculated C pools. *Global Change Biology*, 2020, 26(4): 2613-2629.
- [14] Chen M L, Chang L, Zhang J M, Guo F C, Vymazal J, He Q, Chen Y. Global nitrogen input on wetland ecosystem: the driving mechanism of soil labile carbon and nitrogen on greenhouse gas emissions. *Environmental Science and Ecotechnology*, 2020, 4: 100063.

- [15] Wu J J, Cheng X L, Xing W, Liu G H. Soil-atmosphere exchange of CH₄ in response to nitrogen addition in diverse upland and wetland ecosystems: a meta-analysis. *Soil Biology and Biochemistry*, 2022, 164: 108467.
- [16] Dong H B, Yao Z S, Zheng X H, Mei B L, Xie B H, Wang R, Deng J, Cui F, Zhu J G. Effect of ammonium-based, non-sulfate fertilizers on CH₄ emissions from a paddy field with a typical Chinese water management regime. *Atmospheric Environment*, 2011, 45(5): 1095-1101.
- [17] Yao Z S, Zheng X H, Dong H B, Wang R, Mei B L, Zhu J G. A 3-year record of N₂O and CH₄ emissions from a sandy loam paddy during rice seasons as affected by different nitrogen application rates. *Agriculture, Ecosystems & Environment*, 2012, 152: 1-9.
- [18] Morris J, Ye R Z, Silva L C R, Horwath W R. Nitrogen fertilization had No effect on CH₄ and N₂O emissions in rice planted in rewetted peatlands. *Soil Science Society of America Journal*, 2017, 81(1): 224-232.
- [19] Xie B H, Zheng X H, Zhou Z X, Gu J X, Zhu B, Chen X, Shi Y, Wang Y Y, Zhao Z C, Liu C Y, Yao Z S, Zhu J G. Effects of nitrogen fertilizer on CH₄ emission from rice fields: multi-site field observations. *Plant and Soil*, 2010, 326(1/2): 393-401.
- [20] Zheng X, Wang Y, Han S, Huang Y, Zhu J, Butterbach-Bahl K. Effects of elevated CO₂ and N fertilization on CH₄ emissions from paddy rice fields. *Global Biogeochemical Cycles*, 2004, 18: GB3009.
- [21] Liu J N, Zang H D, Xu H S, Zhang K, Jiang Y, Hu Y G, Zeng Z H. Methane emission and soil microbial communities in early rice paddy as influenced by urea-N fertilization. *Plant and Soil*, 2019, 445(1): 85-100.
- [22] Shao R, Xu M, Li R Q, Dai X Q, Liu L X, Yuan Y, Wang H M, Yang F T. Land use legacies and nitrogen fertilization affect methane emissions in the early years of rice field development. *Nutrient Cycling in Agroecosystems*, 2017, 107(3): 369-380.
- [23] Xu P, Zhou W, Jiang M D, Khan I, Shaaban M, Jiang Y B, Hu R G. Nitrogen fertilizer application in the rice-growing season can stimulate methane emissions during the subsequent flooded fallow period. *The Science of the Total Environment*, 2020, 744: 140632.
- [24] Datta A, Santra S C, Adhya T K. Effect of inorganic fertilizers (N, P, K) on methane emission from tropical rice field of India. *Atmospheric Environment*, 2013, 66: 123-130.
- [25] Silvola J, Saarnio S, Foot J, Sundh I, Greenup A, Heijmans M, Ekberg A, Mitchell E, van Breemen N. Effects of elevated CO₂ and N deposition on CH₄ emissions from European mires. *Global Biogeochemical Cycles*, 2003, 17(2): 1068, doi:10.1029/2002GB001886.
- [26] Nykänen H, Vasander H, Huttunen J T, Martikainen P J. Effect of experimental nitrogen load on methane and nitrous oxide fluxes on ombrotrophic boreal peatland. *Plant and Soil*, 2002, 242(1): 147-155.
- [27] Granberg G, Sundh I, Svensson B H, Nilsson M. Effects of temperature, and nitrogen and sulfur deposition, on methane emission from a boreal mire. *Ecology*, 2001, 82(7): 1982-1998.
- [28] Shi Y, Ma Q X, Kuzyakov Y, Sheng L X, Liu H Y, Wang Z Q. Nitrite-dependent anaerobic oxidation decreases methane emissions from peatlands. *Soil Biology and Biochemistry*, 2022, 169: 108658.
- [29] Zhang L H, Song C C, Zheng X H, Wang D X, Wang Y Y. Effects of nitrogen on the ecosystem respiration, CH₄ and N₂O emissions to the atmosphere from the freshwater marshes in northeast China. *Environmental Geology*, 2007, 52(3): 529-539.
- [30] Gong Y, Wu J H, Sey A A, Le T B. Nitrogen addition (NH₄NO₃) mitigates the positive effect of warming on methane fluxes in a coastal bog. *Catena*, 2021, 203: 105356.
- [31] Hu M J, Peñuelas J, Sardans J, Huang J F, Li D D, Tong C. Effects of nitrogen loading on emission of carbon gases from estuarine tidal marshes with varying salinity. *Science of the Total Environment*, 2019, 667: 648-657.
- [32] Xiao L L, Xie B H, Liu J C, Zhang H X, Han G X, Wang O M, Liu F H. Stimulation of long-term ammonium nitrogen deposition on methanogenesis by Methanocellaceae in a coastal wetland. *Science of the Total Environment*, 2017, 595: 337-343.
- [33] 牟晓杰, 刘兴土, 全川, 孙志高. 闽江河口短叶茳芩湿地 CH₄和 N₂O 排放对氮输入的短期响应. *环境科学*, 2012, 33(7): 2482-2489.
- [34] Zhang Y H, Ding W X, Cai Z C, Valerie P, Han F X. Response of methane emission to invasion of *Spartina alterniflora* and exogenous N deposition in the coastal salt marsh. *Atmospheric Environment*, 2010, 44(36): 4588-4594.
- [35] Klüber H D, Conrad R. Effects of nitrate, nitrite, NO and N₂O on methanogenesis and other redox processes in anoxic rice field soil. *FEMS Microbiology Ecology*, 1998, 25(3): 301-318.
- [36] Zhou Z M, Yu Z T, Meng Q X. Effects of nitrate on methane production, fermentation, and microbial populations in *in vitro* ruminal cultures. *Bioresource Technology*, 2012, 103(1): 173-179.
- [37] Patra A K, Yu Z T. Combinations of nitrate, saponin, and sulfate additively reduce methane production by rumen cultures *in vitro* while not adversely affecting feed digestion, fermentation or microbial communities. *Bioresource Technology*, 2014, 155: 129-135.
- [38] Achtnich C, Bak F, Conrad R. Competition for electron donors among nitrate reducers, ferric iron reducers, sulfate reducers, and methanogens in anoxic paddy soil. *Biology and Fertility of Soils*, 1995, 19(1): 65-72.
- [39] Bridgman S D, Richardson C J. Mechanisms controlling soil respiration (CO₂ and CH₄) in southern peatlands. *Soil Biology and Biochemistry*, 1992, 24(11): 1089-1099.

- [40] Keller J K, Bridgman S D, Chapin C T, Iversen C M. Limited effects of six years of fertilization on carbon mineralization dynamics in a Minnesota Fen. *Soil Biology and Biochemistry*, 2005, 37(6): 1197-1204.
- [41] Bodelier P L E, Hahn A P, Arth I R, Frenzel P. Effects of ammonium-based fertilisation on microbial processes involved in methane emission from soils planted with rice. *Biogeochemistry*, 2000, 51(3): 225-257.
- [42] Eriksson T, Öquist M G, Nilsson M B. Production and oxidation of methane in a boreal mire after a decade of increased temperature and nitrogen and sulfur deposition. *Global Change Biology*, 2010, 16(7): 2130-2144.
- [43] Herbert E R, Schubauer-Berigan J P, Craft C B. Effects of 10 yr of nitrogen and phosphorus fertilization on carbon and nutrient cycling in a tidal freshwater marsh. *Limnology and Oceanography*, 2020, N/A: 1-19.
- [44] Krüger M, Eller G, Conrad R, Frenzel P. Seasonal variation in pathways of CH₄ production and in CH₄ oxidation in rice fields determined by stable carbon isotopes and specific inhibitors. *Global Change Biology*, 2002, 8(3): 265-280.
- [45] Berner R A. Early diagenesis: a theoretical approach. Princeton, NJ: Princeton University Press, 1980.
- [46] Bragazza L, Buttler A, Habermacher J, Brancaloni L, Gerdol R, Fritze H, Hanajik P, Laiho R, Johnson D. High nitrogen deposition alters the decomposition of bog plant litter and reduces carbon accumulation. *Global Change Biology*, 2012, 18(3): 1163-1172.
- [47] Ye R Z, Jin Q S, Bohannan B, Keller J K, McAllister S A, Bridgman S D. pH controls over anaerobic carbon mineralization, the efficiency of methane production, and methanogenic pathways in peatlands across an ombrotrophic-minerotrophic gradient. *Soil Biology and Biochemistry*, 2012, 54: 36-47.
- [48] Söderberg K H, Bååth E. The influence of nitrogen fertilisation on bacterial activity in the rhizosphere of barley. *Soil Biology and Biochemistry*, 2004, 36(1): 195-198.
- [49] Kotsyurbenko O R, Friedrich M W, Simankova M V, Nozhevnikova A N, Golyshin P N, Timmis K N, Conrad R. Shift from acetoclastic to H₂-dependent methanogenesis in a West Siberian peat bog at low pH values and isolation of an acidophilic *Methanobacterium* strain. *Applied and Environmental Microbiology*, 2007, 73(7): 2344-2348.
- [50] Gulledge J, Schimel J P. Low-concentration kinetics of atmospheric CH₄ oxidation in soil and mechanism of NH₄⁺ inhibition. *Applied and Environmental Microbiology*, 1998, 64(11): 4291-4298.
- [51] Holmes M E, Chanton J P, Bae H S, Ogram A. Effect of nutrient enrichment on $\delta^{13}\text{C}$ CH₄ and the methane production pathway in the *Florida* Everglades. *Journal of Geophysical Research: Biogeosciences*, 2014, 119(7): 1267-1280.
- [52] Fujishima S, Miyahara T, Noike T. Effect of moisture content on anaerobic digestion of dewatered sludge: ammonia inhibition to carbohydrate removal and methane production. *Water Science and Technology: a Journal of the International Association on Water Pollution Research*, 2000, 41(3): 119-127.
- [53] Wiegant W M, Zeeman G. The mechanism of ammonia inhibition in the thermophilic digestion of livestock wastes. *Agricultural Wastes*, 1986, 16(4): 243-253.
- [54] Gao S M, Zhao M X, Chen Y, Yu M J, Ruan W Q. Tolerance response to *in situ* ammonia stress in a pilot-scale anaerobic digestion reactor for alleviating ammonia inhibition. *Bioresource Technology*, 2015, 198: 372-379.
- [55] Jiang Y, Banks C, Zhang Y, Heaven S, Longhurst P. Quantifying the percentage of methane formation via acetoclastic and syntrophic acetate oxidation pathways in anaerobic digesters. *Waste Management*, 2018, 71: 749-756.
- [56] Koster I W, Lettinga G. The influence of ammonium-nitrogen on the specific activity of pelletized methanogenic sludge. *Agricultural Wastes*, 1984, 9(3): 205-216.
- [57] Fotidis I A, Karakashev D, Kotsopoulos T A, Martzopoulos G G, Angelidaki I. Effect of ammonium and acetate on methanogenic pathway and methanogenic community composition. *FEMS Microbiology Ecology*, 2013, 83(1): 38-48.
- [58] Freude C, Blaser M. Carbon isotope fractionation during catabolism and anabolism in acetogenic bacteria growing on different substrates. *Applied and Environmental Microbiology*, 2016, 82(9): 2728-2737.
- [59] Clarens M, Bernet N, Delgenès J P, Moletta R. Effects of nitrogen oxides and denitrification by *Pseudomonas stutzeri* on acetotrophic methanogenesis by *Methanosarcina mazei*. *FEMS Microbiology Ecology*, 1998, 25(3): 271-276.
- [60] Singh J. Methanotrophs: the potential biological sink to mitigate the global methane load. *Current Science*, 2011, 100: 29-30.
- [61] Whalen S C, Reeburgh W S. Moisture and temperature sensitivity of CH₄ oxidation in boreal soils. *Soil Biology and Biochemistry*, 1996, 28(10/11): 1271-1281.
- [62] van der Nat F J W A, Middelburg J J. Seasonal variation in methane oxidation by the rhizosphere of *Phragmites australis* and *Scirpus lacustris*. *Aquatic Botany*, 1998, 61(2): 95-110.
- [63] Wrede C, Brady S, Rockstroh S, Dreier A, Kokoschka S, Heinzelmann S M, Heller C, Reitner J, Taviani M, Daniel R, Hoppert M. Aerobic and anaerobic methane oxidation in terrestrial mud volcanoes in the Northern Apennines. *Sedimentary Geology*, 2012, 263/264: 210-219.

- [64] Barnes R O, Goldberg E D. Methane production and consumption in anoxic marine sediments. *Geology*, 1976, 4(5): 297.
- [65] Purdy K J, Nedwell D B, Embley T M. Analysis of the sulfate-reducing bacterial and methanogenic archaeal populations in contrasting Antarctic sediments. *Applied and Environmental Microbiology*, 2003, 69(6): 3181-3191.
- [66] Raghoebarsing A A, Pol A, van de Pas-Schoonen K T, Smolders A J P, Ettwig K F, Rijpstra W I C, Schouten S, Damsté J S S, Op den Camp H J M, Jetten M S M, Strous M. A microbial consortium couples anaerobic methane oxidation to denitrification. *Nature*, 2006, 440(7086): 918-921.
- [67] Beal E J, House C H, Orphan V J. Manganese- and iron-dependent marine methane oxidation. *Science*, 2009, 325(5937): 184-187.
- [68] Dan J G, Krüger M, Frenzel P, Conrad R. Effect of a late season urea fertilization on methane emission from a rice field in Italy. *Agriculture, Ecosystems & Environment*, 2001, 83(1/2): 191-199.
- [69] Krüger M, Frenzel P. Effects of N-fertilisation on CH₄ oxidation and production, and consequences for CH₄ emissions from microcosms and rice fields. *Global Change Biology*, 2003, 9(5): 773-784.
- [70] Bodelier P L E, Roslev P, Henckel T, Frenzel P. Stimulation by ammonium-based fertilizers of methane oxidation in soil around rice roots. *Nature*, 2000, 403(6768): 421-424.
- [71] Conrad R, Rothfuss F. Methane oxidation in the soil surface layer of a flooded rice field and the effect of ammonium. *Biology and Fertility of Soils*, 1991, 12(1): 28-32.
- [72] Cai Z C, Yan X Y. Kinetic model for methane oxidation by paddy soil as affected by temperature, moisture and N addition. *Soil Biology and Biochemistry*, 1999, 31(5): 715-725.
- [73] Cai Z C, Mosier A R. Effect of NH₄Cl addition on methane oxidation by paddy soils. *Soil Biology and Biochemistry*, 2000, 32(11/12): 1537-1545.
- [74] Mohanty S R, Bodelier P L E, Floris V, Conrad R. Differential effects of nitrogenous fertilizers on methane-consuming microbes in rice field and forest soils. *Applied and Environmental Microbiology*, 2006, 72(2): 1346-1354.
- [75] Alam M S, Jia Z J. Inhibition of methane oxidation by nitrogenous fertilizers in a paddy soil. *Frontiers in Microbiology*, 2012, 3: 246.
- [76] Zheng Y, Zhang L M, Zheng Y M, Di H J, He J Z. Abundance and community composition of methanotrophs in a Chinese paddy soil under long-term fertilization practices. *Journal of Soils and Sediments*, 2008, 8(6): 406-414.
- [77] Boon P I, Lee K. Methane oxidation in sediments of a floodplain wetland in south-eastern Australia. *Letters in Applied Microbiology*, 1997, 25(2): 138-142.
- [78] Moosavi S C, Crill P M. CH₄ oxidation by tundra wetlands as measured by a selective inhibitor technique. *Journal of Geophysical Research Biogeosciences*, 1998, 103(D22): 29093-29106.
- [79] Crill P M, Martikainen P J, Nykänen H, Silvola J. Temperature and N fertilization effects on methane oxidation in a drained peatland soil. *Soil Biology and Biochemistry*, 1994, 26(10): 1331-1339.
- [80] Kravchenko I K. Methane oxidation in boreal peat soils treated with various nitrogen compounds. *Plant and Soil*, 2002, 242(1): 157-162.
- [81] Dunfield P, Knowles R. Kinetics of inhibition of methane oxidation by nitrate, nitrite, and ammonium in a humisol. *Applied and Environmental Microbiology*, 1995, 61(8): 3129-3135.
- [82] 王智平. 陆地生态系统甲烷(CH₄)循环. 第三届现代生态学讲座暨国际学术研讨会, 2005.
- [83] Shi Y, Zhang X Y, Wang Z C, Xu Z W, He C G, Sheng L X, Liu H Y, Wang Z Q. Shift in nitrogen transformation in peatland soil by nitrogen inputs. *The Science of the Total Environment*, 2021, 764: 142924.
- [84] Wang J Q, Yao X W, Jia Z J, Zhu L Z, Zheng P, Kartal B, Hu B L. Nitrogen input promotes denitrifying methanotrophs' abundance and contribution to methane emission reduction in coastal wetland and paddy soil. *Environmental Pollution*, 2022, 302: 119090.
- [85] Long Y, Guo Q W, Li N N, Li B X, Tong T L, Xie S G. Spatial change of reservoir nitrite-dependent methane-oxidizing microorganisms. *Annals of Microbiology*, 2017, 67(2): 165-174.
- [86] Shen L D, Tian M H, Cheng H X, Liu X, Yang Y L, Liu J Q, Xu J B, Kong Y, Li J H, Liu Y. Different responses of nitrite- and nitrate-dependent anaerobic methanotrophs to increasing nitrogen loading in a freshwater reservoir. *Environmental Pollution*, 2020, 263(Pt A): 114623.
- [87] Hui C, Guo X X, Sun P F, Lin H, Zhang Q H, Liang Y H, Zhao Y H. Depth-specific distribution and diversity of nitrite-dependent anaerobic ammonium and methane-oxidizing bacteria in upland-cropping soil under different fertilizer treatments. *Applied Soil Ecology*, 2017, 113: 117-126.
- [88] Chen F Y, Zheng Y L, Hou L J, Niu Y H, Gao D Z, An Z R, Zhou J, Yin G Y, Dong H P, Han P, Liang X, Liu M. Microbial abundance and activity of nitrite/nitrate-dependent anaerobic methane oxidizers in estuarine and intertidal wetlands: Heterogeneity and driving factors. *Water Research*, 2021, 190: 116737.
- [89] Francesca Cotrufo M, Lavalley J M, Zhang Y, Hansen P M, Paustian K H, Schipanski M, Wallenstein M D. In-N-Out: a hierarchical framework to understand and predict soil carbon storage and nitrogen recycling. *Global Change Biology*, 2021, 27(19): 4465-4468.