

DOI: 10.20103/j.stxb.202406151388

廖宇晨, 孙志高, 方冠荣, 宋振阳, 贺攀霏, 姚钦予. 氮负荷增强对冬季闽江河口芦苇湿地土壤 N_2O 产生过程的影响. 生态学报, 2025, 45(6): 2655-2668.
Liao Y C, Sun Z G, Fang G R, Song Z Y, He P F, Yao Q Y. Effects of enhanced nitrogen load on N_2O production in *Phragmites australis* marsh soil of the Minjiang River estuary in winter. Acta Ecologica Sinica, 2025, 45(6): 2655-2668.

氮负荷增强对冬季闽江河口芦苇湿地土壤 N_2O 产生过程的影响

廖宇晨^{1,2}, 孙志高^{1,2,*}, 方冠荣^{1,2}, 宋振阳^{1,2}, 贺攀霏^{1,2}, 姚钦予^{1,2}

1 福建师范大学福建省亚热带资源与环境重点实验室, 福州 350117

2 福建师范大学湿润亚热带生态地理过程教育部重点实验室, 福州 350117

摘要: 选择闽江河口典型芦苇 (*Phragmites australis*) 湿地为研究对象, 基于野外氮负荷增强模拟试验 (NN, 无氮负荷处理, $0\text{ g N m}^{-2}\text{ a}^{-1}$; NL, 低氮负荷处理, $12.5\text{ g N m}^{-2}\text{ a}^{-1}$; NM, 中氮负荷处理, $25.0\text{ g N m}^{-2}\text{ a}^{-1}$; NH, 高氮负荷处理, $75.0\text{ g N m}^{-2}\text{ a}^{-1}$), 通过获取不同年份冬季各氮负荷样地土壤开展室内培养实验, 对比研究了氮负荷持续 9 个月 (2021 年 12 月, WT9) 和 21 个月 (2022 年 12 月, WT21) 后湿地土壤的 N_2O 产生过程。结果表明, 氮负荷增强条件下湿地土壤不同过程的 N_2O 产生量发生了明显改变, 不同年份土壤的 N_2O 总产生量均在 NM 处理下最高。异养反硝化作用对不同年份土壤的 N_2O 产生均存在较大的削弱作用, 但其 N_2O 产生量整体随氮负荷时间的延长而增加; 不同氮负荷处理下的非生物作用均是 N_2O 产生的重要过程, 但其 N_2O 产生量在较短时期 (WT9) 随氮负荷水平的升高呈降低变化, 而在较长时期 (WT21) 则呈增加趋势。不同氮负荷处理下非生物过程对 N_2O 产生的较大贡献主要与该区土壤铁锰、硫化物等含量丰富以及氮负荷增强条件下土壤酸碱状况 (pH) 的改变有关。氮负荷水平与温度对不同年份冬季土壤的 N_2O 产生过程均存在不同程度的交互影响, 不同处理下的 N_2O 产生在 WT9 时期的较低温度下 ($5.5\text{--}11.5\text{ }^{\circ}\text{C}$) 以非生物作用为主, 在 WT21 时期以硝化作用和非生物作用为主; 而在较高温度下 ($17.5\text{ }^{\circ}\text{C}$), 不同年份冬季土壤的 N_2O 产生均以非生物作用和硝化细菌反硝化作用为主。研究发现, 氮负荷增强改变了不同年份冬季土壤 N_2O 产生的生物和非生物贡献模式, 其主要通过改变土壤养分状况来影响 N_2O 产生的生物或非生物过程。在闽江河口湿地冬季低温并叠加氮负荷增强条件下, 其对土壤 N_2O 产生的综合影响表现为抵消效应, 而这有助于降低该区冬季的 N_2O 排放量。

关键词: 氧化亚氮; 氮负荷处理; 非生物过程; 冬季; 闽江河口

Effects of enhanced nitrogen load on N_2O production in *Phragmites australis* marsh soil of the Minjiang River estuary in winter

LIAO Yuchen^{1,2}, SUN Zhigao^{1,2,*}, FANG Guanrong^{1,2}, SONG Zhenyang^{1,2}, HE Panfei^{1,2}, YAO Qinyu^{1,2}

1 Fujian Provincial Key Laboratory for Subtropical Resources and Environment, Fujian Normal University, Fuzhou 350117, China

2 Key Laboratory of Humid Subtropical Eco-geographical Process (Fujian Normal University), Ministry of Education, Fuzhou 350117, China

Abstract: The typical *Phragmites australis* marsh in the Minjiang estuary was selected as the study object and a field N load experiment was conducted, which included four N load levels (NN, no N treatment, $0\text{ g N m}^{-2}\text{ a}^{-1}$; NL, low N treatment, $12.5\text{ g N m}^{-2}\text{ a}^{-1}$; NM, medium N treatment, $25\text{ g N m}^{-2}\text{ a}^{-1}$; and NH, high N treatment, $75\text{ g N m}^{-2}\text{ a}^{-1}$). The marsh soils were sampled in different N load treatments after 9 (December 2021, WT9) and 21 months (December 2022, WT21) of N import and the N_2O production processes of different marsh soils were comparatively assessed through incubation experiments. Results showed that, with increased N loads, the sources of N_2O production varied significantly, with the NM

基金项目: 福建省自然科学基金重点项目 (2023J02012); 国家自然科学基金面上项目 (42371105, 41971128); 福建省“闽江学者奖励计划”项目

收稿日期: 2024-06-15; **网络出版日期:** 2024-12-20

* 通讯作者 Corresponding author. E-mail: zhigaosun@163.com

treatment showing the highest total N_2O emissions during both the WT9 and WT21 periods. While the heterotrophic denitrification process significantly reduced N_2O emissions in the soils during the WT9 and WT21 periods, N_2O emissions generally rose with extended N loading durations. Under different N load treatments, the N_2O productions of marsh soils were primarily due to the non-biological process, but its N_2O production generally decreased with increasing N load levels in a short-term period (WT9) and increased in a long-term period (WT21). The higher contributions of non-biological process to N_2O production in different N load treatments mainly depended on the abundant iron (Fe), manganese (Mn) and sulfides in soils and the great alteration of soil pH under enhanced N load conditions. The interactions between N load levels and temperature showed different influences on N_2O production processes in soils of WT9 and WT21 periods. At lower temperature ($5.5\text{--}11.5\text{ }^\circ\text{C}$), the N_2O productions in soils of different N load treatments at WT9 period were mainly dependent on non-biological process, while those at WT21 period were predominated by nitrification and non-biological processes. However, at higher temperatures ($17.5\text{ }^\circ\text{C}$), the N_2O productions in soils of WT9 and WT21 periods were predominantly governed by non-biological process and nitrifier denitrification process. This study found that enhanced N load altered the original contribution patterns of biological and non-biological processes to soil N_2O production at WT9 and WT21 periods, which mainly influenced the biological or non-biological processes of N_2O production by altering soil nutrient status. Under low temperature and N load conditions in winter in the Minjiang estuary marsh, the interactions between temperature and N enrichment showed an offset effect on soil N_2O production, which was favorable for reducing the N_2O emissions in winter.

Key Words: nitrous oxide; nitrogen load treatment; non-biological process; winter; Minjiang estuary

N_2O 是一种强效温室气体,其单分子增温潜势约为 CO_2 的 273 倍,同时会引起平流层臭氧的严重消耗^[1]。受人类活动的影响,当前全球大气 N_2O 浓度已超过 335×10^{-9} ,并以 $0.25\%\text{--}0.31\%$ 的年增长率急剧上升^[2-3]。河口湿地是大气 N_2O 的重要自然来源,其排放量约占全球 N_2O 总排放量的 9.6% ^[4],对全球温室气体排放具有重要贡献。

河口湿地是响应全球气候变化最为敏感的生态系统之一,其在全球氮循环中发挥着不可替代的作用。河口湿地周期性的淹水可导致氧化还原条件交替频繁,其在厌氧条件下可通过微生物介导下的生物过程(反硝化作用、硝化细菌反硝化作用和硝酸盐异化还原成铵等)产生 N_2O ;而在好氧条件下则由氨氧化微生物介导的硝化过程产生 N_2O ,同时该过程还可为反硝化作用提供反应底物^[5]。此外,非生物过程还可通过羟胺(NH_2OH)氧化以及化学反硝化等途径产生 N_2O ^[6],其对于 N_2O 产生的贡献也不可忽视。在一些河口地区,非生物过程对于 N_2O 产生的贡献甚至达 $16\%\text{--}35\%$ ^[7]。当前,生物入侵、海平面上升、氮负荷增强以及生态修复工程等已成为改变河口湿地氮循环过程的关键因素,其中氮负荷增强导致的土壤养分条件改变不但可直接影响微生物介导下的上述氮转化过程,而且亦可为非生物过程提供良好的反应底物,其对于河口湿地氮气态损失(尤其是 N_2O 产生与释放)的影响已成为当前全球变化研究的热点。

现有研究表明,在一些暖温带河口湿地(如美国 Waquoit Bay 和 Rowley 河口), N_2O 排放通常具有明显的季节变化特征,其排放峰值主要集中在植被生长旺期,特别是夏季的较高温度可促进 N_2O 的产生与排放^[8-9];而冬季温度较低,参与 N_2O 产生的微生物活性减弱,导致其 N_2O 产生量相对较低^[10]。但也有暖温带河口湿地(如黄河口)的研究发现^[11-12],冬季 N_2O 的排放贡献由于非生物过程的持续进行而较高(占全年 N_2O 通量的 $20\%\text{--}25\%$)。相较于暖温带河口,亚热带河口湿地(如澳大利亚 Brisbane 河口)的冬季温度相对较高,微生物活性仍较强,由此使得其 N_2O 排放贡献占主导(占 CO_2 当量的 $67\%\text{--}95\%$)^[13]。在氮负荷增强背景下,冬季亚热带河口湿地的 N_2O 产生与排放将发生何种改变? 尚待揭示。当前,国外已围绕自然背景及氮负荷增强条件下河口湿地 N_2O 排放特征、产生过程及影响机制等开展了较多研究^[4, 8-9],而国内的相关研究主要集中于暖温

带和亚热带主要河口(如黄河口、长江口、九龙江口和珠江口等),且多侧重于自然背景下不同时空尺度湿地 N_2O 通量特征(主要为夏秋季)^[14]、影响因素^[15–16]以及其对于生物入侵和海平面上升的响应^[17–18],而关于氮负荷增强条件下冬季湿地土壤 N_2O 产生与释放过程的研究还比较薄弱。

闽江河口湿地位于我国中亚热带和南亚热带过渡区,是闽江与东海相互作用形成的重要蓝碳生态系统,其对于维护区域生态安全发挥着重要作用^[19]。当前,高强度的人类活动使得大量含氮物质通过大气沉降和地表径流等途径进入闽江河口湿地^[19]。据统计,闽江河口的营养盐入海总量近年来一直处于较高水平 $((3.8–6.1)\times 10^4\text{ t})$ ^[20],湿地氮负荷接近 $21\text{ g N m}^{-2}\text{ a}^{-1}$ ^[21]。另外,该区的氮沉降量介于 $3.0–3.5\text{ g N m}^{-2}\text{ a}^{-1}$ ^[22], (已超过其临界负荷量 $(2.0–2.5\text{ g N m}^{-2}\text{ a}^{-1})$ ^[19,23],不致使生态系统发生长期化学危害的最高氮沉降量)。可见,闽江河口湿地充当着外源氮的一个重要“汇”,而这一“汇”的形成对于湿地土壤 N_2O 产生的生物和非生物过程的影响尚不明确^[19]。芦苇(*Phragmites australis*)是闽江河口分布最为广泛的本土优势植被之一,也是响应氮养分负荷较为敏感的典型植被,其对于维持河口湿地生态功能具有十分重要的作用^[24]。当前,关于该区湿地 N_2O 的相关研究主要侧重于夏秋季自然湿地或人工湿地(养殖塘为主) N_2O 通量特征^[25–26]、产生潜力^[27]、界面传输过程^[28]及其影响因素^[14,21],而关于冬季 N_2O 产生过程以及其对于氮负荷增强的响应研究还鲜有报道。基于此,本研究以该区芦苇湿地为研究对象,基于野外氮负荷增强试验,探讨了氮负荷增强条件下冬季湿地土壤的 N_2O 产生过程以及其对于温度的响应^[19]。研究结果可为该区湿地碳汇功能的准确评估提供科学依据。

1 研究区域与研究方法

1.1 研究区概况

闽江河口是我国东南沿海最具代表性的亚热带河口之一。该区气候暖热潮湿,雨热同期,年均气温 $19.3\text{ }^{\circ}\text{C}$ 。鳔鱼滩位于闽江河口入海口南侧,是闽江泥沙多年淤积形成的面积最大的河口潮滩,总面积为 3120 hm^2 。该区潮汐为正规半日潮,受闽江径流与潮汐的共同影响,水文过程较为复杂。该区土壤以滨海盐土为主,主要植被包括芦苇(*Phragmites australis*)、短叶茼蒿(*C. malaccensis*)、蔗草(*Scirpus triquetus*)和秋茄(*Kandelia obovata*)等^[19,24]。

1.2 研究方法

1.2.1 野外试验设计

在鳔鱼滩西北部的芦苇湿地分布区,选择生境条件及植物生长状况相近的样地,于2021年3月开展野外氮负荷增强模拟试验。基于该区现有资料,综合考虑氮沉降 $(3.0–3.5\text{ g N m}^{-2}\text{ a}^{-1})$ 和陆源氮输入 $(21.0\text{ g N m}^{-2}\text{ a}^{-1})$ 的影响,将自然背景氮负荷量确定为 $25.0\text{ g N m}^{-2}\text{ a}^{-1}$ ^[19]。结合闽江流域2000–2015年人均氮足迹的增长趋势 $(23.15–27.48\text{ g N m}^{-2}\text{ a}^{-1})$ (图1)^[29],随着城市规模的不断扩大以及经济社会的快速发展,未来闽江流域的氮负荷将持续增强。据此情景,本研究设计了4个氮负荷水平,即:无氮负荷处理(NN,无额外氮输入)、低氮负荷处理(NL,实际输氮 $12.5\text{ g N m}^{-2}\text{ a}^{-1}$)、中氮负荷处理(NM,实际输氮 $25.0\text{ g N m}^{-2}\text{ a}^{-1}$)和高氮负荷处理(NH,实际输氮 $75.0\text{ g N m}^{-2}\text{ a}^{-1}$),每个处理随机布设3个重复样地 $(1.5\text{ m}\times 2\text{ m})$ 。在综合考虑该区氮沉降和入海营养盐中 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 和 $\text{NO}_3^-\text{-N}$ 比例的基础上,将二者比例设定为1:3.3。自2021年3月开始,每隔30 d左右,按照上述各处理的氮负荷要求,将 NH_4Cl 和 KNO_3 溶解在10 L水中,在小潮日对不同样地进行输氮,对照样地喷洒等量的水^[19,24]。

1.2.2 样品采集与处理

2021年12月(氮负荷持续9个月,代表2021年冬季,记为WT9)和2022年12月(氮负荷持续21个月,代表2022年冬季,记为WT21),在上述不同氮负荷处理样地内采集表层土壤(0–10 cm),共24份。将采集的土壤样品带回实验室,自然风干,研磨过筛后分为2份:一份用于培养试验;另一份用于土壤理化性质测定(表1)。土壤pH采用电位法(水土比5:1)(Starter 300便携式pH计,美国)测定;土壤电导率(EC)采用便携

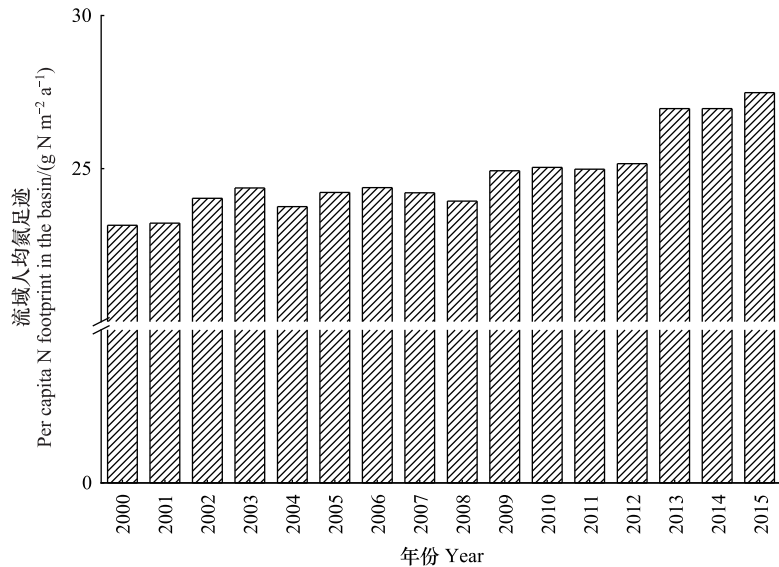


图1 闽江流域 2000—2015 年人均氮足迹变化^[29]

Fig.1 Per capita N footprint in the Minjiang River Basin from 2000—2015

式电导仪(2265FS,美国)测定;土壤铵态氮($\text{NH}_4^+\text{-N}$)和硝态氮($\text{NO}_3^-\text{-N}$)含量(经 2 mol/L KCl 溶液浸提)采用连续流动分析仪(SKALAR-SAN⁺⁺,荷兰)测定^[19];土壤有机碳(SOC,加稀盐酸去除无机碳)和全氮(TN)含量采用元素分析仪(Elementar Vario MAX,德国)测定。

表 1 不同氮负荷水平下湿地土壤基本理化性质

Table 1 Physio-chemical properties of marsh soils in different nitrogen load levels

采样时期 Sampling periods	氮负荷处理 Nitrogen load treatments	pH	EC/ (mS/cm)	SOC/ (g/kg)	TN/ (g/kg)	$\text{NH}_4^+\text{-N}/$ (mg/kg)	$\text{NO}_3^-\text{-N}/$ (mg/kg)	$\text{NH}_4^+\text{-N}/$ $\text{NO}_3^-\text{-N}$
WT9	NN	6.72±0.02Aa	2.79±0.07Ab	2.55±0.12Aa	1.89±0.22Aab	23.61±0.59Ab	0.25±0.12Aa	107.24±44.84Aa
	NL	6.39±0.16Ab	3.07±0.18Aa	2.49±0.42Ab	1.76±0.04Ab	24.70±0.16Aab	0.13±0.01Aab	187.50±10.76 Aa
	NM	6.20±0.14Ab	2.93±0.02Aab	2.57±0.20Aa	1.92±0.15Aab	23.38±1.34Ab	0.15±0.11Aab	229.32±130.08Aa
	NH	6.36±0.18Bb	2.81±0.06Ab	2.56±0.24Aa	2.19±0.15Aa	25.70±0.82Aa	0.07±0.01Ab	374.89±64.19 Aa
WT21	NN	6.33±0.27Ab	3.01±0.08Aa	2.48±0.02Ab	1.90±0.15Aa	11.97±2.37Bc	0.11±0.00Aa	112.18±22.15 Aa
	NL	6.47±0.10Ab	3.12±0.09Aa	2.48±0.02Ab	1.76±0.14Aa	14.42±0.16Bbc	0.11±0.04Aa	137.26±48.44 Aa
	NM	6.54±0.23Ab	3.23±0.17Aa	2.52±0.03Ab	1.93±0.04Aa	18.83±2.20Ba	0.14±0.02Aa	139.20±24.75 Aa
	NH	7.01±0.20Aa	3.12±0.13Aa	2.57±0.02Aa	2.20±0.22Aa	16.74±0.82Bab	0.17±0.06Aa	109.09±33.04 Ba

NN:无氮负荷处理 No N load treatment;NL:低氮负荷处理 Low N load treatment;NM:中氮负荷处理 Medium N load treatment;NH:高氮负荷处理 High N load treatment;同列不同小写字母表示相同时期不同氮负荷处理之间差异显著($P<0.05$);同列不同大写字母表示相同氮负荷处理下不同时期之间差异显著($P<0.05$)

1.2.3 室内培养实验

基于闽江河口冬季 12 月份多年平均温度的变化范围(5.5—17.5℃)^[30],参照 Wrage 等和孙志高等报道和应用的乙炔抑制法开展室内培养实验(表 2)^[31—32]。称取 10 g 过 2 mm 孔筛的供试土样放入 250 mL 培养瓶中,加适量去离子水调整到 80%田间持水量(WHC)。用带孔橡胶塞塞住瓶口,内插玻璃管,管外再套一段硅橡胶软管;采用合适的二通阀连接硅橡胶软管通气口,作为气体取样口,瓶塞周围及管外连接处均涂上硅胶以防止漏气。将培养瓶置于 11.5℃的培养箱中预培养 24 h 后,按照表 2 所述方法进行不同气体抑制剂的添加,随后继续在 11.5℃恒温培养箱内培养 24 h。在正式培养(添加抑制剂后)的第 0、6 和 24 h 抽取定量气体,立刻用 GC-2010 Pro 气相色谱仪(日本岛津)测定 N_2O 浓度。实验设 3 个重复,共 96 份,以研究氮负荷增强

对冬季土壤N₂O产生过程的影响^[32]。为了探讨氮负荷增强条件下土壤N₂O产生过程对冬季温度变化的响应,结合上述冬季温度变化范围,实验设3个温度梯度(5.5、11.5、17.5℃),调整水分含量为80% WHC,方法同上,设3个重复,共288份。

表2 抑制剂对N₂O产生过程的影响
Table 2 Effects of inhibitors on soil processes generating N₂O

过程 Processes	硝化作用(Ni) Nitrification	硝化细菌反硝化作用(ND) Nitrifier denitrification	反硝化作用(De) Denitrification	非生物作用(OS) Non-biological process
对照 Control(C)	+	+	+	+
加少量 C ₂ H ₂ With small concentrations of C ₂ H ₂ (0.1 kPa)(A)	-	-	+	+
加大量 O ₂ With large concentrations of O ₂ (100 kPa)(O)	+	-	-	+
加少量 C ₂ H ₂ 和大量 O ₂ With small concentrations of C ₂ H ₂ in O ₂ (AO)	-	-	-	+

“+”表示此过程可发生;“-”表示此过程被抑制

1.2.4 N₂O产生量计算

不同过程的N₂O产生量采用下式计算,即:

$$N_2O_{Ni} = N_2O_O - N_2O_{AO} \quad (1)$$

$$N_2O_{De} = N_2O_A - N_2O_{AO} \quad (2)$$

$$N_2O_{ND} = N_2O_C - N_2O_{Ni} - N_2O_{De} - N_2O_{AO} = N_2O_C - N_2O_O - N_2O_A + N_2O_{AO} \quad (3)$$

$$N_2O_{OS} = N_2O_{AO} \quad (4)$$

式中,N₂O_{Ni}、N₂O_{De}、N₂O_{ND}、N₂O_{OS}分别表示硝化、反硝化、硝化细菌反硝化和非生物过程的N₂O产生量,下标C、A、O和AO的含义见表2。不同过程的N₂O产生贡献为该过程N₂O产生量与总产生量的比值。正值表示该过程土壤释放N₂O,负值表示存在其他过程与该过程竞争反应基质,使得该过程表现上吸收N₂O^[32]。

利用添加不同抑制剂后0、6和24 h测定的N₂O浓度(μL/L),应用Slope函数,求得N₂O浓度随时间变化的回归曲线斜率(d_c/d_t),选择|R|>0.90的数值,据下式计算N₂O产生率^[32-33]:

$$P = \frac{d_c}{d_t} \times \frac{V}{M_v} \times \frac{M_w}{W} \times \frac{273}{T} \quad (5)$$

式中,P为N₂O产生率(μg g⁻¹ h⁻¹);dc/dt为培养瓶内N₂O浓度随时间变化的回归曲线斜率(μL L⁻¹ h⁻¹);V为培养瓶内气体体积(L);W为干土质量(g);M_w为N₂O的摩尔质量;M_v为标准状态下1 mol气体的体积;T为培养温度(K)^[32]。

1.2.5 数据处理与分析

运用Origin 2021软件对数据进行计算和作图;利用SPSS 26.0软件对不同处理下的N₂O产生量进行单因素方差分析、多因素方差分析,对N₂O产生量与环境因子进行Pearson相关分析,显著性水平设定为P<0.05。

2 结果与分析

2.1 不同氮负荷处理下冬季湿地土壤N₂O产生过程

冬季湿地土壤的N₂O总产生量仅在WT9时期的NM处理表现为正值,而在WT9时期的其他处理以及WT21时期的不同处理均为负值(图2),且氮负荷水平对其存在极显著影响(P<0.01)(表3)。不管是在WT9时期还是在WT21时期,湿地土壤的N₂O总产生量均在NM处理下最高,而在NH处理下最低。随着氮负荷时

间的延长, NL 和 NH 处理下的 N_2O 总产生量分别增加了 1.44 和 1.03 倍($P>0.05$), 而 NN 和 NM 处理下的 N_2O 总产生量分别降低了 1.13 和 1.58 倍($P>0.05$)。不同氮负荷处理下的非生物作用均是 N_2O 产生的重要过程(84.07%—385.61%), 其 N_2O 产生量在 WT21 时期均高于 NN 处理($P>0.05$), 而在 WT9 时期则均低于 NN 处理($P>0.05$)。除 NH 处理外, 非生物作用的 N_2O 产生量在其他处理下均随氮负荷时间的延长而降低($P>0.05$)。就 N_2O 产生的生物过程而言, NL 和 NH 处理在不同时期均以硝化作用占主导, 其 N_2O 产生量在 T9 时期相比 NN 处理分别增加了 1.32 和 2.23 倍($P<0.05$), 而在 WT21 时期分别降低了 0.42 和 0.96 倍($P<0.05$)。在 NM 处理下, 硝化细菌反硝化作用的 N_2O 产生量显著高于其他处理($P<0.05$), 且其 N_2O 产生量随氮负荷时间的延长而降低($P<0.05$)。除 NH 处理外, 其他处理下硝化作用的 N_2O 产生量均随氮负荷时间的延长有所增加, 而硝化细菌反硝化作用的 N_2O 产生量则均呈明显下降趋势。不同氮负荷处理下反硝化作用对于 N_2O 的产生均存在较大的削弱作用(-555.02%—-123.03%), 其 N_2O 产生量在 WT9 时期整体高于 NN 处理($P>0.05$), 而在 WT21 时期整体低于 NN 处理($P>0.05$)。除 NH 处理外, 其他处理下反硝化作用的 N_2O 产生量均随氮负荷时间的延长而增加($P>0.05$)。多因素方差分析显示, 氮负荷水平对硝化细菌反硝化作用的 N_2O 产生量存在极显著影响($P<0.01$), 氮负荷时间对硝化作用和硝化细菌反硝化作用的 N_2O 产生量均存在极显著影响($P<0.01$), 而氮负荷水平 $\times$ 氮负荷时间对不同过程的 N_2O 产生量均存在显著或极显著影响($P<0.05$ 或 $P<0.01$) (表 3)。

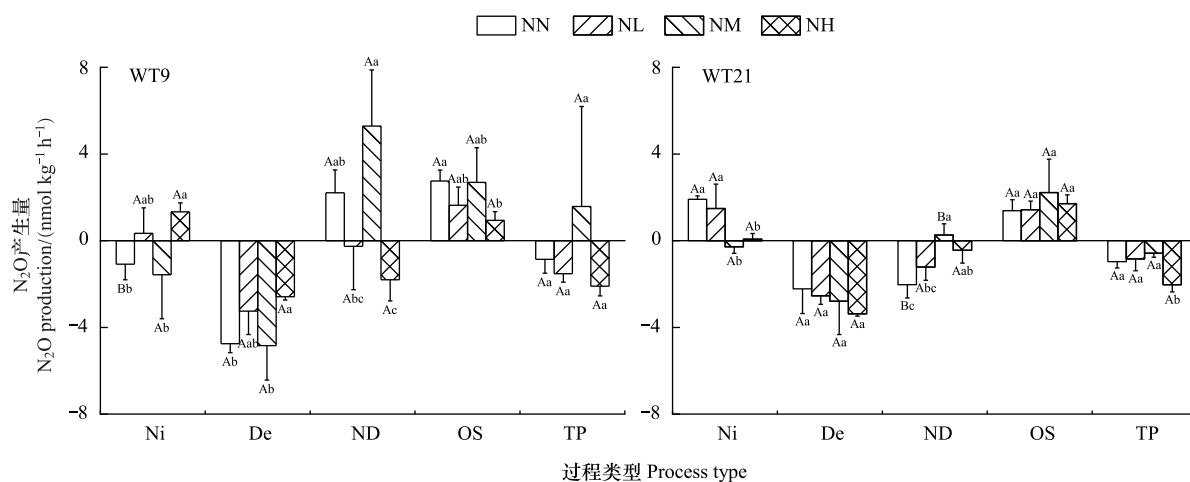


图2 氮负荷增强条件下湿地土壤不同过程的 N_2O 产生量

Fig.2 N_2O production from different processes in marsh soils under enhanced nitrogen load conditions

Ni: 硝化作用 Nitrification; De: 反硝化作用 Denitrification; ND: 硝化细菌反硝化作用 Nitrifier denitrification; OS: 非生物作用 Non-biological process; TP: N_2O 总产生量 Total N_2O production; NN: 无氮负荷处理 No N load treatment; NL: 低氮负荷处理 Low N load treatment; NM: 中氮负荷处理 Medium N load treatment; NH: 高氮负荷处理 High N load treatment; 不同大写字母表示相同氮负荷处理下不同时期差异显著 ($P < 0.05$); 不同小写字母表示相同过程不同氮负荷处理间差异显著 ($P < 0.05$)

2.2 冬季不同温度下各氮负荷处理土壤 N_2O 产生过程

氮负荷增强条件下湿地土壤的 N_2O 总产生量在冬季不同温度下发生了明显改变(图3)。不同温度下各氮负荷处理整体抑制了 N_2O 的产生, 其中 WT9 时期仅 NM 处理下的 N_2O 总产生量在 11.5 °C 下表现为正值, 而 WT21 时期不同处理下的 N_2O 总产生量在 5.5—17.5 °C 下均为负值。多因素方差分析显示, 温度对不同过程的 N_2O 产生量均存在显著或极显著影响($P < 0.05$ 或 $P < 0.01$) (表 3)。具体来讲, 不同温度下各氮负荷处理的非生物作用均是 N_2O 产生的重要过程(45.13%—1150.01%), 其不同处理下的 N_2O 产生量均在 5.5 °C 下最高, 而在 11.5 °C 下最低。在冬季较低温度下(5.5—11.5 °C), 不同氮负荷处理下非生物作用的 N_2O 产生量在 WT9 时期整体低于 NN 处理($P > 0.05$), 在 WT21 时期整体高于 NN 处理($P > 0.05$); 而在较高温度条件下

(17.5 ℃),其N₂O产生量在 WT9 时期整体高于 NN 处理($P>0.05$),在 WT21 时期整体低于 NN 处理($P>0.05$)。随着氮负荷时间的延长,不同温度下非生物作用的N₂O产生量在 NL 处理下均降低($P>0.05$),而在 NH 处理下均增加($P>0.05$)。

表 3 氮负荷和温度交互作用下湿地土壤N₂O产生量的多因素方差分析

Table 3 Multivariate ANOVA for N₂O production in marsh soils under the conditions of interactive effects between nitrogen load and temperature

项目 Items	df	Ni		De		ND		OS		TP	
		F	P	F	P	F	P	F	P	F	P
氮负荷水平 Nitrogen load level	3	1.820	0.158	0.423	0.738	5.051	0.004 **	0.405	0.750	4.584	0.007 **
氮负荷时间 Nitrogen load time	1	12.646	0.001 **	1.714	0.198	25.543	0.000 **	0.275	0.603	0.682	0.414
温度 Temperature	2	3.699	0.033 *	152.558	0.000 **	79.686	0.000 **	68.195	0.000 **	2.624	0.084
氮负荷水平×氮负荷时间 Nitrogen load level × Nitrogen load time	3	9.017	0.000 **	4.456	0.008 **	7.958	0.000 **	3.143	0.035 *	0.898	0.450
氮负荷水平×温度 Nitrogen load level × Temperature	6	1.345	0.259	0.686	0.662	3.697	0.005 **	0.896	0.507	2.829	0.021 *
氮负荷时间×温度 Nitrogen load time × Temperature	2	1.514	0.232	3.302	0.047 *	4.562	0.016 *	1.001	0.376	1.100	0.342
氮负荷水平×氮负荷时间×温度 Nitrogen load level × Nitrogen load time × Temperature	6	4.088	0.003 **	2.594	0.031 *	5.215	0.000 **	1.971	0.092	2.596	0.031 *

** $P<0.01$; * $P<0.05$

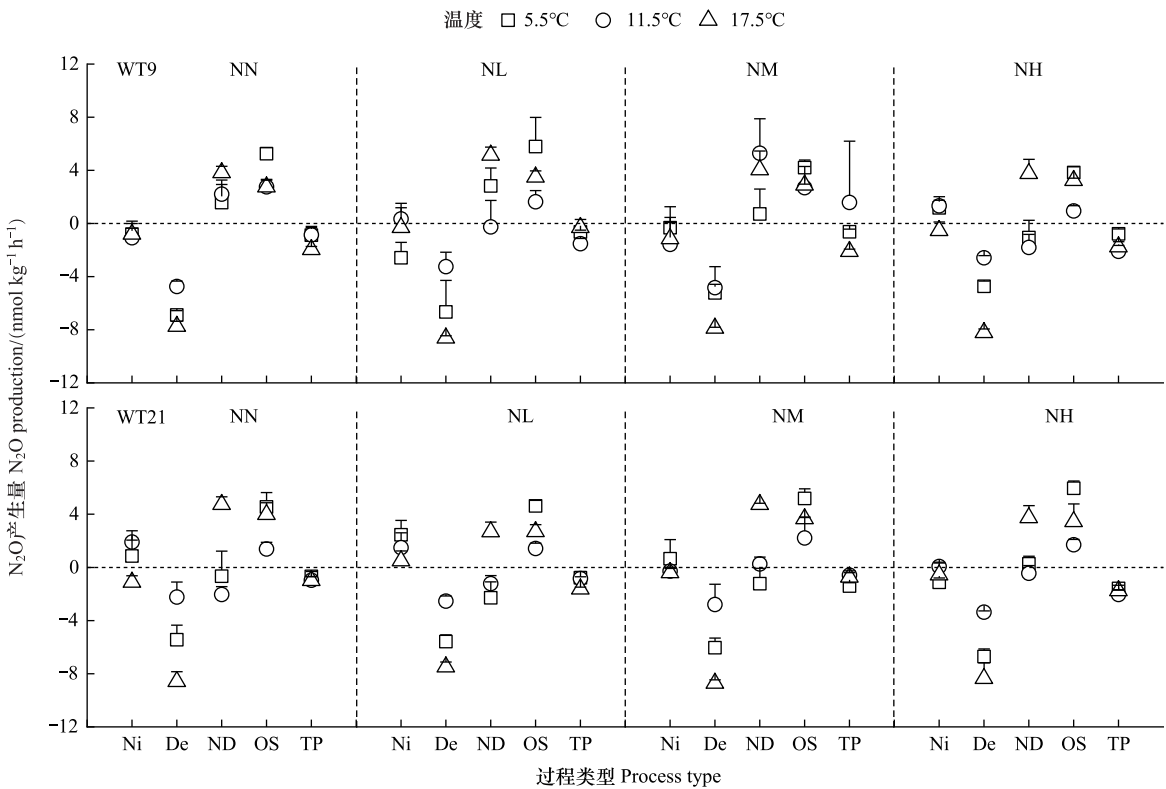


图 3 氮负荷增强条件下湿地土壤N₂O产生过程对温度的响应
Fig.3 Respones of N₂O production processes to temperature in marsh soils as affected by enhanced nitrogen load

就N₂O产生的生物过程而言,反硝化作用对不同氮负荷处理土壤的N₂O产生均存在较大的削弱作用

(-2844.80%—-123.03%),其 N_2O 产生量在 WT9 和 WT21 时期均表现为 $11.5\text{ }^\circ\text{C} > 5.5\text{ }^\circ\text{C} > 17.5\text{ }^\circ\text{C}$,且 $11.5\text{ }^\circ\text{C}$ 与其他温度下的 N_2O 产生量之间的差异还达到显著或极显著水平($P < 0.05$ 或 $P < 0.01$)。不同处理下反硝化作用的 N_2O 产生量在 WT9 时期的 $5.5\text{ }^\circ\text{C}$ 下均随氮负荷水平的升高而增加($P > 0.05$),但其在 WT21 时期的 $5.5\text{ }^\circ\text{C}$ 和 $11.5\text{ }^\circ\text{C}$ 下则随着氮负荷水平的升高而降低($P > 0.05$)。随着氮负荷时间的延长,不同温度下反硝化作用的 N_2O 产生量在 NL 处理下均升高($P > 0.05$),而在 NH 处理下均降低($P > 0.05$)。不同氮负荷处理下硝化作用和硝化细菌反硝化作用对温度的响应程度不尽一致。硝化细菌反硝化作用的 N_2O 产生量整体随氮负荷时间的延长而降低(NH 处理除外),其在 WT21 时期的较低温度($5.5\text{—}11.5\text{ }^\circ\text{C}$)下对 N_2O 产生存在较大的削弱作用(-295.74%—45.88%);而在较高温度($17.5\text{ }^\circ\text{C}$)下则对不同时期 N_2O 产生的贡献增加明显(164.87%—1694.35%),其中 WT21 时期 $17.5\text{ }^\circ\text{C}$ 与其他温度下的 N_2O 产生量之间的差异还达到显著水平($P < 0.05$)。硝化作用的 N_2O 产生量在 WT9 时期的 $11.5\text{ }^\circ\text{C}$ 下仅 NL 和 NH 处理表现为正值,而在 $5.5\text{ }^\circ\text{C}$ 下仅 NH 处理表现为正值;在 WT21 时期,其 N_2O 产生量在 NL 和 NM 处理下均随温度的升高而降低,而在 NH 处理下则以 $11.5\text{ }^\circ\text{C}$ 较高。除 NH 处理外,硝化作用的 N_2O 产生量在其他处理下整体随氮负荷时间的延长而增加。整体而言,不同氮负荷处理下的 N_2O 产生在 WT9 时期的较低温度下($5.5\text{—}11.5\text{ }^\circ\text{C}$)以非生物作用占主导,而在较高温度下($17.5\text{ }^\circ\text{C}$)则以非生物作用和硝化细菌反硝化作用为主。随着氮负荷时间的延长,其 N_2O 产生在较低温度下($5.5\text{—}11.5\text{ }^\circ\text{C}$)以硝化作用和非生物作用为主,而在较高温度下($17.5\text{ }^\circ\text{C}$)则以硝化细菌反硝化作用和非生物作用为主。

2.3 氮负荷水平和温度对冬季 N_2O 产生过程的交互影响

氮负荷水平和温度对不同时期湿地土壤的 N_2O 总产生量存在不同程度的交互影响(图 4)。WT9 和 WT21 时期的 N_2O 总产生量均在 $11.5\text{ }^\circ\text{C}$ 下的 NM 处理最高,其值分别为 $(1.582 \pm 4.614)\text{ nmol kg}^{-1}\text{ h}^{-1}$ 和 $(-0.576 \pm 0.185)\text{ nmol kg}^{-1}\text{ h}^{-1}$ 。随着氮负荷水平和温度的升高,不同时期的 N_2O 总产生量整体均呈降低趋势,并分别于 $17.5\text{ }^\circ\text{C}$ 下的 NM 处理(WT9)和 $11.5\text{ }^\circ\text{C}$ 下的 NH 处理(WT21)取得最低值($(-2.107 \pm 0.182)\text{ nmol kg}^{-1}\text{ h}^{-1}$ 和 $(-2.031 \pm 0.33)\text{ nmol kg}^{-1}\text{ h}^{-1}$)。多因素方差分析表明,氮负荷水平 $\times$ 温度、氮负荷水平 $\times$ 氮负荷时间 $\times$ 温度对 N_2O 总产生量均存在显著影响($P < 0.05$)(表 3)。氮负荷水平和温度对不同 N_2O 产生过程亦存在不同程度的交互影响。硝化作用的 N_2O 产生量在 WT21 时期 $5.5\text{ }^\circ\text{C}$ 下的 NL 处理最高,而反硝化作用的 N_2O 产生量在该时期 $17.5\text{ }^\circ\text{C}$ 下的 NM 处理最低(图 4)。另外,硝化细菌反硝化作用的 N_2O 产生量在 WT9 时期 $11.5\text{ }^\circ\text{C}$ 下的 NM 处理最高,而非生物作用的 N_2O 产生量在 WT21 时期 $5.5\text{ }^\circ\text{C}$ 下的 NH 处理最高(图 4)。多因素方差分析显示,氮负荷水平 $\times$ 温度仅对硝化细菌反硝化作用的 N_2O 产生量存在极显著影响($P < 0.01$),氮负荷时间 $\times$ 温度对反硝化作用和硝化细菌反硝化作用的 N_2O 产生量均存在显著影响($P < 0.05$),而氮负荷水平 $\times$ 氮负荷时间 $\times$ 温度对硝化作用、反硝化作用和硝化细菌反硝化作用的 N_2O 产生量均存在显著或极显著影响($P < 0.05$ 或 $P < 0.01$)。

3 讨论

3.1 冬季湿地土壤 N_2O 产生过程对氮负荷增强的响应

本研究表明,反硝化对不同年份冬季各氮负荷处理下土壤的 N_2O 产生均存在较大的削弱作用(图 2),说明可能存在其他过程与该过程竞争反应基质(NO_3^- 、 NO_2^-),使得异养反硝化作用的 N_2O 产生量极低。孙文广等对黄河口的研究也发现,异养反硝化对不同恢复阶段湿地土壤 N_2O 产生的削弱作用明显,但这主要与该区土壤中有机碳含量较低有关^[33]。本研究中,异养反硝化对 N_2O 产生的较大削弱作用还有可能与氮负荷增强条件下不同年份冬季土壤的反硝化气态产物以 N_2 为主,而 N_2O 排放较少有关,因为在冬季较低温度下土壤中的硫自养反硝化细菌在缺氧条件下仍可能可利用 CO_3^{2-} 、 HCO_3^- 作为无机碳源,通过氧化 S^0 、 S^{2-} 等为其提供代谢能量,从而将硝酸盐(NO_3^-)和其他氮氧化物大量还原为 N_2 。Yang 等的研究亦表明,硫驱动下的自养反硝化可显著降低硫转化过程中的 N_2O 排放^[34]。闽江河口位于我国典型的硫酸型酸沉降区^[35],该区湿地土壤中的无机硫含量在全国整体处于较高水平($317.50\text{—}462.65\text{ mg/kg}$)^[36],加之该区处于频繁交替的氧化-还原环境,由

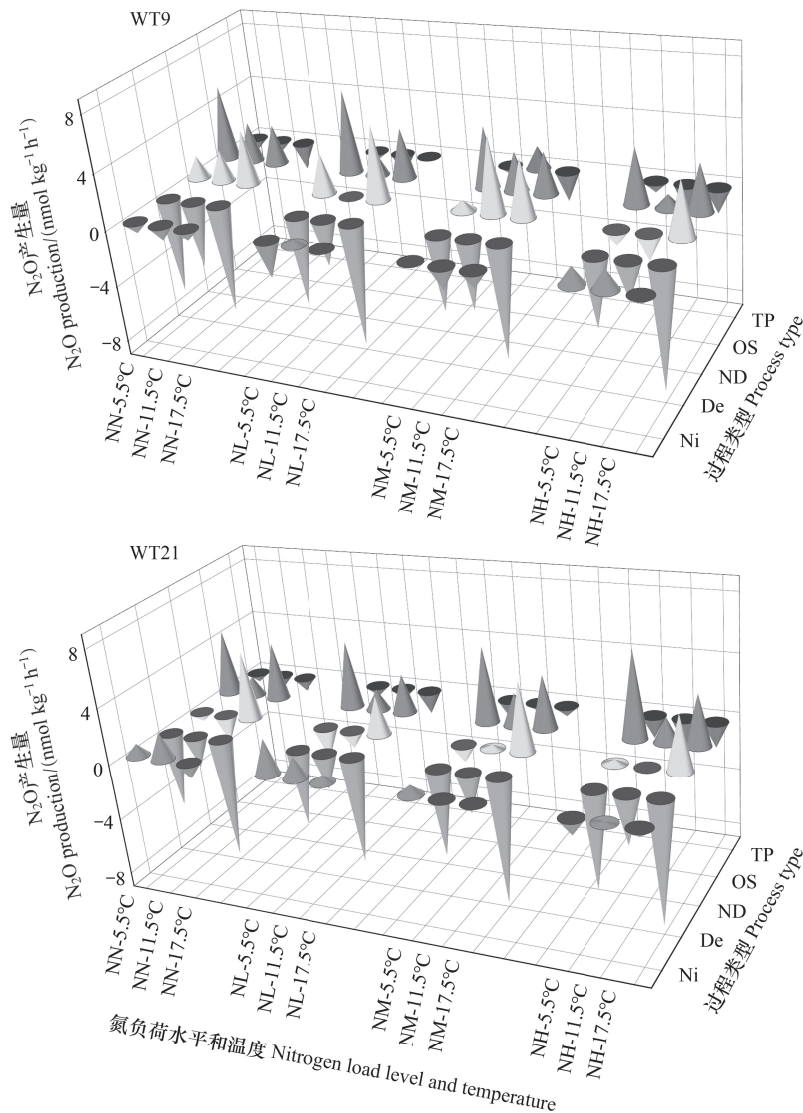


图4 氮负荷水平和温度交互作用下不同过程的N₂O产生量

Fig.4 N₂O production from different processes in marsh soils under the conditions of interactive effects between temperature and nitrogen load level

此使得土壤中的 S^{2-} 、 HS^- 和 $S_2O_3^{2-}$ 极易与 NO_3^- 结合而被自养反硝化菌消耗 ($8NO_3^- + 5S_2O_3^{2-} + H_2O \rightarrow 4N_2 + 10SO_4^{2-} + 2H^+$; $S^{2-} + 4H^+ + 2NO_3^- \rightarrow SO_4^{2-} + N_2 + 2H_2O$; $3H^+ + 5HS^- + 8NO_3^- \rightarrow 5SO_4^{2-} + 4N_2 + 4H_2O$; $3HS^- + 8NO_2^- + 5H^+ \rightarrow 3SO_4^{2-} + 4N_2 + 4H_2O$)^[37], 进而导致冬季较低温度条件下的土壤反硝化气态产物可能以 N_2 为主而非 N_2O 。这一解释可为前述多因素方差分析得出的氮负荷水平、氮负荷时间、氮负荷水平×温度对反硝化过程的 N_2O 产生量均不存在显著影响以及反硝化过程的 N_2O 产生量在 NH 处理下与 $NH_4^+-N/NO_3^- -N$ 存在显著正相关 ($P < 0.05$) 的结果所部分佐证 (表 3), 因为氮负荷增强条件下的 $NO_3^- -N$ ($NH_4^+-N/NO_3^- -N$ 升高) 可能被大量消耗 (表 1) 而参与到了上述硫驱动下的自养反硝化而非异养反硝化中, 由此导致不同年份冬季土壤的 N_2O 产生量极低。本研究还表明, 不同氮负荷处理下异养反硝化作用的 N_2O 产生量在 WT9 时期整体高于 NN 处理, 而在 WT21 时期则随氮负荷水平的升高而降低 (图 2), 说明氮负荷水平×氮负荷时间对反硝化过程的 N_2O 产生量均存在重要影响 (表 3)。据表 1 可知, WT9 时期 NL、NM 和 NH 处理下的土壤碳氮养分 (SOC、TN 和 NH_4^+-N) 相比 NN 处理整体均较高, 但其 $NO_3^- -N$ 含量均较低, 说明该年份冬季土壤中的 $NO_3^- -N$ 仍可能有部分被异养反硝化细菌还

原为 N_2O ^[38],从而导致氮负荷增强条件下反硝化作用的 N_2O 产生量在 WT9 时期有所增加。而在 WT21 时期,氮负荷处理下的土壤碳氮养分整体高于 NN 处理(表 1),特别是 NO_3^- -N 含量均随氮负荷水平的升高而增加,而这可能为硫自养反硝化提供电子受体^[39],并与异养反硝化竞争反应基质,由此使得其 N_2O 产生量随氮负荷水平的升高而降低。这一解释可为相关分析所部分佐证,即反硝化过程的 N_2O 产生量在 NN 处理下与 NH_4^+ -N 存在显著负相关关系($P<0.05$),在 NL 处理下与 SOC 存在显著负相关关系($P<0.05$);而在 NH 处理下与 NH_4^+ -N 存在极显著正相关关系($P<0.01$)(表 4)。值得注意的是,不同处理下(NH 除外)反硝化作用的 N_2O 产生量均随氮负荷时间的延长而增加(图 2)。本研究中,WT9 时期不同处理下的土壤氮养分(NH_4^+ -N 和 NO_3^- -N)整体高于 WT21 时期(表 1),说明 WT21 时期土壤中的氮养分更易被异养反硝化过程所消耗^[31],由此导致该时期的 N_2O 产生量增加。与其他处理不同,WT21 时期 NH 处理下反硝化作用的 N_2O 产生量有所降低(图 2)。原因可能在于,NH 处理在 WT21 时期的 NO_3^- -N 含量高于 WT9 时期(表 1),而较高的 NO_3^- 可为硫驱动下的自养反硝化作用所利用^[40],由此导致该处理下异养反硝化作用产生的 N_2O 较低。

本研究发现,非生物作用均是不同年份冬季土壤 N_2O 产生的重要过程,其不同氮负荷处理下的 N_2O 产生量在 WT9 时期均低于 NN 处理,而在 WT21 时期均高于 NN 处理(图 2)。实际上,现有的相关研究也得到了类似结论,即化学反硝化作用可能是滨海湿地土壤 N_2O 产生的关键过程,其中约有 15%—25%的 N_2O 来自 Fe^{2+} 与 NO_2^- 还原反应^[41]。孙文广等对黄河口不同恢复阶段湿地的研究亦发现,非生物作用对于 N_2O 产生量的贡献较高,这与该区高活性铁的还原作用有关^[33],因为铁、锰等可与硝化过程的中间产物(NH_2OH 、 NO_2^-)发生非生物反应来促进 N_2O 的产生($4\text{Fe}^{3+}+2\text{NH}_2\text{OH}\rightarrow 4\text{Fe}^{2+}+\text{N}_2\text{O}+\text{H}_2\text{O}+4\text{H}^+$; $\text{MnO}_2+2\text{NH}_2\text{OH}\rightarrow 2\text{MnO}+\text{N}_2\text{O}+3\text{H}_2\text{O}$; $4\text{Fe}^{2+}+2\text{NO}_2^-+5\text{H}_2\text{O}\rightarrow 4\text{FeOOH}+\text{N}_2\text{O}+6\text{H}^+$)^[6]。另有研究表明,外源氮输入可对湿地土壤 N_2O 产生的非生物过程产生重要影响,而这与氮输入对土壤 pH 的改变有关^[32],因为 pH 可影响 NH_2OH 与 HNO_2 反应产生 N_2O 的能力($\text{NO}_2^-+\text{H}^+\rightarrow \text{HNO}_2$; $2\text{HNO}_2\rightarrow \text{NO}_2+\text{NO}+\text{H}_2\text{O}$; $2\text{NO}+2\text{H}^++2\text{e}^-\rightarrow \text{N}_2\text{O}+\text{H}_2\text{O}$; $\text{NH}_2\text{OH}+\text{HNO}_2\rightarrow \text{N}_2\text{O}+\text{H}_2\text{O}$)^[42]。本研究土壤采自闽江河口的氮负荷试验样地,该区土壤偏酸性(表 1),且富含铁、锰及硫化物^[43—44],特别是土壤中的全铁平均含量(4.9%)高于全国平均含量(3%)以及福建省铁含量的背景值(4.27%)^[45]。该区湿地土壤无机硫含量在我国同样处于较高水平,其总无机硫含量可达 317.50—462.65 mg/kg^[36]。由此可见,闽江河口湿地土壤中的铁及无机硫含量相比国内大多数河口湿地更为丰富,加之湿地氧化-还原环境交替频繁,而这可促进土壤中 Fe^{2+} 还原 NO_2^- 以及高价 Fe、Mn 氧化 NH_2OH 等非生物过程产生 N_2O ^[46],导致非生物过程对不同氮负荷处理下的土壤 N_2O 产生量均具有较大贡献。Schreiber 等的研究亦表明,在低 pH 或土壤 Fe^{3+} 、有机质和 NO_2^- 含量较高的条件下, NH_2OH 经由非生物过程产生 N_2O 的效率可达 20%—80%^[47]。Buessecker 等的研究还发现,在低 pH 和 Fe^{2+} 浓度较高的土壤中,由非生物过程产生的 N_2O 甚至高达 98%^[48]。本研究还发现,不同氮负荷处理下非生物作用的 N_2O 产生量在 WT9 时期均低于 NN 处理,但随着氮负荷时间的延长,其在 WT21 时期均高于 NN 处理,说明氮负荷水平×氮负荷时间对不同年份冬季非生物作用的 N_2O 产生量同样存在重要影响(表 3)。相关分析显示,非生物作用的 N_2O 产生量在 NN 处理下与 pH、SOC 和 NH_4^+ -N 均呈显著正相关($P<0.05$);在 NH 处理下与 NO_3^- -N 呈显著正相关($P<0.05$),而与 NH_4^+ -N/ NO_3^- -N 呈显著负相关($P<0.05$)(表 4),说明氮负荷增强条件下土壤碳氮养分以及 NH_4^+ -N/ NO_3^- -N 的变化对于非生物过程的 N_2O 产生可能具有显著影响。本研究中,WT9 时期不同氮负荷处理下的 NO_3^- -N 含量均低于 NN 处理,而 NH_4^+ -N 含量整体高于 NN 处理(表 1),说明该年份冬季土壤的硝化过程可能相对较弱,由此导致其中间产物 NH_2OH 、 NO_2^- 发生非生物反应产生的 N_2O 量可能较低^[49]。随着氮负荷时间的延长,WT21 时期的 NO_3^- -N 含量均高于 NN 处理(表 1),说明由非生物反应产生的 N_2O 可能更多。综上可知,土壤氮养分变化是影响氮负荷增强条件下非生物作用 N_2O 产生的关键因素,即氮输入可为非生物作用提供更多的反应基质,使得由其产生的 N_2O 量增加。本研究亦发现,不同年份冬季土壤的 N_2O 产生在 NL 和 NH 处理下均以硝化作用占主导,其值在 WT9 时期均高于 NN 处理,而在 WT21 时期均低于 NN 处理(图 2)。这可能与其它生物过程(如硝化细菌反硝化作用)与其竞争反应

基质有关,因为不同年份冬季硝化作用与硝化细菌反硝化作用的 N_2O 产生量均呈相反变化趋势。例如,不同年份硝化作用的 N_2O 产生量在 NM 处理下均最低,而硝化细菌反硝化作用在该处理下均最高(图 2)。另外,随着氮负荷时间的延长,不同氮负荷处理下(NH 除外)硝化作用的 N_2O 产生量均有所上升,而硝化细菌反硝化作用的 N_2O 产生量均有所下降(图 2),这主要与上述提及的两个过程对反应基质的竞争强度差异有关。

表 4 氮负荷增强条件下土壤 N_2O 产生过程与理化性质之间的相关关系Table 4 Correlations between N_2O production processes and environment factors under enhanced nitrogen load conditions

氮负荷处理 Nitrogen load treatments	产生过程 Production processes	pH	EC	SOC	TN	NH_4^+-N	NO_3^--N	C/N	NH_4^+-N/NO_3^--N
NN	Ni	-0.749	0.748	-0.842 *	-0.482	-0.920 **	-0.543	0.419	-0.130
	De	-0.720	0.547	-0.741	-0.599	-0.821 *	-0.610	0.553	0.074
	ND	0.722	-0.697	0.833 *	0.599	0.899 *	0.613	-0.541	0.021
	OS	0.812 *	-0.500	0.824 *	0.511	0.851 *	0.567	-0.430	0.103
	TP	0.164	-0.027	0.364	0.342	0.201	0.258	-0.268	0.084
NL	Ni	0.095	0.563	-0.405	-0.429	-0.517	-0.349	0.362	-0.314
	De	-0.484	0.629	-0.854 *	-0.248	-0.477	-0.618	0.096	-0.010
	ND	0.537	-0.760	0.873 *	0.248	0.382	0.513	-0.086	0.008
	OS	0.006	-0.182	0.258	0.269	0.177	0.221	-0.225	0.068
	TP	0.855 *	0.012	0.361	-0.369	-0.649	-0.120	0.458	-0.592
NM	Ni	0.172	0.381	-0.397	-0.907 *	-0.430	0.619	0.906 *	-0.925 *
	De	0.333	0.441	-0.336	-0.696	-0.200	0.269	0.690	-0.592
	ND	-0.773	-0.718	0.439	0.420	0.605	0.651	-0.432	-0.079
	OS	-0.059	-0.165	0.196	0.426	-0.199	-0.540	-0.398	0.562
	TP	-0.637	-0.453	0.204	-0.186	0.266	0.964 **	0.182	-0.642
NH	Ni	-0.706	-0.719	-0.122	0.905 *	0.946 *	-0.867	-0.856	0.820
	De	-0.830	-0.906 *	-0.044	0.734	0.976 **	-0.818	-0.679	0.885 *
	ND	0.843	0.628	-0.054	-0.627	-0.691	0.471	0.525	-0.465
	OS	0.670	0.611	0.442	-0.615	-0.791	0.897 *	0.677	-0.910 *
	TP	0.751	0.106	0.193	0.072	0.008	-0.128	-0.107	0.110

** $P<0.01$; * $P<0.05$

3.2 温度对冬季氮负荷处理土壤 N_2O 产生过程的影响

本研究表明,不同年份冬季各氮负荷处理下的反硝化对 N_2O 的削弱作用均在 5.5—11.5 °C 较低,而在 17.5 °C 较高(图 3),这可能与冬季相对较高温度条件下异养反硝化过程产生的含氮气体主要为 N_2 而非 N_2O 有关。实际上,现有的相关研究也得到类似结论,即温度的变化会影响反硝化细菌的活性以及相关功能基因的表达^[50],低温条件下的异养反硝化作用可能会产生更多的 N_2O ,而随着温度升高, N_2O 的产生比例逐渐降低,此时反硝化过程对于 N_2O 的产生表现为较强的削弱作用^[51]。这一解释可为前述多因素方差分析所部分证实,即温度、温度×氮负荷时间对反硝化作用的 N_2O 产生量均存在显著或极显著影响($P<0.05$ 或 $P<0.01$)。本研究亦表明,不同年份冬季各氮负荷处理下的非生物作用均是 N_2O 产生的重要过程,且其不同温度下的 N_2O 产生量整体表现为 5.5>17.5>11.5 °C(图 3)。尽管非生物作用适宜的温度范围还未得到准确的证实,但已有研究显示,在一定温度范围内,温度升高可能会提高非生物过程的 N_2O 产生量^[6]。Heil 等通过实验证实,将温度从 10 °C 上升到 50 °C 时, NH_2OH 迅速氧化产生 N_2O ^[52]。与以往研究不同,本研究的冬季较低温度(5.5—11.5 °C)亦有利于非生物过程的 N_2O 产生,这可能与不同 N_2O 产生过程对温度的敏感性差异有关。在较低温度条件下(<5 °C),硝化作用、反硝化作用等生物过程基本停止或受到较强抑制^[53],这就使得非生物过程可获得更多的反应基质,由此导致在冬季较低温度条件下非生物作用的 N_2O 产生量较高。

本研究显示,在冬季较低温度条件下(5.5—11.5 °C),不同氮负荷处理下非生物作用的 N_2O 产生量在 WT9

时期整体低于 NN 处理,而在 WT21 时期整体高于 NN 处理(图 3)。据表 1 可知,WT9 时期的 NO_3^- -N 含量随氮负荷水平的升高而下降,而其在 WT21 时期则随氮负荷水平的升高而增加。与之变化相似,冬季较低温度下异养反硝化过程对 N_2O 产生的削弱作用在 WT9 时期随氮负荷水平的升高而下降,而在 WT21 时期则随氮负荷水平的升高而增加。这些结果说明 WT21 时期参与非生物过程的反应底物可能更为充足,由此导致其在不同氮负荷处理下的 N_2O 产生量相对较高。另外,相比对照处理,WT9 时期氮负荷处理下非生物作用的较低 N_2O 产生量还可能与较低温度条件下的硝化作用整体较弱(图 4),其中间产物(NH_2OH 、 NO_2^-)作为非生物作用的反应底物相对较少有关。随着氮负荷时间的延长,氮输入可能提高了冬季较低温度下($5.5\text{—}11.5\text{ }^\circ\text{C}$)参与硝化过程微生物的抗逆性^[54],从而促进了硝化作用的进行以及其中间产物(NH_2OH 、 NO_2^-)的产生。可能正是如此,使得非生物作用的 N_2O 产生量随着氮负荷水平的升高整体由 WT9 时期的下降变化转变为 WT21 时期的上升趋势。

本研究发现,在冬季较高温度条件下($17.5\text{ }^\circ\text{C}$),硝化细菌反硝化作用对不同年份冬季(尤其是 WT21 时期)各氮负荷处理下土壤 N_2O 产生的贡献明显增加(图 3)。相关研究显示,低氧、低碳和低 pH 条件更有利于硝化细菌反硝化作用的进行^[55]。硝化细菌反硝化作用是硝化作用的一个特殊过程, $5\text{—}35\text{ }^\circ\text{C}$ 是硝化作用主要微生物(AOA、AOB)的较适宜温度范围^[56]。在此范围内,温度升高通常可提高硝化过程相关功能基因的丰度以及功能微生物的活性^[57]。相较于暖温带的黄河口、辽河口以及北亚热带的长江口等湿地,本研究区的冬季温度相对较高。在冬季较高温度条件下($17.5\text{ }^\circ\text{C}$),随着氮负荷时间延长,土壤中的氮有效性以及硝化细菌抗逆性均可能得以增强^[54,58],由此使得两个年份冬季硝化细菌反硝化作用的 N_2O 产生量在较高温度下均明显增加(图 3)。本研究还发现,氮负荷水平、氮负荷时间 $\times$ 温度、氮负荷水平 $\times$ 氮负荷时间 $\times$ 温度对冬季湿地土壤 N_2O 的总产生量均存在显著或极显著影响(表 3)。尤其是土壤 N_2O 的总产生量仅在 WT9 时期 $11.5\text{ }^\circ\text{C}$ 下的 NM 处理表现为正值,而在 WT9 时期的其他处理以及 WT21 时期的不同处理均为负值(图 4),这主要与前述讨论提及的反硝化对不同年份冬季各氮负荷处理下的 N_2O 产生均存在较大的削弱作用有关。综上可知,在闽江河口湿地冬季较低温度以及叠加氮负荷增强条件下,温度和氮负荷对土壤 N_2O 产生的综合影响表现为抵消效应而非协同增效效应,而这有助于降低该区冬季的 N_2O 排放量。

4 结论

(1) 氮负荷增强条件下冬季湿地土壤不同过程的 N_2O 产生量发生了明显改变,不同年份冬季(WT9 和 WT21)的 N_2O 总产生量均在中氮负荷处理下最高。

(2) 反硝化作用对不同年份冬季土壤的 N_2O 产生均存在较大的削弱作用,但其 N_2O 产生量整体随氮负荷时间的延长而增加;不同氮负荷处理下的非生物作用均是 N_2O 产生的重要过程,但其 N_2O 产生量在较短时期(WT9)随氮负荷水平的升高呈降低变化,而在较长时期(WT21)则呈升高趋势。

(3) 氮负荷水平与温度对冬季土壤 N_2O 产生过程存在不同程度的交互影响。不同处理的 N_2O 产生在 WT9 时期的较低温度下($5.5\text{—}11.5\text{ }^\circ\text{C}$)以非生物作用为主,在 WT21 时期以硝化作用和非生物作用为主;而在较高温度下($17.5\text{ }^\circ\text{C}$),不同年份冬季土壤的 N_2O 产生均以非生物作用和硝化细菌反硝化作用为主。

(4) 氮负荷增强改变了不同年份冬季土壤 N_2O 产生的生物和非生物贡献模式,其主要通过改变土壤养分状况来影响 N_2O 产生的生物或非生物过程;在闽江河口湿地冬季低温并叠加氮负荷增强条件下,二者对土壤 N_2O 产生的综合影响表现为抵消效应,而这有助于降低该区冬季的 N_2O 排放量。

参考文献(References):

- [1] Intergovernmental Panel on Climate Change. Climate Change 2022-Impacts, Adaptation and Vulnerability. Cambridge, UK: Cambridge University Press, 2023.
- [2] World Meteorological Organization (WMO). State of the Global Climate 2021. 2022.
- [3] Wang J J, Vilmin L, Mogollón J M, Beusen A H W, van Hoek W J, Liu X C, Pika P A, Middelburg J J, Bouwman A F. Inland waters

- increasingly produce and emit nitrous oxide. *Environmental Science & Technology*, 2023, 57(36): 13506-13519.
- [4] Murray R H, Erler D V, Eyre B D. Nitrous oxide fluxes in estuarine environments: response to global change. *Global Change Biology*, 2015, 21(9): 3219-3245.
- [5] Gao D Z, Hou L J, Liu M, Zheng Y L, Yin G Y, Niu Y H. N₂O emission dynamics along an intertidal elevation gradient in a subtropical estuary: importance of N₂O consumption. *Environmental Research*, 2022, 205: 112432.
- [6] 颜青, 赖睿特, 张克强, 杨涵博, 王风. 土壤化学反硝化及N₂O产生机理研究进展. *环境科学研究*, 2020, 33(3): 736-743.
- [7] Su X X, Wen T, Wang Y M, Xu J S, Cui L, Zhang J B, Xue X M, Ding K, Tang Y J, Zhu Y G. Stimulation of N₂O emission *via* bacterial denitrification driven by acidification in estuarine sediments. *Global Change Biology*, 2021, 27(21): 5564-5579.
- [8] Foster S Q, Fulweiler R W. Sediment nitrous oxide fluxes are dominated by uptake in a temperate estuary. *Frontiers in Marine Science*, 2016, 3: 40.
- [9] Moseman-Valtierra S, Gonzalez R, Kroeger K D, Tang J W, Chao W C, Crusius J, Bratton J, Green A, Shelton J. Short-term nitrogen additions can shift a coastal wetland from a sink to a source of N₂O. *Atmospheric Environment*, 2011, 45(26): 4390-4397.
- [10] 石婕, 张弥, 邱吉丽, 万梓文, 赵若男, 谢燕红, 陈明键, 赵佳玉, 肖薇, 刘寿东. 小型养殖塘水体中 CH₄、CO₂和N₂O浓度的时空变化特征及影响因素. *环境科学*, 2022, 43(09): 4867-4877.
- [11] Sun Z G, Wang L L, Mou X J, Jiang H H, Sun W L. Spatial and temporal variations of nitrous oxide flux between coastal marsh and the atmosphere in the Yellow River estuary of China. *Environmental Science and Pollution Research International*, 2014, 21(1): 419-433.
- [12] Sun Z G, Wang L L, Tian H Q, Jiang H H, Mou X J, Sun W L. Fluxes of nitrous oxide and methane in different coastal *Suaeda salsa* marshes of the Yellow River estuary, China. *Chemosphere*, 2013, 90(2): 856-865.
- [13] Allen D E, Dalal R C, Rennenberg H, Meyer R L, Reeves S, Schmidt S. Spatial and temporal variation of nitrous oxide and methane flux between subtropical mangrove sediments and the atmosphere. *Soil Biology and Biochemistry*, 2007, 39(2): 622-631.
- [14] 饶清华, 李家兵, 胡敏杰, 谢蓉蓉, 张祥雨, 邱宇. 亚热带河口潮滩湿地N₂O排放对氮硫增强输入的响应. *环境科学学报*, 2018, 38(5): 2045-2054.
- [15] Wu J Q, Wang H Y, Li G, Wu J H, Gong Y, Wei X X. Unimodal response of N₂O flux to changing rainfall amount and frequency in a wet meadow in the Tibetan Plateau. *Ecological Engineering*, 2022, 174: 106461.
- [16] 杨紫唯, 陈克龙, 张乐乐, 蒋莉莉, 左弟召. 青海湖流域两种不同高寒湿地类型 CO₂、CH₄和N₂O排放通量对模拟降水的响应. *生态科学*, 2022, 41(2): 211-219.
- [17] Gao G F, Li P F, Zhong J X, Shen Z J, Chen J, Li Y T, Isabwe A, Zhu X Y, Ding Q S, Zhang S, Gao C H, Zheng H L. *Spartina alterniflora* invasion alters soil bacterial communities and enhances soil N₂O emissions by stimulating soil denitrification in mangrove wetland. *Science of the Total Environment*, 2019, 653: 231-240.
- [18] Jiang Y H, Yin G Y, Li Y, Hou L J, Liu M, Chen C, Zheng D S, Wu H, Gao D Z, Zheng Y L, Han P. Saltwater incursion regulates N₂O emission pathways and potential nitrification and denitrification in intertidal wetland. *Biology and Fertility of Soils*, 2023, 59(5): 541-553.
- [19] 方冠荣, 孙志高, 胡星云, 李亚瑾, 宋振阳, 贺攀霏, 夏星辰, 武慧慧, 姚钦予. 氮负荷增强对闽江河口短叶荇菜湿地近地气层 CH₄浓度变化的影响. *环境科学学报*, 2024, 44(01): 503-515.
- [20] 中国海洋信息网. 中国海洋生态环境状况公报, 2018, (2012-2017), <http://www.nmdis.org.cn/>
- [21] Mou X J, Liu X T, Sun Z G, Tong C, Lu X R. Short-term effect of exogenous nitrogen on N₂O fluxes from native and invaded tidal marshes in the Min River Estuary, China. *Wetlands*, 2019, 39(1): 139-148.
- [22] Yu G R, Jia Y L, He N P, Zhu J X, Chen Z, Wang Q F, Piao S L, Liu X J, He H L, Guo X B, Wen Z, Li P, Ding G A, Goulding K. Stabilization of atmospheric nitrogen deposition in China over the past decade. *Nature Geoscience*, 2019, 12: 424-429.
- [23] 段雷, 郝吉明, 谢绍东, 周中平. 用稳态法确定中国土壤的硫沉降和氮沉降临界负荷. *环境科学*, 2002, 23(2): 7-12.
- [24] 贺攀霏, 孙志高, 宋振阳, 陈冰冰, 夏星辰, 武慧慧, 方冠荣, 姚钦予. 不同氮负荷水平下闽江河口芦苇残体分解及硫养分释放特征. *环境科学学报*, 2024, 44(03): 387-398.
- [25] Yang W B, Yuan C S, Tong C, Yang P, Yang L, Huang B Q. Diurnal variation of CO₂, CH₄, and N₂O emission fluxes continuously monitored *in situ* in three environmental habitats in a subtropical estuarine wetland. *Marine Pollution Bulletin*, 2017, 119(1): 289-298.
- [26] Wang X M, Hu M J, Ren H C, Li J B, Tong C, Musenze R S. Seasonal variations of nitrous oxide fluxes and soil denitrification rates in subtropical freshwater and brackish tidal marshes of the Min River estuary. *Science of the Total Environment*, 2018, 616: 1404-1413.
- [27] 漆梦婷, 罗柳, 王宛珍, 钱伟, 仝川, 李小飞. 闽江河口湿地土壤羟胺和亚硝酸盐非生物过程N₂O产生潜力及其影响因素. *生态学杂志*, 2023, 42(3): 591-598.
- [28] Tian Y L, Yang P, Yang H, Wang H M, Zhang L H, Tong C, Lai D Y F, Lin Y X, Tan L S, Hong Y, Tang C, Tang K W. Diffusive nitrous oxide (N₂O) fluxes across the sediment-water-atmosphere interfaces in aquaculture shrimp ponds in a subtropical estuary: implications for climate warming. *Agriculture, Ecosystems & Environment*, 2023, 341: 108218.
- [29] 徐昌城. 福建省闽江流域氮足迹动态变化及其影响因素分析[D]. 福州: 福州大学, 2017.
- [30] 王丽玉, 王鑫, 李双锦. 1951—2020年福州市气温变化趋势分析. *农业灾害研究*, 2022, 12(10): 1-3.
- [31] Wrage N, Velthof G L, Laanbroek H J, Oenema O. Nitrous oxide production in grassland soils: assessing the contribution of nitrifier denitrification. *Soil Biology and Biochemistry*, 2004, 36(2): 229-236.

- [32] 孙志高, 孙文广. 黄河口不同恢复阶段湿地土壤 N_2O 产生过程对氮输入的响应. 应用生态学报, 2016, 27(4): 1135-1144.
- [33] 孙文广, 孙志高, 甘卓亭, 孙万龙, 王伟. 黄河口不同恢复阶段湿地土壤 N_2O 产生的不同过程及贡献. 环境科学, 2014, 35(8): 3110-3119.
- [34] Yang W M, Zhao Q, Lu H, Ding Z, Meng L, Chen G H. Sulfide-driven autotrophic denitrification significantly reduces N_2O emissions. Water Research, 2016, 90: 176-184.
- [35] 潘秀丽. 福建省酸雨成因分析及防治措施. 水文, 2001, 21(1): 47-49.
- [36] 王华, 孙志高, 李家兵, 何涛, 高会, 王杰. 闽江口芦苇与短叶荇菜湿地土壤无机硫形态分布特征及其影响因素. 生态学报, 2019, 39(13): 4921-4932.
- [37] Chen B B, Sun Z G. Effects of nitrogen enrichment on variations of sulfur in plant-soil system of *Suaeda salsa* in coastal marsh of the Yellow River estuary, China. Ecological Indicators, 2020, 109: 105797.
- [38] 金敏, 王景峰, 孔庆鑫, 赵祖国, 王新为, 谌志强, 陈照立, 邱志刚, 李君文. 好氧异养硝化菌 *Acinetobacter* sp. YY-5 的分离鉴定及脱氮机理. 应用与环境生物学报, 2009, 15(05): 692-697.
- [39] Wu S B, Kuschik P, Wiessner A, Müller J, Saad R A B, Dong R J. Sulphur transformations in constructed wetlands for wastewater treatment: a review. Ecological Engineering, 2013, 52: 278-289.
- [40] Ashok V, Hait S. Remediation of nitrate-contaminated water by solid-phase denitrification process-a review. Environmental Science and Pollution Research International, 2015, 22(11): 8075-8093.
- [41] Xu C B, Qi M T, Lin W S, Li X F. Nitrous oxide from abiotic processes of hydroxylamine and nitrite in estuarine and coastal ecosystems: a review. Journal of Marine Science and Engineering, 2022, 10(5): 623.
- [42] Su Q X, Domingo-Félez C, Jensen M M, Smets B F. Abiotic nitrous oxide (N_2O) production is strongly pH dependent, but contributes little to overall N_2O emissions in biological nitrogen removal systems. Environmental Science & Technology, 2019, 53(7): 3508-3516.
- [43] 段勋, 罗敏, 黄佳芳, 刘育秀, 胡颖. 闽江河口潮滩沼泽湿地沉积物铁的形态和空间分布. 环境科学学报, 2017, 37(10): 3780-3791.
- [44] 毛立, 孙志高, 陈冰冰, 曾阿莹, 童晓雨, 胡星云, 武慧慧. 闽江河口互花米草入侵湿地土壤无机硫赋存形态及其影响因素. 生态学报, 2021, 41(12): 4840-4852.
- [45] 米慧珊, 翟水晶, 高会, 何涛, 孙志高, 田莉萍, 胡星云. 闽江河口湿地典型植物群落空间扩展中铁含量变化特征. 福建师范大学学报: 自然科学版, 2018, 34(6): 53-62.
- [46] 高灯州. 长江口潮滩湿地土壤氧化亚氮排放及其影响机制[D]. 上海: 华东师范大学, 2020.
- [47] Schreiber F, Wunderlin P, Udert K M, Wells G F. Nitric oxide and nitrous oxide turnover in natural and engineered microbial communities: biological pathways, chemical reactions, and novel technologies. Frontiers in Microbiology, 2012, 3: 372.
- [48] Buessecker S, Samo A F, Reynolds M C, Chavan R, Park J, Fontánez Ortiz M, Pérez-Castillo A G, Panduro Pisco G, Urquiza-Muñoz J D, Reis L P, Ferreira-Ferreira J, Furtunato Maia J M, Holbert K E, Penton C R, Hall S J, Gandhi H, Boëchat I G, Gücker B, Ostrom N E, Cadillo-Quiroz H. Coupled abiotic-biotic cycling of nitrous oxide in tropical peatlands. Nature Ecology & Evolution, 2022, 6(12): 1881-1890.
- [49] Frame C H, Casciotti K L. Biogeochemical controls and isotopic signatures of nitrous oxide production by a marine ammonia-oxidizing bacterium. Biogeosciences, 2010, 7(9): 2695-2709.
- [50] Sagar S, Jha N, Deslippe J, Bolan N S, Luo J, Giltrap D L, Kim D G, Zaman M, Tillman R W. Denitrification and N_2O : N_2 production in temperate grasslands: processes, measurements, modelling and mitigating negative impacts. Science of the Total Environment, 2013, 465: 173-195.
- [51] Holtan-Hartwig L, Dörsch P, Bakken L R. Low temperature control of soil denitrifying communities: kinetics of N_2O production and reduction. Soil Biology and Biochemistry, 2002, 34(11): 1797-1806.
- [52] Heil J, Liu S R, Vereecken H, Brüggemann N. Abiotic nitrous oxide production from hydroxylamine in soils and their dependence on soil properties. Soil Biology and Biochemistry, 2015, 84: 107-115.
- [53] 孙志高, 刘景双. 湿地土壤的硝化-反硝化作用及影响因素. 土壤通报, 2008, 39(6): 1462-1467.
- [54] 闵永恩, 苏鹏程, 王咏, 于晓菲, 边红枫, 何春光, 姜海波. 冻融作用对湿地生态系统碳排放的影响. 环境生态学, 2022, 4(9): 17-24, 38.
- [55] Butterbach-Bahl K, Baggs E M, Dannenmann M, Kiese R, Zechmeister-Boltenstern S. Nitrous oxide emissions from soils: how well do we understand the processes and their controls? Philosophical Transactions of the Royal Society of London Series B, Biological Sciences, 2013, 368(1621): 20130122.
- [56] 杨雄. 梯度增温对哀牢山亚热带森林土壤 N_2O 排放的影响[D]. 昆明: 云南大学, 2022.
- [57] Li J Q, Nie M, Pendall E. An incubation study of temperature sensitivity of greenhouse gas fluxes in three land-cover types near Sydney, Australia. Science of the Total Environment, 2019, 688: 324-332.
- [58] 戴晓琴, 李运生, 欧阳竹. 免耕系统土壤氮素有效性及其管理. 土壤通报, 2009, 40(3): 691-696.