

闽江河口养虾塘沉积物氧化亚氮产生及影响因素研究

金宝石^{1,2}, 闫鸿远¹, 杨平², 曾从盛^{2*}

(1. 安庆师范大学资源环境学院, 安庆 246011; 2. 福建师范大学地理科学学院, 福州 350007)

摘要: 氧化亚氮(N_2O)是一种重要的痕量温室气体,对全球气温升高和酸雨形成起着重要作用,并对臭氧层造成严重损害。水产养殖是 N_2O 的潜在释放源,该研究以中国东南沿海的闽江河口湿地围垦养虾塘为研究对象,采用过程抑制法,通过室内培养试验区分 N_2O 不同产生过程及其对沉积物 N_2O 总产生速率的贡献,在此基础上分析沉积物理化性质对 N_2O 产生的影响。结果表明:养虾塘沉积物 N_2O 总产生速率在养殖初期、中期和末期的均值分别为1.80、5.95和8.70 $\text{nmol}/(\text{kg}\cdot\text{h})$,其中硝化作用、反硝化作用、硝化细菌反硝化作用和非生物作用的贡献率均值分别为-162.04%、327.52%、-239.45%和90.27%,从而得出结论:反硝化作用和非生物作用是产生沉积物 N_2O 的主要来源,硝化作用和硝化细菌反硝化作用则对沉积物 N_2O 的产生有所削弱;养虾塘沉积物 N_2O 总产生速率在高温低盐条件下最大,在低温高盐条件下出现最小值,总体呈现随着温度升高而增加,随着盐度升高而降低的趋势;相关分析表明 N_2O 总产生速率与总碳(total carbon, TC)、土壤有机碳(soil organic carbon, SOC)、 NH_4^+-N 含量和C:N比均呈显著正相关关系,而在其不同产生过程中仅有非生物过程受到TC、SOC含量的显著影响。

关键词: 氧化亚氮; 排放控制; 产生过程; 围垦养殖; 闽江河口; 影响因素

doi: 10.11975/j.issn.1002-6819.2019.02.027

中图分类号: X144

文献标志码: A

文章编号: 1002-6819(2019)-02-0213-08

金宝石, 闫鸿远, 杨平, 曾从盛. 闽江河口养虾塘沉积物氧化亚氮产生及影响因素研究[J]. 农业工程学报, 2019, 35(2): 213—220. doi: 10.11975/j.issn.1002-6819.2019.02.027 <http://www.tcsae.org>

Jin Baoshi, Yan Hongyuan, Yang Ping, Zeng Congsheng. Study on production processes of nitrous oxide and its influencing factors from sediment of aquaculture ponds in Min River estuary[J]. Transactions of the Chinese Society of Agricultural Engineering (Transactions of the CSAE), 2019, 35(2): 213—220. (in Chinese with English abstract)

doi: 10.11975/j.issn.1002-6819.2019.02.027 <http://www.tcsae.org>

0 引言

氧化亚氮(N_2O)是3种重要的温室气体之一,百年尺度上其增温潜能约为 CO_2 的265倍^[1]。据估算,2016年全球大气 N_2O 浓度已增至 328.9×10^{-9} ,是工业化前水平(270×10^{-9})的122%,且目前仍以每年0.25%~0.30%的速率增长^[1]。 N_2O 浓度的增加导致地表及海洋表面平均温度上升,进而导致海冰减少、海平面上升以及一系列极端气候问题的发生,并会引起酸雨形成和对臭氧层造成严重损害^[2]。而水产养殖中,由于人为定时定量施加饵料,养殖水体的高氮负荷促进了 N_2O 排放,从而成为 N_2O 的潜在释放源。据估算,2009年全球水产养殖系统的 N_2O 排放量达到0.19 Tg,2030年将达到1.01 Tg,相当于海洋排放量的17%^[3]。目前中国沿海地区水产养殖面积已达12 099.52 km^2 ^[4],其规模及增加速率均居世界首位,是中国海岸带重要的土地利用类型之一,故养殖区 N_2O 的释放对于大气中温室气体浓度的影响不容忽视。近些年来,

水产养殖生态系统 N_2O 释放已经引起国内外学者的广泛关注, Yang等^[5]在闽江河口围垦养虾塘和鱼虾混养塘测得 N_2O 排放通量均值分别为0.24和0.27 $\mu\text{mol}/(\text{m}^2\cdot\text{h})$,宋红丽等^[6]在黄河口养虾塘测得 N_2O 排放通量均值分别为0.06 $\mu\text{mol}/(\text{m}^2\cdot\text{h})$,另外南京农业大学实验基地的蟹-鱼复合养殖塘 N_2O 排放通量达到1.09 $\mu\text{mol}/(\text{m}^2\cdot\text{h})$ ^[7],但这些研究主要侧重于水产养殖生态系统的水-气界面 N_2O 交换通量,而关于沉积物 N_2O 产生的研究鲜见报道。因此,有必要在已有研究的基础上,进一步开展水产养殖生态系统的 N_2O 产生过程及其释放研究。基于此,本文以中国东南沿海的闽江河口湿地围垦养虾塘为研究对象,采用过程抑制法,通过室内培养试验区分沉积物的 N_2O 不同产生过程及其影响机制,以便不断完善水产养殖生态系统温室气体清单的编制工作,并为减少温室气体排放提供科学依据。

1 材料与方法

1.1 区域概况

福建闽江河口潮滩湿地位于 $119^{\circ}34'12''\sim 119^{\circ}40'40''\text{E}$, $26^{\circ}00'36''\sim 26^{\circ}03'42''\text{N}$,地处中亚热带和南亚热带海洋性季风气候的过渡区,气候温暖湿润,年平均气温和降水量分别为19.3 $^{\circ}\text{C}$ 和1 380 mm,该区域分布有众多的水产养殖生态系统。选择3个典型的对虾养虾塘,每个养虾塘均由滩涂湿地围垦而成,且养殖年限相

收稿日期: 2018-08-29 修订日期: 2018-12-23

基金项目: 国家自然科学基金项目(41671088, 41801031),安徽省高校自然重点项目(KJ2018A0373),安庆师范大学博士科研启动项目

作者简介: 金宝石, 博士, 副教授, 主要从事湿地生态环境研究。

Email: jinbsh@aqnu.edu.cn

*通信作者: 曾从盛, 研究员, 博导, 主要从事湿地生态环境研究。

Email: cszeng@fjnu.edu.cn

近,养殖水域养殖面积大约为 7 500 m²,平均水深 1.25 m,水体盐度为 5‰左右。这些养虾塘通常是在 5 月底至 6 月初投放虾苗,10 月中下旬将虾全部收获后养殖结束,养殖品种均为南美白对虾 (*Litopenaeus vannamei*)。养殖期间,每天向养虾塘投放人工配合饵料,养分组成如下:蛋白质 42%、粗灰分 15.0%、水分 11%、粗脂肪 4.0%、粗纤维 3.0%、赖氨酸 2.3%、钙 1.0%~3.0%、总磷 1.0%、食盐 0.5%~2.5%。日投饵量约为虾体质量的 3%~10%,具体饵料投放量根据虾的生长及摄食情况进行调整。待 10 月底对虾全部收获之后开始晒塘和消毒处理,养殖塘每隔 3~5 a 进行沉积物清淤。

1.2 研究方法

1.2.1 沉积物采集及其理化性质测定

鉴于对虾养殖周期情况,本研究分别在养殖初期(6 月中旬)、养殖中期(8 月中旬)、养殖末期(10 月上旬)完成养殖塘沉积物的野外采集以及相关环境参数观测。土壤 pH 值采用便携式 pH 计(STARTER 300, USA)测定(水土比为 5:1);电导率采用便携式电导计(2265FS, USA)测定(水土比为 5:1);TC 和 TN 采用元素分析仪测定;沉积物 NH₄⁺-N、NO₃⁻-N 含量用 2 mol/L 的 KCl 浸提后通过连续流动分析仪 (SKALAR SAN⁺⁺,

Netherlands)测定;土壤粒径采用激光粒度分析仪(Master Sizer 2000, UK)测定,按国际分类方法分为黏粒(<2 μm)、粉粒(2~20 μm)和砂粒(>20 μm)。

1.2.2 试验方法与计算

1) 试验方法:试验采用 Wragg 等^[8]报道的研究方法,即通过气体抑制剂来区分 N₂O 的不同产生过程及其贡献(表 1)。称取 10 g 左右过 2 mm 孔筛的供试土样(3 个养殖塘(各取 3 个样,最后取其平均值代表该养殖塘)、3 个不同养殖期(初期、中期和末期)、4 种处理,共 108 份)放入 300 mL 的血清瓶中,添加适量的去离子水调整到 100%田间持水量,置于 25 ℃的恒温培养瓶中预培养 24 h 后,按照表 1 所列的 4 种处理,分别对土样不添加任何气体作空白对照、添加不同浓度的 C₂H₂、O₂及两者混合气体,然后在 0、6 和 24 h 抽取定量气体,立刻用气相色谱仪(GC-2014, Japan)测定 N₂O 含量。根据养虾塘盐度和养殖期温度的变化范围,设置 2 个盐度(3‰、8‰)和 3 个温度梯度(20、25、30 ℃),称取 6 种供试沉积物样品,设 3 个重复进行空白对照处理和 3 种气体抑制剂添加(共 72 份),以研究盐度、温度以及两者的交互作用对养虾塘沉积物 N₂O 产生过程的影响。

表 1 抑制剂对沉积物 N₂O 产生过程的影响
Table 1 Effects of inhibitors on sediment processes generating N₂O

产生过程 Production process	空白对照 Control (CK)	低浓度 C ₂ H ₂ (0.1 kPa) Low concentration of C ₂ H ₂ (0.1 kPa) (CH)	高浓度 O ₂ (100 kPa) O ₂ atmosphere (100 kPa) (O)	低浓度 C ₂ H ₂ (0.1 kPa) 高浓度 O ₂ (100 kPa)混合 Low concentration of C ₂ H ₂ in O ₂ (CO)
硝化作用 (Nitrification, Ni)	+	—	+	—
反硝化作用 (Denitrification, De)	+	+	—	—
硝化细菌反硝化作用 (Nitrifier denitrification, ND)	+	—	—	—
非生物作用 (Others, Os)	+	+	+	+

注: + 表示此过程可以发生, — 表示此过程被抑制。
Note: + shows process can take place, — shows process is blocked.

2) 不同过程 N₂O 产生速率的计算方法:

$$N_2O_{Ni}=N_2O_O-N_2O_{CO}; N_2O_{De}=N_2O_{CH}-N_2O_{CO};$$

$$N_2O_{Os}=N_2O_{CO};$$

$$N_2O_{ND}=N_2O_{CK}-N_2O_{Ni}-N_2O_{De}-N_2O_{Os}$$
$$=N_2O_{CK}-N_2O_{CH}-N_2O_O+N_2O_{CO}$$

式中下标 Ni、De、ND 和 Os 分别为表 1 中所列的各种 N₂O 产生过程;下标 CK、CH、O 和 CO 分别为表 1 中所列的添加不同气体抑制剂以区分 N₂O 产生过程的各种处理。计算结果为正值表示该过程释放 N₂O,负值则表示存在其他过程与该过程产生竞争反应基质,使得该过程表现为吸收 N₂O;另外,不同过程 N₂O 贡献率为该过程 N₂O 产生速率与总产生速率比值^[9]。

3) N₂O 产生速率的计算:测定 4 种不同处理的 0、6 和 24 h 培养瓶中气体 N₂O 浓度 (μL/L),根据下式计算沉积物的 N₂O 产生速率^[9]

$$P=\frac{dc}{dt}\times\frac{V}{Mv}\times\frac{Mw}{W}\times\frac{273}{T}$$

式中 P 为 N₂O 产生速率,μL/(L·h);dc/dt 为培养瓶中气体 N₂O 浓度随时间的变化速率,μL/(L·h);V 为培养瓶中上方气体的体积,L;W 为沉积物干质量,g;M_w 为 N₂O

的摩尔质量,g/mol;M_v 为标准状态下 1 mol 气体的体积(22.4 L/mol);T 为培养温度,K。其中,一组 N₂O 浓度变化数据只有在其关于时间的线性函数的回归系数 R²>0.80 时才视为有效。

1.2.3 数据处理与分析

采用 Excel 2007 和 Origin8.0 软件对原始数据进行处理和绘图;运用 SPSS 19.0 统计软件中的单因素方差分析和差异性检验进行不同样品间的比较,Pearson 相关分析分析沉积物理化性质对 N₂O 产生的影响。

2 结果与分析

2.1 沉积物理化性质

养虾塘沉积物理化性质分析表明(表 2),pH 值在各养殖期没有显著性差异(P>0.05),容重则在养殖末期显著高于养殖初期和中期(P<0.05),电导率、含水率和孔隙度在养殖中期和末期显著高于养殖初期(P<0.05),沉积物粒径方面仅有黏粒组成在养殖中期和末期存在显著差异(P<0.05)。沉积物 SOC、TC 含量和 C:N 均表现为养殖中期和末期显著高于养殖初期(P<0.05)。TN 在养殖中期显著高于养殖初期,NH₄⁺-N 则在养殖末期显

著高于养殖初期和中期， $\text{NO}_x\text{-N}$ 则在养殖末期显著高于养殖中期 ($P<0.05$)。

表 2 养虾塘沉积物的理化性质

Table 2 Physical & chemical properties of sediments in shrimp ponds

理化性质 Physical & chemical properties	养殖初期 Initial stage	养殖中期 Middle stage	养殖末期 Final stage
pH 值 pH value	6.88±0.37a	6.87±0.21a	6.98±0.21a
电导率 Electric conductivity EC/($\mu\text{S}\cdot\text{cm}^{-1}$)	1.84±0.39a	2.26±0.32b	2.23±0.31b
容重 Bulk density BD/($\text{g}\cdot\text{cm}^{-3}$)	1.46±0.07a	1.46±0.04a	1.94±0.04b
含水率 Moisture content/%	69.41±2.86a	86.76±10.47b	84.98±5.58b
孔隙度 Porosity/%	59.59±2.89a	67.30±4.32b	66.67±2.08b
黏粒 Clay/%	18.54±1.09ab	21.93±0.81b	16.54±1.56a
粉粒 Silt/%	65.06±0.88a	62.54±4.09a	67.35±0.42a
砂粒 Sand/%	16.40±0.63a	15.54±0.64a	16.11±0.91a
土壤有机碳 Soil organic carbon SOC/($\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$)	9.44±1.17a	13.78±1.04b	14.84±0.83b
总碳 Total carbon TC/($\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$)	12.34±1.11a	18.51±1.49b	17.81±1.21b
C : N	7.25±0.30a	9.15±0.52b	9.63±0.50b
总氮 Total nitrogen TN/($\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$)	1.70±0.13a	2.03±0.14b	1.86±0.16ab
$\text{NH}_4^+\text{-N}/(\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1})$	38.76±8.48a	37.70±5.89a	52.68±6.06b
$\text{NO}_x\text{-N}/(\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1})$	1.25±0.34ab	1.12±0.18a	1.39±0.48b

注：同行不同小写字母表示在 $P<0.05$ 上差异显著。

Note: Means followed by the different letters at the same row were significantly different at the 5% level.

2.2 沉积物 N_2O 产生过程及贡献分析

不同处理下养虾塘沉积物 N_2O 产生速率如表 3 所示，未添加气体(CK)的沉积物 N_2O 产生即总产生速率(NTP)变化于 1.80~8.70 $\text{nmol}/(\text{kg}\cdot\text{h})$ ，均值为 5.48 $\text{nmol}/(\text{kg}\cdot\text{h})$ ，

方差分析表明养殖末期的沉积物 N_2O 总产生速率显著 ($P<0.05$) 高于养殖中期和初期，养殖中期又显著高于养殖初期 ($P<0.05$)。添加低浓度 C_2H_2 的沉积物 N_2O 产生速率变化于 10.58 ~ 12.53 $\text{nmol}/(\text{kg}\cdot\text{h})$ ，均值为 11.29 $\text{nmol}/(\text{kg}\cdot\text{h})$ ，时间上表现为养殖中期显著高于养殖初期和末期 ($P<0.05$)。添加高浓度 O_2 的沉积物 N_2O 产生速率变化于 -1.30 ~ -6.17 $\text{nmol}/(\text{kg}\cdot\text{h})$ ，均值为 -3.12 $\text{nmol}/(\text{kg}\cdot\text{h})$ ，添加低浓度 C_2H_2 和高浓度 O_2 混合气体的沉积物 N_2O 产生速率变化于 0.64 ~ 2.44 $\text{nmol}/(\text{kg}\cdot\text{h})$ ，均值 1.84 $\text{nmol}/(\text{kg}\cdot\text{h})$ ，均呈现养殖末期极显著低于养殖初期和中期 ($P<0.01$)。根据不同处理下沉积物 N_2O 产生速率可计算得到不同过程的 N_2O 产生速率如图 1 所示。

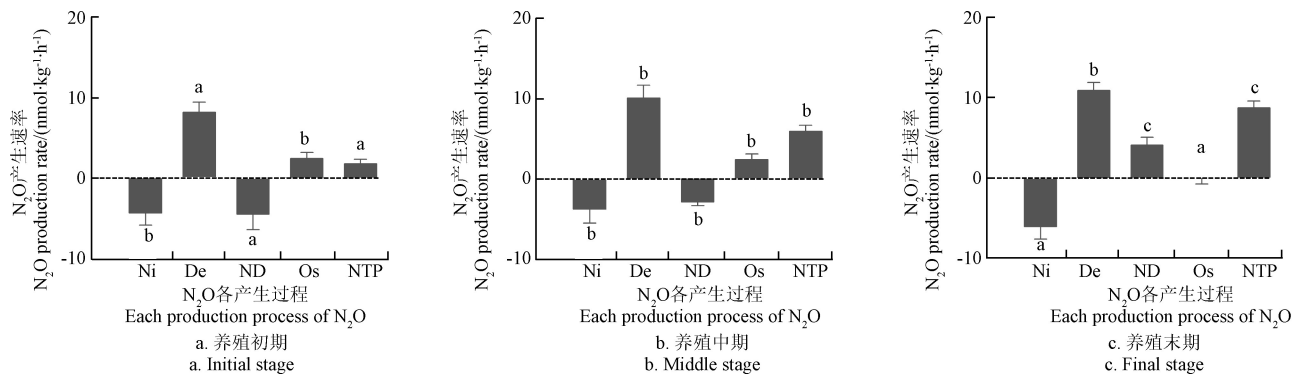
表 3 不同处理的养虾塘沉积物 N_2O 产生速率

Table 3 N_2O production of different processes from sediments in shrimp ponds

处理 Treatments	$\text{nmol}\cdot\text{kg}^{-1}\cdot\text{h}^{-1}$		
	养殖初期 Initial stage	养殖中期 Middle stage	养殖末期 Final stage
空白对照 Control (CK)	1.80±0.57a	5.95±0.74b	8.70±0.83c
低浓度 C_2H_2 Low concentration of C_2H_2 (CH)	10.58±1.44a	12.53±2.18b	10.78±0.45a
高浓度 O_2 O_2 atmosphere (O)	-1.89±0.80b	-1.30±1.52b	-6.17±0.88a
低浓度 C_2H_2 高浓度 O_2 混合 Low concentration of C_2H_2 in O_2 (CO)	2.44±0.74b	2.44±0.71b	0.64±0.30a

注：同行不同小写字母表示在 $P<0.05$ 上差异显著。

Note: Means followed by the different letters at the same row were significantly different at the 5% level.



注：图中小写字母表示不同养殖期各产生过程在 $P<0.05$ 上差异显著。NTP 为 N_2O 总产生速率。

Note: Means followed by the different letters were significantly different at the 5% risk level. NTP is total production rate of nitrous oxide.

图 1 养虾塘沉积物不同过程的 N_2O 产生速率

Fig.1 N_2O production of sediments from different processes in shrimp ponds

根据 N_2O 各产生过程的产生速率可计算出它对总产生速率的贡献，其中硝化作用(Ni)表现为削弱作用，其贡献率变化于 -116.41% ~ -250.96%，均值为 -162.04%；反硝化作用(De)是沉积物 N_2O 的主要产生过程，其贡献率变化于 226.19%~502.88%，均值为 327.52%；硝化细菌反硝化作用(ND)大部分表现为削弱作用，削弱贡献变化于 -144.17%~-334.74%，均值为 -239.45%，在养殖末期均表现为促进作用，平均贡献率达到了 45.36%；非生物作用(O_s)均表现为促进作用，贡献率变化于 53.09%~140.97%，均值为 90.27%。

由此可见，闽江河口养虾塘沉积物 N_2O 产生速率主要来源于反硝化作用和非生物作用，而硝化作用和硝化细菌反硝化作用主要起到削弱作用。

相关分析表明(表 4)，养虾塘沉积物 N_2O 总产生速率与硝化作用呈极显著负相关 ($P<0.01$)，与反硝化作用和硝化细菌反硝化作用分别呈现极显著 ($P<0.01$) 和显著 ($P<0.05$) 正相关；此外，硝化作用与反硝化作用和硝化细菌反硝化作用分别呈现极显著 ($P<0.01$) 和显著 ($P<0.05$) 负相关，硝化细菌反硝化作用与非生物作用表现极显著负相关 ($P<0.01$)。

表 4 沉积物 N₂O 不同产生过程间相关分析
Table 4 Correlation analysis between different processes of generating N₂O from sediments

	Ni	De	ND	NTP
Ni	1			-0.747**
De	-0.581**	1		0.831**
ND	-0.400*	0.281	1	0.399*
Os	-0.177	-0.237	-0.659**	-0.045

注: **. 在 0.01 水平 (双侧) 上显著相关, *. 在 0.05 水平 (双侧) 上显著相关。下同。
Note: *, ** Significant at $P < 0.05$ and $P < 0.01$, respectively. Same as below.

2.3 温度和盐度对沉积物 N₂O 产生的影响

如图 2 所示, 沉积物 N₂O 总产生速率在高温 (30 ℃) 低盐 (3‰) 条件下取得最大值 (8.91 nmol/(kg·h)), 而最小值 (4.09 nmol/(kg·h)) 出现低温 (20 ℃) 高盐 (8‰) 条件下。另外, 低盐和高盐条件下, 沉积物 N₂O 总产生速率均表现为 30 ℃>25 ℃>20 ℃, 但低盐条件下温度之间差异性不显著 ($P>0.05$), 而高盐条件下 30 与 20 ℃之间存在显著差异 ($P<0.05$)。而在 3 种温度 (20、25、30 ℃) 条件下, 沉积物 N₂O 总产生速率在低盐度 3‰ 时均显著高于高盐度 8‰ ($P<0.05$)。双因素方差分析表明 (表 5), 对沉积物 N₂O 总产生速率, 仅有盐度存在显著影响 ($P<0.05$); 对 N₂O 的各产生过程, 盐度均产生显著 ($P<0.05$) 或极显著 ($P<0.01$) 影响, 而温度未产生显著影响 ($P>0.05$); 温度及盐度的交互作用分别对硝化细菌反硝化和非生物作用产生显著影响 ($P<0.05$)。

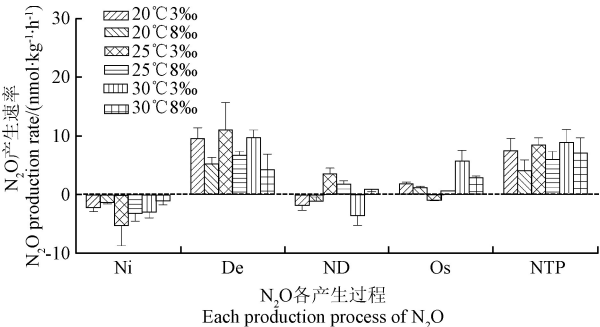


图 2 温度和盐度对养虾塘沉积物 N₂O 产生过程的交互影响
Fig.2 Interactive effect on generating processes of N₂O from sediment by temperature and salinity in shrimp ponds

表 5 温度和盐度交互作用下 N₂O 产生速率与产生过程的方差分析

Table 5 ANOVA for total production rate and processes of generating N ₂ O under interactive effects of temperature and salinity					
影响因素 Influencing factors	Ni	De	ND	Os	NTP
温度 Temperature	1.042	2.619	1.015	2.097	1.219
盐度 Salinity	5.021*	6.078*	12.057**	17.363**	5.321*
温度×盐度 Temperature × Salinity	2.000	3.019	4.023*	4.101*	2.042

2.4 沉积物 N₂O 产生与理化性质相关分析

养虾塘沉积物理化性质对 N₂O 总产生速率和产生过程的影响如表 6 所示, 其中 NTP 与 TC、SOC 含量和 C: N 比呈显著正相关 ($P<0.05$), 与 NH₄⁺-N 含量呈极显著正相关 ($P<0.01$); 在不同产生过程中仅有非生物过程受到 TC、SOC 含量的显著影响 ($P<0.05$)。

表 6 N₂O 产生与沉积物理化性质的相关分析
Table 6 Correlation analysis between N₂O production and physical & chemical properties of sediments

沉积物理化性质 Physical-chemical properties of sediments	N ₂ O 产生 N ₂ O production				
	Ni	De	ND	Os	NTP
pH 值 pH value	-0.089	0.008	0.045	0.036	-0.020
电导率 EC	0.165	0.036	0.007	0.238	0.107
容重 BD	-0.050	-0.196	0.236	-0.015	0.244
含水率 Moisture	-0.278	-0.177	0.096	0.362	-0.033
孔隙度 Porosity	-0.234	-0.156	0.090	0.298	-0.034
黏粒 Clay	0.241	0.190	-0.205	-0.235	-0.196
粉粒 Silt	0.140	0.088	-0.024	-0.196	0.102
砂粒 Sand	-0.212	-0.146	0.085	0.267	-0.044
土壤有机碳 SOC	0.229	0.117	0.066	0.375*	0.439*
总碳 TC	-0.251	0.063	0.010	0.409*	0.367*
总氮 TN	-0.125	0.010	-0.094	0.278	0.109
C : N	-0.264	-0.118	0.119	0.351	0.452*
NH ₄ ⁺ -N	0.112	-0.097	0.079	-0.237	0.507**
NO _x ⁻ -N	-0.058	0.257	-0.193	-0.085	-0.021

3 讨 论

3.1 养虾塘沉积物 N₂O 产生速率与产生过程

本研究中, 闽江河口养虾塘沉积物 N₂O 产生速率于 0.75~9.53 nmol/(kg·h) 范围内, 均值为 5.48 nmol/(kg·h); 表现为 N₂O 释放源。相关研究表明, 闽江河口短叶茳芰湿地和互花米草湿地土壤 N₂O 的总产生速率分别为 -0.51 和 38.38 nmol/(kg·h)^[10]。与此相比较, 水产养殖活动不同程度地增加和减少了滨海湿地沉积物产生与释放 N₂O。但是, 相对于黄河口不同恢复阶段湿地土壤各土层的 N₂O 总产生速率 (0.02~9.75 nmol/kg/h) 而言^[9], 则增加了 N₂O 的释放。此外, 研究中 N₂O 总产生速率和各产生过程均存在变化范围较大的问题, 一方面是由于试验中 N₂O 是浓度非常低, 仪器测定结果存在一些波动; 另一方面可能与养殖塘沉积物的重复样品的处理方法有关。因此, 在以后的研究中应该提高仪器的稳定性和样品处理的科学性, 同时加强数据处理分析, 增强数据的可释性。

多数研究认为, 硝化作用和反硝化作用是土壤 N₂O 产生的主要过程。黄国宏等^[11]用乙炔抑制技术证明了, 在农田土壤含水量较高的情况下 N₂O 产生主要来自反硝化过程, 含水量较低时 N₂O 主要是通过硝化过程产生, 而在中等含水量条件下, 土壤微生物硝化和反硝化过程产生的 N₂O 相当。这主要是因为土壤的水分状况可以影响其氧分压和通气状况, 进而影响到好气性硝化细菌的活性。本研究表明, 养虾塘沉积物 N₂O 来源于反硝化作用, 这主要是由于培养试验中设置的较高含水量, 使得沉积物处于厌氧环境, 从而有利反硝化过程进行; 同时, 试验中较高的水分条件会对硝化作用产生一定的抑制作用, 从而使得绝大多数结果表现为较大的削弱作用, 仅有个别情况, 硝化作用对沉积物 N₂O 产生有贡献。张树兰等^[12]发现, 土壤水分含量为 80% 时会抑制硝化作用进行; Allen 等^[13]也发现, 湿地土壤总硝化速率与湿度呈显著负相关。

硝化细菌反硝化作用作为硝化作用的一个特殊过程, 在高的氨或铵盐含量、低碳低氧含量以及低 pH 值环境下有利于硝化细菌反硝化的进行, Wrage 等^[14]通过¹⁸O-¹⁵N 双同位素标记法和乙炔抑制法测得硝化细菌反硝化对土壤 N₂O 生成的贡献分别为 44%和 40%。然而, Webster 和 Hopkins^[15]研究发现, 在草原砂质土壤中硝化细菌反硝化产生的 N₂O 与土壤水分显著相关, 在低含水量条件下, 它对土壤 N₂O 产生的贡献率高达 29%, 而在较高含水量时, 它对土壤 N₂O 产生的贡献率仅有 3%。本研究中, 硝化细菌反硝化作用大部分表现为削弱作用, 削弱贡献变化于-144.17%~-334.74%, 均值为-239.45%, 但在养殖末期均表现为促进作用, 平均贡献率达到 45.36%, 这可能是由于养殖末期沉积物的氨态氮含量较高, 从而有利于硝化细菌反硝化的进行。因此, 硝化细菌反硝化作用也应作为养虾塘沉积物的 N₂O 排放的一个重要产生过程, 同时其作用又存在极大的不确定性, 需要在以后的研究中对硝化细菌反硝化的发生条件及其贡献进行更深入的研究。

与生物作用相比, 非生物作用下沉积物产生 N₂O 的研究相对较少, 但是它对 N₂O 产生的贡献却不可忽视。Wrage 等^[8]认为, 在特定情况下没有微生物参与的化学反硝化可产生少量的 N₂O。通常, 化学反硝化只有在 pH 值较低时才被作为 N₂O 的一个产生源而加以考虑, 且该过程产生的气体中 N₂O 量最少, 也远小于硝化或反硝化过程产生的 N₂O 量^[16]。Remde 和 Conrad^[17]研究发现, 在 pH 值为 4 的土浆中产生的 N₂O 有 6%来自于化学反硝化, Ding 等^[18]研究发现, 化学反硝化对不同施肥处理的砂壤土 N₂O 排放的贡献介于 6.7%~12.7%。然而, 孙文广等^[9]研究黄河口湿地 N₂O 产生的结果表明, 非生物作用在不同恢复阶段湿地土壤的贡献高达 93.38%、229.36%和 1194.56%, 并认为这与研究区的高活性铁有关。本研究中, 非生物作用对沉积物 N₂O 产生速率也起着重要作用, 平均贡献率达到 90.27%, 这可能也与养虾塘沉积物的高活性铁有关。相关研究表明, 闽江河口围垦 3 和 15 a 的养虾塘沉积物的 Fe²⁺质量分数分别为 15.44 和 14.92 g/kg, 极显著高于天然湿地土壤中质量分数 (4.35 g/kg)^[19]。此外, 非生物作用的贡献率也与乙炔对生物作用的不完全抑制有关, 这样会使得一部分由生物作用产生的 N₂O 被归为非生物作用了^[12]。

3.2 温度和盐度对养虾塘沉积物 N₂O 产生的影响

温度主要是通过影响硝化细菌和反硝化细菌活性和代谢活动, 进而影响沉积物 N₂O 的产生过程和产生速率。研究表明, 硝化细菌生长的适宜温度范围是 20~35 ℃, 低于 15 ℃或高于 50 ℃硝化作用基本停止, 而反硝化作用可在较宽的温度范围 (5~70 ℃) 内进行, 且随温度的升高而增强, 但温度过高或过低均会对其产生抑制作用^[20]; 另外, 不同温度条件下沉积物有机质分解和氮矿化的过程差异明显, 从而使得 N₂O 产生速率差异较大。本研究表明, 2 种盐度下沉积物的 N₂O 总产生速率均在 30 ℃时取得最大值, 在 20 ℃取得最低值, 同时温度对不

同盐度下沉积物 N₂O 产生过程的响应程度存一定差异。首先, 作为 N₂O 的主要产生过程, 反硝化作用均在 25 ℃取得最大值, 而在 20 和 30 ℃时, 处于明显抑制状态, 进一步表明 25 ℃是反硝化作用的最适宜温度^[21]; 其次, 硝化细菌反硝化作用也都在 25 ℃取得最大值, 这与黄河口湿地土壤的研究结果一致^[14]; 另外, 非生物过程均在 30 ℃取得最大值, 从而成为 N₂O 产生的重要来源, 这可能与化学反硝化中没有微生物的参与有关, 从而没有受到高温的抑制。

盐度作为环境因子影响着河口湿地沉积物氮转化过程和氮的释放。汪旭明^[22]认为, 盐度一方面是通过生理机制改变沉积物氮的释放量, 从而影响硝化细菌和反硝化细菌活性, 进而影响硝化和反硝化作用的 N₂O 产生速率; 另一方面是通过物理化学机制改变沉积物中铵的吸收与释放, 进而影响硝化反硝化作用。关于盐度对潮汐湿地 N₂O 排放通量的研究存在不确定性, 多数研究认为 N₂O 排放通量表现出随盐度增加而减小^[13,22]; Marton 等^[23]研究发现, Satilla 河潮汐洪泛平原土壤的 N₂O 产生速率随盐度增加而增大; 还有研究表明, 盐度的增加对河口湿地 N₂O 产生和排放无显著的影响^[10,24]。本研究表明, 不同温度条件下沉积物的 N₂O 总产生速率均表现为低盐 (3‰) 较高于高盐 (8‰), 说明盐度对不同温度条件下沉积物 N₂O 产生过程的响应程度基本一致。其中, 作为 N₂O 的主要产生过程, 反硝化作用均表现为低盐高于高盐, 且硝化作用的削弱作用具有同样的特征, 由此表明盐度对硝化反硝化过程具有一定的抑制作用, 进一步证实了本研究区其他相关研究^[22]。硝化细菌反硝化作用在 20 和 25 ℃时均为低盐高于高盐, 但在 30 ℃时出现相反的结果, 由此表明, 盐度对不同温度条件下硝化细菌反硝化作用的影响存在一定差异。

3.3 养虾塘沉积物理化性质对 N₂O 产生的影响

养虾塘沉积物中含有的大量有机质, 而丰富的碳源可以增强微生物活性、促进厌氧环境的形成, 从而有利于 N₂O 的产生。本研究中, TC 含量与 N₂O 总产生速率、非生物作用均呈现显著正相关 (表 6), Chen 等^[25]在研究中国南方红树林沼泽的 N₂O 排放通量也得出沉积物 TC 含量的影响呈显著正相关。此外, SOC 含量与 N₂O 总产生速率和非生物作用也呈显著正相关 (表 6), 在其他水生生态系统研究中, 多数表明 N₂O 的产生和排放与有机质含量成正相关, 虽然有机质中可利用有机碳一般较低, 但沉积物中有机碳分解 12%就能提供反硝化所需的碳源, 因此反硝化速率随着有机碳含量增加而加快。

无机氮是 N₂O 生成过程的最主要驱动因素之一, 多数研究表明水体无机氮浓度与水生生态系统 N₂O 的产生与排放成正相关。如地中海 Rhone 河口水体中可利用性 NH₄⁺-N 可以解释 72%的硝化速率变化^[26], Webster 等^[15]研究发现, 澳大利亚 Brisbane 河口红树林沉积物的 N₂O 排放速率与其 NH₄⁺-N 含量显著正相关。本研究结果进一步证实了以上结论, 养虾塘沉积物 N₂O 总产生速率与 NH₄⁺-N 呈极显著正相关, 但与 NO₃⁻-N 总体上相关性不

显著,且存在一定的显著负相关性,同样的结果也出现在闽江河口湿地其他相关研究中^[22]。研究表明,当每千克土壤中 NO_3^- -N 含量大于 25 mg 时,土壤的反硝化作用就不再受 NO_3^- -N 含量影响,其强度主要取决于有机质等其他影响的因素^[27]。如 Beaulieu 等^[21]研究美国 72 条源头溪流的 N_2O 排放时发现,来自反硝化作用的 N_2O 产量并没有随着 NO_3^- -N 浓度上升而增加;方芳等^[28]应用乙炔抑制—培养法在研究水分、温度、碳源和氮源等要素对三峡库区土壤的 N_2O 产量和反硝化作用的影响时发现,外加氮源为 NO_3^- -N 时,反硝化速率随氮源量的增加有减小的趋势,过多的硝态氮会抑制反硝化作用。

此外,C:N 比也是影响 N_2O 产生的重要因素,一般土壤微生物的最适 C:N 比为 25~30,若比值高于该值,有机质分解缓慢,微生物活性较弱, N_2O 释放受到抑制,反之则可促进 N_2O 排放^[21],如 Baggs 等^[29]研究农田土壤在施入作物残渣后对 N_2O 排放的影响时发现,低 C:N 的作物残渣会增加 N_2O 排放。本研究进一步证明了此结论,养虾塘沉积物 C:N 在 10 以下(表 1),相关分析表明它与 N_2O 呈现显著正相关(表 6)。然而也有研究得到相反的结论,如黄耀等^[30]研究发现,C:N 比在 7~12 时, N_2O 的排放随着 C:N 的增加而减少,这可能是由于养虾塘沉积物与麦田土壤的其他理化性质差异,还有麦田的自然环境和本研究中培养条件的不同等原因造成的。

4 结 论

1) 养虾塘沉积物的 N_2O 总产生速率在养殖初期、中期和末期的均值分别为 1.80、5.95 和 8.70 nmol/(kg·h),均表现 N_2O 释放源,且随养殖时间增加呈现增加趋势。

2) N_2O 产生过程中硝化作用、反硝化作用、硝化细菌反硝化作用和非生物作用的贡献率均值分别为 -162.04%、327.52%、-239.45%和 90.27%,因此沉积物 N_2O 产生主要来源于反硝化作用和非生物作用,而硝化作用和硝化细菌反硝化起到削弱影响。

3) 养虾塘沉积物 N_2O 总产生速率在高温低盐条件下取得最大值 8.91 nmol/(kg·h),最小值 4.09 nmol/(kg·h)出现在低温高盐条件下,总体上随着温度升高而增加,随着盐度升高而降低。

4) 养虾塘沉积物总产生速率主要受到总碳(total carbon, TC)、土壤有机碳(soil organic carbon, SOC)、 NH_4^+ -N 含量和 C:N 比影响,在不同产生过程中仅有非生物过程受到总碳(total carbon, TC)和土壤有机碳(soil organic carbon, SOC)含量的显著影响。

5) 对滨海水产养殖生态系统而言,通过增加养殖水体与海水的交换频率,实现其盐度升高并降低有机碳和无机氮含量,从而降低其 N_2O 产生与排放。

[参 考 文 献]

- [1] Greenhouse Gas Bulletin[M]. World Meteorological Organization, 2017.
- [2] Kang S M, Polvani L M, Fyfe J C, et al. Impact of polar ozone depletion on subtropical precipitation[J]. Science, 2011, 332(6032): 951–954.
- [3] Williams J, Crutzen P J. Nitrous oxide from aquaculture[J]. Nature Geoscience, 2010, 3(3): 143.
- [4] 姚云长,任春颖,王宗明,等. 1985 年和 2010 年中国沿海盐田和养殖池遥感监测[J]. 湿地科学, 2016, 14(6): 874–882.
- [5] Yao Yunchang, Ren Chunying, Wang Zongming. Monitoring of salt ponds and aquaculture ponds in the coastal zone of China in 1985 and 2010[J]. Wetland Science, 2016, 14(6):874–882. (in Chinese with English abstract)
- [6] Yang P, He Q, Huang J, et al. Fluxes of greenhouse gases at two different aquaculture ponds in the coastal zone of southeastern China[J]. Atmospheric Environment, 2015, 115: 269–277.
- [7] 宋红丽,刘兴土,文波龙. 黄河三角洲养殖塘水-气界面 CO_2 、 CH_4 和 N_2O 通量特征[J]. 生态环境学报, 2017, 26(9): 1554–1561.
- [8] Song Hongli, Liu Xingtu, Wen Bolong. Greenhouse gases fluxes at water-air interface of aquaculture ponds in the Yellow River Estuary[J]. Ecology and Environmental Sciences, 2017, 26(9): 1554–1561. (in Chinese with English abstract)
- [9] Liu S, Hu Z, Wu S, et al. Methane and nitrous oxide emissions reduced following conversion of rice paddies to inland crab-fish aquaculture in Southeast China[J]. Environmental Science & Technology, 2016, 50(2): 633–645.
- [10] Wragge N, Lauf J, Del P A, et al. Distinguishing sources of N_2O in European grasslands by stable isotope analysis[J]. Rapid Communications in Mass Spectrometry Rcm, 2004, 18(11): 1201.
- [11] 孙文广,孙志高,甘卓亭,等. 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[J]. 环境科学, 2014, 35(8): 3110–3119.
- [12] Sun Webguang, Sun Zhigao, Gan Zhuoting, et al. Contribution of different processes in wetland soil N_2O production in different restoration phases of the Yellow River Estuary, China[J]. Environmental Science, 2014, 35(8): 3110–3119. (in Chinese with English abstract)
- [13] 牟晓杰. 闽江河口湿地碳氮循环关键过程对氮输入的响应[D]. 长春: 中国科学院东北地理与农业生态研究所, 2013.
- [14] Mou Xiaojie. Response of Key Processes of Carbon and Nitrogen Cycle to Nitrogen Addition in the Min River Estuarine Wetland[D]. Changchun: Northeast Institute of geography and AGroecology, Chinese Academy of Sciences, 2013. (in Chinese with English abstract)
- [15] 黄国宏,陈冠雄,韩冰,等. 土壤含水量与 N_2O 产生途径

- 研究[J]. 应用生态学报, 1999, 10(1): 53—56.
- Huang Guohong, Chen Guanxiong, Han Bing, et al. Relationships between soil water content and N_2O production[J]. Chinese Journal of Applied Ecology, 1999, 10(1): 53—56. (in Chinese with English abstract)
- [12] 张树兰, 杨学云. 温度、水分及不同氮源对土壤硝化作用的影响[J]. 生态学报, 2002, 22(12): 2147—2153.
- Zhang Shulan, Yang Xueyun. Effect of soil moisture, temperature and different nitrogen fertilizers on nitrification[J]. Acta Ecologica Sinica, 2002, 22(12): 2147—2153. (in Chinese with English abstract)
- [13] Allen D E, Dalal R C, Rennenberg H, et al. Spatial and temporal variation of nitrous oxide and methane flux between subtropical mangrove sediments and the atmosphere[J]. Soil Biology & Biochemistry, 2007, 39(2): 622—631.
- [14] Wrage N, Velthof G L, Beusichem M L V, et al. Role of nitrifier denitrification in the production of nitrous oxide[J]. Soil Biology & Biochemistry, 2001, 33(12/13): 1723—1732.
- [15] Webster E A, Hopkins D W. Contributions from different microbial processes to N_2O emission from soil under different moisture regimes[J]. Biology & Fertility of Soils, 1996, 22(4): 331—335.
- [16] Koponen H T, Duran C E, Maljanen M, et al. Temperature responses of NO and N_2O emissions from boreal organic soil[J]. Soil Biology and Biochemistry, 2006, 38(7): 1779—1787.
- [17] Remde A, Conrad R. Role of nitrification and denitrification for NO metabolism in soil[J]. Biogeochemistry, 1991, 12(3): 189—205.
- [18] Ding W X, Yu H Y, Cai Z C. Impact of urease and nitrification inhibitors on nitrous oxide emissions from fluvo-aquic soil in the North China Plain [J]. Fertility of Soils, 2011, 47(1): 91—99.
- [19] 高灯州. 围垦养殖对沉积物磷赋存形态的影响及其潜在释放风险评估[D]. 福州: 福建师范大学, 2016.
- Gao Dengzhou. Effects of Mudflat Reclamation on Phosphorus Fractions of Sediment and its Releasing Risk Assessment[D]. Fuzhou: Fujian Normal University, 2016. (in Chinese with English abstract)
- [20] 孙志高, 刘景双. 湿地土壤的硝化-反硝化作用及影响因素[J]. 土壤通报, 2008, 39(6): 1462—1467.
- Sun Zhigao, Liu Jingshuang. Nitrification-denitrification and its affecting factors in wetland soil: A review[J]. Chinese Journal of Soil Science, 2008, 39(6): 1462—1467. (in Chinese with English abstract)
- [21] Beaulieu J J, Tank J L, Hamilton S K, et al. Nitrous oxide emission from denitrification in stream and river networks[J]. Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America, 2011, 108(1): 214—219.
- [22] 汪旭明. 闽江口淡水和半咸水短叶茳芩潮汐湿地 N_2O 通量研究[D]. 福州: 福建师范大学, 2015.
- Wang Xuming. Flux of oxide in freshwater and brackish *Cyperus malaccensis* tidal marshes in the min river estuary[D]. Fuzhou: Fujian Normal University, 2015. (in Chinese with English abstract)
- [23] Marton J M, Herbert E R, Craft C B. Effects of salinity on denitrification and greenhouse gas production from laboratory-incubated tidal forest soils[J]. Wetlands, 2012, 32(2): 347—357.
- [24] Wang D Q, Chen Z L, Wang J, et al. Summer-time denitrification and nitrous oxide exchange in the intertidal zone of the Yangtze Estuary[J]. Estuarine, Coastal and Shelf Science, 2007, 73(1): 43—53.
- [25] Chen G C, Tama N F Y, Ye Y. Summer fluxes of atmospheric greenhouse gases N_2O , CH_4 and CO_2 from mangrove soil in South China[J]. Science of the Total Environment, 2010, 408: 2761—2767.
- [26] Bianchi M, Feliatra, Lefevre D. Regulation of nitrification in the land-ocean contact area of the Rhone River plume (NW Mediterranean)[J]. Aquatic Microbial Ecology, 1999, 18(3): 301—312.
- [27] 张玉铭, 胡春胜, 董文旭, 等. 农田土壤 N_2O 生成与排放影响因素及 N_2O 总量估算的研究[J]. 中国生态农业学报, 2004, 12(3): 119—123.
- Zhang Yuming, Hu Chunsheng, Dong Wenxu, et al. The influencing factors of production and emission of N_2O from agricultural soil and estimation of total N_2O emission[J]. Chinese Journal of Eco-Agriculture, 2004, 12(3): 119—123. (in Chinese with English abstract)
- [28] 方芳, 高红涛, 张曾宇, 等. 三峡库区消落带土壤 N_2O 排放和反硝化影响因子分析[J]. 重庆大学学报: 自然科学版, 2013, 36(11): 93—100.
- Fang Fang, Gao Hongtao, Zhang Zengyu, et al. The influencing factors of N_2O emission and denitrification in the soil of water-level-fluctuation zone in the Three Gorges Reservoir area[J]. Journal of Chongqing University, 2013, 36(11): 93—100. (in Chinese with English abstract)
- [29] Baggs E M, Rees R M Watson. Nitrous oxide emission from soils after incorporating crop residues[J]. Soil Use and Management, 2000, 16(2): 82—87.
- [30] 黄耀, 焦燕, 宗良钢, 等. 土壤理化特性对麦田 N_2O 排放影响的研究[J]. 环境科学学报, 2002, 22(5): 598—603.
- Huang Yao, Jiao yan, Zong Lianggang, et al. N_2O emission from wheat cultivated soils as influenced by soil physico-chemical properties[J]. Acta Scientiae Circumstantiae, 2002, 22(5): 598—603. (in Chinese with English abstract)

Study on production processes of nitrous oxide and its influencing factors from sediment of aquaculture ponds in Min River estuary

Jin Baoshi^{1,2}, Yan Hongyuan¹, Yang Ping², Zeng Congsheng^{2*}

(1. College of Resources and Environment Science, Anqing Normal University, Anqing 246011, China;

2. School of Geographical Sciences, Fujian Normal University, Fuzhou 350007, China)

Abstract: Nitrous oxide (N_2O) is one of the three important greenhouse gases, which has an important impact on atmospheric environment, such as global warming, acid rain formation, ozone layer destruction and so on. As a special artificial aquatic ecosystem, aquaculture, which is rich in nutrients due to the application of a large amount of food, becomes a potential source of nitrous oxide. The total area and increasing rate of aquaculture in the coastal areas of China ranked first in the world, and the emission of N_2O from the aquaculture attracted more and more attention. In order to differentiate the production process of N_2O and its contribution to the total N_2O production of sediment, this study took the reclamation shrimp ponds of Min River estuary in the southeast coast of China as the research object and adopted the laboratory-incubated experiments by means of inhibited process. On this basis, the influence of physicochemical properties on N_2O production of sediment was analyzed and the measures to reduce N_2O emission from the aquaculture were put forward. Results showed that the average N_2O production rate of sediment from the shrimp pond was 1.80, 5.95 and 8.70 nmol/(kg·h) in the early, middle and final stages of the aquaculture, respectively. The shrimp pond was the N_2O sources and the production rate increased with the time of aquaculture. The mean contribution of nitrification, denitrification, nitrifier denitrification and abiotic effect in the three aquaculture period was -162.04%, 327.52%, -239.45% and 90.27%, respectively. The N_2O production of the sediments from the shrimp ponds in Min River estuary was generated from the denitrification and abiotic effect, while nitrification and nitrifier denitrification played a negative role. Nitrification was negatively correlated with denitrification and nitrifier denitrification, while nitrifier denitrification was negatively correlated with abiotic effect. The total N_2O production rate of sediments in the shrimp ponds increased with temperature and decreased with salinity in general, which reached the maximum under the high-temperature and low-salinity condition and the minimum under the low-temperature and high-salinity condition. Salinity had a significant effect on the total N_2O production and the four different production processes, while the interaction of temperature and salinity had a significant effect on the nitrifier denitrification and abiotic effect. The correlation analysis showed that the total N_2O production rate was significantly positively correlated with the content of total carbon (TC), soil organic carbon (SOC), $\text{NH}_4^+\text{-N}$ and the ratio of C: N. There was only abiotic processes significantly affected by TC and SOC in the four N_2O production processes. In order to decrease the production and emission of N_2O in the coastal aquaculture ecosystem, the salinity of aquaculture ecosystem would be increased and the contents of organic carbon and inorganic nitrogen would be reduced by increasing the exchange frequency between aquaculture water and seawater.

Keywords: nitrous oxide; emission control; production process; reclaimed aquaculture; Min River estuary; influencing factor