

三江平原水田排水期氮素输出特征研究

路 路^{1,2}, 戴尔阜², 程千钉^{3,4}, 邬真真⁴

(1. 生态环境部环境规划院战略规划部, 北京 100012; 2. 中国科学院地理科学与资源研究所, 北京 100101; 3. 北京东方计量测试研究所, 北京 100094; 4. 北京师范大学环境学院, 北京 100875)

摘要: 如何系统地把握水田排水期氮素输出特征, 已成为控制三江平原区域内规模化水田氮素污染输出的关键。系统地分析在水田排水期内, 水田-沟渠系统中氮素的浓度分布特征, 并利用同位素示踪技术对沟渠内氮素的削减机制进行探讨。结果表明: 泡田排水期是水田氮素输出的主要时期, 主要受施肥活动控制, 氮素输出负荷占全年输出负荷的40%以上。不同排水期水田沟渠内氮素削减程度及机制具有明显差异: 泡田排水期, 沟渠内铵态氮浓度下降了46.93%, 主要受硝化过程控制; 降雨排水期, 硝态氮浓度下降了24.00%, 而铵态氮浓度上升了26.04%, 主要受降雨混合稀释及土壤有机质矿化的影响; 晒田排水期, 铵态氮浓度下降了52.07%, 主要与植被吸收、蒸发等因素有关。

关键词: 氮素; 水田; 排水期; 同位素示踪; 输出特征

DOI: 10.11821/dljy020181163

1 引言

三江平原是中国“新增千亿斤粮食建设规划”的核心区域。受人类高强度农业开发活动的干扰, 加上农药化肥大量使用, 导致农田土壤中溶解态氮素向水体运移, 造成区域水环境质量持续恶化^[1-3]。由于化肥施用量以及水分和肥料的管理制度不同, 相较旱田而言, 水田非点源污染输出负荷更高, 单位面积水田氮素输出负荷要比旱田高5~21倍^[4]。近年来, 由于粮食危机的加剧, 该区域内开展了大规模的种植结构调整(主要是将旱田改为水田)以达到增加粮食产量的目的, 流域内水田面积将持续增加^[5], 集约化水田区域将成为该流域内重要的非点源污染输出及防控区域。

水田区域非点源氮素污染输出与种植制度及降雨过程等密切相关, 主要集中在水田排水期^[6]。该区域内沟渠纵横, 水田排水主要通过多级沟渠系统进入地表水体, 因此氮素输出在沟渠内的削减过程直接影响到接纳水体的水质^[7,8]。目前, 对该区域内水田氮素输出的研究多集中于肥料的利用效率^[9]、水田侧渗流失^[10]、沟渠去除效应^[11,12]以及沟渠微量元素迁移特征^[13]等方面, 而对于氮素等污染物在水田各排水期的输出特征的研究仍较为薄弱, 尤其是氮素沿农田-沟渠系统内的削减转化过程及机制仍不甚清晰。因此, 在水田排水期对其氮素污染输出进行监测, 识别氮素输出的变化特征, 解析氮素在沟渠中的削减过程及机制, 成为控制区域内规模化水田氮素污染输出的关键。

收稿日期: 2018-10-30; 修订日期: 2019-11-17

基金项目: 国家自然科学基金项目(41701559); 中国博士后科学基金资助项目(2016LH0002, 2017M620890)

作者简介: 路路(1985-), 男, 河南新乡人, 博士, 副研究员, 研究方向为土地利用变化下的环境效应。

E-mail: lulu@igsnr.ac.cn

通讯作者: 戴尔阜(1972-), 男, 甘肃静宁人, 博士, 研究员, 博士生导师, 研究方向为土地利用及气候变化对生态系统的影响。E-mail: daief@igsnr.ac.cn

运用同位素示踪的方法来识别潜在污染物的来源及其迁移转化过程已成为污染源识别最为有效的手段之一^[14]。研究表明, $\delta^{15}\text{N}-\text{NO}_3^-$ 是区分水环境中硝酸盐来源(化肥、土壤有机质硝化和污水粪便等)的重要示踪物, $\delta^{18}\text{O}-\text{NO}_3^-$ 是区分硝酸盐化肥和大气沉降来源的硝酸盐的重要示踪物^[15]。在氮循环的过程中往往涉及硝酸盐同位素的分馏作用, 致使同位素信号发生改变, 同位素信号的改变常作为氮素特定循环过程的指示信号, 如: 水环境中, 反硝化过程往往导致硝酸盐中氮氧同位素的分馏比率为2:1。此外, 硝化过程的发生可以由水体中 $\delta^{18}\text{O}-\text{NO}_3^-$ 值的范围来指示^[16,17]。

通过高密度现场采样监测, 运用硝态氮同位素($\delta^{15}\text{N}-\text{NO}_3^-$ 和 $\delta^{18}\text{O}-\text{NO}_3^-$)示踪技术: ①探求不同排水时期水田氮素输出分异特征; ②识别氮素在沟渠中的迁移转化过程及削减机制。以期为当地农业区域水田非点源污染的预防及控制提供技术支持, 为大规模“旱改水”等工程的实施对环境的影响及其治理提供决策支持, 该研究成果对于实现粮食与环境安全协调发展具有重要的意义。

2 数据来源和研究方法

2.1 研究区概况

研究区域位于三江平原阿布胶河流域第24作业站(47°13' N、134°7' E), 区域土地类型分布及采样点设置(图1)。该流域位于传统开发型国营农场内, 其开发模式及发展历程在三江平原农场群中有较强的代表性及典型性。水稻是该流域内主要的农作物(占总农业用地面积的57%), 水稻种植期从4月底整地泡田开始, 至10月初进行收获, 在此期间共经历2次大规模的人为排水过程, 分别为5月中旬(10—18日)的泡田排水和8月底(22—30日)的晒田排水。在此期间, 水田田间水位维持在5 cm左右, 除非经历暴雨事件, 否则不再进行人为排水。

研究区域内, 由于大规模的水田种植, 致使化肥被广泛施用, 施用时间主要集中在4月底至7月初。其中, 氮肥施用量为100~140 kg·hm⁻², 主要为还原型肥料, 尿素约占总氮肥施用量的比例为36.67%, 碳酸氢铵和氯化铵占比为63.33%。在研究期间, 底肥、叶肥、追肥施用时间分别为4月24日、6月3日、7月2日; 各施用时期的氮肥施用量分

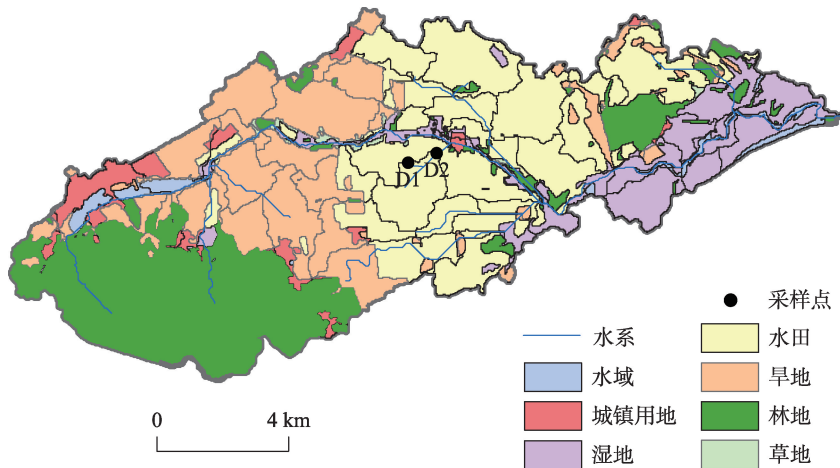


图1 研究区域位置及采样点设置

Fig. 1 Location of the study area and setup of sampling sites

配比例为底肥:叶肥:追肥=5:3:2。

水田在排水期进行田间排水,排水进入沟渠后经过“农-支-干”渠逐级迁移并最终汇入阿布胶河。田面水(水田田间存水)排水进入农渠(图1中采样点D1所在沟渠),农渠宽约2 m,沟深约为1.8 m,沟渠中基本无植物分布,后汇入支渠(图1中采样点D2所在沟渠)。支渠宽约2.5 m,沟深约为2 m,两岸长满野草,沟渠内分布有挺水植物(蒲苇及芦苇),植物带长约50~70 m。

2.2 样品采集与测定

田间水样品采样时间根据水稻生长时期确定,采样点分布见图1。采样从4月20日(水田开始进行泡田)开始,至8月22日(水田晒田排水)结束。采样时间间隔7天,肥料施用期以及水田排水期进行连续6天的加密采样。沟渠水采样从泡田排水期开始,至晒田排水期结束,采样时间间隔与田面水一致。为了进一步揭示水田排水中的氮素沿沟渠体系的衰减过程,在田间排水后对沟渠水进行连续六天的采样监测,其中,泡田排水期从5月11—16日;降雨排水期从7月29日到8月3日;晒田排水期从8月23—28日。

总氮(TN)采用碱性过硫酸钾消解紫外分光光度法(HJ 636-2012)进行测定;铵态氮(NH_4^+)及硝态氮(NO_3^-)样品在北京师范大学分析测试中心采用离子色谱法进行测定(戴安公司,DX-600和ICS-2100,美国),精确度为5%。

$\delta^{15}\text{N}$ - NO_3^- 及 $\delta^{18}\text{O}$ - NO_3^- 的测定参照Silva等的研究方法^[18]。将水体中硝酸根离子转换成硝酸银固体后冷冻避光保存,冷冻干燥后的硝酸银样品在中国林科院同位素分析测试中心通过C/N质谱仪CE EA111进行 $\delta^{15}\text{N}$ 的测定, $\delta^{18}\text{O}$ 通过MAT 253质谱仪进行测定。采用国际标准的IAEA-N3校准 $\delta^{15}\text{N}$ 和 $\delta^{18}\text{O}$ 的测量。同位素测定分析精度为: $<0.9\%$, $\delta^{18}\text{O}$ (平均值 $\pm 0.3\%$)和 $<0.3\%$, $\delta^{15}\text{N}$ (平均值 $\pm 0.2\%$)。

2.3 数据计算及统计方法

2.3.1 污染物输出负荷计算 通过输出系数方法计算农田排水期氮素污染物输出负荷 L_i :

$$L_i = \sum_{j=1}^n C_{ij} \times V_{ij} \quad (1)$$

式中: C_{ij} 变量表示污染物在不同排水期田面水中的含量; V_{ij} 变量表示农田排水的流量; i 变量表示第 i 次排水; j 变量表示第 j 时间段。

2.3.2 硝化过程中 $\delta^{18}\text{O}$ - NO_3^- 的计算 硝化反应是水体中一个重要的氮循环过程,硝化过程中 $\delta^{15}\text{N}$ 和 $\delta^{18}\text{O}$ 的分馏系数取决于当地的环境条件和反应速度。室内硝化作用试验结果表明:在硝化过程中产生的 NO_3^- 中的氧,通常有三分之一来自大气,其余三分之二来自周围的水体。因此,硝化过程的发生可以由水体中 $\delta^{18}\text{O}$ - NO_3^- 值的范围来指示。当硝化过程发生时,硝酸盐氧同位素值可由公式(2)计算^[16,17]:

$$\text{Expected } \delta^{18}\text{O}_{\text{nitrate}} = 2/3\delta^{18}\text{O}_{\text{water}} + 1/3\delta^{18}\text{O}_{\text{O}_2} \quad (2)$$

式中: $\text{Expected } \delta^{18}\text{O}_{\text{nitrate}}$ 变量表示在硝化过程中,硝酸盐 $\delta^{18}\text{O}$ 的理论计算值; $\delta^{18}\text{O}_{\text{water}}$ 变量表示在水环境中的氧同位素值; $\delta^{18}\text{O}_{\text{O}_2}$ 变量表示空气中的氧同位素值。值得注意的是,上述硝酸盐氧的同位素计算公式主要是通过实验室内环境得到的理论值,公式内容较为简便,具有一定的不确定性,参考Lu等的研究结果^[17],计算可得硝化作用的理论值范围为 -4.04% ~ 6.15% 。

2.3.3 统计方法 所有的数据统计分析工作通过软件SPSS 20进行。采用相关性分析检验不同时期水田氮素输出与沟渠水中氮素之间的相关性;运用线性拟合的方法来描述沟渠中氮素的持续变化过程;在不同排水时期,氮素在沟渠以及河流中的变化通过多变量方差检验(ANOVA检验)进行比较。

3 结果与讨论

3.1 水田排水中氮素输出特征

水稻生长期田面水中氮素的变化特征见图2。其中,田面水中总氮(TN)含量为 $7.58 \pm 3.07 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$,铵态氮(NH_4^+)含量为 $2.23 \pm 1.57 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$,硝态氮(NO_3^-)含量为 $1.16 \pm 0.31 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 。相关性分析结果显示,田面水中铵态氮与总氮具有较强的正相关性,而与硝态氮之间呈现弱相关性。由图2看出,铵态氮和总氮时间变化趋势较为一致,总体上趋于逐渐减少。铵态氮与总氮在4月24日、6月3日、7月2日同时出现峰值,含量迅速上升,并在随后的3~4天内迅速衰减至稳定。相对于其他施肥时期,7月2日田间追肥期,田面水中铵态氮含量波动较小,其原因在于:该时期位于干湿季节过渡期,高温、少雨天气容易引起铵态氮挥发,同时该时期追肥量也低于底肥及叶肥施用量。上述结果表明:田面水中氮素含量主要受施肥活动控制,与还原型铵态氮肥施用密切相关,肥料在施入水田中后1~2天内,田面水中铵态氮与总氮含量迅速上升,氮素主要形态为铵态氮,其后由于表面水体硝化与反硝化作用的发生使得其浓度迅速降低。

水稻不同种植期内田面水氮素统计特征见表1。田面水中硝态氮与铵态氮含量在各时期有着显著的区别,并且随季节的推移呈现出逐渐下降的趋势。铵态氮及硝态氮含量在各个时期的排序为:泡田期>降雨期>晒田期。造成这种差异的原因在于:植物对田面水中氮素的吸收、铵态氮挥发以及降雨排水引起的流失等因素的影响。

根据前人的研究结果,泡田排水期间排水量约为 $500 \text{ m}^3 \cdot \text{hm}^{-2} \cdot \text{a}^{-1}$,而晒田排水期排水量约为 $300 \sim 500 \text{ m}^3 \cdot \text{hm}^{-2} \cdot \text{a}^{-1}$,本研究取其中间值为 $400 \text{ m}^3 \cdot \text{hm}^{-2} \cdot \text{a}^{-1}$ [19]。降雨排水主要受当地降雨量的影响,本研究中降雨排水期降雨量约为50 mm,考虑到蒸发作用所造成的田面水下降,7月份田间水位约为4 cm,计算10%的叶面截雨量,水田降雨排水

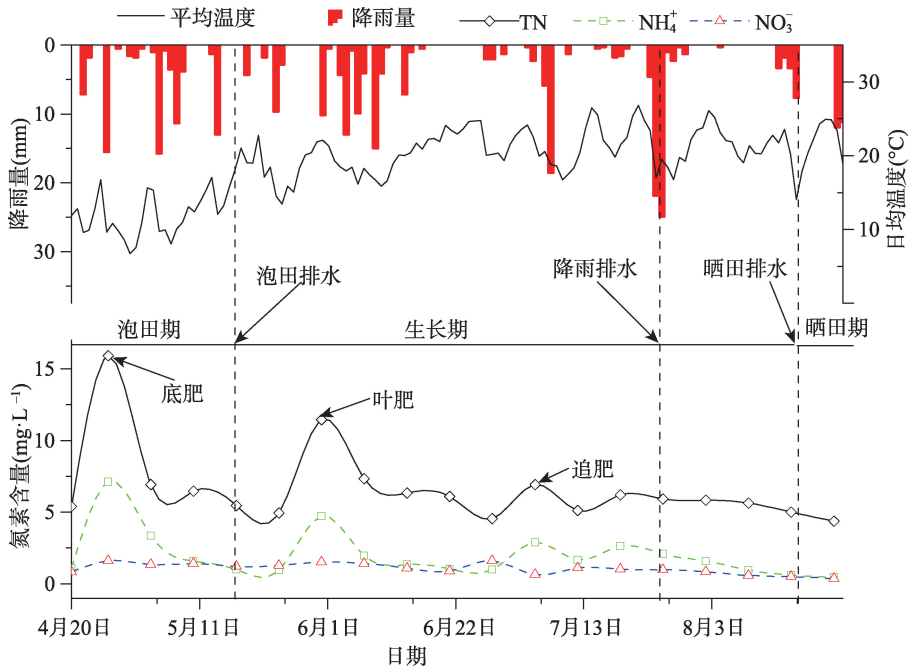


图2 水稻种植期内气温、降雨以及田面水中氮素浓度变化特征

Fig. 2 The variation of temperature, rainfall and nitrogen concentration in rice surface water during paddy cultivation period

表1 水稻不同排水期内田面水氮素统计特征

Tab. 1 The statistical characteristics of nitrogen in the surface water during different paddy drainage periods

类别		总氮 (TN)	铵态氮 (NH ₄ ⁺)	硝态氮 (NO ₃ ⁻)
泡田期	浓度 (mg · L ⁻¹)	6.35±0.24	3.52±0.82	1.39±0.21
降雨期	浓度 (mg · L ⁻¹)	6.43±0.35	1.60±0.36	0.90±0.05
晒田期	浓度 (mg · L ⁻¹)	5.08±0.73	0.51±0.06	0.64±0.08
方差统计值	F值	8.53	25.07	23.72
	Sig值	0.13	0.01	0.01

期排水量为 $350 \text{ m}^3 \cdot \text{hm}^{-2} \cdot \text{a}^{-1}$ 。结合各时期水田排水浓度(按平均值)进行计算,可知每公顷水田在各个时期的氮素输出负荷为:泡田期总氮、铵态氮及硝态氮分别为 $3.175 \text{ kg} \cdot \text{a}^{-1}$ (占全年总输出负荷的比例为42.57%)、 $1.76 \text{ kg} \cdot \text{a}^{-1}$ (占全年总输出负荷的比例为69.73%)及 $0.695 \text{ kg} \cdot \text{a}^{-1}$ (占全年总输出负荷的比例为54.89%);降雨期总氮、铵态氮及硝态氮分别为 $2.25 \text{ kg} \cdot \text{a}^{-1}$ (占全年总输出负荷的比例为30.18%)、 $0.56 \text{ kg} \cdot \text{a}^{-1}$ (占全年总输出负荷的比例为22.19%)及 $0.315 \text{ kg} \cdot \text{a}^{-1}$ (占全年总输出负荷的比例为24.88%);晒田期总氮、铵态氮及硝态氮分别为 $2.032 \text{ kg} \cdot \text{a}^{-1}$ (占全年总输出负荷的比例为27.25%)、 $0.204 \text{ kg} \cdot \text{a}^{-1}$ (占全年总输出负荷的比例为8.08%)及 $0.256 \text{ kg} \cdot \text{a}^{-1}$ (占全年总输出负荷的比例为20.22%)。

3.2 氮素在水田沟渠中的变化特征

从水田泡田排水期至晒田排水期,沟渠中氮素变化特征见图3a。沟渠水中D1位点总氮含量为 $5.15 \pm 1.81 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$,铵态氮含量为 $1.25 \pm 0.52 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$,硝态氮含量为 $1.16 \pm 0.80 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$;D2位点总氮含量为 $5.23 \pm 1.89 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$,铵态氮含量为 $1.32 \pm 0.52 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$,硝态氮含量为 $1.13 \pm 1.05 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 。沟渠水中总氮、铵态氮含量与田面水中相应形态氮含量密切相关,其变化趋势总体上一致,但是沟渠水中总氮以及铵态氮浓度的波动具有一定的滞后性。该研究结果表明,沟渠水中的氮素含量受田面水中氮素含量控制,水田中的氮素向沟渠水体的侧渗输出可能是引起沟渠水体中氮素浓度波动的主要原因^[10]。虽然硝态氮含量与铵态氮含量不存在显著的统计相关关系,但从其波动趋势上来看,二者呈现出相反的趋势,可能与沟渠内的硝化与反硝化过程交替作用密切相关。值得注意的是,植物吸收、底泥吸附作用均会对沟渠体系内部的氮素分布产生重要的影响^[20-22]。

为了进一步揭示水田排水在沟渠中的变化特征,本研究对各排水期沟渠中的退水进行了连续6天的监测,其浓度变化分别见图3b、图3c、图3d和表2。可以看出,沟渠退水中氮素含量在各排水期具有显著的差异。各个时期沟渠退水中氮素的变化趋势与田面水一致,随着季节的推移呈现出逐渐下降的趋势。铵态氮及硝态氮含量在各个时期的排序为:泡田期>降雨期>晒田期。其主要原因在于:沟渠水中氮素分布主要受农田退水的控制,且不同排水期沟渠内部植物生长及底泥微生物群落有明显的差异,也会对沟渠水中氮素的分布产生一定的影响。

在泡田排水期,沟渠退水中总氮以及铵态氮呈现出逐渐减少的变化趋势。其中,总氮浓度下降了21.5%,铵态氮浓度下降了46.93%,而硝态氮没有明显的变化趋势(图3b)。通过曲线回归分析(表2)发现:总氮及铵态氮的浓度值随时间的变化趋势均符合非线性指数衰减过程,该结果暗示氮素衰减过程主要为微生物反应过程^[14,23]。

在降雨排水期,沟渠退水中总氮(TN)以及硝态氮(NO₃⁻)均呈现出逐渐下降的变化趋势,其中,总氮浓度下降了15.77%,硝态氮浓度下降了24.00%,而铵态氮呈现出波动上升的趋势(铵态氮浓度上升了26.04%)(图3c)。通过曲线回归分析发现(表2):总

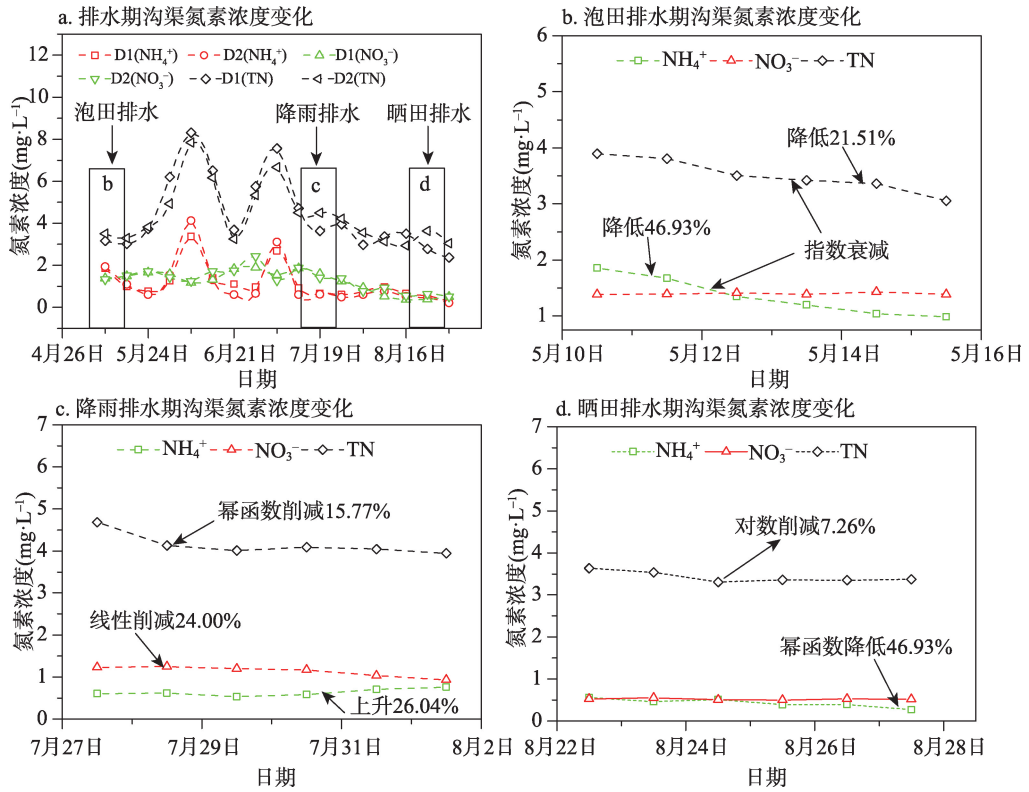


图3 水田排水期沟渠水中氮素变化特征

Fig. 3 Nitrogen variation of ditches water during different paddy drainage periods

表2 不同排水期水田沟渠内氮素浓度统计分布及回归方程

Tab. 2 The statistical distribution and the regression equation of nitrogen concentration within ditches water during different paddy drainage periods

	类别	总氮 (TN)	铵态氮 (NH ₄ ⁺)	硝态氮 (NO ₃ ⁻)
泡田期	浓度 (mg · L ⁻¹)	3.51±0.31	1.35±0.35	1.39±0.02
	变化情况	下降21.5%	下降46.93%	变化不显著
	回归方程	$y=4.11e^{-0.046x}$; $R^2=0.95$	$y=2.11e^{-0.135x}$; $R^2=0.98$	回归方程不显著
降雨期	浓度 (mg · L ⁻¹)	4.15±0.27	0.64±0.08	1.14±0.12
	变化情况	下降15.77%	下降24.00%	上升26.04%
	回归方程	$y=-0.36\ln(x)$; $R^2=0.79$	$y=0.54e^{-0.047x}$; $R^2=0.46$	$y=-0.06x+1.36$; $R^2=0.86$
晒田期	浓度 (mg · L ⁻¹)	5.32±0.76	0.43±0.10	0.52±0.02
	变化情况	下降7.26%	下降52.07%	变化不显著
	回归方程	$y=-0.17\ln(x)+3.6$; $R^2=0.75$	$y=0.65e^{-0.126x}$; $R^2=0.81$	回归方程不显著
方差统计值	F值	15.42	29.97	225.72
	Sig值	<0.000	<0.000	<0.000

氮及硝态氮浓度值随时间变化趋势分别符合非线性幂指数和线性削减过程，而铵态氮呈现波动性变化，回归方程不显著。此外，硝酸盐削减呈现线性削减表明降雨混合作用对该时期的氮素迁移转化影响较大^[14,15]，而铵态氮持续波动增长则可能与田面水铵态氮输入以及土壤氮的矿化有关^[7,10]。

在晒田排水期, 沟渠退水中总氮(TN)、铵态氮(NH_4^+)呈现出逐渐削减的趋势(其中, 总氮浓度下降了7.26%, 铵态氮浓度下降了52.07%) (图3d)。通过曲线回归分析发现(表2): 总氮及铵态氮浓度值随时间变化趋势分别符合非线性对数及幂指数削减过程。氮素非线性削减过程表明, 该时期降雨稀释的混合效应对于氮素削减的贡献较小, 氮素削减受控于其他影响因素。

3.3 氮素在水田沟渠中的削减过程

不同排水时期沟渠中 $\delta^{15}\text{N}-\text{NO}_3^-$ 和 $\delta^{18}\text{O}-\text{NO}_3^-$ 值具有显著的差异, 表明不同时期沟渠退水中氮素的迁移转化过程有着显著的区别。根据区域潜在污染源及沟渠水中硝酸盐同位素值, 绘制硝酸盐同位素组成关系图(图4)。其中, 潜在污染源硝酸盐同位素值分布范围见表3^[14,23], 硝化作用 $\delta^{18}\text{O}-\text{NO}_3^-$ 理论计算值范围为 $-4.04\text{‰}\sim+6.15\text{‰}$ ^[17], 在图4中用红色虚线值表示。

在泡田排水期, 沟渠水体中 $\delta^{15}\text{N}-\text{NO}_3^-$ 和 $\delta^{18}\text{O}-\text{NO}_3^-$ 值分别为 $1.01\pm 0.31\text{‰}$ 和 $2.80\pm 0.49\text{‰}$, 其中 $\delta^{15}\text{N}-\text{NO}_3^-$ 位于典型还原型化学肥料源分布范围之内($-5\text{‰}\sim 5\text{‰}$), $\delta^{18}\text{O}-\text{NO}_3^-$ 全部位于硝化作用 $\delta^{18}\text{O}-\text{NO}_3^-$ 理论计算值范围内($-4.04\text{‰}\sim 6.15\text{‰}$) (图4)。以上结果表明, 水田退水中硝酸盐主要来源于还原型化学氮肥, 同时氮素迁移转化过程主要受硝化过程所控制。因此, 在该时期提升还原型化学氮肥的使用效率, 能够有效减少区域水田氮素输出。

在降雨排水期, 农田退水中 $\delta^{15}\text{N}-\text{NO}_3^-$ 和 $\delta^{18}\text{O}-\text{NO}_3^-$ 值分别为 $4.04\pm 0.65\text{‰}$ 和 $7.55\pm 0.98\text{‰}$, 其中 $\delta^{15}\text{N}-\text{NO}_3^-$ 位于典型还原型化学肥料源分布范围之内($-5\text{‰}\sim 5\text{‰}$)。然而 $\delta^{18}\text{O}-\text{NO}_3^-$ 值却显著高于硝化作用 $\delta^{18}\text{O}-\text{NO}_3^-$ 理论计算值范围上限(6.15‰)。以上结果表明, 水田沟渠退水中硝酸盐主要来源于化学肥料, 然而退水中 $\delta^{15}\text{N}-\text{NO}_3^-$ 和 $\delta^{18}\text{O}-\text{NO}_3^-$ 值远高于泡田时期的值, 其原因在于: 7月初水田施入追肥, 由于该时期处于干湿季节过渡时期, 高温少雨, 剧烈的蒸发作用使得氮肥N同位素发生分馏进而富集(5‰ 左右)^[14,25,26], 同

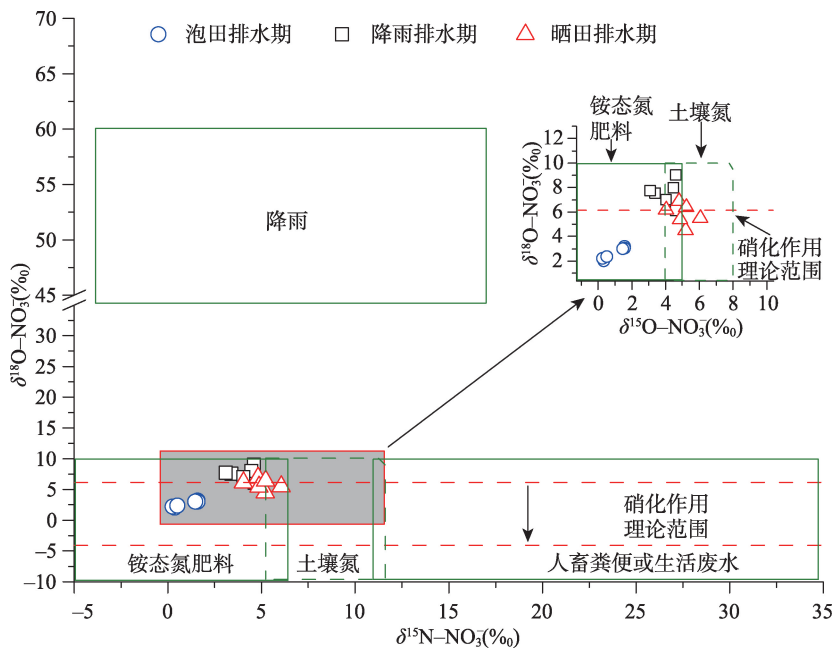


图4 沟渠水中硝酸盐同位素组成关系图

Fig. 4 The diagram of nitrate isotopic composition during different paddy drainage periods

时,大量的降雨中含有较高的 $\delta^{18}\text{O}-\text{NO}_3^-$ 值^[27],通过线性稀释混合作用,使得退水中 $\delta^{18}\text{O}-\text{NO}_3^-$ 值得以增大。上述结果表明降雨能够对沟渠氮素产生稀释削减作用。

在晒田排水期,沟渠退水中硝态氮变化趋势不明显,退水中 $\delta^{15}\text{N}-\text{NO}_3^-$ 和 $\delta^{18}\text{O}-\text{NO}_3^-$ 值分别为 $5.03\pm 0.66\text{‰}$ 和 $5.82\pm 0.84\text{‰}$,其中 $\delta^{15}\text{N}-\text{NO}_3^-$ 位于典型

土壤源分布范围之内(4‰~8‰),略高于化学肥料有机氮范围(-5‰~5‰),并且部分样品 $\delta^{18}\text{O}-\text{NO}_3^-$ 值高于硝化作用 $\delta^{18}\text{O}-\text{NO}_3^-$ 理论计算值范围上限(6.15‰)(图4)。以上结果表明,退水中硝酸盐来源较为多样,土壤氮素及还原型肥料是该时期沟渠中氮素的主要来源。该时期的氮循环过程较为复杂,包括硝化、反硝化及植物吸收过程,直接影响到硝酸盐氮同位素值;退水中较高的氧同位素值可能与反硝化过程有关。同时,该时期沟渠内植被分布较为茂盛,水体中植物偏好吸收铵态氮^[28],退水中铵态氮的削减可能与植被吸收有关。

4 结论

(1) 泡田排水期是水田氮素输出的主要时期,主要受施肥活动控制,在此期间氮素在田面水中处于高浓度状态,约比其他时期高3~5倍。每公顷水田总氮输出负荷为3.175 kg/a(占全年总输出负荷的比例为42.57%)、铵态氮为1.76 kg/a(占全年总输出负荷的比例为69.73%)及硝态氮为0.695 kg/a(占全年总输出负荷的比例为54.89%)。

(2) 在泡田排水期内,沟渠退水中硝酸盐主要来源于农田肥料,并且随时间呈指数削减趋势,同位素示踪结果表明,该去除过程主要为微生物反应过程(硝化过程)所控制。在该时期提升还原型化学氮肥的使用效率,能够有效减少区域水田氮素输出。在降雨排水期,水田沟渠退水中硝酸盐主要来源于化学肥料,且硝酸盐衰减呈现线性削减,同位素示踪结果表明,降雨混合作用对该时期硝态氮迁移转化的影响较大,而铵态氮持续波动增长可能与田面水铵态氮输入以及土壤氮的矿化有关。在晒田排水期内,退水中硝酸盐主要来源较为多样,土壤氮的硝化过程为主导,而肥料来源也不容忽视,铵态氮衰减呈现幂指数削减趋势,降雨稀释的混合效应对于该时期氮素削减的贡献较小,沟渠退水中铵态氮的削减可能与植被吸收作用有关。

参考文献(References)

- [1] 侯伟,张树文,卜坤,等.三江平原浓江、别拉洪河地区湿地退缩过程及其成因.地理研究,2005,24(4): 507-512. [Hou Wei, Zhang Shuwen, Bu Kun, et al. Analysis on the shrinkage of wetlands in Nongjiang and Bielalong region in Sanjiang Plain and the causes. Geographical Research, 2005, 24(4): 507-512.]
- [2] Hao F H, Lai X H, Ouyang W, et al. Effects of land use changes on the ecosystem service values of a reclamation farm in Northeast China. Environmental Management, 2012, 50(5): 888-899.
- [3] Cao Y J, Tang C Y, Song X F, et al. Characteristics of nitrate in major rivers and aquifers of the Sanjiang Plain, China. Journal of Environmental Monitoring, 2012, 14(10): 2624-2633.
- [4] 祝惠,阎百兴.三江平原稻田磷输出及迁移过程研究.湿地科学,2010,8(3): 266-272. [Zhu Hui, Yan Baixing. Export of phosphorus from paddy field and its transport process in Sanjiang Plain. Wetland Science, 2010, 8(3): 266-272.]
- [5] 黄满湘,章申,张国梁,等.北京地区农田氮素养分随地表径流流失机理.地理学报,2003,58(1): 147-154. [Huang

表3 研究流域内硝酸盐潜在污染源同位素值^[14,23]

Tab. 3 The values of $\delta^{15}\text{N}-\text{NO}_3^-$ and $\delta^{18}\text{O}-\text{NO}_3^-$ from various nitrogen sources in the study watershed^[14,23]

来源	$\delta^{15}\text{N}-\text{NO}_3^-$ (‰)	$\delta^{18}\text{O}-\text{NO}_3^-$ (‰)
降雨	-4~13	25~75
人畜粪便及生活废水	4~25	-5~10
土壤氮	4~8	-10~10
铵态氮肥料	-5~5	-10~10

- Manxiang, Zhang Shen, Zhang Guoliang, et al. Losses of nitrogen nutrient in overland flow from farmland in Beijing under simulated rainfall conditions. *Acta Geographica Sinica*, 2003, 58(1): 147-154.]
- [6] 张少良, 马泉来, 周军, 等. 东北黑土区小流域“林-旱-水”格局土壤磷空间分布特征研究. *水利学报*, 2016, 47(10): 1227-1236. [Zhang Shaoliang, Ma Quanlai, Zhou Jun, et al. Spatial variance of soil phosphorus in the forest-dryland-paddy mode of Northeastern Mollisol watershed. *Journal of Hydraulic Engineering*, 2016, 47(10): 1227-1236.]
- [7] 张燕, 阎百兴, 祝惠, 等. 三江平原农田源头排水沟渠截留排水中氮素动态. *生态与农村环境学报*, 2012, 28(2): 176-180. [Zhang Yan, Yan Baixing, Zhu Hui, et al. Dynamics of nitrogen in farmland-originating drainage water retained in ditches in the Sanjiang Plain. *Journal of Ecology and Rural Environment*, 2012, 28(2): 176-180.]
- [8] Ma L, He F, Huang T, et al. Nitrogen and phosphorus transformations and balance in a pond-ditch circulation system for rural polluted water treatment. *Ecological Engineering*, 2016, 94(1): 117-126.
- [9] 孙爱华. 三江平原稻作灌溉模式及水肥效应试验研究. 哈尔滨: 东北农业大学博士学位论文, 2011. [Sun Aihua. Study on water-fertilizer effect and irrigation models of rice in Sanjiang Plain. Harbin: Doctoral Dissertation of Northeast Agricultural University, 2011.]
- [10] 祝惠, 阎百兴. 三江平原水田氮的侧渗输出研究. *环境科学*, 2011, 32(1): 108-112. [Zhu Hui, Yan Baixing. Export of nitrogen by lateral seepage from paddy field in Sanjiang Plain. *Environmental Science*, 2011, 32(1): 108-112.]
- [11] 张燕. 农田排水沟渠对氮磷的去除效应及管理措施. 长春: 中国科学院东北地理与农业生态研究所博士学位论文, 2013. [Zhang Yan. Removal effect and management measures of nitrogen and phosphorus in agricultural drainage ditches. Changchun: Doctoral Dissertation of Northeast Institute of Geography and Agroecology, Chinese Academy of Sciences, 2013.]
- [12] Wang X L, Li J S, Li S M, et al. A study on removing nitrogen from paddy field rainfall runoff by an ecological ditch-zeolite barrier system. *Environmental Science and Pollution Research*, 2017, 24(35): 27090-27103.
- [13] 王莉霞, 阎百兴, 潘晓峰, 等. 三江平原农田排水沟渠铁的输运及形态变化. *地理研究*, 2011, 30(10): 1818-1824. [Wang Lixia, Yan Baixing, Pan Xiaofeng, et al. The transport and change of iron species in agricultural drainage of Sanjiang Plain. *Geographical Research*, 2011, 30(10): 1818-1824.]
- [14] Kendall C, Elliott E M, Wankel S D. Tracing anthropogenic inputs of nitrogen to ecosystems. *Stable isotopes in ecology and environmental science*, 2007, 2(1): 375-449.
- [15] Kelley C J, Keller C K, Evans R D, et al. Nitrate-nitrogen and oxygen isotope ratios for identification of nitrate sources and dominant nitrogen cycle processes in a tile-drained dryland agricultural field. *Soil Biology & Biochemistry*, 2013, 57(1): 731-738.
- [16] Xue D M, De Baets B, Van Cleemput O, et al. Use of a Bayesian isotope mixing model to estimate proportional contributions of multiple nitrate sources in surface water. *Environmental Pollution*, 2012, 161(1): 43-49.
- [17] Lu L, Cheng H G, Pu X, et al. Nitrate behaviors and source apportionment in an aquatic system from a watershed with intensive agricultural activities. *Environmental Science: Processes & Impacts*, 2015, 17(1): 131-144.
- [18] Silva S R, Kendall C, Wilkison D H, et al. A new method for collection of nitrate from fresh water and the analysis of nitrogen and oxygen isotope ratios. *Journal of Hydrology*, 2000, 228(1): 22-36.
- [19] 潘晓峰, 阎百兴, 祝惠, 等. 三江平原水田灌溉-排水过程中铁形态变化及输出贡献. *环境科学学报*, 2010, 30(5): 1087-1092. [Pan Xiaofeng, Yan Baixing, Zhu Hui, et al. Iron species and output flux in the agricultural irrigation drainage system in the Sanjiang Plain. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 2010, 30(5): 1087-1092.]
- [20] Shen L D, Zheng P H, Ma S J. Nitrogen loss through anaerobic ammonium oxidation in agricultural drainage ditches. *Biology and Fertility of Soils*, 2016, 52(2): 127-136.
- [21] 徐红灯, 席北斗, 翟丽华. 沟渠沉积物对农田排水中氨氮的截留效应研究. *农业环境科学学报*, 2007, 26(5): 1924-1928. [Xu Hongdeng, Xi Beidou, Zhai Lihua. Interception effect of ditch sediment on $\text{NH}_4^+\text{-N}$ in agricultural drainage ditch. *Journal of Agro-Environment Science*, 2007, 26(5): 1924-1928.]
- [22] Cheng Q D, Cheng H G, Lu L, et al. Fate of nitrogen in overlying water with biochar addition to sediment in planted ditches. *Environmental Science: Processes & Impacts*, 2018, 20(2): 384-394.
- [23] Xue D M, Botte J, De Baets B, et al. Present limitations and future prospects of stable isotope methods for nitrate source identification in surface and groundwater. *Water Research*, 2009, 43(5): 1159-1170.
- [24] Xu S G, Kang P P, Sun Y. A stable isotope approach and its application for identifying nitrate source and transformation process in water. *Environmental Science and Pollution Research*, 2016, 23(2): 1133-1148.
- [25] Meckenstock R U, Morasch B, Griebler C, et al. Stable isotope fractionation analysis as a tool to monitor biodegradation in contaminated aquifers. *Journal of Contaminant Hydrology*, 2004, 75(3-4): 215-255.

- [26] Ohkouchi N, Ogawa N O, Chikaraishi Y, et al. Biochemical and physiological bases for the use of carbon and nitrogen isotopes in environmental and ecological studies. *Progress in Earth and Planetary Science*, 2015, 2(1): 1-17.
- [27] Divers M T, Elliott E M, Bain D J. Quantification of nitrate sources to an urban stream using dual nitrate isotopes. *Environmental Science & Technology*, 2014, 48(18): 10580-10587.
- [28] Lu L, Cheng H G, Pu X, et al. Identifying organic matter sources using isotopic ratios in a watershed impacted by intensive agricultural activities in Northeast China. *Agriculture, Ecosystems & Environment*, 2016, 222(1): 48-59.

The characteristics of nitrogen output during the paddy field drainage period

LU Lu^{1,2}, DAI Erfu², CHENG Qianding^{3,4}, WU Zhenzhen⁴

(1. Environmental Strategy Institute, Chinese Academy for Environmental Planning, Beijing 100012, China; 2. Institute of Geographic Sciences and Natural Resources Research, CAS, Beijing 100101, China; 3. Beijing Orient Institute of Measurement & Test, Beijing 100094, China; 4. School of Environment, Beijing Normal University, Beijing 100875, China)

Abstract: Identifying the characteristics of nitrogen output during the paddy field drainage period was critical to control of nitrogen pollution output in the reclamation paddy area. In this study, a paddy field and ditch system in Abujiao basin was selected as the study area. Combined with isotope tracer technique, the characteristics of nitrogen output and the reduction mechanism of nitrogen in paddy fields and ditch systems during the paddy drainage periods were systematically studied. The results showed that ponding drainage period was the most significant period for nitrogen output from paddy fields, mainly controlled by chemical fertilizer application. During this period, total dissolved nitrogen, ammonia nitrogen and nitrate nitrogen discharge load accounted for 42.57%, 69.73% and 54.89% of the year's total amount, respectively. There are distinct differences of nitrogen reduction mechanism in paddy fields and ditch systems for three drainage periods, indicated by results from variation characteristics of nitrogen and nitrate isotopic tracers. During the ponding drainage period, the ammonium nitrogen decreased significantly, almost half ammonium nitrogen reduced during six-day sampling period. Isotopic tracers showed that the removal process was mainly controlled by the nitrification process. During the rainfall drainage period, the nitrate nitrogen concentration decreased by 24.00%, while the ammonium nitrogen increased by 26.04%. Mixed with rainfall (high $\delta^{18}\text{O}-\text{NO}_3^-$ values and low nitrate concentration) might explain the elevated $\delta^{18}\text{O}-\text{NO}_3^-$ values and linear reduction process of nitrate in the ditch. The fluctuation of ammonium nitrogen might be linked to the input of ammonium nitrogen in paddy fields and the mineralization of soil nitrogen. During the sunning drainage period, the reduction processes of nitrogen were more complicated, and isotopic tracer signals were not obvious. The ammonium nitrogen concentration decreased by 52.07%, which might be associated with absorption by vegetation.

Keywords: nitrogen; paddy field; drainage period; isotope tracer; output characteristics