

环境科学

(HUANJING KEXUE)

ENVIRONMENTAL SCIENCE

第36卷 第9期

Vol.36 No.9

2015

中国科学院生态环境研究中心 主办
科学出版社 出版



目次

长江三角洲 PM _{2.5} 质量浓度遥感估算与时空分布特征	徐建辉, 江洪 (3119)
宁波市 PM _{2.5} 中碳组分的时空分布特征和二次有机碳估算	杜博涵, 黄晓锋, 何凌燕, 胡敏, 王川, 任宇超, 应红梅, 周军, 汪伟峰, 许丹丹 (3128)
青岛大气中酸碱气体及 PM _{2.5} 中水溶性离子的浓度特征和气粒平衡关系	周佳佳, 石金辉, 李丽平, 姚小红, 高会旺 (3135)
北京雾霾天大气颗粒物中微生物气溶胶的浓度及粒谱特征	胡凌飞, 张柯, 王洪宝, 李娜, 王洁, 杨文慧, 殷喆, 焦周光, 温占波, 李劲松 (3144)
2015 年春节北京市空气质量分析	程念亮, 陈添, 张大伟, 李云婷, 孙峰, 魏强, 刘嘉林, 刘保献, 孙瑞雯 (3150)
上海市大气挥发性有机化学消耗与臭氧生成的关系	王红丽 (3159)
生物滴滤塔净化氯代烃混合废气的研究	陈东之, 缪孝平, 欧阳杜娟, 叶杰旭, 陈建孟 (3168)
一种基于 GOCI 数据的叶绿素 a 浓度三波段估算模型	郭宇龙, 李云梅, 李渊, 吕恒, 刘阁, 王旭东, 张思敏 (3175)
巢湖溶解性有机物时空分布规律及其影响因素	叶琳琳, 吴晓东, 刘波, 闫德智, 张玫琪, 周阳 (3186)
河北洺河溶解性有机物光谱学特性	虞敏达, 张慧, 何小松, 檀文炳, 张媛, 马丽娜, 席北斗, 党秋玲, 高如泰 (3194)
东山岛地下水“三氮”空间分布特征	吴海燕, 傅世锋, 蔡晓琼, 汤坤贤, 曹超, 陈庆辉, 梁修雨 (3203)
重庆典型岩溶区地下河中溶解态正构烷烃、脂肪酸来源、迁移及转化	梁作兵, 孙玉川, 王尊波, 师阳, 江泽利, 张媚, 谢正兰, 廖昱 (3212)
硫酸对乌江中上游段岩溶水化学及 $\delta^{13}\text{C}_{\text{DIC}}$ 的影响	黄奇波, 覃小群, 刘朋雨, 张连凯, 苏春田 (3220)
阆中市思依镇水化学特征及其成因分析	张艳, 吴勇, 杨军, 孙厚云 (3230)
东南沿海河流-水库系统藻类生长营养盐限制季节变动	陈聪聪, 饶拉, 黄金良, 白敏冬 (3238)
水体氮磷营养盐水平与氯霉素浓度复合水体对苦草的生理生化影响	胡珍珍, 崔益斌, 李梅, 余静 (3248)
溶藻活性物质对棕囊藻溶藻及其脂肪酸影响的模拟	杨秋婵, 赵玲, 尹平河, 谭烁, 舒万姣, 侯少玲 (3255)
坡岸截留强化处理设施在不同运行条件下对农业面源污染物去除效果	李怀正, 陈珂莉, 危忠, 王卫刚 (3262)
典型材料屋面积尘重金属形态分布与风险评估	李敦柱, 管运涛, 刘安, 李思远 (3269)
南水北调丹江口水库水氯(胺)化消毒副产物产生特性与消毒工艺对比	张民盛, 徐斌, 张天阳, 程拓, 夏圣骥, 楚文海 (3278)
臭氧-混凝交互作用对混凝效果的影响	刘海龙, 郭雪峰, 王敏慧, 焦茹媛, 石健 (3285)
含溴水臭氧化过程阴离子对溴酸盐生成的影响	吴悦, 吴纯德, 刘吕刚, 袁博杰 (3292)
厌氧环境雌黄溶解产物形态的 XAS 研究	王莹, 许丽英, 王少锋, 肖翻, 贾永峰 (3298)
印染及染料行业废水生物处理系统中的 AOX 污染研究	申洋洋, 刘锐, 徐灿灿, 舒小铭, 许江军, 兰亚琼, 陈吕军 (3304)
螺旋霉素制药废水处理过程中耐药菌和抗性基因的转归特征	覃彩霞, 佟娟, 申佩弘, 魏源送 (3311)
两种膜生物反应器处理养猪沼液的比较研究	税勇, 川岸朋树, 宋小燕, 刘锐, 陈吕军 (3319)
农村污水膜生物反应器系统中微生物群落解析	孔晓, 崔丙健, 金德才, 吴尚华, 杨波, 邓晔, 庄国强, 庄绪亮 (3329)
四区一体反应器冬季启动脱氮特性及硝化菌群结构分析	张岩, 孙凤侠, 谢杭冀, 陈敬, 睦稀, 甘志明, 王修平, 史扬 (3339)
从亚硝酸还原厌氧氨氧化转变为硫酸盐型厌氧氨氧化	刘正川, 袁林江, 周国标, 李晶 (3345)
提高有机负荷对好氧颗粒污泥形成与稳定过程的影响	刘小鹏, 王建芳, 钱飞跃, 王琰, 陈重军, 沈耀良 (3352)
常规施肥条件下农田不同途径氮素损失的原位研究: 以长江中下游地区夏玉米季为例	桑蒙蒙, 范会, 姜珊珊, 蒋静艳 (3358)
水氮组合模式对双季稻甲烷和氧化亚氮排放的影响	傅志强, 龙攀, 刘依依, 钟娟, 龙文飞 (3365)
厌氧条件下砂壤水稻土 N ₂ 、N ₂ O、NO、CO ₂ 和 CH ₄ 排放特征	曹娜, 王睿, 廖婷婷, 陈诺, 郑循华, 姚志生, 张海, Klaus Butterbach-Bahl (3373)
黄土丘陵区不同有机碳背景下侵蚀坡面土壤呼吸特征	陈盖, 许明祥, 张亚锋, 王超华, 樊会敏, 王闪闪 (3383)
生物炭添加对半干旱地区土壤温室气体排放的影响	郭艳亮, 王丹丹, 郑纪勇, 赵世伟, 张兴昌 (3393)
宁南山区林地土壤原位矿化过程中碳氮转化耦合特征	倪银霞, 黄懿梅, 牛丹, 赵彤, 闫浩, 蒋跃利 (3401)
石漠化山地植被恢复过程土壤团聚体氮分布及与氮素矿化关系研究	胡宁, 马志敏, 蓝家程, 伍宇春, 陈高起, 傅瓦利, 文志林, 王文净 (3411)
江汉平原农田土壤有机碳分布与变化特点: 以潜江市为例	王玉竹, 肖和艾, 周萍, 童成立, 葛体达, 曾冠军, 吴金水 (3422)
缙云山不同土地利用方式下土壤团聚体中活性有机碳分布特征	李睿, 江长胜, 郝庆菊 (3429)
西北典型工矿型城市街道尘埃重金属污染的环境磁学响应	聂燕, 王新, 王博, 许淑婧, 高福元, 余晔, 夏敦胜, 夏听鸣 (3438)
电镀厂周边环境重金属分布特征及人体健康暴露风险评价	郭鹏然, 雷永乾, 周巧丽, 王畅, 潘佳钊 (3447)
典型电力电容器污染土壤中多氯联苯水平及特性	刘洁, 李晓东, 赵中华, 祁志福, 陈彤, 严建华 (3457)
紫色土对硫丹的吸附与解吸特征	赵炎, 郑国灿, 朱恒, 张进忠, 朱秀英, 胡淑春, 吴娅林 (3464)
紫茉莉对石油污染盐碱土壤微生物群落与石油烃降解的影响	焦海华, 崔丙健, 吴尚华, 白志辉, 黄占斌 (3471)
4 株外生菌根真菌对 Al ³⁺ 吸收与吸附的研究	王明霞, 袁玲, 黄建国, 周志峰 (3479)
长春市郊区蔬菜有机磷农药残留与健康风险评价	于锐, 刘景双, 王其存, 刘强, 王洋 (3486)
北京市北神树生活垃圾填埋场产甲烷菌的群落结构和演替规律	宋立娜, 王磊, 夏孟婧, 苏月, 李振山 (3493)
城市分散式粪便颗粒化有机肥用作叶菜肥的肥力及环境影响	吕文洲, 乔宇祥, 余宁, 史荣华, 王光明 (3501)
V ₂ O ₅ -WO ₃ /TiO ₂ 催化剂与活性炭混合降解气相二噁英	任咏, 纪莎莎, 俞明峰, 李晓东, 严建华 (3508)
基于出行服务的纯电动公交车节能减排效益分析	林晓丹, 田良, 吕彬, 杨建新 (3515)
我国挥发性有机物定义和控制指标的探讨	江梅, 邹兰, 李晓倩, 车飞, 赵国华, 李刚, 张国宁 (3522)
异化铁还原对土壤中重金属形态转化及其有效性影响	司友斌, 王娟 (3533)
《环境科学》征订启事 (3297) 《环境科学》征稿简则 (3303) 信息 (3127, 3202, 3277, 3318)	

厌氧条件下砂壤水稻土 N_2 、 N_2O 、 NO 、 CO_2 和 CH_4 排放特征

曹娜^{1,2}, 王睿^{2*}, 廖婷婷², 陈诺², 郑循华², 姚志生², 张海¹, Klaus Butterbach-Bahl³

(1. 西北农林科技大学资源环境学院, 杨凌 712100; 2. 中国科学院大气物理研究所大气边界层物理和大气化学国家重点实验室, 北京 100029; 3. 卡尔斯鲁厄理工大学气象与气候研究所大气环境研究部, 加尔米施-帕滕基兴 82467, 德国)

摘要: 了解厌氧条件土壤反硝化气体(N_2 、 N_2O 和 NO)、 CO_2 和 CH_4 排放特征, 是认识反硝化过程机制的基础, 并有助于制定合理的温室气体减排措施。定量反硝化产物组成, 可为氮转化过程模型研发制定正确的关键过程参数选取方法或参数化方案。本研究选取质地相同(砂壤土)的两个水稻土为研究对象, 通过添加 KNO_3 和葡萄糖的混合溶液, 将培养土壤的初始 NO_3^- 和 DOC 含量分别调节到 $50\text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ 和 $300\text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$, 采用氦环境培养-气体及碳氮底物直接同步测定方法, 研究完全厌氧条件下土壤 N_2 、 N_2O 、 NO 、 CO_2 和 CH_4 的排放特征, 并获得反硝化气态产物中各组分的比率。结果表明, 在整个培养过程中, 两个供试土壤的 N_2 、 N_2O 和 NO 累积排放量分别为 $6\sim 8$ 、 20 和 $15\sim 18\text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$, 这些气体排放量测定结果可回收土壤 NO_3^- 变化量的 $95\%\sim 98\%$, 反硝化气态产物以 N_2O 和 NO 为主, 其中 3 种组分的比率分别为 $15\%\sim 19\%$ (N_2)、 $47\%\sim 49\%$ (N_2O) 和 $34\%\sim 36\%$ (NO); 但反硝化气体产物组成的逐日动态均显现为从以 NO 为主逐渐过渡到以 N_2O 为主, 最后才发展到以 N_2 为主。以上结果说明, 反硝化气体产物组成是随反硝化进程而变化的, 在以气体产物组成比率作为关键参数计算各种反硝化气体产生率或排放率的模型中, 很有必要重视这一点。

关键词: 水稻土; 反硝化; N_2 ; N_2O ; NO ; DOC 含量; NO_3^- 含量

中图分类号: X144 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2015)09-3373-10 DOI: 10.13227/j.hj.kx.2015.09.033

Characteristics of N_2 , N_2O , NO , CO_2 and CH_4 Emissions in Anaerobic Condition from Sandy Loam Paddy Soil

CAO Na^{1,2}, WANG Rui^{2*}, LIAO Ting-ting², CHEN Nuo², ZHENG Xun-hua², YAO Zhi-sheng², ZHANG Hai¹, Klaus Butterbach-Bahl³

(1. College of Natural Resources and Environment, Northwest A&F University, Yangling 712100, China; 2. State Key Laboratory of Atmospheric Boundary Layer Physics and Atmospheric Chemistry, Institute of Atmospheric Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100029, China; 3. Karlsruhe Institute of Technology, Institute for Meteorology and Climate Research (IMK-IFU), Garmisch-Partenkirchen 82467, Germany)

Abstract: Understanding the characteristics of the production of nitrogen gases (N_2 , N_2O and NO), CO_2 and CH_4 in anaerobic paddy soils is not only a prerequisite for an improved mechanistic understanding of key microbial processes involved in the production of atmospheric greenhouse gases (GHG), but might also provide the basis for designing greenhouse gas mitigation strategies. Moreover, quantifying the composition fractions of denitrification gaseous products is of key importance for improving parameterization schemes of microbial processes in process-oriented models which are increasingly used for assessing soil GHG emissions at site and national scales. In our experiments we investigated two sandy loam soils from two paddy fields. The initial concentrations of soil nitrate and dissolved organic carbon (DOC) were set at $\sim 50\text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ and $\sim 300\text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$, respectively, by adding a mixture solution of KNO_3 and glucose. The emissions of N_2 , N_2O , NO , CO_2 and CH_4 , as well as concentrations of carbon and nitrogen substrates for each soil sample were measured simultaneously, using a gas-flow-soil-core technique and a paralleling substrate monitoring system. The results showed that the accumulative emissions of N_2 , N_2O and NO of the two soil samples for the entire incubation period were $6\sim 8$, 20 , and $15\sim 18\text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$, respectively. By measuring the cumulative emissions of denitrification gases ($N_t = N_2 + N_2O + NO$) we were able to explain 95% to 98% of observed changes in soil nitrate concentrations. The mass fractions of N_2 , N_2O and NO emissions to N_t were approximately $15\%\sim 19\%$, $47\%\sim 49\%$, and $34\%\sim 36\%$, respectively. Thus, in our experiments N_2O and NO were the main products of denitrification for the entire incubation period. However, as the temporal courses of hourly or daily production of the denitrification gases showed, NO production dominated and peaked firstly, and then N_2O , before finally N_2 became the dominant product. Our results show the high temporal dynamic of denitrification end products and this knowledge is of crucial importance for model development,

收稿日期: 2015-01-04; 修订日期: 2015-04-09

基金项目: 国家重点基础研究发展规划(973)项目(2012CB417102); 国家自然科学基金项目(41303060, 51139006, 41321064)

作者简介: 曹娜(1986~), 女, 硕士研究生, 主要研究方向为土壤反硝化过程机制, E-mail: 305611506@qq.com

* 通讯联系人, E-mail: wangrui@mail.iap.ac.cn

since so far existing models assume a fixed fraction of denitrification end products.

Key words: paddy soil; denitrification; N_2 ; N_2O ; NO ; DOC concentration; NO_3^- concentration

反硝化作用是微生物利用硝酸盐(NO_3^-)和亚硝酸盐(NO_2^-)生成一氧化氮(NO)、氧化亚氮(N_2O)和氮气(N_2)的兼性厌氧过程^[1]. 作为土壤氮素损失的主要途径之一,其中间产物 N_2O 和 NO 对环境和气候有重要影响^[2]. 但在生态学意义上,反硝化作用将活性氮最终又转化为大气稳定态的 N_2 ,对维持生态系统氮平衡具有重要意义^[3].

中国是最重要的水稻生产国,水稻种植面积约占世界稻田总面积的 23%^[4]. 淹水种植条件下的稻田土壤,利于反硝化作用的发生,导致 N_2O 的产生和排放^[5],研究显示中国水稻田 N_2O 排放量占农田总排放量的 22%^[6],稻田也是大气甲烷(CH_4)的重要排放源,稻田 N_2O 和 CH_4 的减排已成为国内外研究的热点^[5]. 而且,定量反硝化气体排放速率及产物组成,也有助于氮转化过程模型研发中制定正确的关键过程参数选取方法或参数化方案^[7]. 之前的很多研究对反硝化速率及产物组成的测定只关注一种(N_2O)或两种(N_2 和 N_2O)产物,而缺少对 NO 、 N_2O 和 N_2 这 3 种产物的同时测定,而且也缺乏对底物氮

(NO_3^-)和碳(DOC)浓度动态的同步测定,产物测定的缺失不能够得到可靠的反硝化产物组成数据.

本文以质地相同(砂壤土)两水稻土壤为研究对象,在初始碳氮底物充足条件下,采用氦环境培养-气体和底物同步直接测定系统,对土壤在厌氧培养过程中的氮素气体(NO 、 N_2O 和 N_2)及 CH_4 和 CO_2 的排放速率和碳氮底物浓度动态进行测定,以了解水稻土反硝化气体及 CH_4 和 CO_2 的排放特征,以期氮转化过程模型研发提供关键的反硝化过程参数(产物组成等)实测值.

1 材料与方法

1.1 供试土壤

供试土壤分别为取自湖北省十堰市西沟村(110°37' E, 32°38' N)的单季稻田土壤(命名为 Soil-1)和取自湖南省长沙市金井镇小流域(113°20' E, 28°33' N)的双季稻田土壤(命名为 Soil-2). 两水稻土质地相同,均为砂质壤土,土壤偏酸性,Soil-1 的土壤 pH 高于 Soil-2(表 1).

表 1 供试土壤理化性质¹⁾

Table 1 Physical and chemical properties of the investigated soils

项目	pH (H_2O)	不同粒径土粒质量分数/%			土壤质地	土壤容重 / $g \cdot cm^{-3}$	有机质 /%	总氮 /%
		黏粒	粉粒	砂粒				
Soil-1	6.2	5.2 ± 0.7	33.7 ± 2.5	61.1 ± 3.2	砂壤土	1.30	1.03 ± 0.13	0.12 ± 0.01
Soil-2	5.4	12.2 ± 0.4	31.7 ± 1.7	56.1 ± 2.0	砂壤土	1.20	3.8 ± 0.3	0.21 ± 0.02

1) Soil-1 和 Soil-2 分别为采自湖北省十堰市和湖南省金井镇小流域的砂壤水稻土,下同;黏粒, <0.002 mm;粉粒, 0.002 ~ 0.02 mm;砂粒, 0.02 ~ 2 mm;表中数据表示为:测定平均值 ± 标准误差($n=3$)

1.2 实验设计方案

两供试土壤通过添加 KNO_3 和葡萄糖的混合溶液,调节土壤初始的 NO_3^- 和可溶性有机碳(DOC)含量分别为 $50 mg \cdot kg^{-1}$ 和 $300 mg \cdot kg^{-1}$,相当于为 $24 \sim 26 kg \cdot ha^{-1}$ 和 $144 \sim 156 kg \cdot ha^{-1}$,研究相同质地的水稻土壤厌氧条件下 N_2 、 N_2O 、 NO 、 CO_2 和 CH_4 的排放特征. 实验设定的初始底物浓度为测定反硝化潜势的常用浓度^[8].

1.3 土壤培养前处理

从田间采回的鲜土经风干后过筛,置于室内保存. 实验开始前两周,风干土加水调节土壤湿度为 25% (质量含水量),在 4℃ 下预培养. 实验开始前 1 d,将预培养土壤混匀,测定土壤 NO_3^- 和 DOC 背景浓度,根据此测定值和实验设定的 NO_3^- 和 DOC 目

标浓度值之间的差值,计算需要加入的 KNO_3 和葡萄糖的量,并配置好一定浓度的 KNO_3 和葡萄糖混合溶液,置于 4℃ 冷藏. 同时,用环刀(直径 60 mm, 高 40 mm)取土柱 42 个,也置于冰箱 4℃ 冷藏. 实验开始时,从冰箱取出预先准备好的 42 个培养土柱,其中 12 个放入气体直接测定系统的 3 个培养罐内,另外 30 个放入同步底物测定系统的 30 个培养罐内. 向每个土柱滴加 5 mL 预先配置的 KNO_3 和葡萄糖混合溶液,液体加入后土壤湿度增加至 ~56% WFPS(土壤充水孔隙度). 紧接着密闭培养罐,进行气体置换和气体排放速率和底物浓度的同步测定.

1.4 气体及土壤的采集与测定

气体排放速率的测定采用氦环境培养-气体直接测定系统(GFSC 系统),碳氮底物(NO_3^- 、 NH_4^+ 、

NO_2^- 和 DOC) 浓度的测定采用同步底物测定系统 (SMOS 系统). 实验采用三阶段培养法, 即低温有氧置换阶段 (P1)、低温厌氧置换阶段 (P2) 和设定温度条件下的厌氧培养测定阶段 (P3)^[9]. 各阶段内均以一定的频率进行气体、土壤采样与测定, 以取得动态的气体排放速率和碳氮底物浓度. 实验结束于各种氮素气体排放速率降至检测限附近时.

1.4.1 气体的采集与测定

GFSC 系统的测定原理是用高纯氦气 (He) 和 20% 的氧气 (O_2) 置换土柱内的气体, 使土壤空气全部为 He 和 O_2 所取代, 然后以一定时间间隔测定培养容器内 N_2 、 N_2O 、 NO 、 CO_2 和 CH_4 浓度的变化来确定其排放速率. GFSC 系统包括装样系统、气路系统和分析检测系统, 可实现对 N_2 、 N_2O 、 NO 、 CO_2 和 CH_4 浓度的直接、同步、在线测定^[10,11]. P1 阶段, 气体置换开始前, 待水浴温度降低至 $2^\circ C$, 测定 1 次气体排放速率 (但此阶段不能测定 N_2). P2 和 P3 阶段, 每天测定 4~6 次气体排放速率. 每次排放速率的测定时间为 60 min, 这期间每隔 15 min 测定一次培养容器气室的 N_2 、 N_2O 、 NO 、 CO_2 和 CH_4 浓度, 共测定 5 次, 用于排放速率的计算.

1.4.2 土壤的采集与测定

SMOS 系统的设计原理和培养条件与 GFSC 系统完全一致^[12]. SMOS 系统设有 3 组不锈钢密封培养罐, 每组 10 个 (内可放置 1 个环刀土柱), 可实现培养过程中对碳氮底物浓度的 10 次测定 (每次 3 个重复). 在培养条件转变的关键阶段 (如 P3 阶段升温后 12 h 内), 每 4 h 测定一次底物浓度, 而在其他阶段, 只每天测定一次底物浓度. 每次测定均从各组培养罐中随机选取一个, 共取 3 个土柱用于底物浓度测定.

碳氮底物浓度的测定方法: ① NO_3^- 和 NH_4^+ ^[13]: 水土比 5:1, $1 \text{ mol} \cdot L^{-1}$ KCl 浸提, 振荡 1 h, 滤纸过滤, 流动分析仪测定 (Skalar, SA5000 + +, 荷兰); ② NO_2^- ^[14]: 水土比 5:1, $1 \text{ mol} \cdot L^{-1}$ KCl 浸提, 振荡 1 h, 分光光度计 (UNICO UV-2802, 中国上海) 测定; ③ DOC^[15]: 水土比 5:1, $0.05 \text{ mol} \cdot L^{-1}$ K_2SO_4 浸提, 振荡 1 h, 离心, 无碳滤膜 ($0.45 \mu m$) 过滤, 碳氮分析仪 (multi NC 3000, 德国耶拿) 测定.

1.5 排放速率计算、检测限及回收率计算

$$F = \frac{V_H \cdot (\Delta c_i / \Delta t - \Delta c_l / \Delta t) \cdot M}{M_{ds} \cdot V_{corr}} \quad (1)$$

式中, F 为 N_2 、 N_2O 、 NO 、 CO_2 和 CH_4 的排放速率 [$\mu g \cdot (h \cdot kg)^{-1}$]; V_H 为培养罐气室体积 (408 mL);

$\Delta c_i / \Delta t$ 为经过稀释校正的培养罐气室内被测气体体积混合比浓度 (校正方法详见文献[9]) 的变化率 [$\mu mol \cdot (mol \cdot h)^{-1}$]; $\Delta c_l / \Delta t$ 为培养罐的渗漏率 [$\mu mol \cdot (mol \cdot h)^{-1}$]; M 为每摩尔被测气体的 C 或 N 质量数 ($g \cdot mol^{-1}$); M_{ds} 为培养土壤样品的干重 (g); V_{corr} 为培养土壤的温度和压力下气体的摩尔体积 ($L \cdot mol^{-1}$).

GFSC 测定上述气体排放速率的 95% 置信区间检测限 [单位: $\mu g \cdot (h \cdot kg)^{-1}$] 分别为: N_2 , 0.5; N_2O , 0.01; NO , 0.05 ($NO-NO_2-NO_x$) ~ 1.1 (GC 3000); CO_2 , 2.3; CH_4 , 0.2^[10].

各阶段的氮回收率 (R_N) 为氮素气体排放总量 N_t 占该阶段培养前后土壤 NO_3^- -N 和 NO_2^- -N 含量变化量的百分数^[12]. 当 $\Delta NO_2^- \geq 0$ 时, $R = (N_t + |\Delta NO_2^-|) / |\Delta NO_3^-| \times 100$; 反之, 则 $R = N_t / (|\Delta NO_3^-| + |\Delta NO_2^-|) \times 100$. 上式中: N_t 为每种氮素气体在该阶段的累积排放量之和 ($N_t = N_2 + NO + N_2O$, 单位为 $mg \cdot kg^{-1}$), $|\Delta NO_2^-|$ 和 $|\Delta NO_3^-|$ 分别为相较于考察阶段开始时, 该阶段结束时土壤中亚硝态氮和硝态氮浓度增量的绝对值 ($mg \cdot kg^{-1}$).

1.6 统计分析

采用 t -检验进行 $P < 0.05$ 水平的显著性检验, 采用 Sigmaplot 12.2 绘图.

2 结果与分析

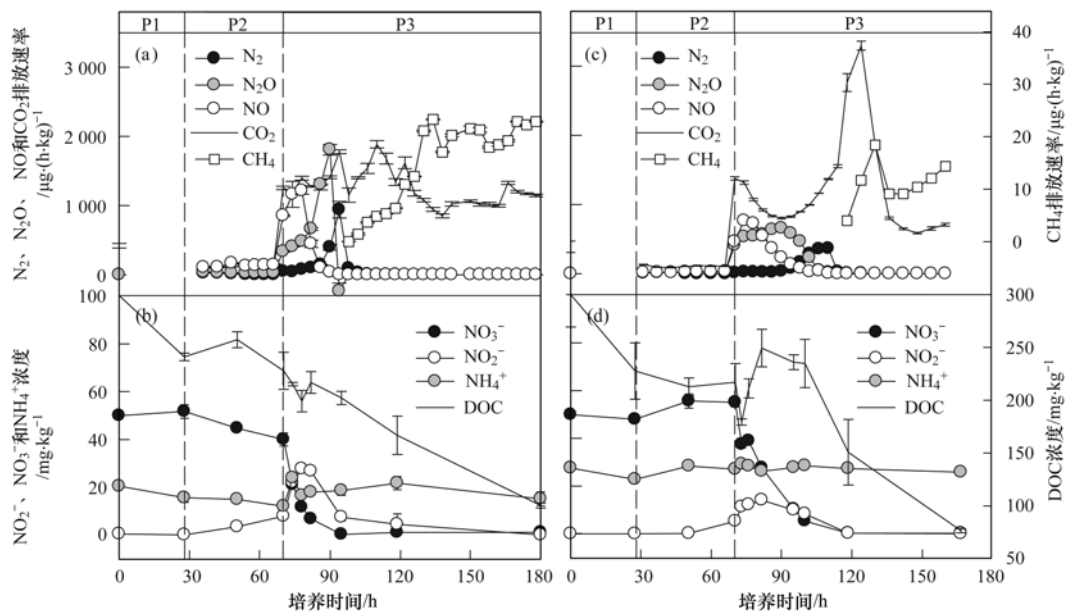
2.1 氮素气体 (N_2 、 N_2O 和 NO) 与 CO_2 、 CH_4 的排放速率动态

两砂壤水稻土的气体排放动态如图 1(a) 和 1(c) 所示.

低温有氧置换阶段 (P1): 两水稻土 NO 和 N_2O 的排放速率较低, 接近系统检测限, 而 CO_2 排放速率为 $\sim 400 \mu g \cdot (h \cdot kg)^{-1}$, 均检测不到 CH_4 排放.

低温厌氧培养阶段 (P2): 土壤孔隙中的 O_2 逐渐被 He 所替换, 尽管培养温度只有 $2^\circ C$, 但反硝化作用还是因缺氧而增强. 该阶段两水稻土 N_2 、 N_2O 和 NO 的平均排放速率分别为 0.8 (Soil-2) ~ 11 (Soil-1), 21 (Soil-2) ~ 30 (Soil-1) 和 24 (Soil-2) ~ 130 (Soil-1) $\mu g \cdot (h \cdot kg)^{-1}$, CO_2 平均排放速率为 110 (Soil-2) ~ 135 (Soil-1) $\mu g \cdot (h \cdot kg)^{-1}$. 该阶段也检测不到 CH_4 排放.

常温厌氧培养阶段 (P3): 升温至 $25^\circ C$ 后, 气体排放速率较上阶段均显著增加, 且依次顺次出现反硝化气体产物 NO 、 N_2O 和 N_2 的排放峰, 但两土壤



(a)和(b)为 Soil-1,(c)和(d)为 Soil-2; Soil-1 和 Soil-2 分别为采自湖北省十堰市和湖南省金井镇小流域的砂壤水稻土; P1,P2,P3 分别为低温有氧置换、低温无氧置换和常温测定 3 个培养阶段(详见正文)

图 1 两砂壤水稻土反硝化气体(N_2 、 N_2O 和 NO), CO_2 和 CH_4 的排放速率,及底物(NO_3^- 、 NO_2^- 、 NH_4^+ 和 DOC)浓度动态

Fig. 1 Emission rates of nitrogenous gases (N_2 , N_2O and NO), CO_2 and CH_4 and concentrations of nitrogen and carbon substrates (NO_3^- , NO_2^- , NH_4^+ and DOC) of two sandy loam paddy soils

气体峰值排放速率不同(表 2). Soil-1 的 NO 、 N_2O 和 N_2 排放峰依次出现在升温(70.5 h 时)后的 8、20 和 24 h,而 Soil-2 依次为 4、20 和 40 h. Soil-1 的 NO 、 N_2O 和 N_2 峰值排放速率分别为($1\,216.6 \pm 50.7$)、($1\,809.5 \pm 76.1$)和(942.2 ± 120) $\mu\text{g} \cdot (\text{h} \cdot \text{kg})^{-1}$,为 Soil-2 峰值排放的 1.6、2.7 和 2.6 倍($P < 0.05$). Soil-1 含氮气体排放峰值变化剧烈,持续时间较短,并且在 N_2 排放峰值出现时(94 h)观测到 N_2O 的负排放(-343 ± 22) $\mu\text{g} \cdot (\text{h} \cdot \text{kg})^{-1}$,而 Soil-2 的 N_2O 和 N_2 的排放速率变化较平缓,持续时间较长.

整个培养过程中,伴随着 NO 和 N_2 的排放峰,Soil-1 观测到两次 CO_2 较高的排放,分别为($1\,396.6 \pm 28.0$) $\mu\text{g} \cdot (\text{h} \cdot \text{kg})^{-1}$ (78 h 时,升温后 8 h)和($1\,779.6 \pm 26.9$) $\mu\text{g} \cdot (\text{h} \cdot \text{kg})^{-1}$ (94 h 时,升温后 24 h). N_2 峰值排放结束之后, CO_2 于 110 h 时又出现了第三次排放峰($1\,888.0 \pm 52.4$) $\mu\text{g} \cdot (\text{h} \cdot \text{kg})^{-1}$ (升温后 40 h). Soil-2 的 CO_2 排放呈现双峰型,第一次排放峰出现在升温后的第一次测定,第二次排放峰出现在 N_2 排放峰值出现后的 14 h,两次的峰值分别为($1\,402.7 \pm 24.3$) $\mu\text{g} \cdot (\text{h} \cdot \text{kg})^{-1}$ 和($3\,354.2 \pm 65.9$) $\mu\text{g} \cdot (\text{h} \cdot \text{kg})^{-1}$. 两水稻土 N_2 排放自峰值降低至接近系统检测限时,开

始观测到 CH_4 排放,培养结束时 CH_4 排放速率为 19 $\mu\text{g} \cdot (\text{h} \cdot \text{kg})^{-1}$ (Soil-2) $\sim$ 24 $\mu\text{g} \cdot (\text{h} \cdot \text{kg})^{-1}$ (Soil-1).

表 2 P3 阶段气体排放速率峰值及出现时间¹⁾

Table 2 Magnitude and appearance time of peak

emissions during P3 phase		
项目	Soil-1 峰值/时间	Soil-2 峰值/时间
NO	1 216.6 ^a /78	779.4 ^b /74
N ₂ O	1 809.5 ^a /90	669.9 ^b /90
N ₂	942.2 ^a /94	370.6 ^b /110
CO ₂ -1	1 396.6 ^a /78	1 402.7 ^a /70
CO ₂ -2	1 779.6 ^a /94	3 354.2 ^b /124
CO ₂ -3	1 888.0/110	—
CH ₄	23.5 ^a /134	18.8 ^a /130

1)表中数据表示为各气体排放速率峰值[$\mu\text{g} \cdot (\text{h} \cdot \text{kg})^{-1}$],峰值出现时间(h); CO_2 -1、 CO_2 -2、 CO_2 -3 分别表示 CO_2 气体在 P3 阶段中出现的第 1、2 和 3 次峰值及时间;“—”表示未检测到;a、b 表示两土壤是否有 $P < 0.05$ 水平的显著差异(字母相同表示没有显著差异)

2.2 底物浓度动态

培养过程中两砂壤水稻土的 NO_3^- 、 NO_2^- 、 NH_4^+ 和 DOC 浓度动态如图 1(b)和 1(d)所示.

置换阶段(P1):两水稻土添加底物之后直接测定的 NO_3^- 初始浓度分别为(47.9 ± 2.0) $\text{mg} \cdot \text{kg}^{-1}$ (Soil-1)和(44.3 ± 0.4) $\text{mg} \cdot \text{kg}^{-1}$ (Soil-2),其中 Soil-

1 与由 NO_3^- 背景浓度和加入的 NO_3^- 浓度计算的理论初始浓度 (47.0 ± 0.2) $mg \cdot kg^{-1}$ 无差异, Soil-2 的测定值低于理论初始浓度 (49.1 ± 0.6) $mg \cdot kg^{-1}$. DOC 浓度无差异. 该阶段, 两土壤的底物浓度变化趋势基本一致, 其中 NH_4^+ 有降低趋势, 而 NO_3^- 有增加趋势, NO_2^- 接近检测限, DOC 均显著降低.

低温厌氧阶段 (P2): 对于 Soil-1, NO_3^- 和 NH_4^+ 浓度降低, 并观测到反硝化过程的中间产物 NO_2^- 的产生, DOC 浓度呈现先增加后减小的趋势, 但差异不显著. 而 Soil-2 中 NO_3^- 和 NH_4^+ 浓度均有增加的趋势, 同时也观测到 NO_2^- 浓度的增加, DOC 浓度在该阶段有增加趋势.

常温厌氧阶段 (P3): 两土壤的 NO_3^- 浓度均显著减少, Soil-1 的 NO_3^- 浓度于升温后 24 h 降为 0, 而此时 Soil-2 的 NO_3^- 浓度仍有 10 $mg \cdot kg^{-1}$. 随着 NO_3^- 浓度降低, 中间产物 NO_2^- 浓度增加, 两处理的 NO_2^- 均于升温后 8 h 左右出现最大浓度, Soil-1 的 NO_2^- (28 $mg \cdot kg^{-1}$) 显著高于 Soil-2 (14 $mg \cdot kg^{-1}$), 之后逐渐降低. Soil-1 的 NH_4^+ 浓度呈现先增加后减少的趋势, 而 Soil-2 的 NH_4^+ 浓度无明显变化. P3 阶段培养结束时, 两土壤的 DOC 浓度分别降至 88

$mg \cdot kg^{-1}$ (Soil-1) 和 79 $mg \cdot kg^{-1}$ (Soil-2).

2.3 气体累积排放量、摩尔比及氮素回收率

两供试土壤在 P2、P3 阶段及整个培养过程中气体累积排放量, 气体累积排放量的摩尔比, 底物动态变化以及各阶段氮素回收率如表 3 所示.

在 P2 阶段, 两供试土壤的各反硝化气体累积排放差异较大 ($P < 0.05$), 但产物均以 NO 为主, 其累积排放量分别为 (4.29 ± 0.08) $mg \cdot kg^{-1}$ (Soil-1) 和 (1.15 ± 0.03) $mg \cdot kg^{-1}$ (Soil-2), 各占 N_t 的 68% (Soil-1) 和 55% (Soil-2); 对于不同气体累积排放量的摩尔比 NO/N_2O 、 N_2O/N_2 和 CO_2/N_t 质量比, Soil-1 分别约为 5.3、4.3 和 2.2, Soil-2 分别约为 2.5、68.8 和 5.8. 该阶段两土壤的氮素气体回收率为 105% ~ 120%.

P3 阶段, 两土壤反硝化气态产物的累积排放量差异不显著, 分别为: 13.7 ~ 14.1 (NO)、18.5 ~ 19.2 (N_2O) 和 5.9 ~ 7.5 (N_2) $mg \cdot kg^{-1}$, N_2 、 N_2O 和 NO 产物组成百分数分别为: 15% ~ 19%、47% ~ 49% 和 34% ~ 36% (表 3). 两土壤的 NO/N_2O 、 N_2O/N_2 的摩尔比以及 CO_2/N_t 质量比也比较接近, Soil-1 分别为 1.5、2.5 和 4.6, Soil-2 分别为 1.5、3.3 和 3.0. 氮素气体回收率为 66% ~ 85%.

表 3 P2、P3 和整个培养 (Pt) 阶段氮素气体 (N_2 、 N_2O 和 NO) 及 CO_2 和 CH_4 累积排放量、累积量摩尔/质量比, 培养前后土壤底物 NO_3^- 、 NO_2^- 、 NH_4^+ 和 DOC 含量变化及氮素回收率¹⁾

Table 3 Cumulative emissions of nitrogenous gases, carbon dioxide (CO_2) and methane (CH_4), molar/mass ratios of gaseous products, changes of substrates concentrations, and the nitrogen recovery rate during different incubation periods

项目	P2		P3		Pt	
	Soil-1	Soil-2	Soil-1	Soil-2	Soil-1	Soil-2
N_2	0.4 ± 0.01^a	0.01 ± 0.01^b	7.5 ± 0.4^a	5.9 ± 0.03^a	7.8 ± 0.4^a	5.9 ± 0.03^b
N_2O	1.6 ± 0.03^a	0.9 ± 0.01^b	18.5 ± 0.9^a	19.4 ± 0.1^a	20.1 ± 0.9^a	20.3 ± 0.1^a
NO	4.3 ± 0.1^a	1.2 ± 0.03^b	13.7 ± 0.4^a	14.1 ± 0.5^a	18.0 ± 0.5^a	15.3 ± 0.5^a
N_t	6.3 ± 0.1^a	2.1 ± 0.04^b	39.5 ± 0.1^a	39.4 ± 0.6^a	45.9 ± 0.1^a	41.5 ± 0.6^b
CO_2	13.7 ± 0.6^a	12.0 ± 1.5^a	180.3 ± 3.1^a	118.7 ± 4.0^b	194.4 ± 3.2^a	131.1 ± 4.2^b
CH_4	—	—	3.0 ± 0.02^a	0.5 ± 0.01^b	3.0 ± 0.02^a	0.5 ± 0.01^b
NO/N_2O	5.3 ± 0.2	2.5 ± 0.1	1.5 ± 0.1	1.5 ± 0.1	1.8 ± 1.0	1.5 ± 0.5
N_2O/N_2	4.3 ± 0.1	68.8 ± 7.8	2.5 ± 0.3	3.3 ± 0.01	2.6 ± 0.9	3.5 ± 0.1
CO_2/N_t	2.2 ± 0.1	5.8 ± 0.8	4.6 ± 0.1	3.0 ± 0.1	4.2 ± 3.2	3.2 ± 4.3
N_2/N_t	6.0 ± 0.1	0.7 ± 0.1	18.8 ± 1.0	14.9 ± 0.2	17.1 ± 1.0	14.2 ± 0.2
N_2O/N_t	25.9 ± 0.6	44.1 ± 0.5	46.6 ± 2.0	49.3 ± 0.6	43.8 ± 2.1	49.0 ± 0.8
NO/N_t	68.1 ± 0.7	55.2 ± 0.6	34.6 ± 1.0	35.8 ± 0.8	39.1 ± 1.2	36.8 ± 0.9
ΔNO_2^-	7.8 ± 1.1	5.3 ± 0.4	-7.8 ± 1.1	-5.3 ± 0.4	0	0.1 ± 0.07
ΔNO_3^-	-11.7 ± 4.0	7.1 ± 2.0	-38.9 ± 2.7	-54.7 ± 2.0	-48.8 ± 0.3	-49.6 ± 0.2
ΔNH_4^+	-3.6 ± 1.9	4.3 ± 1.1	3.1 ± 2.9	-1.2 ± 0.9	-8.4 ± 2.9	-1.7 ± 1.2
ΔDOC	-13.3 ± 18.1	-10.7 ± 21.1	-128.1 ± 17.9	-141.3 ± 17.8	-199.1 ± 2.3	-224.2 ± 1.9
R_N	120.1 ± 0.6	104.9 ± 0.5	84.8 ± 0.3	66.3 ± 1.0	97.4 ± 2.0	96.1 ± 0.9

1) N_2 、 N_2O 、 NO 和 CO_2 分别为 P2、P3 和 Pt 阶段各气体的累积排放量, 单位为 $mg \cdot kg^{-1}$, CH_4 累积排放量的单位为 $\mu g \cdot kg^{-1}$; 表中数据为测定平均值 $\pm$ 标准误差 ($n=3$); Pt 为整个培养阶段; “—”表示系统不能够检测; ΔNO_2^- 、 ΔNO_3^- 、 ΔNH_4^+ 和 ΔDOC 分别为各阶段培养前后的浓度差, 单位为 $mg \cdot kg^{-1}$; CO_2/N_t 为产物质量比 ($mg \cdot mg^{-1}$); N_2O/N_2 和 NO/N_2O 均为产物摩尔比 ($mol \cdot mol^{-1}$); R_N 为氮素回收率 (%), 算法见 1.5 节

整个培养过程中,两砂壤水稻土 N_2 、 N_2O 和 NO 的累积排放量为:5.9 ~ 7.8、20.1 ~ 20.3 和 15.3 ~ 18.0 $mg \cdot kg^{-1}$,反硝化产物组成百分数分别为 37% ~ 39% (NO)、44% ~ 49% (N_2O) 和 14% ~ 17% (N_2),反硝化产物以 N_2O 和 NO 为主. 氮素气体回收率为 96.1% ~ 97.4%,而通过测定土壤氮素气体累积排放量($N_t = N_2 + N_2O + NO$)可回收土壤 NO_3^- 变化量的 94.6% ~ 98.2%.

2.4 小时及日尺度的反硝化产物组成

取 P3 阶段每两次测定的 NO_3^- 和 NO_2^- 浓度数据及对应的气体累积排放量的数据,可以得到 4、8 和 24 h(日)尺度的反硝化产物组成百分数的数据(表 4). 在小时尺度上,供试土壤反硝化

产物组成由以 NO 为主逐渐过渡到以 N_2O 为主,最后以 N_2 为主. 其中,Soil-1 反硝化产物 NO 所占的百分数由最初的 71.1% 降低至 0.4%, N_2O 所占的百分数呈现先增加后减少的趋势,即由 25.8% 增加至 68.5%,后又降低至 ~ 21.6%, N_2 由最初的 3% 逐渐增加至 121%; Soil-2 反硝化产物 NO 所占的百分数由最初的 56.2% 降低至 8.6%, N_2O 先增加至 65.3%,后又降低至 40.5%, N_2 由最初的 1.8% 逐渐增加至 50.9%. 在日尺度上,相同的,两供试土壤日尺度的反硝化产物组成差异也较大,第 1 d 的反硝化产物以 N_2O 和 NO 为主,第 2 d 以 N_2 (Soil-1) 或 N_2 和 N_2O (Soil-2) 为主.

表 4 P3 阶段两供试土壤小时和日尺度反硝化产物变化及组成比¹⁾

Table 4 Hourly or daily composition of denitrification gas products during P3 phase

项目	时间	ΔNO_3^-	ΔNO_2^-	累积排放量/ $mg \cdot kg^{-1}$				R_N	所占比例/%		
				N_2	N_2O	NO	N_t		N_2	N_2O	NO
Soil-1	70 ~ 74 h	-18.9 ± 2.8	14.2 ± 2.4	0.2 ± 0.01	1.3 ± 0.01	3.7 ± 0.4	5.2 ± 0.4	102.6 ± 4.0	3.0 ± 0.1	25.8 ± 1.8	71.2 ± 1.9
	74 ~ 78 h	-9.4 ± 0.3	5.6 ± 1.0	0.2 ± 0.01	1.4 ± 0.01	3.7 ± 0.2	5.4 ± 0.3	116.6 ± 12.9	3.7 ± 0.1	26.5 ± 1.2	69.7 ± 1.1
	78 ~ 82 h	-4.9 ± 1.5	-1.0 ± 0.9	0.4 ± 0.02	2.4 ± 0.1	3.0 ± 0.1	5.8 ± 0.1	98.0 ± 4.5	6.4 ± 0.4	41.8 ± 0.6	51.8 ± 0.8
	82 ~ 94 h	-6.5 ± 1.0	-19.3 ± 1.5	4.7 ± 0.2	12.9 ± 0.7	1.2 ± 0.3	18.8 ± 0.7	72.9 ± 7.5	24.9 ± 1.8	68.5 ± 1.7	6.6 ± 1.5
	day 1	-39.7 ± 2.7	-0.4 ± 0.4	5.4 ± 0.2	18.0 ± 0.7	11.6 ± 0.4	35.1 ± 0.1	87.3 ± 7.5	15.4 ± 0.6	51.4 ± 1.8	33.2 ± 1.2
	day 2	0.8 ± 0.9	-7.4 ± 1.5	1.9 ± 0.3	-0.3 ± 0.2	0.01 ± 0.0	1.6 ± 0.1	70.1 ± 8.6	121.2 ± 11.0	-21.6 ± 11.1	0.4 ± 0.1
Soil-2	70 ~ 74 h	-13.9 ± 2.4	4.1 ± 0.8	0.1 ± 0.01	2.1 ± 0.03	2.8 ± 0.2	4.9 ± 0.2	64.7 ± 3.9	1.8 ± 0.1	42.0 ± 0.4	56.2 ± 0.5
	74 ~ 78 h	-8.5 ± 1.3	1.5 ± 0.7	0.1 ± 0.01	2.2 ± 0.04	3.0 ± 0.1	5.3 ± 0.1	80.2 ± 8.3	1.9 ± 0.2	41.3 ± 1.4	56.8 ± 1.5
	78 ~ 82 h	-7.2 ± 1.5	1.1 ± 1.1	0.1 ± 0.02	2.3 ± 0.05	2.5 ± 0.2	4.9 ± 0.2	82.1 ± 2.1	1.9 ± 0.1	46.9 ± 1.7	51.2 ± 1.7
	82 ~ 94 h	-12.9 ± 2.1	-4.8 ± 1.2	0.4 ± 0.02	7.6 ± 0.1	3.6 ± 0.5	11.7 ± 0.5	65.9 ± 7.2	3.8 ± 0.2	65.3 ± 1.7	30.9 ± 1.9
	day 1	-42.5 ± 2.4	1.8 ± 0.6	0.7 ± 0.01	14.2 ± 0.1	11.9 ± 0.5	26.8 ± 0.5	67.3 ± 3.7	2.7 ± 0.1	52.9 ± 1.0	44.4 ± 1.1
	day 2	-10.1 ± 1.4	-9.7 ± 0.5	5.0 ± 0.04	4.0 ± 0.1	0.9 ± 0.7	9.9 ± 0.7	50.0 ± 4.7	50.9 ± 0.3	40.5 ± 0.6	8.6 ± 0.3

1) day 1 为 70 ~ 94 h, day 2 为 94 ~ 118 h; ΔNO_2^- 和 ΔNO_3^- 分别为各阶段培养前后的浓度差,单位为 $mg \cdot kg^{-1}$; 表中数据为测定平均值 ± 标准误差 ($n = 3$)

3 讨论

3.1 砂壤水稻土碳、氮气体排放特征

本研究观测到两砂壤水稻土的氮素气体排放峰出现顺序依次均为 NO 、 N_2O 和 N_2 ,这与经典反硝化链式反应过程中 3 种气体的生成顺序完全一致^[16]. N_2 排放峰滞后于 NO 和 N_2O 而出现的主要原因是反硝化作用的 N_2O 还原酶合成滞后于 NO_3^- 、 NO_2^- 和 NO 还原酶的合成^[16,17].

两砂壤土 CH_4 排放均出现在底物 NO_3^- 被完全消耗之后,这与前人的很多观测结果一致. 如 Dong 等^[4] 在大田试验观测到施加氮肥对 CH_4 排放有抑制作用; Roy 等^[18] 在厌氧培养实验中观测到添加 NO_3^- 抑制水稻土壤 CH_4 的排放. NO_3^- 可抑制 CH_4 产生的主要原因有:① NO_3^- 更易于作为电子受体而先被还原,厌氧条件下物质作为电子受体而逐渐被

还原的顺序依次是 $NO_3^- < Fe_3^+ < SO_4^{2-} < CO_2^{[19]}$,当土壤中存在 NO_3^- 时, NO_3^- 先被反硝化微生物作为电子受体而逐渐还原为 NO 、 N_2O 和 N_2 ,土壤中 NO_3^- 被消耗之后,且没有可利用的 Fe_3^+ 和 SO_4^{2-} 时,产甲烷菌利用 H_2 还原 CO_2 而产生 CH_4 或者通过乙酸发酵产生 CH_4 ^[20]. NO_3^- 较 Fe^{3+} 和 SO_4^{2-} 更利于做为电子受体,是由于微生物利用 NO_3^- 能够获得更多的能量,而产甲烷菌利用 H_2 和 CO_2 产生的能量最低^[21]; ②反硝化中间产物(NO_2^- 、 NO 和 N_2O)对产 CH_4 菌的抑制作用^[18]; ③反硝化过程发生时, NO_3^- 、 NO_2^- 和 N_2O 会显著降低 H_2 的分压,致使 H_2 分压低到不足以产生甲烷的水平^[22]. 为提高氮肥利用率而在土壤中添加的硝化抑制剂,一定程度上也影响土壤中 CH_4 的排放,在添加硝化抑制剂的土壤中, CH_4 的生成潜力更高^[23]. 因此,在提高氮肥

利用率的同时也需考虑土壤中 CH_4 的排放。

两砂壤水稻土反硝化气态产物均以 N_2O 和 NO 为主, 分别占反硝化气态产物总量的 44% ~ 49% 和 37% ~ 39%, 而 N_2 仅占 14% ~ 17%。刘阳等^[24]报道了亚热带森林土壤 ($pH = 4.6$, 土壤初始 NO_3^- 约为 $100 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$) 反硝化产物以 N_2O 为主, N_2O/N_1 约为 85%。一般认为反硝化过程产生 NO 、 N_2O 和 N_2 的相对量依赖于土壤质地、 pH 、可溶性有机碳和硝酸盐浓度等^[16,25]。Bouwman^[26]认为砂粒含量较高、质地疏松的土壤倾向于释放较多的 N_2O ; 而质地黏重, 使得中间产物被进一步还原的机会增加, 造成 N_2 排放增加。很多研究观测到与之一致的结果, 如 De Wever 等^[27]发现砂壤土较壤土释放的 N_2O 气体更快, 且排放速率也更高; Pihlatie 等^[28]观测到在 80% ~ 100% WFPS 的土壤湿度条件下, 壤质沙土较黏土排放更多的 N_2O 。上述解释可为本研究观测到砂壤水稻土反硝化产物以中间产物为主提供支撑。土壤 pH 主要通过影响土壤微生物的活性及相应的氮素转化过程, 进而影响 N_2 、 N_2O 和 NO 的排放。一般认为, 在酸性土壤中, 产物以 NO 和 NO_2 为主; 在中性和碱性土壤中, 以 N_2O 和 N_2 排放为主, NO 则很少^[29,30]。这是由于 N_2O 还原酶比 NO_3^- 还原酶对酸性条件更敏感, 高 pH 值促进 N_2O 还原酶的活性, 使得反硝化进行彻底, 产物以 N_2 为主, 这可以解释在相同的初始碳氮底物浓度条件下, Wang 等^[7]采用碱性土壤 (pH 约 8.7) 观测到反硝化产物以终产物 N_2 为主, 而本研究采用的土壤 (pH 约 5 ~ 6) 却排放较多 NO 和 N_2O 。

尽管整个培养阶段两土壤 N_2O 和 NO 气体累积排放量无差异, 但两土壤反硝化气体的峰值排放速率及排放峰持续时间均存在显著差异。造成两水稻土气体排放速率动态差异的主要原因有底物 NO_3^- 或 DOC 有效性及两土壤性质 (pH) 的差异。本研究观测到 P3 阶段自升温后的 24 h 之内, Soil-1 的 NO_3^- 浓度均低于 Soil-2 (平均低约 $10 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$), 但 Soil-1 的 NO_2^- 含量 ($8 \sim 28 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$) 显著高于 Soil-2 ($5 \sim 14 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$), 说明厌氧条件下 Soil-1 的底物 NO_3^- 中很大一部分已转化为 NO_2^- 。 NO_2^- 作为反硝化过程的中间产物, 亦是 NO 产生的前体物^[31], 因此高浓度的 NO_2^- 可作为解释本研究 Soil-1 较高的 NO 和 N_2O 峰值排放速率的一个原因。而且, 由此阶段可看出, Soil-2 土壤微生物利用底物 NO_3^- 的速率较慢。土壤对碳氮底物的利用速率很可能受土壤

本身酸碱度的影响^[29]。Lan 等^[30]报道了中性 ($pH = 6.2$) 和碱性 ($pH = 8.3$) 水稻土壤的反硝化速率较酸性 ($pH = 5$) 水稻土分别高 2.6 和 16.6 倍, 本研究 Soil-2 较 Soil-1 的土壤 pH 更低 ($5.4 < 6.2$), 土壤偏酸性可能是造成 Soil-2 的反硝化气体排放速率较低的原因。

综上, 厌氧条件下, 偏酸性、质地轻的水稻土反硝化气体排放以中间产物 NO 和 N_2O 为主。

3.2 小时及日尺度反硝化产物组成

本研究两水稻土的氮素回收率为 96% ~ 97%, 考虑到对反硝化过程多种组分测定的误差, 该回收率结果比较令人满意。之前的很多研究并没有对 3 种反硝化气体 (NO 、 N_2O 和 N_2) 进行同步测定, 而只对一种 (N_2O) 或者两种 (N_2O 和 N_2 排放之和) 反硝化气体进行测定^[32,33], 因此, 对反硝化产物组成的定量存在很大不足。只有基于较好的回收率, 反硝化产物组成的数据才更可靠。本研究得到两水稻土小时尺度或日尺度的反硝化产物组成是动态变化的。尽管整个培养过程中土壤反硝化产物以 NO 和 N_2O 为主, 但在小时尺度上反硝化产物组成均由以 NO 为主逐渐过渡到以 N_2O 为主, 最后以 N_2 为主。同样的, 日尺度的反硝化产物组成, 在常温厌氧阶段第一天的反硝化产物以 N_2O 和 NO 为主, 第二天以 N_2 和 N_2O 为主 (以 Soil-2 为例)。该结果表明反硝化气体产物组成是随反硝化进程而变化的, 因此在以气体产物组成比率作为关键参数计算各种反硝化气体产生率或排放率的模型中, 很有必要重视这一点。

3.3 气态产物比

3.3.1 $N_2O/(N_2O + N_2)$ 摩尔比

本研究观测到厌氧条件下偏酸性砂壤水稻土 $N_2O/(N_2O + N_2)$ 摩尔比为 0.72 ~ 0.78; Ciarlo 等^[34]采用与本研究质地相同的土壤 (砂壤土, $pH = 6$, 初始 NO_3^- 含量为 $80 \text{ kg} \cdot \text{ha}^{-1}$, 湿度 100% WFPS) 观测到 $N_2O/(N_2O + N_2)$ 摩尔比平均值为 1.12; Senbayram 等^[35]也采用偏酸性的砂壤土 ($pH = 6$, 初始 NO_3^- 含量为 $10 \sim 20 \text{ mmol} \cdot \text{L}^{-1}$) 观测到厌氧条件下 $N_2O/(N_2O + N_2)$ 摩尔比约为 0.65; Wang 等^[7]采用碱性黏壤土在相同初始底物碳氮条件下观测到的 $N_2O/(N_2O + N_2)$ 摩尔比为 0.35。Liu 等^[36]的研究证实偏酸性土壤的 $N_2O/(N_2O + N_2)$ 摩尔比较碱性土壤高, Qu 等^[37]的研究指出中国农田土壤反硝化产物 $N_2O/(N_2O + N_2)$ 比较高的主要原因是过量施

用氮肥导致土壤酸化. Schlesinger^[38]综述文章中给出农业土壤反硝化过程 $N_2O/(N_2O + N_2)$ 摩尔比平均值为 0.375, 不同的研究者采用不同的土壤在不同的条件下得到的 $N_2O/(N_2O + N_2)$ 摩尔比变化范围非常大, 这是由于 $N_2O/(N_2O + N_2)$ 不仅受到土壤碳氮底物含量的影响, 还受诸多因子(土壤性质、微生物活性、温度和水分等)的影响^[16]. 因此, 欲采用野外原位观测的 N_2O 排放量和室内培养实验获得的 N_2O/N_2 摩尔比, 来估算原位的 N_2 排放仍存在很大的困难.

3.3.2 NO/N_2O 摩尔比

本研究观测到厌氧条件下两砂壤水稻土的 NO/N_2O 摩尔比分别为 1.5 ~ 1.8. 很多的大田试验报道的 NO/N_2O 摩尔比远远小于 1, 如 Scheer 等^[39]观测到当灌溉棉田土壤水分含量为 70% (田间持水量) 时, NO/N_2O 为 0.67, 当水分含量增至 130% 时, 该比值 < 1%. 造成上述观测结果不一致的主要原因是 NO 在水中的扩散系数较空气中传输低 5 个数量级, 土壤中水的存在阻碍了 NO 的扩散, 而 NO 被反硝化菌进一步还原为 N_2O 的机会增加^[40], 因而对于湿度较高的土壤观测到的 NO/N_2O 摩尔比较小. Skiba 等^[41]指出 NO 主要是由表层土壤产生, 土壤中产生的 NO 只有 13% 通过表层土壤排放到大气. 而气流穿过土体的采样系统 (blow through systems) 观测到较高的 NO 排放^[31], 是由于土壤产生的 NO 会被立即带出培养系统进行检测. 同样, 本研究观测到的 $NO/N_2O > 1$, 可能也是由于测定方法决定的. 本研究采用半动态箱法测定反硝化气体排放, 即高纯 He 以平稳的流速 ($20 \text{ mL} \cdot \text{min}^{-1}$) 流过土柱表面, 携带培养容器气室内的气体进入检测器进行测定, 表层土壤产生的 NO 还没来得及被进一步还原, 就被带出培养系统, 因而测定的 NO 排放较高.

3.3.3 CO_2/N_i 质量比

土壤反硝化气体累积排放 N_i 与 CO_2 排放关系密切. 当微生物仅利用葡萄糖作为电子供体和能源时, 反硝化过程产生 NO 、 N_2O 或 N_2 这 3 种单一气体时, CO_2/N_i 质量比分别为 0.64、0.86、1.07^[16,42]. 本研究两水稻土 CO_2/N_i 质量比随时间变化的曲线如图 2 所示. 当系统切换为无氧条件, Soil-1 土壤的 CO_2/N_i 质量比稳定在 0.67 ~ 0.99, 但 Soil-2 土壤 CO_2/N_i 质量比由 2.0 逐渐降低并稳定在 0.81 ~ 1.04 的范围内, 基本符合 Swerts 等^[42]给出的反硝化反应的理论比值范围, 这表明此时排放

的 CO_2 和氮素气体都主要来源于反硝化过程. 之后, 随着底物 NO_3^- 的消耗, CO_2/N_i 质量比增加. Soil-1 的 NO_3^- 耗尽时间 (90 h) 早于 Soil-2 (120 h), 因此 Soil-1 观测到 CO_2/N_i 质量比增加早于 Soil-2. 高的 CO_2/N_i 质量比表明培养过程中排放的 CO_2 来源于其他微生物过程 (并不伴随着含 N 气体的排放), 如微生物参与的 Fe^{3+} 和 SO_4^{2-} 还原及厌氧发酵过程^[21]. 当产甲烷菌利用 H_2 还原 CO_2 而产生 CH_4 时 (120 h), 土壤排放的 CO_2 减少 (图 1), 而此时 CO_2/N_i 质量比有降低的趋势 (图 2). 综上, 可根据 CO_2/N_i 质量比, 判别厌氧条件下的氮转化过程是否由纯反硝化过程主导.

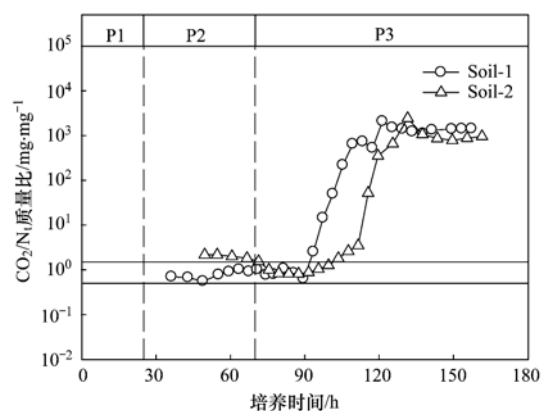


图 2 两水稻土 CO_2/N_i 质量比随时间变化曲线

Fig. 2 Dynamics of carbon to nitrogen mass ratio of CO_2 and N_i emission rates with time for two paddy soils

4 结论

厌氧条件下, 初始碳氮底物充足的中性偏酸性砂壤水稻土, 在整个培养阶段的反硝化气体产物以 N_2O 和 NO 为主, 而 N_2 所占比例不足 20%. 但反硝化产物组成的逐日动态却表现为从以 NO 为主逐渐过渡到以 N_2O 为主, 最后发展到以 N_2 为主, 表明反硝化气体产物组成实际上是随反硝化进程而变化的, 这一点在以气体产物组成比率作为关键参数计算各种反硝化气体产生率或排放率的模型中很有必要得到充分重视.

致谢: 对本研究提供技术支持和帮助的有刘广仁、孙扬、李宝江、付永锋、沈建林等, 谨此致谢!

参考文献:

- [1] Davidson E A, Seitzinger S. The enigma of progress in denitrification research [J]. *Ecological Applications*, 2006, **16** (6): 2057-2063.
- [2] Intergovernmental Panel on Climate Change. Climate change 2013: the physical science basis, contribution of working group I to the fifth assessment report [M]. Cambridge: Cambridge

- University Press, 2014.
- [3] Galloway J N, Leach A M, Bleeker A, *et al.* A chronology of human understanding of the nitrogen cycle [J]. *Philosophical Transactions of the Royal Society B*, 2013, **368** (1621): 20130120.
- [4] Dong H B, Yao Z S, Zheng X H, *et al.* Effect of ammonium-based, non-sulfate fertilizers on CH_4 emissions from a paddy field with a typical Chinese water management regime [J]. *Atmospheric Environment*, 2011, **45**(5): 1095-1101.
- [5] Hussain S, Peng S B, Fahad S, *et al.* Rice management interventions to mitigate greenhouse gas emissions: a review [J]. *Environmental Science and Pollution Research*, 2015, **22**(5): 3342-3360.
- [6] 廖千家骅, 颜晓元. 亚洲地区稻田 N_2O 排放影响因子统计模拟分析 [J]. *环境科学*, 2011, **32**(1): 38-45.
- [7] Wang R, Feng Q, Liao T T, *et al.* Effects of nitrate concentration on the denitrification potential of a calcic cambisol and its fractions of N_2 , N_2O and NO [J]. *Plant and Soil*, 2013, **363**(1-2): 175-189.
- [8] Drury C F, Myrold D D, Beuchamp E G, *et al.* Soil Sampling and methods of analysis, Chapter 37 denitrification techniques for soils [A]. In: Carter M R (ed.). *Soil sampling and methods of analysis* [M]. Boca Raton: CRC Press, 2007. 471.
- [9] Wang R, Willibald G, Feng Q, *et al.* Measurement of N_2 , N_2O , NO , and CO_2 emissions from soil with the gas-flow-soil-core technique [J]. *Environmental Science & Technology*, 2011, **45**(14): 6066-6072.
- [10] Liao T T, Wang R, Zheng X H, *et al.* Automated online measurement of N_2 , N_2O , NO , CO_2 , and CH_4 emissions based on a gas-flow-soil-core technique [J]. *Chemosphere*, 2013, **93** (11): 2848-2853.
- [11] 廖婷婷. 土壤反硝化及其伴随过程产物和底物动态的直接测定系统(GFSC-SMOS)设计与检验 [D]. 北京: 中国科学院大学, 2013. 74-78.
- [12] 陈诺, 廖婷婷, 王睿, 等. 碳底物含量对厌氧条件下水稻土 N_2 、 N_2O 、 NO 、 CO_2 和 CH_4 排放的影响 [J]. *环境科学*, 2014, **35**(9): 3595-3604.
- [13] 鲍士旦. 土壤农化分析 [M]. 北京: 中国农业出版社, 2000. 432-437.
- [14] 彭卫芳, 凌志明, 王学涛, 等. 亚硝酸盐测定方法的研究进展 [J]. *中国卫生检验杂志*, 2007, **17**(8): 1535-1536.
- [15] Sparling G P, West A M. Modifications to the flmigation-extraction technique to permit simultaneous extraction and estimation of soil microbial C and N [J]. *Communications in Soil Science and Plant Analysis*, 1988, **19**(3): 327-344.
- [16] Sagar S, Jha N, Deslippe J, *et al.* Denitrification and N_2O : N_2 production in temperate grasslands: Processes, measurements, modelling and mitigating negative impacts [J]. *Science of The Total Environment*, 2013, **465**: 173-195.
- [17] Schreiber K, Krieger R, Benkert B, *et al.* The anaerobic regulatory network required for *Pseudomonas aeruginosa* nitrate respiration [J]. *Journal of Bacteriology*, 2007, **189**(11): 4310-4314.
- [18] Roy R, Conrad R. Effect of methanogenic precursors (acetate, hydrogen, propionate) on the suppression of methane production by nitrate in anoxic rice field soil [J]. *FEMS Microbiology Ecology*, 1999, **28**(1): 49-61.
- [19] Achtnich C, Bak F, Conrad R. Competition for electron donors among nitrate reducers, ferric iron reducers, sulfate reducers, and methanogens in anoxic paddy soil [J]. *Biology and Fertility of Soils*, 1995, **19**(1): 65-72.
- [20] 王明星, 李晶, 郑循华. 稻田甲烷排放及产生、转化、输送机理 [J]. *大气科学*, 1998, **22**(4): 600-612.
- [21] Šimek M, Hynš J, Šimek P. Emissions of CH_4 , CO_2 , and N_2O from soil at a cattle overwintering area as affected by available C and N [J]. *Applied Soil Ecology*, 2014, **75**: 52-62.
- [22] Klüber H D, Conrad R. Effects of nitrate, nitrite, NO and N_2O on methanogenesis and other redox processes in anoxic rice field soil [J]. *FEMS Microbiology Ecology*, 1998, **25**(3): 301-318.
- [23] Datta A, Adhya T K. Effects of organic nitrification inhibitors on methane and nitrous oxide emission from tropical rice paddy [J]. *Atmospheric Environment*, 2014, **92**: 533-545.
- [24] 刘阳, 张金波, 蔡祖聪. 硝态氮浓度对亚热带土壤反硝化潜力和产物组成的影响 [J]. *土壤*, 2013, **45**(5): 815-820.
- [25] Xu Y B, Xu Z H, Cai Z C, *et al.* Review of denitrification in tropical and subtropical soils of terrestrial ecosystems [J]. *Journal of Soils and Sediments*, 2013, **13**(4): 699-710.
- [26] Bouwman A F. Direct emission of nitrous oxide from agricultural soils [J]. *Nutrient Cycling in Agroecosystems*, 1996, **46**(1): 53-70.
- [27] De Wever H, Mussen S, Merckx R. Dynamics of trace gas production following compost and NO_3^- amendments to soil at different initial TOC/NO_3^- ratios [J]. *Soil Biology and Biochemistry*, 2002, **34**(11): 1583-1591.
- [28] Pihlatie M, Syväsalö E, Simojoki A, *et al.* Contribution of nitrification and denitrification to N_2O production in peat, clay and loamy sand soils under different soil moisture conditions [J]. *Nutrient Cycling in Agroecosystems*, 2004, **70**(2): 135-141.
- [29] Šimek M, Cooper J E. The influence of soil pH on denitrification: progress towards the understanding of this interaction over the last 50 years [J]. *European Journal of Soil Science*, 2002, **53**(3): 345-354.
- [30] Lan T, Han Y, Cai Z C. Denitrification and its product composition in typical Chinese paddy soils [J]. *Biology and Fertility of Soils*, 2015, **51**(1): 89-98.
- [31] Russow R, Stange C F, Neue H U. Role of nitrite and nitric oxide in the processes of nitrification and denitrification in soil: Results from ^{15}N tracer experiments [J]. *Soil Biology and Biochemistry*, 2009, **41**(4): 785-795.
- [32] Ciarlo E, Conti M, Bartoloni N, *et al.* The effect of moisture on nitrous oxide emissions from soil and the $N_2O/(N_2O + N_2)$ ratio under laboratory conditions [J]. *Biology and Fertility of Soils*, 2007, **43**(6): 675-681.
- [33] Mathieu O, Lévêque J, Hénault C, *et al.* Emissions and spatial

- variability of N_2O , N_2 and nitrous oxide mole fraction at the field scale, revealed with ^{15}N isotopic techniques [J]. *Soil Biology and Biochemistry*, 2006, **38**(5): 941-951.
- [34] Ciarlo E, Conti M, Bartoloni N, *et al.* Soil N_2O emissions and $\text{N}_2\text{O}/(\text{N}_2\text{O} + \text{N}_2)$ ratio as affected by different fertilization practices and soil moisture [J]. *Biology and Fertility of Soils*, 2008, **44**(7): 991-995.
- [35] Senbayram M, Chen R, Budai A, *et al.* N_2O emission and the $\text{N}_2\text{O}/(\text{N}_2\text{O} + \text{N}_2)$ product ratio of denitrification as controlled by available carbon substrates and nitrate concentrations [J]. *Agriculture, Ecosystems & Environment*, 2012, **147**: 4-12.
- [36] Liu B B, Mørkved P T, Frostegård Å, *et al.* Denitrification gene pools, transcription and kinetics of NO , N_2O and N_2 production as affected by soil pH [J]. *FEMS Microbiology Ecology*, 2010, **72**(3): 407-417.
- [37] Qu Z, Wang J G, Almøy T, *et al.* Excessive use of nitrogen in Chinese agriculture results in high $\text{N}_2\text{O}/(\text{N}_2\text{O} + \text{N}_2)$ product ratio of denitrification, primarily due to acidification of the soils [J]. *Global Change Biology*, 2014, **20**(5): 1685-1698.
- [38] Schlesinger W H. On the fate of anthropogenic nitrogen [J]. *Proceedings of the National Academy of Sciences of United States of America*, 2009, **106**(1): 203-208.
- [39] Scheer C, Wassmann R, Butterbach-Bahl K, *et al.* The relationship between N_2O , NO , and N_2 fluxes from fertilized and irrigated dryland soils of the Aral Sea Basin, Uzbekistan [J]. *Plant and Soil*, 2009, **314**(1-2): 273-283.
- [40] Ludwig J, Meixner F X, Vogel B, *et al.* Soil-air exchange of nitric oxide: an overview of processes, environmental factors, and modeling studies [J]. *Biogeochemistry*, 2001, **52**(3): 225-257.
- [41] Skiba U, Fowler D, Smith K A. Nitric oxide emissions from agricultural soils in temperate and tropical climates: sources, controls and mitigation options [J]. *Nutrient Cycling in Agroecosystems*, 1997, **48**(1-2): 139-153.
- [42] Swerts M, Merckx R, Vlassak K. Influence of carbon availability on the production of NO , N_2O , N_2 and CO_2 by soil cores during anaerobic incubation [J]. *Plant and Soil*, 1996, **181**(1): 145-151.

CONTENTS

Estimation of PM _{2.5} Concentration over the Yangtze Delta Using Remote Sensing: Analysis of Spatial and Temporal Variations	XU Jian-hui, JIANG Hong (3119)
Seasonal and Spatial Variations of Carbon Fractions in PM _{2.5} in Ningbo and the Estimation of Secondary Organic Carbon	DU Bo-han, HUANG Xiao-feng, HE Ling-yan, <i>et al.</i> (3128)
Concentrations of Acidic Gases, Ammonia and Related Water-Soluble Ions in PM _{2.5} and Gas-Particle Partitioning in Qingdao	ZHOU Jia-jia, SHI Jin-hui, LI Li-ping, <i>et al.</i> (3135)
Concentration and Particle Size Distribution of Microbiological Aerosol During Haze Days in Beijing	HU Ling-fei, ZHANG Ke, WANG Hong-bao, <i>et al.</i> (3144)
Air Quality Characteristics in Beijing During Spring Festival in 2015	CHENG Nian-liang, CHEN Tian, ZHANG Da-wei, <i>et al.</i> (3150)
Chemical Loss of Volatile Organic Compounds and Its Impact on the Formation of Ozone in Shanghai	WANG Hong-li (3159)
Removal of Waste Gas Containing Mixed Chlorinated Hydrocarbons by the Biotrickling Filter	CHEN Dong-zhi, MIAO Xiao-ping, OUYANG Du-juan, <i>et al.</i> (3168)
A Three Band Chlorophyll-a Concentration Estimation Model Based on GOCI Imagery	GUO Yu-long, LI Yun-mei, LI Yuan, <i>et al.</i> (3175)
Temporal and Spatial Distribution Characteristics of Dissolved Organic Matter and Influencing Factors in Lake Chaohu	YE Lin-lin, WU Xiao-dong, LIU Bo, <i>et al.</i> (3186)
Spectral Characteristic of Dissolved Organic Matter in Xiaohe River, Hebei	YU Min-da, ZHANG Hui, HE Xiao-song, <i>et al.</i> (3194)
Spatial Variation of Ammonia-N, Nitrate-N and Nitrite-N in Groundwater of Dongshan Island	WU Hai-yan, FU Shi-feng, CAI Xiao-qiong, <i>et al.</i> (3203)
Sources, Migration and Conversion of Dissolved Alkanes, Dissolved Fatty Acids in a Karst Underground River Water, in Chongqing Area	LIANG Zuo-bing, SUN Yu-chuan, WANG Zun-bo, <i>et al.</i> (3212)
Influence of Sulfuric Acid to Karst Hydrochemical and $\delta^{13}\text{C}_{\text{DIC}}$ in the Upper and Middle Reaches of the Wujiang River	HUANG Qi-bo, QIN Xiao-qun, LIU Peng-yu, <i>et al.</i> (3220)
Hydrochemical Characteristic and Reasoning Analysis in Siyi Town, Langzhong City	ZHANG Yan, WU Yong, YANG Jun, <i>et al.</i> (3230)
Seasonal Variation on Nutrient Limitation for Phytoplankton Growth in a Coastal River-Reservoir System, Southeast China	CHEN Cong-cong, RAO La, HUANG Jin-liang, <i>et al.</i> (3238)
Physiological Effect of <i>Vallisneria natans</i> Under Different Concentrations of Nitrogen, Phosphorus and Chloramphenicol	HU Zhen-zhen, CUI Yi-bin, LI Mei, <i>et al.</i> (3248)
Effects of Algicidal Substance on <i>Phaeocystis globosa</i> and Its Fatty Acids by the Simulation Experiment	YANG Qiu-chan, ZHAO Ling, YIN Ping-he, <i>et al.</i> (3255)
Agricultural Non-Point Source Pollutants Removal by Enhanced Riverbank Interception Facilities Under Different Operating Conditions	LI Huai-zheng, CHEN Ke-li, WEI Zhong, <i>et al.</i> (3262)
Speciation Distribution and Risk Assessment of Heavy Metals in Typical Material Roof Dusts	LI Dun-zhu, GUAN Yun-tao, LIU An, <i>et al.</i> (3269)
Formation of Disinfection By-Products During Chlor(am)ination of Danjiangkou Reservoir Water and Comparison of Disinfection Processes	ZHANG Min-sheng, XU Bin, ZHANG Tian-yang, <i>et al.</i> (3278)
Effects of Interaction of Ozonation and Coagulation on Coagulation Results	LIU Hai-long, GUO Xue-feng, WANG Min-hui, <i>et al.</i> (3285)
Effects of Anions on Bromate Formation During Ozonation of Bromide-Containing Water	WU Yue, WU Chun-de, LIU Li-gang, <i>et al.</i> (3292)
XAS Analysis upon Dissolved Species of Orpiment in Anoxic Environment	WANG Ying, XU Li-ying, WANG Shao-feng, <i>et al.</i> (3298)
AOX Pollution in Wastewater Treatment Process of Dyeing and Dyestuff Chemical Industries	SHEN Yang-yang, LIU Rui, XU Can-can, <i>et al.</i> (3304)
Fate of ARB and ARGs During Wastewater Treatment Process of Spiramycin Production	QIN Cai-xia, TONG Juan, SHEN Pei-hong, <i>et al.</i> (3311)
A Comparative Study on Two Membrane Bioreactors for the Treatment of Digested Piggery Wastewater	SHUI Yong, Kawagishi Tomoki, SONG Xiao-yan, <i>et al.</i> (3319)
Analysis of Microbial Community in the Membrane Bio-Reactor (MBR) Rural Sewage Treatment System	KONG Xiao, CUI Bing-jian, JIN De-cai, <i>et al.</i> (3329)
Start-up Characteristics of Four-zone Integrated Reactor for Nitrogen Removal in Winter and Analysis of Nitrobacteria Community	ZHANG Yan, SUN Feng-xia, XIE Hang-ji, <i>et al.</i> (3339)
Achievement of Sulfate-Reducing Anaerobic Ammonium Oxidation Reactor Started with Nitrate-Reducing Anaerobic Ammonium Oxidation	LIU Zheng-chuan, YUAN Lin-jiang, ZHOU Guo-biao, <i>et al.</i> (3345)
Effect of Increasing Organic Loading Rate on the Formation and Stabilization Process of Aerobic Granular Sludge	LIU Xiao-peng, WANG Jian-fang, QIAN Fei-yue, <i>et al.</i> (3352)
Nitrogen Loss Through Different Ways in Cropland Under Conventional Fertilization: An <i>In-situ</i> Study of Summer Maize Season in the Middle and Lower Reaches of the Yangtze River	SANG Meng-meng, FAN Hui, JIANG Shan-shan, <i>et al.</i> (3358)
Effects of Water and Nitrogenous Fertilizer Coupling on CH ₄ and N ₂ O Emission from Double-Season Rice Paddy Field	FU Zhi-qiang, LONG Pan, LIU Yi-yi, <i>et al.</i> (3365)
Characteristics of N ₂ , N ₂ O, NO, CO ₂ and CH ₄ Emissions in Anaerobic Condition from Sandy Loam Paddy Soil	CAO Na, WANG Rui, LIAO Ting-ting, <i>et al.</i> (3373)
Characteristics of Soil Respiration along Eroded Sloping Land with Different SOC Background on the Hilly Loess Plateau	CHEN Gai, XU Ming-xiang, ZHANG Ya-feng, <i>et al.</i> (3383)
Effect of Biochar on Soil Greenhouse Gas Emissions in Semi-arid Region	GUO Yan-liang, WANG Dan-dan, ZHENG Ji-yong, <i>et al.</i> (3393)
Characteristics and Coupling Relationship of Soil Carbon and Nitrogen Transformation During <i>In-situ</i> Mineralization Cultivation in Forestlands in the Mountain Area of Southern Ningxia	NI Yin-xia, HUANG Yi-mei, NIU Dan, <i>et al.</i> (3401)
Nitrogen Fraction Distributions and Impacts on Soil Nitrogen Mineralization in Different Vegetation Restorations of Karst Rocky Desertification	HU Ning, MA Zhi-min, LAN Jia-cheng, <i>et al.</i> (3411)
Distribution and Dynamics of Cropland Soil Organic Carbon in Jiangnan Plain: A Case Study of Qianjiang City	WANG Yu-zhu, XIAO He-ai, ZHOU Ping, <i>et al.</i> (3422)
Impact of Land Utilization Pattern on Distributing Characters of Labile Organic Carbon in Soil Aggregates in Jinyun Mountain	LI Rui, JIANG Chang-sheng, HAO Qing-ju (3429)
Magnetic Responses of Heavy Metals in Street Dust of Typical Mine-Based City, Northwest China	NIE Yan, WANG Xin, WANG Bo, <i>et al.</i> (3438)
Distribution Characteristics of Heavy Metals in Environmental Samples Around Electroplating Factories and the Health Risk Assessment	GUO Peng-ran, LEI Yong-qian, ZHOU Qiao-li, <i>et al.</i> (3447)
Homologues Levels and Distribution Pattern of Polychlorinated Biphenyls in Typical Capacitor Contaminated Soil	LIU Jie, LI Xiao-dong, ZHAO Zhong-hua, <i>et al.</i> (3457)
Adsorption and Desorption Characteristics of Endosulfan in Purple Soil	ZHAO Yan, ZHENG Guo-can, ZHU Heng, <i>et al.</i> (3464)
Influence of <i>Mirabilis jalapa</i> Linn. Growth on the Microbial Community and Petroleum Hydrocarbon Degradation in Petroleum Contaminated Saline-alkali Soil	JIAO Hai-hua, CUI Bing-jian, WU Shang-hua, <i>et al.</i> (3471)
Al ³⁺ Absorption and Assimilation by Four Ectomycorrhizal Fungi	WANG Ming-xia, YUAN Ling, HUANG Jian-guo, <i>et al.</i> (3479)
Contamination of Organophosphorus Pesticides Residue in Fresh Vegetables and Related Health Risk Assessment in Changchun, China	YU Rui, LIU Jing-shuang, WANG Qi-cun, <i>et al.</i> (3486)
Community Structure and Succession of Methanogens in Beishenshu Landfill, Beijing	SONG Li-na, WANG Lei, XIA Meng-jing, <i>et al.</i> (3493)
Fertility and Environmental Impacts of Urban Scattered Human Feces Used as Organic Granular Fertilizer for Leaf Vegetables	LÜ Wen-zhou, QIAO Yu-xiang, YU Ning, <i>et al.</i> (3501)
Degradation of PCDD/Fs by the Mixture of V ₂ O ₅ -WO ₃ /TiO ₂ Catalyst and Activated Carbon	REN Yong, JI Sha-sha, YU Ming-feng, <i>et al.</i> (3508)
Energy Conservation and Emissions Reduction Benefits Analysis for Battery Electric Buses Based on Travel Services	LIN Xiao-dan, TIAN Liang, LÜ Bin, <i>et al.</i> (3515)
Definition and Control Indicators of Volatile Organic Compounds in China	JIANG Mei, ZOU Lan, LI Xiao-qian, <i>et al.</i> (3522)
Influence of Dissimilatory Iron Reduction on the Speciation and Bioavailability of Heavy Metals in Soil	SI You-bin, WANG Juan (3533)

《环境科学》第6届编辑委员会

主 编: 欧阳自远

副主编: 赵景柱 郝吉明 田 刚

编 委: (按姓氏笔画排序)

万国江 王华聪 王凯军 王绪绪 田 刚 田 静 史培军
朱永官 刘志培 刘 毅 汤鸿霄 孟 伟 周宗灿 林金明
欧阳自远 赵景柱 姜 林 郝郑平 郝吉明 聂永丰 黄 霞
黄 耀 鲍 强 潘 纲 潘 涛 魏复盛

环 境 科 学

(HUANJING KEXUE)

(月刊 1976年8月创刊)

2015年9月15日 第36卷 第9期

ENVIRONMENTAL SCIENCE

(Monthly Started in 1976)

Vol. 36 No. 9 Sep. 15, 2015

主 管	中国科学院	Superintended	by	Chinese Academy of Sciences
主 办	中国科学院生态环境研究中心	Sponsored	by	Research Center for Eco-Environmental Sciences, Chinese Academy of Sciences
协 办	(以参加先后为序) 北京市环境保护科学研究院 清华大学环境学院	Co-Sponsored	by	Beijing Municipal Research Institute of Environmental Protection School of Environment, Tsinghua University
主 编	欧阳自远	Editor-in -Chief		OUYANG Zi-yuan
编 辑	《环境科学》编辑委员会 北京市2871信箱(海淀区双清路 18号, 邮政编码:100085) 电话:010-62941102, 010-62849343 传真:010-62849343 E-mail: hjkx@ rcees. ac. cn http://www. hjkx. ac. cn	Edited	by	The Editorial Board of Environmental Science (HUANJING KEXUE) P. O. Box 2871, Beijing 100085, China Tel:010-62941102, 010-62849343; Fax:010-62849343 E-mail: hjkx@ rcees. ac. cn http://www. hjkx. ac. cn
出 版	科 学 出 版 社 北京东黄城根北街16号 邮政编码:100717	Published	by	Science Press 16 Donghuangchenggen North Street, Beijing 100717, China
印 刷 装 订	北京北林印刷厂	Printed	by	Beijing Bei Lin Printing House
发 行	科 学 出 版 社 电话:010-64017032 E-mail: journal@ mail. sciencep. com	Distributed	by	Science Press Tel:010-64017032 E-mail: journal@ mail. sciencep. com
订 购 处	全国各地邮电局	Domestic		All Local Post Offices in China
国外总发行	中国国际图书贸易总公司 (北京399信箱)	Foreign		China International Book Trading Corporation (Guoji Shudian), P. O. Box 399, Beijing 100044, China

中国标准刊号: ISSN 0250-3301
CN 11-1895/X

国内邮发代号: 2-821

国内定价: 120.00元

国外发行代号: M 205

国内外公开发行