

环境科学

(HUANJING KEXUE)

ENVIRONMENTAL SCIENCE

第39卷 第5期

Vol.39 No.5

2018

中国科学院生态环境研究中心 主办
科学出版社 出版



目次

餐饮行业细颗粒物(PM _{2.5})排放测算方法:以上海市为例	王红丽, 景盛翱, 楼晟荣, 陶士康, 乔利平, 李莉, 黄成, 林立, 陈长虹 (1971)
上海夏季PM _{2.5} 中有机物的组分特征、空间分布和来源	高雅琴, 王红丽, 景盛翱, 乔利平, 李莉, 朱书慧, 楼晟荣, 陶士康, 冯加良, 李想, 陈长虹 (1978)
北京南郊区PM _{2.5} 中水溶性无机盐季节变化及来源分析	高韩钰, 魏静, 王跃思 (1987)
基于样方法的天津市春季道路扬尘PM ₁₀ 中水溶性离子特征及来源解析	赵静琦, 姬亚芹, 张蕾, 王士宝, 李越洋 (1994)
广州秋季HONO污染特征及夜间来源分析	田智林, 杨闻达, 虞小芳, 张曼曼, 张贺伟, 程丁, 程鹏, 王伯光 (2000)
基于硫氧同位素研究南京北郊夏季大气中硫酸盐来源及氧化途径	韩珣, 任杰, 陈善莉, 王瑾瑾, 沈潇雨, 魏英, 郭照冰, 朱彬 (2010)
区县尺度机动车高分辨率排放清单建立方法及应用	樊守彬, 郭津津, 李雪峰 (2015)
典型工业生物质锅炉多环芳烃排放特征	林玉君, 白莉, 王焕香, 肖文, 刘军, 向运荣, 张春林 (2023)
多时间尺度HSPF模型参数不确定性研究	庞树江, 王晓燕, 马文静 (2030)
氮氧同位素联合稳定同位素模型解析水源地氮源	金赞芳, 张文辽, 郑奇, 朱晨阳, 李非里 (2039)
白洋淀水体挥发性有机物污染特征与风险评价	高秋生, 赵永辉, 焦立新, 田自强, 杨柳, 杨苏文, 崔志丹, 郝子峰 (2048)
太湖颗粒态有机质的荧光特征及环境指示意义	吕伟伟, 姚昕, 张保华, 刘延龙, 李元鹏 (2056)
长江口滩涂表层沉积物中微塑料的分布及沉降特点	朱晓桐, 衣俊, 强丽媛, 程金平 (2067)
桂林五里峡水库丰水期溶解有机碳特征	卢晓漩, 李强, 靳振江, 彭文杰, 房君佳, 黄炳惠, 宋昂 (2075)
青藏高原多年冻土区典型植被下河流溶解性有机碳的生物可利用性	马小亮, 刘桂民, 吴晓东, 徐海燕, 叶琳琳, 张晓兰, 白炜 (2086)
城郊与城镇河流中溶解性有机质与重金属的相关性	梁梦琦, 邵美玲, 曹昌丽, 纵亚男, 唐剑锋 (2095)
溶解性有机质在岩溶水系统中的迁移转化及影响因素分析	张连凯, 刘朋雨, 覃小群, 单晓静, 刘文, 赵振华, 姚昕, 邵明玉 (2104)
三峡库区澎溪河回水区溶解态金属离子来源和时空分布特征分析	赵晓松, 蔚建军, 付莉, 姜伟, 周川, 李波, Douglas Haffner, Christopher Weisener, 张磊 (2117)
澜沧江流域沉积物间隙水-上覆水营养盐特征与交换通量分析	望雪, 程豹, 杨正健, 刘德富, 徐雅倩 (2126)
蓄水期三峡水库香溪河沉积物-水系统营养盐分布特征	苏青青, 刘德富, 纪道斌, 宋林旭, 崔玉洁, 李欣, 陈秀秀, 刘心愿 (2135)
两种沉水植物对上覆水和间隙水中各形态磷的影响	杨文斌, 高顺峰, 万锐, 孙祥, 王赢 (2145)
于桥水库沉积物-水界面氮磷剖面特征及交换通量	文帅龙, 龚琬晴, 吴涛, 郑小兰, 江雪, 李鑫, 钟继承 (2154)
岷江干流表层沉积物中磷形态空间分布特征	杨耿, 秦延文, 韩超南, 马迎群, 刘志超, 杨晨晨 (2165)
农业排水沟渠硝态氮吸收动力学特征及相关性分析	李如忠, 殷齐贺, 高苏蒂, 陈广洲 (2174)
不同合成条件对ZnAl-LDHs覆膜改性生物陶粒除磷效果的影响	向洋, 张翔凌, 雷雨, 方晨佳, 袁野, 姜应和, 徐舟影 (2184)
真空紫外/过二硫酸盐去除饮用水中嗅味物质	孙昕, 史路肖, 张燧, 杨煜, 唐晓 (2195)
石墨烯负载铁锰氧化物活化过一硫酸盐降解金橙G	夏文君, 刘峰, 郝尚斌, 黄天寅, 王忠明, 陈家斌 (2202)
载铜或铈生物炭吸附水体中As(V)的作用机制	李锦, 祖艳群, 李刚, 孙国新 (2211)
DOM不同相对分子质量组分在无机矿物上的吸附及其对卡马西平吸附的影响实验	梁雨, 何江涛, 张思 (2219)
污水处理厂中有机磷阻燃剂的污染特征	孙佳薇, 丁炜楠, 张占恩, 王俊霞, 顾海东 (2230)
低温污水前置强化混凝	刘海龙, 任宇霞, 张忠民 (2239)
印染废水反渗透脱盐系统运行性能及膜污堵特性	谭玉琨, 张泽田, 吴乾元, 姚颖, 胡洪营, 丘培文 (2249)
生物膜CANON反应器性能的优化:从FBBR到MBBR	付昆明, 李慧, 周厚田, 仇付国 (2256)
两次污泥颗粒化过程中微生物群落的动态变化	高景峰, 张丽芳, 张树军, 高永青, 王时杰, 樊晓燕, 潘凯玲 (2265)
铝、铁、钛3种金属盐基混凝剂调理污泥的性能比较	王晓萌, 王鑫, 杨明辉, 张淑娟 (2274)
热、热碱处理对污泥溶胞和溶解性有机物的影响	代勤, 张文哲, 于潘芬, 易皓, 刘俊新, 肖本益 (2283)
曝气时间比对亚硝化颗粒污泥形成的影响	李冬, 郭跃洲, 曹美忠, 劳会妹, 李帅, 张杰 (2289)
中国城市污泥中汞含量的时空分布特征	王宁, 刘清伟, 职音, 程柳, 麻冰涓, 毛宇翔 (2296)
夏季太湖湖/藻型湖区N ₂ O生成与迁移特征及其影响因素	郑小兰, 文帅龙, 李鑫, 龚琬晴, 刘德鸿, 钟继承 (2306)
太湖藻型湖区CH ₄ 、CO ₂ 排放特征及其影响因素分析	贾磊, 蒲旖旎, 杨诗俊, 苏荣明珠, 秦志昊, 张弥 (2316)
内蒙古典型草原季节性冻土区土壤剖面CO ₂ 、N ₂ O特征	李晋波, 姚楠, 李秀, 赵英, 张阿凤, 兰志龙, 范庭 (2330)
黄土高原成龄苹果园生态系统CO ₂ 通量特征	杨剑锋, 杨小妮, 王俊花, 段宇敏, 祁香宁, 张林森 (2339)
生物炭施用对紫色水稻土温室气体排放的影响	祁乐, 高明, 郭晓敏, 牛海东, 李婷, 孙涛, 曹群岭, 汤铭豪 (2351)
不同施肥处理对东北黑土温室气体排放的短期影响	李平, 郎漫, 李森, 魏玮, 李凯凯 (2360)
ITS高通量测序研究黄海微型真核浮游生物多样性及分布特征	张莉, 林佳宁, 张远, 王书平, 张晓娇 (2368)
不同排海方式城市尾水微生物扩散规律	郎秀璐, 宋志文, 徐爱玲, 牛成洁, 郭明月 (2380)
旅游活动对岩溶洞穴地下水中细菌群落的影响:以重庆丰都两个洞穴为例	吕现福, 贺秋芳, 王凤康, 赵瑞一, 张弘 (2389)
不同沼灌年限稻田土壤微生物群落分析	朱金山, 张慧, 马连杰, 廖敦秀, 杨星勇, 王龙昌, 王定勇 (2400)
生物炭对褐土理化特性及真菌群落结构的影响	阎海涛, 殷金玉, 丁松爽, 任天宝, 许家来, 宗浩, 高强, 刘国顺 (2412)
铅锌尾矿砂污染下的岩溶土壤微生物群落碳源代谢特征	房君佳, 李强, 刘畅, 靳振江, 梁月明, 黄炳惠, 卢晓漩, 彭文杰 (2420)
湖库沉积物好氧反硝化菌群脱氮特性及种群结构	康鹏亮, 张海涵, 黄廷林, 陈胜男, 商潘路, 冯稷, 贾亮宇 (2431)
反硝化菌群的蔡代谢与反硝化偶联机制	张泽宇, 王明霞, 程永毅, 周志峰 (2438)
广西西江流域土壤铅空间分布与污染评价	张云霞, 宋波, 陈同斌, 伏凤艳, 黄飞, 庞瑞, 潘惠妹 (2446)
三峡库区消落带农业活动对土壤汞变化的影响	陈秋禹, 孙松, 尹德良, 王永敏, 张成, 王定勇 (2456)
水稻不同生长时期不同组织中抗砷内生菌的筛选与鉴定	王伯勋, 王学东, 段桂兰 (2464)
汞在酸性紫色水稻土的转化与水稻汞富集特征	李雨岑, 孙涛, 邓晗, 张成, 王永敏, 王定勇 (2472)
华北平原不同生产模式设施蔬菜生命周期环境影响评价	徐强, 胡克林, 李季, 韩卉, 杨合法 (2480)
基于细菌毒性测试与小鼠肺基因转录分析的PM _{2.5} 健康效应	宋鹏程, 陆书玉, 魏永杰, 陈倩倩, 罗丽娟 (2489)
中国PM _{2.5} 污染空间分布的社会经济影响因素分析	段杰雄, 翟卫欣, 程承旗, 陈波 (2498)

夏季太湖草/藻型湖区N₂O生成与迁移特征及其影响因素

郑小兰^{1,2}, 文帅龙^{1,2}, 李鑫^{1,3}, 龚琬晴^{1,2}, 刘德鸿^{1,4}, 钟继承^{1*}

(1. 中国科学院大学, 北京 100049; 2. 中国科学院南京地理与湖泊研究所湖泊与环境国家重点实验室, 南京 210008; 3. 苏州科技大学环境科学与工程学院, 苏州 215000; 4. 南京师范大学地理科学学院, 南京 210023)

摘要: 多生态类型湖泊N₂O生成与排放的空间异质性给准确地估算湖泊N₂O通量及评估湖泊N₂O排放的重要性带来了很大的不确定性, 有关多生态类型湖泊N₂O生成与排放特征及内在机制的研究相对较少. 本研究对夏季太湖典型草/藻型湖区水-气界面N₂O通量、水体溶存浓度以及水-土界面N₂O通量进行了原位观测及室内分析, 并针对影响N₂O生成与排放的主要环境因子进行了室内微环境实验. 结果表明, 夏季水-气界面N₂O通量、水体溶存N₂O浓度及水-土界面N₂O通量大致上呈现为挺水植物湖区>藻型湖区>沉水植物湖区, 水-气界面通量分别为(115.807±7.583)、(79.768±1.842)和(3.685±0.295) μmol·(m²·h)⁻¹; 水体溶存N₂O浓度分别为:(0.051±0)、(0.029±0.001)和(0.018±0) μmol·L⁻¹, 水-土界面通量分别为:(178.275±3.666)、(160.685±0.642)和(75.665±1.016) μmol·(m²·h)⁻¹; 空间差异原因可归结为生长的植物以及水体中无机氮浓度的差异. 水-土界面微环境实验结果表明, 外加硝酸盐及有机碳源可以显著增加沉积物N₂O生成潜力, 而上覆水中高浓度NH₄⁺-N会抑制沉积物N₂O生成, 随温度升高, 沉积物N₂O生成速率显著增加, 这表明夏季水-土界面N₂O的生成与排放主要受硝酸盐及有机碳的限制, 同时也受温度的影响.

关键词: 水生植物; 水-气界面; 水-土界面; N₂O通量; 影响因素; 太湖

中图分类号: X16 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2018)05-2306-10 DOI: 10.13227/j.hjks.201709212

Characteristics of N₂O Release and Influencing Factors in Grass-type and Algae-type Zones of Taihu Lake During Summer

ZHENG Xiao-lan^{1,2}, WEN Shuai-long^{1,2}, LI Xin^{1,3}, GONG Wan-qing^{1,2}, LIU De-hong^{1,4}, ZHONG Ji-cheng^{1*}

(1. University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China; 2. State Key Laboratory of Lake Science and Environment, Nanjing Institute of Geography and Lakes, Chinese Academy of Sciences, Nanjing 210008, China; 3. College of Environmental Science and Engineering, Suzhou University of Science and Technology, Suzhou 215000, China; 4. School of Geography Science, Nanjing Normal University, Nanjing 210023, China)

Abstract: Spatial heterogeneity of N₂O generation and emissions in multi-ecotype lakes limited the accurate estimation of the N₂O fluxes in lakes, but few studies on the characteristics of N₂O generation and emissions have been conducted. In this study, N₂O flux at the water-gas interface, dissolved N₂O concentration in the water column, and N₂O flux at the sediment-water interface in typical grass-type and algal-type zones of Taihu Lake were analyzed during summer, and indoor micro-environment experiments were conducted to illustrate the main factors affecting the generation and emissions of N₂O. The results showed that the N₂O fluxes at the water-gas interface, dissolved N₂O concentration, and N₂O fluxes at the sediment-water interface of the emergent macrophyte type area was higher than the algae-type area and submerged macrophyte area during the summer, with N₂O fluxes at the water-gas interface of (115.807±7.583), (79.768±1.842), and (3.685±0.295) μmol·(m²·h)⁻¹, respectively. The dissolved N₂O concentration in the water column were (0.051±0), (0.029±0.001), and (0.018±0) μmol·L⁻¹, respectively; and the N₂O fluxes at the sediment-water interface were (178.275±3.666), (160.685±0.642), and (75.665±1.016) μmol·(m²·h)⁻¹, respectively. The spatial difference could be attributed to dominant plants and the concentration of inorganic nitrogen in the water column. The results of micro-environment experiments showed that nitrate and organic carbon sources could significantly increase the N₂O production potential of sediments, the high concentration of NH₄⁺-N in the water column might inhibit the N₂O production in sediments, and the production rates of N₂O in the sediment increased remarkably when the incubation temperature increased, suggesting that the generation and emissions of N₂O were mainly restricted by nitrate, organic carbon, and temperature in summer.

Key words: aquatic plants; water-gas interface; sediment-water interface; N₂O flux; influencing factors; Taihu Lake

收稿日期: 2017-09-24; 修订日期: 2017-11-11

基金项目: 国家自然科学基金项目(41371457, 41771516); 中国科学院重点部署项目(KZZD-EW-10-02-1); 国家水体污染控制与治理科技重大专项(2013ZX07113001)

作者简介: 郑小兰(1992~), 女, 硕士研究生, 主要研究方向为湖泊水环境化学, E-mail: zxl7182@163.com

* 通信作者, E-mail: jczhong@niglas.ac.cn

氧化亚氮(N_2O)是大气中 3 种重要的温室气体之一,贡献了大气中长存的温室气体约 6% 的辐射压力,在臭氧层破坏和全球变暖方面起着非常重要的作用^[1].大量研究表明,受人类影响较大的内陆水生态系统因受到不断增加的氮负荷约有 0.68 $\text{Tg}\cdot\text{a}^{-1}$ 转化为 N_2O ,更使其成为 N_2O 排放的热点^[2],因此处于平原地区对经济发展起重要作用的富营养化浅水湖泊排放 N_2O 已不可忽略,湖泊已成为大气中 N_2O 的主要的自然释放源之一.

湖泊中 N_2O 生成与排放的空间异质性给准确地估算湖泊 N_2O 通量及评估湖泊 N_2O 排放的重要性带来了很大的不确定性.迄今为止,关于多生态类型湖泊 N_2O 生成与排放的空间异质性及其关键影响因素的研究相对较少.不同类型水生植物在水体生态类型生态系统中的地位不同,他们通过自身的特性来影响、改变所处水体环境中的物理和化学条件,从而影响内陆水体中的 N_2O 生成与排放.Wang 等^[3]对太湖梅梁湾藻型湖区 N_2O 通量观测发现夏季藻类暴发时期是 N_2O 排放高峰期,Weathers 等^[4]研究证实水体中 NO_2^- -N 浓度较高时,其水中的藻类是 N_2O 的重要来源,藻类细胞内含有的活性亚硝酸还原酶在黑暗条件下促进亚硝酸还原为 N_2O ,从而使 N_2O 积累,此外有研究指出处于生长阶段的藻类体内硝酸盐活性高时 N_2O 产生速率较大^[5].Wang 等^[6]发现太湖富营养化程度最严重的五里湖水体中 N_2O 饱和度最大,而处于挺水植物生长期且污染相对轻的南部湖区 N_2O 饱和度最低,从北部藻型湖区过渡到南部草型湖区 N_2O 饱和度呈逐渐降低的趋势.另外,大型的水生植物对 N_2O 生成与排放也会产生重要的影响,有研究表明有芦苇生长的水体释放 N_2O 是无芦苇生长的 14 倍^[7],这主要取决于根部生物量.一般大型水生植物如芦苇可以将水体中的有机碎屑甚至空气中可利用气体(O_2 及 N_2O)输送到植物根部,供给植物生长,即草型湖区 N_2O 水体通量呈现出负值,即水体成为 N_2O 的“汇”^[8].可见关于大型水生植物对于 N_2O 生成与排放的影响及其机制较为复杂,尚需要更多的研究来证实其在 N_2O 生成与排放中的作用.

当前关于环境因子对于 N_2O 生成与排放研究主要集中在温度、pH、含碳和氮的各种营养物质等,研究表明反硝化过程及 N_2O 产生的速率的限制因子包括可利用的 NO_3^- -N 浓度^[9],温度,氧化还原电位^[10](限制硝化作用及 NO_3^- -N 的供给),以及 S^{2-} 浓

度,此外沉积物中有机碳含量对反硝化过程存在极大的促进作用^[11],从而影响水体中 N_2O 生成与排放.沉积物-水界面是水环境中的一个重要生化反应界面,是水相与沉积物之间的结合转换区,也是各种物理或生化指标梯度的峰值区,是生物地球化学循环和生物系统之间耦合的重要场所,当前关于 N_2O 生成与排放的研究主要集中在 N_2O 在水柱中的溶解度及水-气界面的通量,而关于沉积物-水界面 N_2O 生成与排放的研究相对较少.在不同的生态系统类型湖区沉积物类型不同,水柱及沉积物中氮形态及其含量,及水柱中 DO、pH、Eh、浊度差异显著^[12,13],这些因素势必会影响到水柱和沉积物中氮的迁移转化过程,从而影响 N_2O 的生成、消耗和迁移,最终影响 N_2O 的排放通量.

夏季水体浮游藻类暴发期是水体 N_2O 释放高峰期,为了探究夏季太湖多生态类型湖区 N_2O 生成与排放的差异,本研究拟以太湖典型藻型湖区及草型湖区为研究对象,通过夏季野外原位定点观测实验来研究草、藻型湖区氧化亚氮排放的空间差异,同时开展室内微环境实验,来分析及辨识影响草、藻湖区 N_2O 生成与排放的关键影响因子,以了解多生态类型湖泊氧化亚氮的生成与排放空间异质性及其内在机制,以期为我国湖泊 N_2O 通量估算及全球评估湖泊 N_2O 排放的重要性提供数据支持,且对我国富营养化湖泊减排措施的制定具有重要的现实意义.

1 材料与方法

1.1 采样点概述

太湖,位于中国北亚热带季风气候区域的富营养化浅水湖泊,水域面积 2 338 km^2 ,平均水深 1.9 m.年平均气温 14.9 ~ 16.2 $^{\circ}\text{C}$,水域内植物生长季从 3 ~ 9 月.太湖属于典型的多生态类型湖泊,根据生境差异可将其分为不同的湖区:北部以贡湖湾、梅梁湾为代表的“藻型湖区”及以胥口湾、东太湖为代表的“草型湖区”及中间过渡区.本研究选取太湖典型的草型湖区胥口湾及富营养化严重的藻型湖区梅梁湾(31 $^{\circ}$ 31'43.02"N, 120 $^{\circ}$ 12'32.92"E)为研究对象,其中胥口湾草型湖区又分为沉水植物区(胥口湾 1: 31 $^{\circ}$ 08'51.35"N, 120 $^{\circ}$ 25'31.63"E,优势种为狐尾藻、马来眼子菜等)及挺水植物区(胥口湾 2: 31 $^{\circ}$ 06'54.28"N, 120 $^{\circ}$ 25'31.64"E,优势种为芦苇).梅梁湾“藻型湖区”富营养化程度相对比较严重,也是蓝藻水华暴发最严重的区域,底部沉积有较多的

淤泥,除岸边外几乎无水生植物生长,在温度较高的季节藻类较多,水柱叶绿素含量高^[14],草型湖区水生植被以挺水植物及沉水植物为主,沉积物为含较多有机碎屑的软泥,夏季时水草生长茂盛,而挺水植物区有大量芦苇生长。

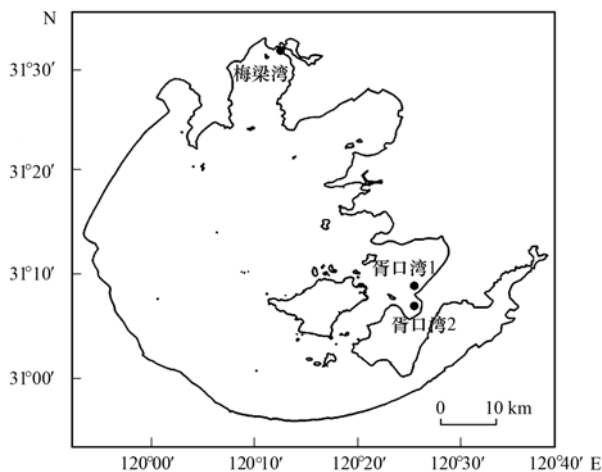


图1 太湖采样点分布示意

Fig. 1 Distribution of sampling sites in Lake Taihu

1.2 样品采集及前处理

于2017年6~8月中旬在梅梁湾及胥口湾进行现场观察及样品采集.水-气界面 N_2O 通量的采样采用漂浮通量箱法.漂浮通量箱用直径20 cm的PVC管制成(高度为100 cm),其中一断开口,一端用PVC材料制作的盖子密封,盖子下方通量箱内部装有风扇,采样时可使箱内气体混合均匀.盖子上方留有3个小孔,其中一个起平衡气压的作用,采样时封闭,一个孔安装温度计监测箱体内温度,另外一个孔安装PU采样管(外径6 mm,内径3 mm).通量箱外距离密封端30 cm处安装一个圆周挡板,用来固定漂浮轮胎.每次采样前,提起箱体,使箱体内与周围空气混合均匀后,然后垂直放入水柱中,用橡胶塞塞紧平衡气压孔.漂浮通量箱约70 cm位于水柱中,约30 cm长度位于水气界面上,形成一个采样顶空.用连接三通阀的医用注射器采集00:00时的气体样品保存于预先抽成真空的20 mL玻璃瓶内,采集样品前先抽取一次气体弃掉,以消除采样管死体积带来的误差,此后每隔20 min采样一次,每小时采集4次^[15],每个位点3组重复,并同步记录箱体内温度,样品采集后尽快运回实验室分析。

气体样品采集时同步采集水样,水柱中 N_2O 溶存浓度采用顶空-气相色谱技术进行分析,用虹吸法采集水样于20 mL血清瓶中,加入甲醛溶液0.2

mL以抑制微生物活性,水样溢出瓶口,塞紧瓶塞.为避免气泡产生,在用橡胶瓶塞封口时,在橡胶塞上插入注射器针头,使多余水样从注射器中流出.水样中溶存气体浓度采用静态顶空法测定,先用注射器将约10 mL的高纯氮气注射进20 mL血清瓶中,置换出等体积的水,室温下剧烈振荡1 min后静置隔夜,使目标气体在玻璃瓶的液相和气相中达到动态平衡,并尽快进行色谱分析.野外采样时用500 mL聚乙烯塑料瓶采集0.5 m以下表层水样,冷藏运回实验室用于水质常规指标测定.此外,用多参数水质仪(YSI, Yellow Springs)记录环境参数,现场测定表层水水温、DO、pH值、盐度等。

沉积物样品的采集采用柱状采样器,在每个研究点采集3个沉积物柱样并无扰动带回实验室.在进行沉积物-水界面 N_2O 扩散通量估算时,首先用虹吸法采集沉积物柱中沉积物-水界面处的水样,然后切取表层2 cm沉积物经离心后,取上清液于顶空瓶中,由表层间隙水及上覆水中 N_2O 浓度差值计算水-土界面 N_2O 通量,并与2017年7月采集沉积物表层2 cm处泥样进行环境因子对沉积物氧化亚氮生成的条件实验。

1.3 环境因子对 N_2O 生成影响的微环境实验

根据本课题组在太湖的前期研究基础,本文主要探讨无机氮浓度、碳源及温度这些主要的环境因子对 N_2O 生成的影响,基于太湖水质常年基本理化性质实际情况,环境因子及其梯度设置如表1所示.环境因子对 N_2O 生成影响的微环境实验采用泥浆法,在已有研究的方法上进行改进^[16],具体步骤如下:称约3 g混合均匀的表层沉积物样于50 mL血清瓶中,每个处理3组重复,加入10 mL用原位湖水配置的培养水,然后用高纯氮气吹扫30 s,赶走顶空的氧气来维持厌氧环境^[17],氮气吹扫后立即塞进橡皮塞确保不漏气.初始样品在培养开始后立即采集20 mL顶空样品,然后将其他培养瓶放入摇床中振荡(70 $r \cdot \min^{-1}$,原位温度)避光培养4 h.4 h后用20 mL 3 $\text{mol} \cdot \text{L}^{-1}$ NaCl溶液置换同体积顶空气体^[18].在采集0时刻与培养4 h后的气体样品时,剧烈地晃动血清瓶以使顶空气体达到平衡.采集到的气体样品尽快进行气相色谱分析。

1.4 样品分析方法

气体样品中的 N_2O 浓度采用配有十通阀反吹装置和电子捕获器(ECD)的气相色谱仪(Agliet7890B)测定.条件:柱温55℃、后检测器

(ECD)温度 300℃, 载气为高纯氮气, 流速为 30 mL·min⁻¹, 燃气为氢气, 流速为 45 mL·min⁻¹. 进样时用带有三通阀的注射器吸取 5 mL 气样注入进样口分析, 所采气体样品可直接测定, 记录N₂O的摩尔分数值(×10⁻⁶).

表 1 环境因子及各实验处理

Table 1 Environmental factors and test treatments

环境因子	梯度 1	梯度 2	梯度 3	梯度 4
NH ₄ ⁺ -N/mg·L ⁻¹	0	1	5	10
NO ₃ ⁻ -N/mg·L ⁻¹	0	1	5	10
有机碳/mg·L ⁻¹	0	20	50	100
温度/℃	10	20	30	

水样经 0.45 μm 碳酸纤维滤头过滤用于 NO₃⁻-N、NO₂⁻-N、NH₄⁺-N测定. 水样中无机氮浓度采用流动注射分析仪测定(Skalar Sanplus, 荷兰); 原水样中 TN 和 TP 采用过硫酸钾消解法测定.

1.5 通量计算

1.5.1 水-气通量的计算方法

N₂O的释放通量是指在单位时间内单位面积上温室气体浓度的变化量, 正值表示N₂O气体从水体向大气中排放, 即“源”; 负值表示水体吸收N₂O气体, 即“汇”. N₂O通量采用下式计算:

$$F_g = 1000 \cdot \rho \frac{V}{A} \frac{dG}{dt} \frac{T}{T + 273.15} \quad (1)$$

式中, F_g 为水-气通量[μmol·(m²·h)⁻¹]; ρ 为N₂O密度(g·L⁻¹); V 为通量箱体积(m³); A 为通量箱口面积(m²); dG/dt 为通量箱内N₂O气体浓度随时间变化的斜率; T 为通量箱内温度(℃).

1.5.2 水体浓度计算方法

(1) 顶空气体浓度的计算 将顶空气体视为理想气体, 顶空气体组分浓度由 Dalton 分压定律计算:

$$P_G = n_G \cdot \frac{T}{V_T} = c_G \cdot R \cdot T \quad (2)$$

$$c_G = \frac{P_G}{R \cdot T} = f_G \frac{P}{R \cdot T} \quad (3)$$

式中, P_G 为体系内某气体组分的分压值(Pa); n_G 为该气体组分的物质的量; R 为理想气体常数[8.31 J·(mol·K)⁻¹]; T 表示体系的热力学温度(K); V_T 为气体总体积(L); c_G 为最终要求得的该气体组分的浓度(μmol·L⁻¹); f_G 为该气体组分的物质的摩尔分数, 气相色谱测定得到(×10⁻⁶); P 为体系内气压值(Pa).

(2) 培养体系内水体浓度计算 假设水样瓶中

顶空气体与水体达到溶解平衡, 瓶内水体溶存气体的浓度根据改善后的 Weiss 气体溶解度公式计算^[19], 顶空内总压强是 101.3 kPa, 则水体溶存 N₂O 浓度可由下式计算:

$$c = f_G \cdot F \quad (4)$$

$$\ln F = A_1 + A_2 \left(\frac{100}{T} \right) + A_3 \ln \left(\frac{T}{100} \right) + A_4 \left(\frac{T}{100} \right)^2 +$$

$$S \left[B_1 + B_2 \left(\frac{T}{100} \right) + B_3 \left(\frac{T}{100} \right)^2 \right] \quad (5)$$

式中, c 为N₂O水体溶存气体浓度[μmol·L⁻¹], f_G 为N₂O的物质的摩尔分数, 气相色谱测定得到(×10⁻⁶); F 为换算系数, 相当于溶解度系数[1×10⁻³ mol·(L·kPa)⁻¹]; T 是热力学温度(K); S 为水体盐度(‰); A_1 (-165.881 0)、 A_2 (222.874 3)、 A_3 (92.092 0)、 A_4 (-1.484 2)、 B_1 (-0.056 2)、 B_2 (0.031 6)、 B_3 (-0.004 8)是常数.

(3) 培养体系内气体累积浓度计算 培养产生的气体包括水体溶存的及顶空内的N₂O, 换算为培养水中累计浓度 c_G 为(μmol·L⁻¹):

$$c_G = \frac{c_H \cdot V_H + c_W \cdot V_W}{V_W} \quad (6)$$

式中, c_H 和 c_W 分别为顶空和培养水内N₂O浓度(μmol·L⁻¹), V_H 和 V_W 分别为顶空和水体体积(L).

1.5.3 水-土通量计算方法^[20]

$$F_s = \phi \cdot D_s \cdot \frac{dc}{ds} \quad (7)$$

$$D_s = \frac{D_w}{\theta^2} \quad (8)$$

$$\theta^2 = 1 - \ln(\phi^2) \quad (9)$$

式中, F_s 为泥水通量[μmol·(m²·h)⁻¹]; ϕ 为沉积物孔隙度; D_s 为沉积物总扩散系数(cm²·s⁻¹); dc/ds 浓度梯度(μmol·m⁻⁴), ds 表示沉积物深度变化量; D_w 为N₂O水体扩散系数(cm²·s⁻¹); θ 为弯曲度.

1.5.4 微环境实验中沉积物生成N₂O速率计算

根据 1.5.2 节中的方法即可求得体系内氧化亚氮产生量, 再根据培养瓶体积、培养时间以及所用沉积物质量换算出 3 个湖区沉积物氧化亚氮产生速率.

$$P_s = \frac{1000 \cdot M \cdot (c_T - c_0) \cdot V}{m \cdot t} \quad (10)$$

式中, P_s 为沉积物N₂O生成潜力[ng·(g·h)⁻¹]; c_T 为水体累计生成N₂O浓度(μmol·L⁻¹); c_0 为水体初始N₂O浓度(μmol·L⁻¹); V 为培养水体积(L); m 为沉积物干重(g); t 为培养时间(h); M 为N₂O

的分子量($\text{g}\cdot\text{mol}^{-1}$).

1.6 数据处理与分析

采用 Excel 2010 和 SPSS 20.0 进行数据分析,并用 Origin 8.0 软件作图. 方差分析用以分析不同湖区 N_2O 溶存、迁移及释放差异;线性相关分析用以确定影响水-气界面 N_2O 通量的环境因子;方差分析加多重比较用以分析微环境条件实验中不同处理之间沉积物 N_2O 生成潜力差异.

2 结果与分析

2.1 夏季水柱理化性质

夏季7月、8月较6月水温有明显的升高(表2),最高水温出现在7月(分别为32、32.3和

31.7℃);夏季水柱溶氧(DO)含量相对较低,3个湖区呈现一致的波动趋势,其中8月DO含量最低;总体来说,藻型湖区(采样点位于梅梁湾)有着最高的总氮、总磷及无机氮含量,沉水植物区采样点位于草型湖区胥口湾,水质相对较好,有着最低的营养盐负荷,挺水植物采样点虽然也位于草型湖区胥口湾,但由于采样点位于湖滨带,水柱营养盐负荷高于处于敞水区的沉水植物区,尤其是8月总氮及硝态氮等指标.

2.2 N_2O 水-气界面通量、水柱溶存浓度及水-土界面通量

水-气界面 N_2O 通量存在明显的时空差异.从时间上看,藻型湖区和挺水植物湖区水-气界面 N_2O 通

表 2 夏季各湖区上覆水理化性质

Table 2 Physical and chemical properties of the water column in the sampling sites during summer

月份	点位	水温 /℃	DO /mg·L ⁻¹	TP /mg·L ⁻¹	TN /mg·L ⁻¹	NO ₃ ⁻ -N /mg·L ⁻¹	NO ₂ ⁻ -N /mg·L ⁻¹	NH ₄ ⁺ -N /mg·L ⁻¹
6	藻型湖区	25.1	2.46	0.049	3.013	1.637	0.023	1.161
	挺水植物区	23.0	2.85	0.015	2.924	1.135	0.017	0.323
	沉水植物区	23.9	3.88	0.001	2.721	0.819	0.004	0.330
7	藻型湖区	32.0	3.68	0.210	2.913	0.594	0.013	0.986
	挺水植物区	32.3	3.35	0.048	0.638	0.384	0.009	0.181
	沉水植物区	31.7	4.02	0.028	0.729	0.465	0.008	0.202
8	藻型湖区	30.9	1.56	0.195	2.339	0.628	0.018	0.469
	挺水植物区	30.6	1.95	0.051	2.436	1.559	0.024	0.133
	沉水植物区	30.5	1.43	0.008	1.049	0.392	0.004	0.143

量均表现为7、8月有着较高的通量,6月水-气界面 N_2O 通量较低,从空间上看,藻型湖区及挺水植物区有着较高的 N_2O 通量,位于胥口湾敞水区的沉水植物采样点 N_2O 通量相对较低,且在夏季3个月中水-气界面 N_2O 通量波动不大,保持在 $1.762\sim 4.015\mu\text{mol}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{h})^{-1}$ 左右.水柱中溶存 N_2O 浓度与水-气界面 N_2O 通量变化趋势基本一致,表现为8月最高,6月与7月相当;从空间上来说,挺水植物区与藻型湖区水柱中有着较高的 N_2O 溶存浓度.水-土界面 N_2O 通量的时空变化特征于水-气界面通量及水柱中溶存浓度并不完全一致,相似的地方为挺水植物区水-土界面 N_2O 通量最大,其次是藻型湖区和沉水植物区;而在时间上,7月水-土界面有着最大的 N_2O 通量,6月与8月水-土界面 N_2O 通量相当.图2(c)中水-土界面 N_2O 通量由沉积物间隙水及沉积物表层水体 N_2O 浓度计算得出,以7月为例,藻型湖区沉积物间隙水中 N_2O 浓度($0.027\mu\text{mol}\cdot\text{L}^{-1}$)高于沉积物-水界面处水柱($0.025\mu\text{mol}\cdot\text{L}^{-1}$),且高于表层水浓度($0.016\mu\text{mol}\cdot\text{L}^{-1}$),挺水植物区及沉水植物

区亦有此规律,因此说明 N_2O 在沉积物中产生,并在向上迁移过程中逐渐降低.

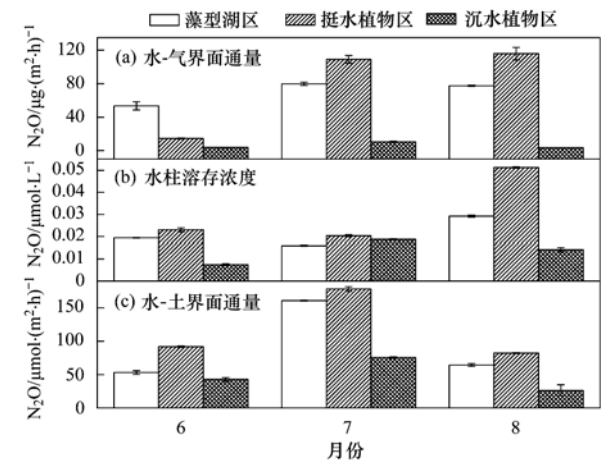


图 2 各湖区 N_2O 水-气界面通量、水柱溶存浓度及水-土界面通量
Fig. 2 N_2O fluxes at the water-gas interface, dissolved N_2O concentrations, and the sediment-water interface in each lake

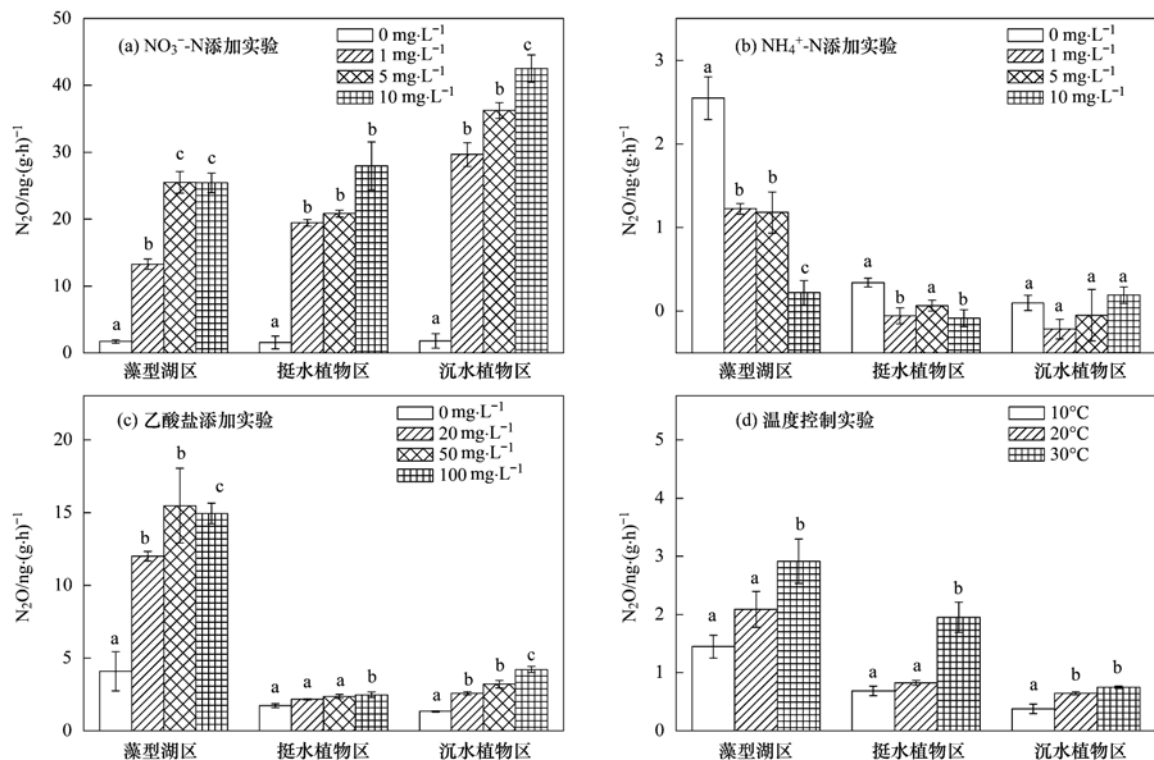
2.3 环境因子对沉积物 N_2O 生成的影响

2.3.1 NO_3^- -N添加实验

单因素方差分析表明培养水中添加 NO_3^- -N对藻

型湖区、挺水植物及沉水植物湖区沉积物生成 N_2O 的影响均是显著的 [$P < 0.05$, 图 3(a)]. 藻型湖区、挺水植物湖区及沉水植物湖区中对照组沉积物 N_2O 生成均值分别为 (1.719 ± 0.269) 、 (1.551 ± 0.976) 和 $(1.778 \pm 1.088) \text{ ng} \cdot (\text{g} \cdot \text{h})^{-1}$, 与 NO_3^- -N添加组存在显著的组间差异. 并且藻型湖区 NO_3^- -N添加浓度超过 $5 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 显著高于添加 NO_3^- -N为 $1 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 的处理组和对照组, 添加 NO_3^- -N浓度为 $10 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 时, 沉积物生成 N_2O 潜力降低, 添加 NO_3^- -N

使沉积物 N_2O 释放比原位采回的沉积物 N_2O 释放提高近 15 倍, 最大释放速率达 $25.503 \text{ ng} \cdot (\text{g} \cdot \text{h})^{-1}$; 挺水植物湖区及沉水植物湖区随添加 NO_3^- -N浓度增加, 沉积物生成 N_2O 潜力均增加, 分别可提高 18 和 24 倍, 最大值分别为 $27.957 \text{ ng} \cdot (\text{g} \cdot \text{h})^{-1}$ 和 $42.555 \text{ ng} \cdot (\text{g} \cdot \text{h})^{-1}$, 沉水植物湖区添加 NO_3^- -N为 $10 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 时, 沉积物生成 N_2O 能力显著高于前 3 组, 因此 NO_3^- -N对沉水植物湖区沉积物 N_2O 生成影响更大.



误差线为标准误差

图 3 环境因子对沉积物 N_2O 生成的影响

Fig. 3 Effects of environmental factors on N_2O formation in sediments

2.3.2 NH_4^+ -N添加实验

培养水中添加 NH_4^+ -N对藻型湖区、挺水植物湖区影响是显著的 ($P < 0.05$), 对沉水植物湖区的影响不显著 [$P = 0.364$, 图 3(b)]. 添加 NH_4^+ -N对沉积物 N_2O 产生存在抑制作用, 尤其在藻型湖区及挺水植物湖区, 对照组沉积物生成 N_2O 速率显著高于添加 NH_4^+ -N实验组, 且随添加 NH_4^+ -N浓度增高, 抑制作用越强. 挺水植物及沉水植物湖区随添加 NH_4^+ -N浓度升高, 沉积物生成 N_2O 存在不同现象, 说明了不同生境条件下沉积物 N_2O 生成的空间异质性.

2.3.3 乙酸盐添加实验

添加乙酸盐作为碳源时能增加沉积物中 N_2O 生

成速率, 且对藻型湖区影响最显著 [图 3(c)]. 挺水植物湖区添加乙酸浓度 $100 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 时沉积物 N_2O 生成速率为 $2.475 \text{ ng} \cdot (\text{g} \cdot \text{h})^{-1}$, 显著高于其他 3 组, 沉水植物湖区组间差异显示对照组沉积物 N_2O 释放显著低于 $20 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 和 $50 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$, 添加 $100 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 时显著高于前 3 组.

2.3.4 温度控制实验

单因素方差分析显示藻型湖区、挺水植物及沉水植物湖区温度升高能促进沉积物 N_2O , 且随着温度升高, 沉积物释放 N_2O 能力越强, 其中藻型湖区及挺水植物湖区培养温度为 30°C 时沉积物 N_2O 释放显著高于 20°C 及 10°C , 沉水植物区培养温度 20°C 及 30°C 均能显著增加沉积物 N_2O 生成.

3 讨论

3.1 湖泊原位N₂O水-气界面通量及其影响因子

单因素方差显示除NH₄⁺-N(*P* = 0.017)和TP(*P* = 0.04), 其他营养物质在3个湖区之间无显著性差别. 自春季温度回升以后, 水柱经沉积物再悬浮作用使水体中营养物质含量升高, 一方面补给动植物及微生物活动, 另一方面, 春季之后水生植物开始生长, 藻型湖区TN、NO₃⁻-N、NO₂⁻-N和NH₄⁺-N随温度升高而降低, 因为温度升高微生物活动增强, 对水体中含氮营养物质利用加快, 藻类覆盖在水表层, 不断利用DO, 造成水柱间歇性地处于缺氧环境, 为水柱及沉积物中反硝化细菌提供了有利的缺氧环境, 相应地水柱N₂O生成与释放从6~8月呈显著增加. 挺水植物湖区及沉水植物湖区水柱

TN、NO₃⁻-N、NO₂⁻-N和NH₄⁺-N在水体中含量从6~8月变化趋势一致, 即6月最高, 其次是8月和7月, 与藻型湖区含氮物质含量变化过程存在差异, 可能与其水域生长的植物差异及所处环境有关. 水体中含氮营养盐作为N₂O微生物活动的底物, 可直接影响沉积物中N₂O生成. 相关性分析显示水-气界面N₂O生成与水体中NO₂⁻-N浓度存在极显著正相关关系, 与NO₃⁻-N存在显著相关关系(表3). 夏季沉积物中微生物活动较为强烈, 氮循环过程尤其是反硝化过程加速, 促进沉积物N₂O产生, 并扩散进入水体中, 水柱溶存N₂O浓度与水-气界面N₂O通量存在极显著正相关关系. 水-土界面N₂O通量与水柱N₂O溶存浓度相关性不明显, 且与水-气界面N₂O通量存在负相关关系, 说明N₂O在沉积物中产生向上扩散过程中发生了复杂的变化.

表3 N₂O水-气通量与N₂O溶存浓度、水-土界面通量及环境因子的 Pearson 相关性¹⁾

Table 3 Pearson correlation analysis between N₂O fluxes at the water-gas interface and environmental factors

	水气通量	水体浓度	泥水通量	水温	DO	TP	TN	NO ₃ ⁻ -N	NO ₂ ⁻ -N	NH ₄ ⁺ -N
水气通量	1	0.879 **	-0.198	0.064	-0.593	0.254	0.351	0.680 *	0.821 **	0.017
水体浓度		1	0.045	0.21	-0.516	0.151	0.145	0.534	0.737 *	-0.246
泥水通量			1	0.385	-0.476	0.419	-0.074	-0.198	0.093	0.153
水温				1	-0.084	0.468	-0.617	-0.544	-0.137	-0.202
DO					1	-0.1	-0.064	-0.241	-0.393	0.103
TP						1	0.295	-0.171	0.298	0.496
TN							1	0.675 *	0.566	0.618
NO ₃ ⁻ -N								1	0.815 **	0.353
NO ₂ ⁻ -N									1	0.408
NH ₄ ⁺ -N										1

1) *表示在0.05水平(双侧)上显著相关, **表示在0.01水平(双侧)上显著相关

影响水-气界面N₂O释放的因素包括气温、水温及DO等间接影响微生物活动的物理因素以及生成过程所需的营养物质如碳氮营养盐等, 此外也与所处水域生长的水生植物有极大关系. 反硝化作用是水体N₂O的重要来源过程, 因此影响反硝化细菌的各种环境因素, 均会直接或间接地影响水体中N₂O生成与释放. 藻华的暴发常伴随着蓝藻在湖体中的自然沉降, 在厌氧条件下, 除了底泥营养盐的释放, 藻类残体的分解也可以产生大量颗粒态、溶解态和胶体态的氮及有机碳. 黎丽雯等^[21]的研究表明蓝藻细胞能够为底泥中的反硝化过程提供可利用碳源, 并且能促进水体中N的去除, 因此藻华暴发严重的7月和8月藻型湖区水体中N₂O生成与释放明显高于6月. 为满足自身生长需要, 水生植物都具有发达的通气组织, 通气组织不仅能够输送O₂进入水体, 增加水体DO含量, 改变周围的微环境,

还可以将水体内生成的气体输送至大气中. 有研究发现水生植物的气体交换速度随温度升高而升高, 如Armstrong等^[22]发现芦苇枝的气体在24℃时的交换速度明显高于17℃的. 沉水植物湖区水-气界面N₂O释放无明显升高, 甚至在8月有降低现象, 一方面因为沉水植物湖区水生植物生长吸收造成水柱中NO₃⁻-N浓度较低(表2), N₂O产生所需底物有限, 另一方面, 沉水植物湖区采样点水位较深, 生长的沉水植物如菹草、马来眼子菜等阻碍了光的穿透, 植物光合作用减弱, 水体DO含量低N₂O生成偏低, 且水-气界面N₂O排放与吸收几近平衡. 图3(d)中沉水植物湖区水-气界面N₂O通量随温度升高呈现升高的趋势, 但与水-土界面N₂O通量比值维持在较低的水平, 明显低于藻型湖区及挺水植物湖区, 说明沉水植物的生长对于N₂O向大气中扩散过程中明显与挺水植物存在差异, Windham等^[23]的实验得

出芦苇根系渗出物可促进反硝化过程中 N_2O 的生成. 挺水植物湖区 N_2O 水柱溶存浓度及水-气通量随7、8月温度升高时明显升高, 且高于沉水植物湖区, 这与该区域生长的水生植物类型不同相关, 古小治等^[7]对种植芦苇水体中 N_2O 浓度观测中也得出, 有芦苇生长的水体中 N_2O 浓度是无芦苇生长的14倍.

3.2 环境因子对沉积物 N_2O 生成的影响

3.2.1 NO_3^- -N

实验显示3个研究区添加 NO_3^- -N培养组比对照组具有更高的 N_2O 生成潜力, 这表明夏季沉积物 N_2O 生成均受到水柱 NO_3^- -N浓度的限制, 这与夏季上覆水水柱中比较低的 NO_3^- -N浓度有关. N_2O 在水体中的累积速率不仅与生成速率有关, 而且与反硝化过程中 N_2O 还原为氮气的速率有关. 上覆水层中 NO_3^- -N浓度增高会抑制 N_2O 还原酶活性, N_2O 还原受阻, 于是有更多的 N_2O 积累并释放进入上覆水中^[24]. Herrman 等^[25]指出, NO_3^- -N浓度达 $5\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 时为反硝化过程所需的饱和状态, 当其超过该数值时, 反硝化作用明显减弱. 沉水植物相对于挺水植物和藻型湖区水-气界面 N_2O 释放速率以及水体溶存浓度均较小[图2(b)], 而对于添加 NO_3^- -N有更高的 N_2O 生成速率, 说明沉水植物湖区沉积物 N_2O 生成受到硝酸盐浓度的限制更为明显.

3.2.2 NH_4^+ -N

添加 NH_4^+ -N能够促进 N_2O 的生成, 一方面 NH_4^+ -N浓度的增加可以为硝化细菌提供底物, 产生更多的 NO_3^- -N, 刺激反硝化细菌生成 N_2O ; 另一方面 NH_4^+ -N被氧化过程中, 消耗体系内 O_2 , 造成体系内的缺氧环境, 在这种环境下氨氧化的同时, NO_2^- -N被还原从而产生 N_2O . 但本研究中 NH_4^+ -N添加组中随 NH_4^+ -N浓度增加, 沉积物 N_2O 生成速率明显降低, 尤其在藻型湖区表层沉积物, 这与Zhao等^[26]研究结果存在差异, 这表明夏季太湖3个研究点 N_2O 生成均不受 NH_4^+ -N浓度限制. 对于藻型湖区, 水柱中有着相对较高的 NH_4^+ -N浓度(表2), 且藻类腐败后分布在沉积物表层, 隔离了 O_2 的传输, 此时的沉积物主要表现为厌氧的性质, 主导的氮循环过程是反硝化过程而非硝化过程, 生成的 N_2O 又被还原为 N_2 , 因此藻型湖区沉积物生成 N_2O 浓度逐渐降低. 而对于草型湖区, 尽管水柱中 NH_4^+ -N浓度比较低(表2), 但是夏季沉积物中通常含有较高的 NH_4^+ -N浓度, 足以满足硝化过程对于 NH_4^+ -N底物的

需求.

3.2.3 碳源(乙酸盐)

Royer 等^[27]的研究表明外加碳源包括葡萄糖、蔗糖及乙酸盐能显著提高沉积物 N_2O 生成, 因为外加碳源能提供能量源刺激反硝化细菌活性, 此外高浓度的有机碳引起更强烈的微生物降解活动及缺氧环境, 从而刺激反硝化作用. 本实验中添加乙酸盐浓度为体系内反硝化细菌提供了碳源, 使得 N_2O 产生显著增加, 表明夏季3个研究点 N_2O 生成受碳源限制. 但在藻型湖区乙酸浓度超过 $50\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 时(C/N超过20:1), N_2O 产生出现降低的趋势, 而在挺水植物及沉水植物湖区均不出现这种趋势, 因为沉积物产自7月, 藻型湖区水体中TN含量 $2.913\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$, 挺水植物及沉水植物湖区水体TN含量分别为 $0.638\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 和 $0.729\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$, 低于20:1的C/N, 因此水体C/N是控制沉积物 N_2O 产生的关键因子^[28].

3.2.4 温度

温度对反硝化或沉积物 N_2O 生成的影响的研究结论不尽相同. Andersen 等^[29]对Danish湖研究发现温度对沉积物 N_2O 产生无显著作用, 也有研究表明温度能显著提高沉积物反硝化速率, 从而提高沉积物 N_2O 生成^[18]. 本实验中随温度升高, 3个研究点沉积物中 N_2O 生成均呈增加趋势, 低温降低了细菌对 NO_3^- -N的亲合性^[30], 随温度升高能, 沉积物中微生物活性增加, 硝化与反硝化速率及 N_2O 的生成、迁移与转化都会随之改变. 通常大于 5°C 的温度条件适宜微生物发生反硝化作用. Schultness 等^[31]的研究发现温度与反硝化呈正比, 温度会影响反硝化微生物的活性. Ryden 等^[32]的研究表明在相同的土壤含水量和硝酸盐含量条件下, 土壤温度从 5°C 增加到 10°C , 土壤反硝化速率从 $0.02\text{ kg}\cdot(\text{hm}^2\cdot\text{d})^{-1}$ 增加到 $0.11\text{ kg}\cdot(\text{hm}^2\cdot\text{d})^{-1}$. 此外水温变化也会通过影响微生物活性和 N_2O 气体在水体的溶解度, 间接影响到 N_2O 的迁移. 水温升高能够激发微生物活性, 降低 N_2O 气体在水体中的溶解度, 从而促进 N_2O 的排放^[33], 这也就表明在夏季水温较高时, 并且水体营养盐含量较高时是 N_2O 生成与排放的高峰期.

4 结论

(1)夏季藻型湖区、挺水植物湖区及沉水植物湖区水-气界面 N_2O 通量、水体溶存 N_2O 浓度以及泥

水界面 N_2O 通量存在空间差异. 水-气界面 N_2O 通量6月藻型湖区>挺水植物湖区>沉水植物湖区,7月和8月,温度升高时,挺水植物>藻型湖区>沉水植物湖区;水体溶存及水-土界面 N_2O 通量: N_2O 浓度挺水植物湖区>藻型湖区>沉水植物湖区;空间差异产生的主要原因可归结为所处水域生长的植物不同以及水体中无机氮浓度的差异.

(2)外加硝酸盐及有机碳源可以显著增加沉积物 N_2O 生成潜力,而上覆水中高浓度 NH_4^+-N 会抑制沉积物 N_2O 释放,随温度升高,沉积物 N_2O 生成潜力明显增加,这说明夏季 N_2O 生成主要受硝酸盐及有机碳源的限制,尽管夏季是高温季节,温度浮动也会影响 N_2O 的生成与排放.

参考文献:

- [1] Ussiri D, Lal R. The role of fertilizer management in mitigating nitrous oxide emissions[A]. In: Ussiri D, Lal R (Eds.). Soil Emission of Nitrous Oxide and Its Mitigation[M]. Netherlands: Springer, 2013. 315-346.
- [2] 王佳宁,晏维金,陈能汪,等.我国河流 N_2O 饱和度与释放系数变化及其与河流氮水平的关系研究[J].农业环境科学学报,2012,31(8):1576-1585.
Wang J N, Yan W J, Chen N W, et al. Variations of river N_2O saturations and emission factors in relation to nitrogen levels in China[J]. Journal of Agro-Environment Science, 2012, 31(8): 1576-1585.
- [3] Wang H J, Yang L Y, Wang W D, et al. Nitrous oxide (N_2O) fluxes and their relationships with water-sediment characteristics in a hyper-eutrophic shallow lake, China [J]. Journal of Geophysical Research: Biogeosciences, 2007, 112 (G1): G01005.
- [4] Weathers P J. N_2O evolution by green algae[J]. Applied and Environmental Microbiology, 1984, 48(6): 1251-1253.
- [5] Guieysse B, Plouviez M, Coillat M, et al. Nitrous Oxide (N_2O) production in axenic *Chlorella vulgaris* microalgae cultures: evidence, putative pathways, and potential environmental impacts [J]. Biogeosciences, 2013, 10 (10): 6737-6746.
- [6] Wang S L, Liu C Q, Yeager K M, et al. The spatial distribution and emission of nitrous oxide (N_2O) in a large eutrophic lake in eastern China: anthropogenic effects [J]. Science of the Total Environment, 2009, 407(10): 3330-3337.
- [7] Gu X Z, Chen K N, Fan C X. Preliminary evidence of effects of *Phragmites australis* growth on N_2O emissions by laboratory microcosms[J]. Ecological Engineering, 2015, 83: 33-38.
- [8] Li L F, Li Y H, Biswas D K, et al. Potential of constructed wetlands in treating the eutrophic water: evidence from Taihu Lake of China [J]. Bioresource Technology, 2008, 99 (6): 1656-1663.
- [9] McCrackin M L, Elser J J. Denitrification kinetics and denitrifier abundances in sediments of lakes receiving atmospheric nitrogen deposition (Colorado, USA) [J]. Biogeochemistry, 2012, 108 (1-3): 39-54.
- [10] Liikanen A, Murtoniemi T, Tanskanen H, et al. Effects of temperature and oxygen availability on greenhouse gas and nutrient dynamics in sediment of a eutrophic mid-boreal lake [J]. Biogeochemistry, 2002, 59(3): 269-286.
- [11] Fork M L, Heffernan J B. Direct and indirect effects of dissolved organic matter source and concentration on denitrification in northern Florida rivers [J]. Ecosystems, 2014, 17 (1): 14-28.
- [12] 张路,范成新,王建军,等.太湖草藻型湖区间隙水理化特性比较[J].中国环境科学,2004,24(5):556-560.
Zhang L, Fan C X, Wang J J, et al. Comparison of physico chemical characters of pore water in grass/algae type zone in Lake Taihu [J]. China Environmental Science, 2004, 24(5): 556-560.
- [13] 王永平,朱广伟,洪大林,等.太湖草、藻型湖区沉积物-水界面厚度及环境效应研究[J].中国环境科学,2013,33(1):132-137.
Wang Y P, Zhu G W, Hong D L, et al. Study on the thickness and environmental effects of sediment-water interface of phytoplankton and macrophyte dominated zones in Lake Taihu [J]. China Environmental Science, 2013, 33(1): 132-137.
- [14] 秦伯强,罗淑葱.太湖生态环境演化及其原因分析[J].第四纪研究,2004,24(5):561-568.
Qin B Q, Luo L C. Changes in eco-environment and causes for Lake Taihu, China [J]. Quaternary Sciences, 2004, 24(5): 561-568.
- [15] Zhang L H, Song L P, Zhang L W, et al. Diurnal dynamics of CH_4 , CO_2 and N_2O fluxes in the saline-alkaline soils of the Yellow River Delta, China [J]. Plant Biosystems-An International Journal Dealing with all Aspects of Plant Biology, 2015, 149(4): 797-805.
- [16] Zhao Y Q, Xia Y Q, Li B L, et al. Influence of environmental factors on net N_2 and N_2O production in sediment of freshwater rivers [J]. Environmental Science and Pollution Research, 2014, 21(16): 9973-9982.
- [17] Christensen J P, Smethie Jr W M, Devol A H. Benthic nutrient regeneration and denitrification on the Washington continental shelf [J]. Deep Sea Research Part A. Oceanographic Research Papers, 1987, 34(5-6): 1027-1047.
- [18] 钟继承,刘国锋,范成新,等.湖泊底泥疏浚环境效应:Ⅲ.对沉积物反硝化作用的影响[J].湖泊科学,2009,21(4):465-473.
Zhong J C, Liu G F, Fan C X, et al. Environmental effect of sediment dredging in lake: III. Influence of dredging on denitrification in sediments [J]. Journal of Lake Sciences, 2009, 21(4): 465-473.
- [19] Weiss R F, Price B A. Nitrous oxide solubility in water and seawater [J]. Marine Chemistry, 1980, 8(4): 347-359.
- [20] Zhong J C, You B S, Fan C X, et al. Influence of sediment dredging on chemical forms and release of phosphorus [J]. Pedosphere, 2008, 18(1): 34-44.
- [21] 黎丽雯,潘纲,李梁,等.蓝藻对太湖底泥反硝化过程的影响和机理分析[J].湖泊科学,2013,25(5):628-634.
Li L W, Pan G, Li L, et al. Effect and mechanism of algae bloom on the denitrification processes in the sediments of Lake Taihu [J]. Journal of Lake Sciences, 2013, 25 (5): 628-634.
- [22] Armstrong J, Armstrong W. A convective through-flow of gases in

- Phragmites australis*, (Cav.) Trin. ex Steud [J]. Aquatic Botany, 1991, **39**(1-2): 75-88.
- [23] Windham L, Lathrop R G. Effects of *Phragmites australis* (common reed) invasion on aboveground biomass and soil properties in brackish tidal marsh of the Mullica river, New Jersey[J]. Estuaries, 1999, **22**(4): 927-935.
- [24] 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.
- [25] Herrman K S, Bouchard V, Moore R H. Factors affecting denitrification in agricultural headwater streams in Northeast Ohio, USA[J]. Hydrobiologia, 2008, **598**(1): 305-314.
- [26] Zhao Y Q, Xia Y Q, Kana T M, et al. Seasonal variation and controlling factors of anaerobic ammonium oxidation in freshwater river sediments in the Taihu Lake region of China [J]. Chemosphere, 2013, **93**(9): 2124-2131.
- [27] Royer T V, Tank J L, David M B. Transport and fate of nitrate in headwater agricultural streams in Illinois [J]. Journal of Environmental Quality, 2004, **33**(4): 1296-1304.
- [28] Weymann D, Geistlinger H, Well R, et al. Kinetics of N_2O production and reduction in a nitrate-contaminated aquifer inferred from laboratory incubation experiments [J]. Biogeosciences, 2010, **7**(6): 1953-1972.
- [29] Andersen J M. Rates of denitrification of undisturbed sediment from six lakes as a function of nitrate concentration, oxygen and temperature[J]. Archiv für Hyhrobiologie, 1977, **80**(2): 147-159.
- [30] Reay D S, Nedwell D B, Priddle J, et al. Temperature dependence of inorganic nitrogen uptake: reduced affinity for nitrate at suboptimal temperatures in both algae and bacteria[J]. Applied and Environmental Microbiology, 1999, **65**(6): 2577-2584.
- [31] Schulthess R V, Kühni M, Gujer W. Release of nitric and nitrous oxides from denitrifying activated sludge [J]. Water Research, 1995, **29**(1): 215-226.
- [32] Ryden J C. Denitrification loss from a grassland soil in the field receiving different rates of nitrogen as ammonium nitrate[J]. Journal of Soil Science, 1983, **34**(2): 355-365.
- [33] Schrier-Uijl A P, Veraart A J, Leffelaar P A, et al. Release of CO_2 and CH_4 from lakes and drainage ditches in temperate wetlands[J]. Biogeochemistry, 2011, **102**(1-3): 265-279.



CONTENTS

Estimation of Fine Particle ($PM_{2.5}$) Emission Inventory from Cooking: Case Study for Shanghai	WANG Hong-li, JING Sheng-ao, LOU Sheng-rong, <i>et al.</i> (1971)
Chemical Characterization, Spatial Distribution, and Source Identification of Organic Matter in $PM_{2.5}$ in summertime Shanghai, China	GAO Ya-qin, WANG Hong-li, JING Sheng-ao, <i>et al.</i> (1978)
Seasonal Variation and Source Analysis of Water-soluble Inorganic Salts in $PM_{2.5}$ in the Southern Suburbs of Beijing	GAO Han-yu, WEI Jing, WANG Yue-si (1987)
Characteristics and Source Apportionment of Water-soluble Inorganic Ions in Road Dust $PM_{2.5}$ During Spring in Tianjin Using the Quadrat Sampling Method	ZHAO Jing-qi, JI Ya-qin, ZHANG Lei, <i>et al.</i> (1994)
HONO Pollution Characteristics and Nighttime Sources During Autumn in Guangzhou, China	TIAN Zhi-lin, YANG Wen-da, YU Xiao-fang, <i>et al.</i> (2000)
Sulfur Sources and Oxidation Pathways in Summer Aerosols from Nanjing Northern Suburbs Using S and O Isotopes	HAN Xun, REN Jie, CHEN Shan-li, <i>et al.</i> (2010)
Methods for Determining and Applications of High-Resolution Vehicle Emission Inventory at County Scale	FAN Shou-bin, GUO Jin-jin, LI Xue-feng (2015)
Characteristics of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons Emitted from Typical Industrial Biomass Boilers	LIN Yu-jun, BAI Li, WANG Huan-xiang, <i>et al.</i> (2023)
Research of Parameter Uncertainty for the HSPF Model Under Different Temporal Scales	PANG Shu-jiang, WANG Xiao-yan, MA Wen-jing (2030)
Contribution of Nitrogen Sources in Water Sources by Combining Nitrogen and Oxygen Isotopes and SIAR	JIN Zan-fang, ZHANG Wen-liao, ZHENG Qi, <i>et al.</i> (2039)
Pollution Characteristics and Health Risk Assessment of Volatile Organic Compounds in Baiyangdian Lake	GAO Qiu-sheng, ZHAO Yong-hui, JIAO Li-xin, <i>et al.</i> (2048)
Fluorescent Characteristics and Environmental Significance of Particulate Organic Matter in Lake Taihu, China	LÜ Wei-wei, YAO Xin, ZHANG Bao-hua, <i>et al.</i> (2056)
Distribution and Settlement of Microplastics in the Surface Sediment of Yangtze Estuary	ZHU Xiao-tong, YI Jun, QIANG Li-yuan, <i>et al.</i> (2067)
Water Chemistry and Characteristics of Dissolved Organic Carbon During the Wet Season in Wulixia Reservoir, SW China	LU Xiao-xuan, LI Qiang, JIN Zhen-jiang, <i>et al.</i> (2075)
Bioavailability of Dissolved Organic Carbon in Rivers for Typical Vegetation Types in the Permafrost Regions on the Qinghai-Tibet Plateau	MA Xiao-liang, LIU Gui-min, WU Xiao-dong, <i>et al.</i> (2086)
Characteristics of Dissolved Organic Matter (DOM) and Relationship with Dissolved Heavy Metals in a Peri-urban and an Urban River	LIANG Meng-qi, SHAO Mei-ling, CAO Chang-li, <i>et al.</i> (2095)
Migration and Transformation of Dissolved Organic Matter in Karst Water Systems and an Analysis of Their Influencing Factors	ZHANG Lian-kai, LIU Peng-yu, QIN Xiao-qun, <i>et al.</i> (2104)
Source and Distribution of Dissolved Metal Ions in the Backwater Area of Pengxi River in Three Gorges Reservoir	ZHAO Xiao-song, YU Jian-jun, FU Li, <i>et al.</i> (2117)
Differences in Diffusive Fluxes of Nutrients from Sediment Between the Natural River Areas and Reservoirs in the Lancang River Basin	WANG Xue, CHENG Bao, YANG Zheng-jian, <i>et al.</i> (2126)
Nutrient Distribution Characteristics of the Sediment-water System in the Xiangxi River During the Impoundment of TGR	SU Qing-qing, LIU De-fu, JI Dao-bin, <i>et al.</i> (2135)
Effects of Submerged Macrophytes on Different Phosphorus Fractions in Overlying Water and Interstitial Water	YANG Wen-bin, GAO Shun-feng, WAN Rui, <i>et al.</i> (2145)
Distribution Characteristics and Fluxes of Nitrogen and Phosphorus at the Sediment-water Interface of Yuqiao Reservoir	WEN Shuai-long, GONG Wan-qing, WU Tao, <i>et al.</i> (2154)
Distribution of Phosphorus Fractions in Surface Sediments of Minjiang Mainstreams	YANG Geng, QIN Yan-wen, HAN Chao-nan, <i>et al.</i> (2165)
Nitrate Uptake Kinetics and Correlation Analysis in an Agricultural Drainage Ditch	LI Ru-zhong, YIN Qi-he, GAO Su-di, <i>et al.</i> (2174)
Influencing Factors for Phosphorus Removal by Modified Bio-ceramic Substrates Coated with ZnAl-LDHs Synthesized by Different Modification Conditions	XIANG Yang, ZHANG Xiang-ling, LEI Yu, <i>et al.</i> (2184)
Removal of Odorants in Drinking Water Using VUV/Persulfate	SUN Xin, SHI Lu-xiao, ZHANG Yi, <i>et al.</i> (2195)
Degradation of OG with Peroxymonosulfate Activated by a $MnFe_2O_4$ -graphene Hybrid	XIA Wen-jun, LIU Feng, HAO Shang-bin, <i>et al.</i> (2202)
Mechanism of As(V) Removal from Water by Lanthanum and Cerium Modified Biochars	LI Jin, ZU Yan-qun, LI Gang, <i>et al.</i> (2211)
Adsorption of Dissolved Organic Matter with Different Relative Molecular Masses on Inorganic Minerals and Its Influence on Carbamazepine Adsorption Behavior	LIANG Yu, HE Jiang-tao, ZHANG Si (2219)
Pollution Characteristics of Organophosphorus Flame Retardants in a Wastewater Treatment Plant	SUN Jia-wei, DING Wei-nan, ZHANG Zhan-en, <i>et al.</i> (2230)
Enhanced Coagulation as a Pretreatment for Low Temperature Wastewater	LIU Hai-long, REN Yu-xia, ZHANG Zhong-min (2239)
Operating Characteristics and Fouling Characteristics of a RO Membrane System for Desalination of Dyeing Wastewater	TAN Yu-jun, ZHANG Ze-tian, WU Qian-yuan, <i>et al.</i> (2249)
Optimization of the Nitrogen Removal Performance on the CANON Process in a Biofilm Reactor: From FBBR to MBBR	FU Kun-ming, LI Hui, ZHOU Hou-tian, <i>et al.</i> (2256)
Microbial Community Dynamics During Two Sludge Granulation Processes	GAO Jing-feng, ZHANG Li-fang, ZHANG Shu-jun, <i>et al.</i> (2265)
Sludge Conditioning Performance of Polyaluminum, Polyferric, and Titanium Xerogel Coagulants	WANG Xiao-meng, WANG Xin, YANG Ming-hui, <i>et al.</i> (2274)
Effects of Heat and Heat-alkaline Treatments on Disintegration and Dissolved Organic Matter in Sludge	DAI Qin, ZHANG Wen-zhe, YU Pan-fen, <i>et al.</i> (2283)
Effect of Different Ratios of Anaerobic Time and Aeration Time on the Formation of Partial Nitrification Granules	LI Dong, GUO Yue-zhou, CAO Mei-zhong, <i>et al.</i> (2289)
Spatial and Temporal Variation of Mercury in Municipal Sewage Sludge in China	WANG Ning, LIU Qing-wei, ZHI Yin, <i>et al.</i> (2296)
Characteristics of N_2O Release and Influencing Factors in Grass-type and Algae-type Zones of Taihu Lake During Summer	ZHENG Xiao-lan, WEN Shuai-long, LI Xin, <i>et al.</i> (2306)
Analysis of Greenhouse Gas Emission Characteristics and Their Influencing Factors in the Algae Zone of Lake Taihu	JIA Lei, PU Yi-ni, YANG Shi-jun, <i>et al.</i> (2316)
Dynamics of CO_2 and N_2O in Seasonal Frozen Soil Profiles for a Typical Steppe in Inner Mongolia	LI Jin-bo, YAO Nan, LI Xiu, <i>et al.</i> (2330)
Characteristics of CO_2 Flux in a Mature Apple (<i>Malus domestica</i>) Orchard Ecosystem on the Loess Plateau	YANG Jian-feng, YANG Xiao-ni, WANG Jun-hua, <i>et al.</i> (2339)
Effects of Biochar Application Rates on Greenhouse Gas Emissions in the Purple Paddy Soil	QI Le, GAO Ming, GUO Xiao-min, <i>et al.</i> (2351)
Short-Term Effects of Different Fertilization Treatments on Greenhouse Gas Emissions from Northeast Black Soil	LI Ping, LANG Man, LI Miao, <i>et al.</i> (2360)
Eukaryotic Micro-plankton Community Diversity and Characteristics of Regional Distribution in the Yellow Sea by ITS High-throughput Sequencing	ZHANG Li, LIN Jia-ning, ZHANG Yuan, <i>et al.</i> (2368)
Influence of Different Patterns of Discharge on Microbial Diffusion in Municipal Treated Wastewater	LANG Xiu-lu, SONG Zhi-wen, XU Ai-ling, <i>et al.</i> (2380)
Impact of Tourism on Bacterial Communities of Karst Underground River: A Case Study from Two Caves in Fengdu, Chongqing	LÜ Xian-fu, HE Qiu-fang, WANG Feng-kang, <i>et al.</i> (2389)
Diversity of the Microbial Community in Rice Paddy Soil with Biogas Slurry Irrigation Analyzed by Illumina Sequencing Technology	ZHU Jin-shan, ZHANG Hui, MA Lian-jie, <i>et al.</i> (2400)
Effect of Biochar Amendment on Physicochemical Properties and Fungal Community Structures of Cinnamon Soil	YAN Hai-tao, YIN Quan-yu, DING Song-shuang, <i>et al.</i> (2412)
Carbon Metabolism Characteristics of the Karst Soil Microbial Community for Pb-Zn Mine Tailings	FANG Jun-jia, LI Qiang, LIU Chang, <i>et al.</i> (2420)
Denitrification Characteristics and Community Structure of Aerobic Denitrifiers from Lake and Reservoir Sediments	KANG Peng-liang, ZHANG Hai-nan, HUANG Ting-lin, <i>et al.</i> (2431)
Investigation of the Coupling Mechanism between Naphthalene Degradation and Denitrification of a Naphthalene Degraded Bacterial Consortium Under Denitrification	ZHANG Ze-yu, WANG Ming-xia, CHENG Yong-yi, <i>et al.</i> (2438)
Spatial Distribution Study and Pollution Assessment of Pb in Soils in the Xijiang River Drainage of Guangxi	ZHANG Yun-xia, SONG Bo, CHEN Tong-bin, <i>et al.</i> (2446)
Effects of Agricultural Activities on Soil Mercury Changes in the Water-Level-Fluctuating Zone of the Three Gorges Reservoir	CHEN Qiu-yu, SUN Song, YIN De-liang, <i>et al.</i> (2456)
Screening and Identification of Arsenic-resistant Endophytic Bacteria from Different Rice Tissues (<i>Oryza sativa</i> L.) in Different Growth Stages	WANG Bo-xun, WANG Xue-dong, DUAN Gui-lan (2464)
Characteristics of Mercury Transformation in Soil and Accumulation in Rice Plants in an Acidic Purple Paddy Soil Area	LI Yu-qin, SUN Tao, DENG Han, <i>et al.</i> (2472)
Life Cycle Environmental Impact Assessment on Different Modes of Greenhouse Vegetable Production in the North China Plain	XU Qiang, HU Ke-lin, LI Ji, <i>et al.</i> (2480)
Health Effects of $PM_{2.5}$ Based on Bacterial Toxicity Test and Transcriptional Analysis in Lungs of Mice	SONG Peng-cheng, LU Shu-yu, WEI Yong-jie, <i>et al.</i> (2489)
Socio-economic Factors Influencing the Spatial Distribution of $PM_{2.5}$ Concentrations in China: An Exploratory Analysis	DUAN Jie-xiong, ZHAI Wei-xin, CHENG Cheng-qi, <i>et al.</i> (2498)