

方知库
Eco-Environmental
Knowledge Web

环境科学

ENVIRONMENTAL SCIENCE

ISSN 0250-3301 CODEN HCKHDV

HUANJING KEXUE

■ 主办 中国科学院生态环境研究中心

■ 出版 科学出版社



2019

Vol.40 No.9

第40卷 第9期

目次

气溶胶中不同类型碳组分粒径分布特征	杜翔, 赵普生, 董群, 苏捷 (3849)
郑州市 2014~2017 年大气污染特征及气象条件影响分析	郭蒙蒙, 姜楠, 王申博, 段时光, 张瑞芹 (3856)
济南市背景区域大气 PM _{2.5} 污染特征及其对能见度的影响	别淑君, 杨凌霄, 高颖, 姜盼, 李岩岩, 杨雨蒙, 赵彤, 王文兴 (3868)
聊城市冬季 PM _{2.5} 中多环芳烃来源解析及健康风险评估	刘晓迪, 侯战方, 孟静静, 燕丽, 周贝贝, 刘子亭, 衣雅男, 李静, 魏本杰, 伏梦璇 (3875)
2001~2017 年全国气溶胶光学厚度时空分布及变化趋势	刘海知, 郭海燕, 马振峰, 徐辉, 包红军, 徐成鹏 (3886)
长三角地区吸收性气溶胶时空分布特征	赵楠, 曹梵诗, 田晴, 陈勇航, 刘琼, 黄艺伟, 王羽佳 (3898)
燃煤锅炉颗粒物化学组成排放特征	杨艳蓉, 周雪明, 秦娟娟, 谭吉华, 胡京南, 陈荣志, 段菁春, 李艳 (3908)
高速公路沿线 PM _{2.5} 中重金属污染特征	李晓宝, 廖祖文, 赵红, 彭成辉, 谭腾飞, 黄萍 (3916)
北京市道路扬尘重金属污染特征及潜在生态风险	胡月琪, 郭建辉, 张超, 王铮, 颜旭, 杨懂艳, 刘兆莹 (3924)
风蚀扬尘抑尘剂效率测试方法与应用	秦建平, 李贝贝, 杨涛, 宋博, 黄玉虎, 张春来 (3935)
京津冀地区典型印刷企业 VOCs 排放特征及臭氧生成潜势分析	刘文文, 方莉, 郭秀锐, 聂磊, 王敏燕 (3942)
成都市典型工艺过程源挥发性有机物源成分谱	周子航, 邓也, 吴柯颖, 谭钦文, 周小玲, 宋丹林, 黄凤霞, 曾文斌 (3949)
工业园区恶臭污染源排放特征和健康风险评估	孟洁, 翟增秀, 荆博宇, 崔焕文, 王亘 (3962)
典型华北农村地区冬季 HONO 的浓度水平及来源分析	王玉征, 薛朝阳, 张成龙, 刘鹏飞, 张圆圆, 陈晖, 陈建民, 牟玉静, 刘俊峰 (3973)
不同方法制备 Co ₃ O ₄ 催化剂 CO-SCR 性能及机制	仲雪梅, 张涛, 李佳萌, 秦萱, 王亚洲, 曾洁, 张光明, 常化振 (3982)
全氟烷基物质在胶州湾海水、沉积物及生物中污染特征	崔杰文, 彭吉星, 谭志军, 翟毓秀, 郭萌萌, 李兆新, 牟海津 (3990)
江苏水源地型水库异味物质发生风险及影响因素	史鹏程, 朱广伟, 杨文斌, 许海, 朱梦圆, 邹伟, 胡林娜, 笪文怡, 季鹏飞 (4000)
城镇流域水体-沉积物中溶解性有机质的荧光特性及影响因素: 以宁波市小浞江为例	高凤, 邵美玲, 唐剑锋, 曹昌丽, 易辉 (4009)
水华对沉积物中氮的转化和去除的影响	肖琳, 杨佳怡 (4018)
沉积物有效态磷对湖库富营养化的指示及适用性	刘辉, 胡林娜, 朱梦圆, 赵林林, 许海, 邹伟, 史鹏程, 韩慧洁, 季鹏飞, 朱广伟 (4023)
汾河下游雨季硝酸盐污染源解析	汪银龙, 冯民权, 董向前 (4033)
新疆喀什三角洲地下水化学特征及演化规律	魏兴, 周金龙, 乃尉华, 曾妍妍, 范薇, 李斌 (4042)
基于多个扩增子的 DNA metabarcoding 技术探究黄海微型真核浮游植物多样性	张莉, 张远, 林佳宁, 王书平 (4052)
FG、MFG 和 MBFG 浮游植物功能群的比较: 以贵州三座水库为例	陈倩, 李秋华, 马欣洋, 熊梅君, 何应, 韩孟书 (4061)
天然含铁矿物对砷的吸附效果及机制	邵金秋, 温其谦, 阎秀兰, 申俊峰, 杨林生, 杨硕 (4072)
镁-钙羟基磷灰石吸附剂对水中 Pb ²⁺ 的去除	何豪, 朱宗强, 刘杰, 朱义年, 阎起明, 刘阳, 莫南, 玄惠灵, 魏婉莹 (4081)
2,6-二氨基蒽醌/石墨烯复合电极强化电吸附 Pb ²⁺	晋圣兆, 向阳, 张隽琦, 张凯, 吉庆华 (4091)
钙掺杂四氧化三铁回收水中磷的实验	白润英, 刘建明, 郝俊峰, 徐慧, 胡文斌, 宋蕾, 刘宇红, 李会东, 周琦善 (4098)
大型城市污水处理厂处理工艺对微塑料的去除	贾其隆, 陈浩, 赵昕, 李磊, 聂云汉, 叶建峰 (4105)
A ² /O 流量分配处理低 C/N 污水性能与微生物结构优化	荣懿, 刘小钗, 何音旋, 章武首, 金鹏康 (4113)
上向流厌氧滤池 (UAF) 处理城市生活污水的运行效能	杨忠启, 刘秀红, 李海鑫, 刘智斌, 刘润雨, 杨庆 (4121)
微氧条件下自养-异养联合反硝化工艺的电子平衡分析	张若晨, 陈川, 邵博, 王威, 徐熙俊, 任南琪 (4128)
基于反硝化除磷的低温启动与稳定运行的中试试验	张帆, 于德爽, 刘杰, 王晓霞, 宋新新, 李传举, 赵峰辉 (4136)
聚己内酯与聚羟基丁酸戊酸酯的脱氮性能对比	易成豪, 秦伟, 陈湛, 文湘华 (4143)
厌氧氨氧化颗粒污泥快速培养及其抑制动力学	唐鹏, 于德爽, 陈光辉, 张培玉, 王晓霞, 吕廷廷, 黄硕, 刘诚诚 (4152)
Ca ²⁺ 对污泥硝化活性和絮凝沉降性能的影响	张兰河, 赵倩男, 张海丰, 贾艳萍, 李正, 陈子成, 郭静波, 赵天鹏 (4160)
从剩余污泥厌氧发酵上清液中以鸟粪石形式回收磷	畅萧, 曾薇, 王保贵, 许欢欢 (4169)
信号分子联合脱氮硫杆菌对同步脱氮除硫的影响	徐金兰, 陈紫薇, 张少枫, 魏清旋 (4177)
海水养殖尾水直排对河道沉积物细菌群落的影响	胡越航, 宣丽霞, 裴琼芬 (4185)
耦合短程硝化反硝化的垃圾渗滤液厌氧氨氧化处理系统构建及微生物群落分析	赵晴, 刘梦莹, 吕慧, 梁俊宇, 刁兴兴, 张鑫, 孟了 (4195)
稻秸添加对两种水稻土产甲烷古菌及细菌的影响	保琼莉, 王凤花, 保万魁, 黄益宗 (4202)
地膜覆盖对稻-油轮作农田温室气体排放的影响	陈世杰, 江长胜, 倪雪, 李晓茜, 郝庆菊 (4213)
氮肥深施及间种白三叶草对茶园 N ₂ O 排放的影响	吕天新, 伍延正, 沈健林, 陈丹, 姜文倩, 王娟, 李勇, 吴金水 (4221)
三峡库区及其下游溶解氧化亚氮 (N ₂ O) 分布和释放	程芳, 丁帅, 刘素美, 宋国栋, 张桂玲 (4230)
沉降除藻协同沉积物覆盖对藻华水体甲烷释放的影响	朱琳, 于江华, 施文卿, 易齐涛, 曹华勇, 蒲寅羽 (4238)
新建铅蓄电池集聚区对周边土壤环境的影响: 基于重金属空间特征	丁亚丽, 廖敏, 方至萍, 陈树森, 张云, 郭佳雯, 梁雨琦 (4244)
不同碳氮磷源改良剂对铅锌尾矿废弃地植被与土壤性质的影响	杨胜香, 李凤梅, 彭禧柱, 曹建兵, 高智席 (4253)
基于农产品安全的土壤重金属有效态含量限值推定方法	张云慧, 杜平, 何赢, 仲小飞, 罗会龙, 秦晓鹏, 徐刚 (4262)
缙云山不同土地利用方式下土壤植硅体碳的含量特征	罗东海, 王子芳, 陆畅, 黄容, 王富华, 李娇, 高明 (4270)
西南喀斯特土地利用变化对植物凋落物-土壤 C、N、P 化学计量特征和土壤酶活性的影响	田静, 盛茂银, 汪攀, 温培才 (4278)
调理剂+淹水措施对 Cd 污染稻田控 Cd 效果分析	彭鸥, 刘玉玲, 铁柏清, 何钟响, 杨蕊嘉, 李丹阳, 刘寿涛, 罗海艳 (4287)
海螺沟植物和积雪中有机磷酸酯的分布及来源	陈阳, 印红玲, 吴迪, 罗怡, 邓旭, 徐维新, 柳锦宝 (4295)
《环境科学》征订启事 (3923) 《环境科学》征稿简则 (3941) 信息 (4041, 4051, 4229)	

三峡库区及其下游溶解氧化亚氮(N_2O)分布和释放

程芳^{1,2}, 丁帅^{1,2}, 刘素美^{1,2}, 宋国栋^{1,2}, 张桂玲^{1,2*}

(1. 中国海洋大学海洋化学理论与工程技术教育部重点实验室, 海洋高等研究院, 青岛 266100; 2. 青岛海洋科学与技术国家实验室, 海洋生态与环境科学功能实验室, 青岛 266237)

摘要: 氧化亚氮(N_2O)是一种重要温室气体, 对全球变暖具有重要影响. 河流和水库是释放 N_2O 的活跃区域, 但是目前对于温带和亚热带水库及其下游河道释放 N_2O 的研究相对较少. 分别于2009年9~10月和2016年10月对长江三峡水库及其下游干流进行了调查, 对库区水体溶解 N_2O 的浓度分布、释放通量及其影响因素进行了研究, 探讨了筑坝和水库运行对长江 N_2O 分布和释放的可能影响. 结果表明秋季三峡库区表层(~ 0 m)、底层(6~103 m)水体溶解 N_2O 平均值为(12.49 ± 1.75) $\text{nmol} \cdot \text{L}^{-1}$ 和(11.21 ± 0.91) $\text{nmol} \cdot \text{L}^{-1}$. 秋季库区水体 N_2O 浓度变化较小, 和三峡坝下干流站位无显著差异($P > 0.05$). 三峡库区水体 N_2O 与氨氮(NH_4^+)、亚硝态氮(NO_2^-)呈显著负相关($P < 0.05$; $P < 0.01$), 与硝态氮(NO_3^-)呈正相关($P < 0.01$). 2016年和2009年10月三峡水库表层 N_2O 均处于过饱和状态, 饱和度范围分别为114%~187%和122%~170%, 库区 N_2O 平均释放通量分别为(4.6 ± 2.4) $\mu\text{mol} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{d})^{-1}$ 和(16.6 ± 4.9) $\mu\text{mol} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{d})^{-1}$. 两次调查中大坝下游 N_2O 平均释放通量(6.0 ± 7.0) $\mu\text{mol} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{d})^{-1}$, 虽然三峡库区水面释放 N_2O 通量低于全球水库的平均水平, 但是三峡库区仍是大气 N_2O 不可忽视的源. 大坝下泄水和发电未造成库区和大坝下游 N_2O 浓度出现显著差异. 运行多年以来三峡库区已进入平稳期, 2009年和2016年秋季 N_2O 浓度无明显变化.

关键词: 长江; 三峡水库; 氧化亚氮; 通量; 筑坝

中图分类号: X16 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2019)09-4230-08 DOI: 10.13227/j.hjks.201811157

Distribution and Emission of Nitrous Oxide (N_2O) in Three Gorges Reservoir and Downstream River

CHENG Fang^{1,2}, DING Shuai^{1,2}, LIU Su-mei^{1,2}, SONG Guo-dong^{1,2}, ZHANG Gui-ling^{1,2*}

(1. Institute for Advanced Ocean Study, Key Laboratory of Marine Chemistry Theory and Technology, Ministry of Education, Ocean University of China, Qingdao 266100, China; 2. Qingdao National Laboratory for Marine Science and Technology, Laboratory for Marine Ecology and Environmental Science, Qingdao 266237, China)

Abstract: Nitrous oxide (N_2O) is an important greenhouse gas and has a great impact on global warming. Affected by human activities, rivers, and reservoirs have become active sites for N_2O production and emission. In Three Gorges Reservoir and the downstream Yangtze River, the concentrations and fluxes of dissolved N_2O were investigated in September-October 2009 and October 2016 to identify the factors controlling the distribution of N_2O in the reservoir and the effect of damming and reservoir operation on N_2O emission from the Yangtze River. The dissolved N_2O concentration of the reservoir ranged from 9.74 to 16.36 $\text{nmol} \cdot \text{L}^{-1}$ with an average of (12.49 ± 1.75) $\text{nmol} \cdot \text{L}^{-1}$ in the surface water (about 0 m) and ranged from 9.99 to 14.00 $\text{nmol} \cdot \text{L}^{-1}$ with an average of (11.21 ± 0.91) $\text{nmol} \cdot \text{L}^{-1}$ in the bottom water (ranging from 6 m to 103 m). The dissolved N_2O in the water column of Three Gorges Reservoir varied little, and no significant difference was noted between the overall N_2O concentration in the reservoir and that in the downstream river. A positive correlation was noted between N_2O and nitrate (NO_3^-) ($P < 0.01$), although negative correlations were found between N_2O and ammonium (NH_4^+) ($P < 0.05$) and nitrite (NO_2^-) ($P < 0.01$) in Three Gorges Reservoir. The surface N_2O in the Three Gorges Reservoir was overall saturated, with saturation ranging from 122% to 170% in 2009 and from 114% to 187% in 2016. The mean emission rate of N_2O from the surface water was (4.6 ± 2.4) $\mu\text{mol} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{d})^{-1}$ in 2016 and (16.6 ± 4.9) $\mu\text{mol} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{d})^{-1}$ in October 2009. The Three Gorges Reservoir is a non-negligible source of atmospheric N_2O . No obvious difference was noted between upstream and downstream N_2O concentrations, which implies that no degassing emission occurs when water passes through turbines and spillways.

Key words: Yangtze River; Three Gorges Reservoir; nitrous oxide; emission; damming

氧化亚氮(N_2O)是一种重要的温室气体, 对大气化学和气候变化具有重要影响^[1]. 虽然其浓度仅为二氧化碳(CO_2)的千分之一左右, 但其增温潜势却为 CO_2 的约300倍^[2]. 近年来, 由于人类活动的影响, 大气中 N_2O 浓度急剧上升, 每年正以0.25%的速率升高, 2016年已经增至 329.7×10^{-9} ^[3]. 随

着人为活动输入氮(N)的增加, 河流中的氮负荷大幅度上升^[4], 进而导致大量 N_2O 的产生和释放^[5].

收稿日期: 2018-11-20; 修订日期: 2019-04-02

基金项目: 国家重点研发计划项目(2016YFA0600902, 2016YFA0601302)

作者简介: 程芳(1993~), 女, 硕士研究生, 主要研究方向为河流和水库氮循环, E-mail: chengfang1786@163.com

* 通信作者, E-mail: guilingzhang@ouc.edu.cn

有研究表明大型河流、水库是 N_2O 释放的活跃区域, 是大气 N_2O 重要的源^[6~8].

目前全球河流大坝数量逐渐上升, 全球约有 5 万多座大型水坝. 大坝的拦截导致库区水体滞留时间长、氮源输入高, 水库被视为是微生物氮转化过程发生的活跃场所^[9], 因此水库可能成为 N_2O 的潜在排放源. 但是目前对于水库释放温室气体的研究多集中在 CO_2 和甲烷(CH_4), 而针对水库释放 N_2O 的研究较少. 对于不同气候带水库的有限研究表明, 水库 N_2O 排放具有明显的时空变化^[10~13]. Deemer 等^[14]首次估算了全球水库 N_2O 年释放量(以 N_2O-N 计, 下同)约为 0.03 Tg (依据全球水库表面积 $3.06 \times 10^5 \text{ km}^2$), 而 Baron 等^[15]估算处于温带区域美国水库年总释放量为 0.037 Tg, 因此全球水库的 N_2O 释放量仍具有较大不确定性, 这主要是由于目前研究覆盖范围小, 缺乏典型代表性水库的数据.

长江是世界第三、亚洲第一长河, 受人类活动影响较大. 目前长江流域约修建了 285 座大型水库, 其中三峡水利工程是世界上最大的水力发电站^[16]. 近十几年, 有学者陆续开展了关于长江流域、水库水体溶解 N_2O 的分布和释放研究^[17~20]. 如 Yan 等^[21]测定了长江下游干流表层水中溶解 N_2O 的浓度及其向大气的释放. 部分学者利用通量箱法测定了三峡库区及其支流向大气释放 N_2O 通量^[17~19], 通过这些研究对三峡水库 N_2O 的释放通量及其影响因素有了一定的认识, 但是目前研究多关注河流和水库表层水中 N_2O 浓度和通量, 而对于三峡水库水柱中 N_2O 浓度剖面分布、其产生和转化过程及由于筑坝带来的发电和下层泄水等对 N_2O 释放的影响认识仍不足. 另外, 三峡水库建成多年来, 库龄对其 N_2O 释放通量的影响也尚不清楚.

本研究通过 2009 年 10 月和 2016 年 10 月两次调查, 对三峡水库不同深度水柱中溶解 N_2O 浓度和无机氮(DIN)等化学参数的剖面分布进行了测定, 通过认识大型河流筑坝水库溶解 N_2O 的产生和释放及筑坝和库龄对其影响, 以期估算区域尺度上淡水系统对全球大气 N_2O 的贡献提供科学基础.

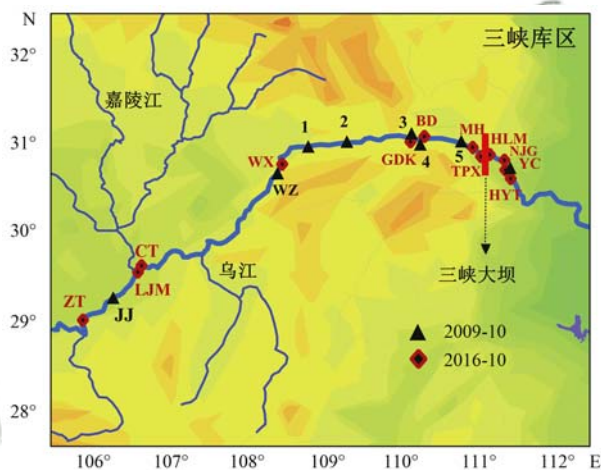
1 材料与方法

1.1 研究区域及采样站位

三峡水库位于长江中上游, 是三峡大坝建成蓄水后形成的人工湖泊, 长达 660 km, 覆盖水面约 1084 km^2 , 自 2003 年 6 月开始蓄水, 至 2010 年蓄水位达到 175 m, 是当今世界上规模最大的综合性水利枢纽工程. 三峡库区属于亚热带季风气候, 全

年温暖湿润.

分别于 2009 年 9 月 25 日至 10 月 4 日和 2016 年 10 月 1~3 日对三峡水库及其下游长江干流部分区域进行了调查(图 1). 2009 年在 8 个站位采集了表层($\sim 0 \text{ m}$)水样, 在江津、万州和宜昌还采集了中层($2 \sim 10 \text{ m}$)和底层($6 \sim 35 \text{ m}$)水样; 2016 年共设置 12 个采样站位(每个站位设置左、中、右 3 个采样点), 每个站位进行了表层($\sim 0 \text{ m}$)、中(距水面 $7 \sim 51 \text{ m}$)、底(距水面 $15 \sim 103 \text{ m}$)3 个深度的采样. 2009 年 9~10 月长江宜昌站径流量比多年平均径流量低 20%^[22], 2016 年 10 月宜昌径流量与多年平均径流量持平^[23]. 两次采样期间, 三峡库区均处于蓄水时期, 运行水位 165 m, 库区水体平均水温为 23°C , 气温变化范围为 $19 \sim 24^\circ\text{C}$.



ZT(朱垞); JJ(江津); LJM(临江门, 位于长江支流嘉陵江和干流交汇处); CT(寸滩); WZ(万州); WX(万县); GDK(官渡口); BD(巴东); MH(庙河); TPX(太平溪); HLM(黄陵庙); NJG(南津关); YC(宜昌); HYT(虎牙滩)

图 1 2009 年 10 月和 2016 年 10 月三峡库区调查站位示意

Fig. 1 Sampling locations in Three Gorges Reservoir in October 2009 and 2016

1.2 样品采集方法

N_2O 河水样品使用 Niskin 采水器采集, 用橡胶管将水样引入到 50 mL 玻璃样品瓶. 采样时, 先用少量河水润洗样品瓶 2~3 次, 在流动状态下, 将玻璃管端插入样品瓶底部, 平稳迅速注入河水样品, 并使河水溢出瓶的体积 1.5~2 倍后, 缓慢、平稳地抽出分样管(避免气泡、旋涡的产生), 并使瓶口形成凸液面, 迅速用注射器加入 0.5 mL 饱和氯化汞($HgCl_2$)溶液(抑制微生物活动), 然后用带聚四氟乙烯内衬的橡胶塞和铝盖压盖密封, 并于低温避光下保存. 溶解态无机氮(DIN)样品采集后尽快用 $0.45 \mu\text{m}$ 的醋酸纤维膜进行过滤, 水样过滤后立即置于 -20°C 冷冻保存. 每个样品采集双样. 采样点温度、盐度、溶解氧等参数由多参数水质仪

(HQ40D, Hach) 和 CTD (conductivity, temperature, and depth rosette, AAQ, Advantech) 测定。

1.3 样品处理及分析方法

采用静态顶空气相色谱法对河水中溶解 N_2O 进行测定^[24]。用气密性注射器向 50 mL 样品瓶注入 10.0 mL 高纯氮气 (>99.999%), 同时排出水样, 瓶内形成顶空, 室温下剧烈振荡 3 min, 避光静置 3 h 以上, 使瓶内气液两相达到平衡。抽取顶空气体, 通过六通阀注入 2 mL 进入气相色谱仪 (Agilent HP6890, 配备 ECD 检测器) 进行测定。色谱测定条件, 色谱柱: 3 mm. i. d $\times$ 1.8 m 的不锈钢填充柱 (内填 80/100 目的 5A 分子筛)。柱温为 210℃, 检测器温度为 300℃, 进样口温度为 100℃, 载气采用 Ar/CH_4 (95%/5%), 设置流速为 50.0 $\text{mL}\cdot\text{min}^{-1}$, 基电流为 1.0 nA。采用 0.230×10^{-6} 、 0.610×10^{-6} 、 3.04×10^{-6} 的 $\text{N}_2\text{O}/\text{N}_2$ 标准气体 (中国计量科学研究院) 校正检测信号。根据待测样品的色谱峰面积, 水样平衡温度及大气压, 以及溶解度数据计算出待测样品中溶解 N_2O 浓度^[25], 该方法检测限可达 $1.0 \text{ nmol}\cdot\text{L}^{-1}$, 精密度 <2%。

水样中溶解态营养盐硝态氮 (NO_3^-)、亚硝态氮 (NO_2^-) 和氨氮 (NH_4^+) 均由荷兰 SKALAR 公司生产的 SAN^{PLUS} 全自动湿化学分析仪进行分析测定, 检测限分别为 0.06、0.01 和 0.09 $\mu\text{mol}\cdot\text{L}^{-1}$, 精密度均 <2%^[26]。

1.4 饱和度及水-气通量计算方法

对于河流中溶解 N_2O 饱和度 ($R, \%$) 和水-气交换通量 [$F, \mu\text{mol}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{d})^{-1}$] 分别由 (1) 和 (2) 公式计算:

$$R = (c_{\text{obs}}/c_{\text{eq}}) \times 100\% \quad (1)$$

$$F = k \times (c_{\text{obs}} - c_{\text{eq}}) \quad (2)$$

$$k_{(\text{RCO1})} = 1.91 \exp(0.35u_{10})(Sc/600)^{-1/2} \quad (3)$$

式中, R 为 N_2O 饱和度, c_{obs} 为河流表层水中溶解 N_2O 的实测浓度 ($\text{nmol}\cdot\text{L}^{-1}$); c_{eq} 为与大气平衡时表层水中 N_2O 的浓度 ($\text{nmol}\cdot\text{L}^{-1}$); F 为水-气界面气体交换通量 [$\mu\text{mol}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{d})^{-1}$]; k 为气体交换速率, 采用 Raymond 等^[27] 提出的适于河流气体交换速率的公式 (RCO1 公式) 估算 [式 (3)]; Sc 为施密特数; u_{10} 为水面上方 10 m 高度处的风速 (采用美国国家海洋和大气管理局 (National Oceanic and Atmospheric Administration, NOAA) 的观测数据 (<http://www.esrl.noaa.gov>)). 2009 年大气中 N_2O 浓度为 323×10^{-9} 。2016 年大气 N_2O 数据采用青海瓦里关大气本底监测站测定结果 (329.7×10^{-9})^[3]。

2 结果与分析

2.1 长江三峡库区及其下游溶解 N_2O 及 DIN 浓度沿程分布

2016 年和 2009 年 10 月长江三峡库区及其下游水体参数和溶解 N_2O 浓度沿程分布如图 2 所示。10 月库区水温基本在 23℃ 附近变化 [图 2(a)], 自水库上游至大坝后无显著差异 ($P > 0.05$), 两次调查期间也差别不大。2016 年调查期间, 临江门站位表层 NH_4^+ 、 NO_2^- 和 NO_3^- 浓度都明显高于其他区域 [图 2(b) ~ 2(d)], 并且比 2009 年浓度分别增加 1.5、11 和 1 倍。两次调查中, 2009 年和 2016 年库区其他区域表、底层 NH_4^+ 、 NO_2^- 和 NO_3^- 浓度都无明显的差异。另外, 研究发现 2016 年三峡库区水体 NO_3^- 浓度明显高于 2009 年, 而两次调查中坝下各站位水体中 NO_3^- 浓度却无显著差异 ($P > 0.05$)。

2009 年 9 ~ 10 月三峡库区水体 N_2O 浓度自上游向下游呈逐渐增加趋势, 且表、底层浓度差别不大。2016 年 10 月三峡库区内在临江门附近出现表层 N_2O 浓度高值 ($16.36 \text{ nmol}\cdot\text{L}^{-1}$) [图 2(e)], 其他区域也无明显差异。三峡库区整体区域 (朱沱—太平溪) 表层 (~0 m) 和底层 (6 ~ 103 m) 水体 N_2O 浓度平均值分别为 (12.49 ± 1.75) $\text{nmol}\cdot\text{L}^{-1}$ 和 (11.21 ± 0.91) $\text{nmol}\cdot\text{L}^{-1}$, 三峡大坝下游表 (0 ~ 2 m) 和底层 (15 ~ 42 m) 水体 N_2O 平均浓度分别为 (11.41 ± 1.48) $\text{nmol}\cdot\text{L}^{-1}$ 和 (11.46 ± 1.42) $\text{nmol}\cdot\text{L}^{-1}$, 库区以及大坝下游水体溶解 N_2O 在沿程和垂直分布上均无显著性差异 ($P > 0.05$), 但是总体而言库区水体溶解 N_2O 浓度较大坝下游波动更大。同时, 2009 年和 2016 年调查期间三峡库区水体溶解 N_2O 浓度并无明显差别。

2.2 长江三峡库区及下游典型站位溶解 N_2O 及 DIN 浓度剖面分布

2009 年 9 ~ 10 月三峡库区江津站和三峡下游宜昌站溶解 N_2O 浓度及 DIN 垂直剖面分布如图 3 所示。在江津 [图 3(a)] 和宜昌断面 [图 3(b)], 由表层至深层 DO、DIN 以及 N_2O 都无大幅度的变化。但下游宜昌断面 NH_4^+ 在水深 8 m 处有较大幅度的增加。2016 年库区各断面 N_2O 浓度剖面分布相对下游变化幅度较大 (图 4)。在大坝下游宜昌站, 2016 年 N_2O 浓度略低于 2009 年。

2.3 三峡水库 N_2O 水-气交换通量

两个航次的调查表明, 10 月长江三峡库区和大坝下游 N_2O 饱和度以及通量分布如表 1 所示。所有调查区域表层溶解 N_2O 均处于过饱和状态, 并通

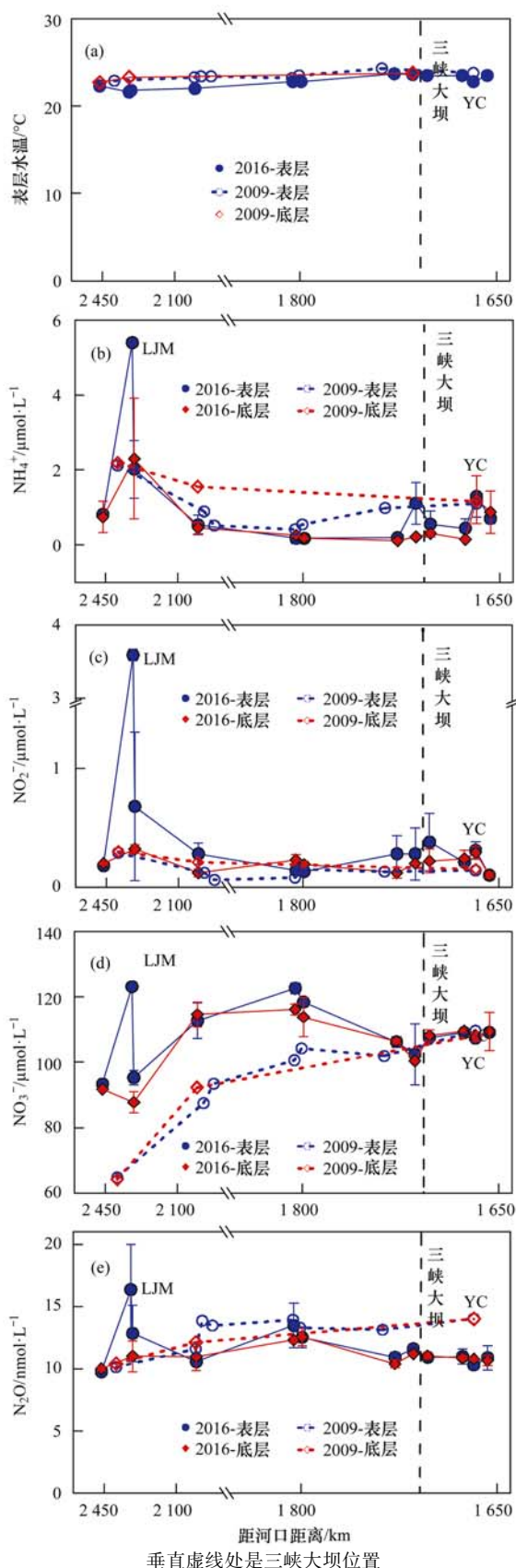


图2 三峡库区及下游水体溶解 N_2O 和 DIN 浓度沿程分布

Fig. 2 Distributions of N_2O and DIN concentrations in Three Gorges Reservoir

过水-气交换释放到大气中,是大气 N_2O 的源.虽然2009年和2016年10月库区 N_2O 浓度无显著变化,

但2009年三峡库区和下游 N_2O 通量却普遍高于2016年,这主要是由于两次调查期间库区风速不一致所致[2009年风速($4.8 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$)大于2016年($2.9 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$)].

3 讨论

3.1 影响三峡水库 N_2O 分布和释放的因素

大量研究表明,水体层化和温度是影响河流和水库 N_2O 产生和释放的重要因素^[12,28].三峡水库仅4~6月坝前水体具有弱分层现象^[29],10月库区表层水温基本在 $21.6 \sim 23.7^\circ\text{C}$ 范围变化,库区水体处于垂直混合时期,坝前水体上下交换作用增强,进而导致库区水体溶解 N_2O 浓度垂向分布差异较小.10月两个航次调查显示[图5(a)],长江表层 N_2O 浓度和水温无显著相关性($P > 0.05$).但前人一些研究表明三峡库区 N_2O 通量与水温具有正相关($P < 0.01$)^[18].不过,在长江流域其他水库的一些研究也显示水库 N_2O 通量与温度呈负相关($r^2 = 0.52$)^[11],另外,在黄河流域小浪底水库,水体 N_2O 浓度与水温和的关系也具有显著负相关性($P < 0.01$)^[30].三峡水库多年来监测显示,其库区水体多年来平均溶解氧(DO)浓度为(8.56 ± 1.14) $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ ^[31].一些研究表明,三峡库区香溪河支流 N_2O 释放通量随DO的降低而增加(负相关, $P < 0.01$)^[19],即低氧的水体环境有利于水库水体 N_2O 的产生,这与位于黄河流域小浪底水库结果相似.总之,长江流域水库 N_2O 的产生一定程度上会受到温度和DO的影响,但其影响较为复杂.

前人研究表明, N_2O 可以在河流的水体和沉积物中通过硝化和反硝化过程产生^[6],因此DIN作为参与硝化过程和反硝化过程的底物,其浓度水平的高低对水体 N_2O 的产生和释放具有决定性作用.两次调查期间临江门河段表层 N_2O 及DIN浓度较高,且2016年秋季高于2009年秋季,这主要是由于临江门采样点位于支流嘉陵江和干流的交汇处,且位于重庆市主城区,7年间重庆城市化不断扩大,而重庆城区是三峡库区生活污水和工业废水的主要排放源^[31],污水大量排放,使其溶解DIN增加,尤其是 NH_4^+ 含量较高,有利于通过硝化过程产生 N_2O ,因此该站位 NO_2^- 和 N_2O 浓度($16.36 \text{ nmol}\cdot\text{L}^{-1}$)均较高.长江属于农业型河流,化肥使用多以氮磷肥为主,导致河流DIN相对较高,其中尤以 NO_3^- 最高.三峡库区水体溶解 N_2O 浓度与DIN的关系见图3.两个航次水体 N_2O 浓度与 NO_3^- 均呈显著正相关($P < 0.01$),即 NO_3^- 浓度的增加促进水体 N_2O 的产生.

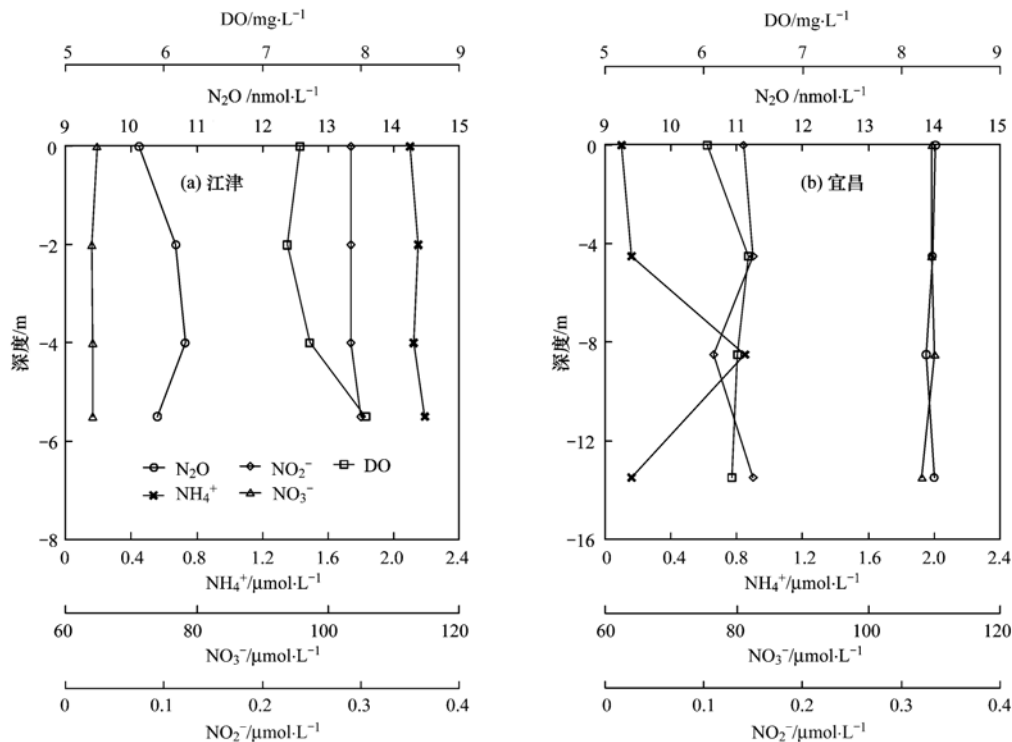


图3 2009年9~10月三峡库区江津站及下游宜昌水体溶解N₂O和DIN浓度剖面分布

Fig. 3 Profile distributions of DO, N₂O, and DIN concentrations in Jiangjin and Yichang Station from September to October 2009

表1 10月库区及大坝下游N₂O饱和度和水气通量¹⁾

Table 1 N₂O flux and saturation in Three Gorges Reservoir and downstream of the dam in October

区域	调查时间	站位数	饱和度/%	水气通量/ $\mu\text{mol}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{d})^{-1}$
三峡库区	2009年9~10月	7	122~170(157±18)	5.7~19.7(16.6±4.9)
	2016年10月	8	114~187(144±23)	1.4~9.3(4.6±2.4)
大坝下游	2009年9~10月	1	175	18.5
	2016年10月	4	122~133(130±5)	2.0~3.5(2.9±0.7)

1) 括号内数值表示 mean ± SD

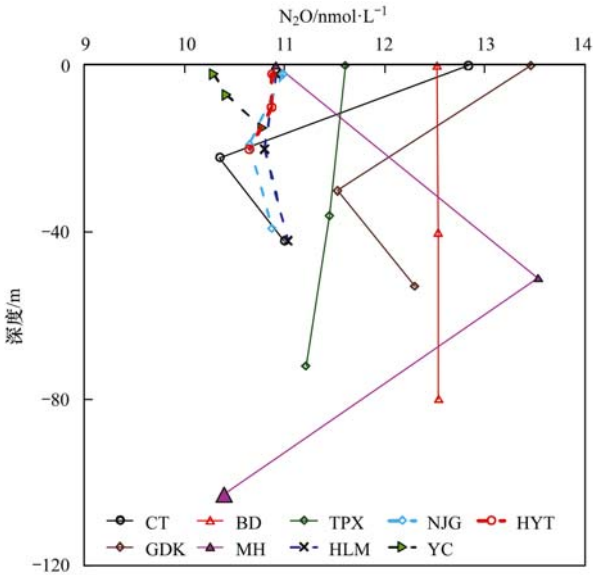


图4 2016年10月三峡库区及下游水体溶解N₂O浓度剖面分布

Fig. 4 Profile distributions of dissolved N₂O in Three Gorges Reservoir area and downstream of the dam in October 2016

10月三峡库区N₂O浓度与NH₄⁺、NO₂⁻分别呈负相关性($P < 0.05$, $P < 0.01$), 这和其他水库结果相似, 如同样位于垂直混合时期的黄河流域小浪底水库的研究表明, 水体N₂O浓度与NO₂⁻呈负相关, 而N₂O与水体NH₄⁺在深水层(负相关, $P < 0.01$)、浅水层(正相关, $P < 0.01$)分别具有相反的特点^[30], 这和小浪底水库深水域可能以反硝化过程为主、浅水域以氨氧化过程为主的N₂O产生过程有关. 秋季航次N₂O与NO₃⁻和NO₂⁻、NH₄⁺的相关性表明, NO₃⁻和NO₂⁻、NH₄⁺可能是影响库区水体N₂O释放的主要因素, 人类活动的增加将会加剧DIN的排放和输入, 间接增加温室气体N₂O的释放.

以往研究表明:库龄也是影响水库温室气体产生和释放的重要因素^[32]. 2016年是三峡水库自2010年以来连续实现175 m试验性蓄水的第7年, 其泥沙淤积量约0.334亿t^[23]. 虽然2016年库区泥沙淤积量远低于2009年(1.47亿t), 但是秋季库

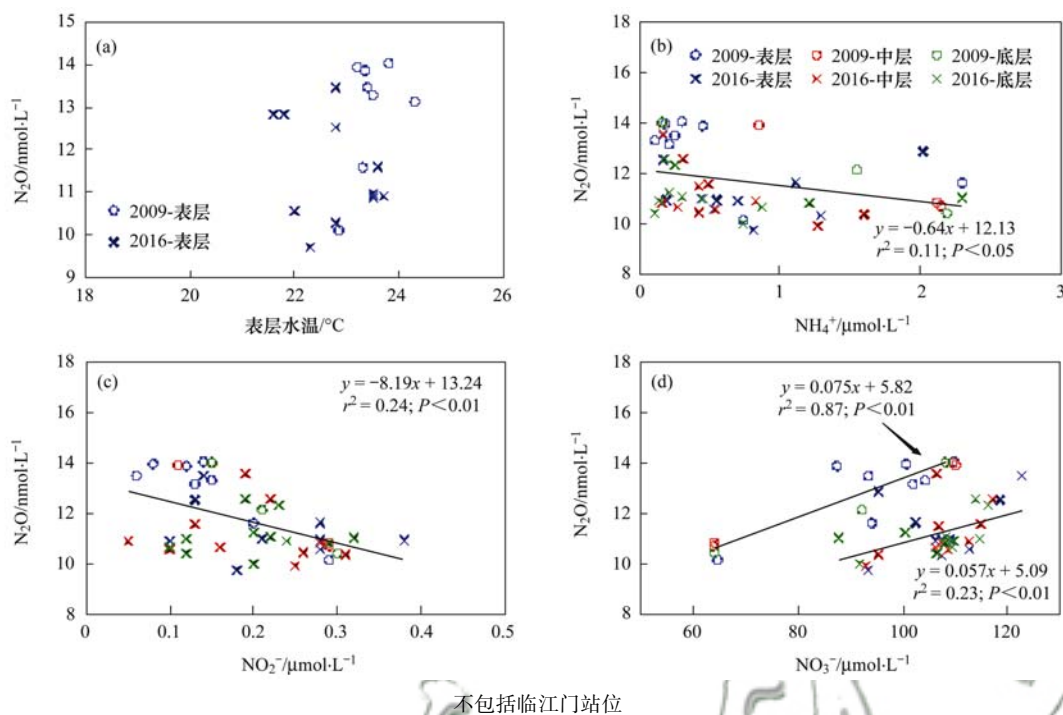


图5 三峡水库水体溶解 N_2O 与水温、DIN相关性分析

Fig. 5 Relationship between dissolved N_2O , water temperature and DIN in Three Gorge Reservoir

区 N_2O 浓度却无显著的差别,表明三峡水库自2009年运行以来已经进入平稳期,这与芬兰和魁北克研究发现超过10 a库龄的水库 N_2O 释放近似于天然湖泊是一致的^[33]。

3.2 筑坝和水库运行对河流 N_2O 释放的影响

三峡水库是峡谷河道型水库,水库的形成、运行状态等都会影响水体、沉积物的碳氮循环^[34,35],进而对河流 N_2O 的释放产生重要影响。库区主要以航运、防洪、发电为主,全年水位在145~175 m间周期性涨落,对其蓄水影响较小。10月处于丰水期,库区在高水位运行,水位变化较小,导致库区沿程 N_2O 浓度及释放通量变化不大。

不同水库具有不同的运行机制以及大坝构造,对河流 N_2O 的释放具有不同的影响。如黄河小浪底^[30]、法国Eguzon水库等^[36],其大坝泄水口高程较低,具有下泄深层冷水的特点,以及库区热层化时期深层高 N_2O 分布,导致 N_2O 主要通过水-气界面和大坝下游河流途径释放到大气。而三峡水库泄水孔、电站取水口较高(分别位于90 m和110 m以上),主要下泄中层水,且水体垂直混合较强,坝前 N_2O 浓度垂直分布差别较小,而且由于 N_2O 溶解度较高,通过涡轮机时不易脱气,因此两次调查中三峡库区大坝前后 N_2O 浓度差异较小。

虽然总体上10月三峡库区平均 N_2O 释放通量高于大坝下游,但是释放通量在秋季三峡库区 $[1.4 \sim 19.7 \mu\text{mol} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{d})^{-1}]$ 和大坝下游 $[2.0 \sim 18.5$

$\mu\text{mol} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{d})^{-1}]$ 无明显的差异。三峡水库 N_2O 主要通过水-气界面交换途径释放到大气中,发电及水体下泄未对库区及下游河道 N_2O 释放产生显著影响。三峡库区 N_2O 水-气界面单位释放通量范围为 $1.4 \sim 19.7 \mu\text{mol} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{d})^{-1}$,略高于前人报道的三峡库区的 N_2O 释放通量范围 $[3.8 \sim 11.8 \mu\text{mol} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{d})^{-1}]$ ^[17~19],同时低于黄河流域小浪底水库 N_2O 释放通量 $[4.0 \sim 26.6 \mu\text{mol} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{d})^{-1}]$ ^[30],和国内外报道的亚热带水库 N_2O 通量 $[-2.4 \sim 44.6 \mu\text{mol} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{d})^{-1}]$ ^[10, 12, 37, 38]相比,三峡水库 N_2O 释放通量也处于较低水平。不过,由于三峡水库水面面积较大(1084 km^2),其总释放量远高于其他水库。根据三峡库区 N_2O 水-气界面平均单位释放通量 $[(10.2 \pm 7.2) \mu\text{mol} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{d})^{-1}]$ 和水库水面面积,估算10月三峡库区释放 N_2O 量为 $3.32 \times 10^5 \text{ mol}$ (9.2 t N_2O -N),和乌江流域水库的年释放量变化范围 $[(0.32 \sim 3.17) \times 10^5 \text{ mol}]$ ^[9~11]相似。

另外,水库消落带也可能是 N_2O 释放的活跃区域^[39]。而三峡库区拥有世界上水位涨落幅度最高(约30 m)和面积最大(约 350 km^2)的水库消落区,其库区消落带淹水时间的不同都会影响 N_2O 的排放^[40],因此三峡大坝的建设不仅改变了库区水体和沉积环境,造成通过水面直接向大气排放 N_2O 增加,还可能通过水位季节性变化造成干湿交替的消落带向大气排放 N_2O 。例如三峡库区支流澎溪河消

落带全年 N_2O 平均单位释放通量为 $(16.9 \pm 25.6) \mu\text{mol} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{d})^{-1}$ ^[41], 甚至在一些消落带^[42], 如三峡库区上游支流朱衣河消落带, N_2O 最大排放量可达 $66.5 \mu\text{mol} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{d})^{-1}$ (8月), 是朱衣河湖心区的3倍左右, 且远高于三峡水库水-气界面释放通量. 因此在今后的研究中需要更进一步开展不同季节和更多区域的调查和深入研究.

4 结论

(1) 2016年10月和2009年10月三峡库区溶解 N_2O 浓度无显著差异, 表明运行多年以来三峡库区已进入平稳期; 同时大坝下游河道和三峡库区 N_2O 浓度无显著差异, 表明发电和大坝下泄水方式对三峡水库 N_2O 无显著影响.

(2) 库区 NH_4^+ 和 NO_2^- 的降低和 NO_3^- 浓度的增加能够促进 N_2O 的产生和释放, NH_4^+ 、 NO_2^- 和 NO_3^- 是影响三峡库区水体 N_2O 分布的主要因素.

(3) 两次秋季调查均表明, 三峡库区是大气 N_2O 的潜在源, 估算10月库区通过水-气界面约释放 $9.2 \text{ t } \text{N}_2\text{O-N}$. 另外, 由于三峡库区水面和消落带面积均较大, 带来的 N_2O 温室气体问题仍不可忽视.

致谢: 感谢长江水利委员会水文局提供水温等数据.

参考文献:

- [1] Ravishankara A R, Daniel J S, Portmann R W. Nitrous oxide (N_2O): the dominant ozone-depleting substance emitted in the 21st century[J]. *Science*, 2009, **326**(5949): 123-125.
- [2] Stocker T F, Qin D, Plattner G K, et al. Climate Change 2013- The physical science basis. Contribution of working group I Contribution to the fifth assessment report of the intergovernmental panel on climate change [M]. Cambridge, UK: Cambridge University Press, 2013. 465-571.
- [3] 中国气象局. 2016年中国温室气体公报[EB/OL]. http://www.cma.gov.cn/root7/auto13139/201801/t20180117_460485.html, 2018-01-17.
- [4] 陈能汪, 董虹佳, 鲁婷, 等. 厦门湾流域河流氮污染综合溯源与水体达标策略[J]. *环境科学学报*, 2017, **37**(6): 2031-2039.
Chen N W, Dong H J, Lu T, et al. Tracking nitrogen pollutants in Xiamen coastal river via multiple techniques and strategy of water quality management[J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 2017, **37**(6): 2031-2039.
- [5] Seitzinger S P. Denitrification in freshwater and coastal marine ecosystems; Ecological and geochemical significance [J]. *Limnology and Oceanography*, 1988, **33**: 702-724.
- [6] 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.
- [7] Xiao Q T, Xu X F, Zhang M, et al. Coregulation of nitrous oxide emissions by nitrogen and temperature in China's third largest freshwater lake (Lake Taihu) [J]. *Limnology and Oceanography*, 2019, **64**(3): 1070-1086.
- [8] He Y X, Wang X F, Chen H, et al. Effect of watershed urbanization on N_2O emissions from the Chongqing metropolitan river network, China [J]. *Atmospheric Environment*, 2017, **171**: 70-81.
- [9] Lembi C A. Limnology, lake and river ecosystems [J]. *Journal of Phycology*, 2010, **37**(6): 1146-1147.
- [10] Liu X L, Li S L, Wang Z L, et al. Nitrous oxide (N_2O) emissions from a mesotrophic reservoir on the Wujiang River, southwest China [J]. *Acta Geochimica*, 2017, **36**(4): 667-679.
- [11] Liu X L, Bai L, Wang Z L, et al. Nitrous oxide emissions from river network with variable nitrogen loading in Tianjin, China [J]. *Journal of Geochemical Exploration*, 2015, **157**: 153-161.
- [12] Liu X L, Liu C Q, Li S L, et al. Spatiotemporal variations of nitrous oxide (N_2O) emissions from two reservoirs in SW China [J]. *Atmospheric Environment*, 2011, **45**(31): 5458-5468.
- [13] Beaulieu J J, Nriech C T, Young J L. Controls on nitrous oxide production and consumption in reservoirs of the Ohio River Basin [J]. *Journal of Geophysical Research Biogeosciences*, 2015, **120**(10): 1995-2010.
- [14] Deemer B R, Harrison J A, Li S Y, et al. Greenhouse gas emissions from reservoir water surfaces: A new global synthesis [J]. *Bioscience*, 2016, **66**(11): 949-964.
- [15] Baron J S, Hall E K, Nolan B T, et al. The interactive effects of excess reactive nitrogen and climate change on aquatic ecosystems and water resources of the United States [J]. *Biogeochemistry*, 2013, **114**(1-3): 71-92.
- [16] Milliman J D, Farnsworth K L. River discharge to the coastal ocean: a global synthesis [M]. Cambridge: Cambridge University Press, 2011. 1-392.
- [17] Zhao Y, Wu B F, Zeng Y. Spatial and temporal patterns of greenhouse gas emissions from Three Gorges Reservoir of China [J]. *Biogeosciences*, 2013, **10**(2): 1219-1230.
- [18] Zhu D, Chen H, Yuan X Z, et al. Nitrous oxide emissions from the surface of the Three Gorges Reservoir [J]. *Ecological Engineering*, 2013, **60**: 150-154.
- [19] Huang W M, Bi Y H, Hu Z Y, et al. Spatio-temporal variations of GHG emissions from surface water of Xiangxi River in Three Gorges Reservoir region, China [J]. *Ecological Engineering*, 2015, **83**: 28-32.
- [20] Yu J H, Zhang J Y, Chen Q W, et al. Dramatic source-sink transition of N_2O in the water level fluctuation zone of the Three Gorges Reservoir during flooding-drying processes [J]. *Environmental Science and Pollution Research*, 2018, **25**(20): 20023-20031.
- [21] Yan W J, Yang L B, Wang F, et al. Riverine N_2O concentrations, exports to estuary and emissions to atmosphere from the Changjiang River in response to increasing nitrogen loads [J]. *Global Biogeochemical Cycles*, 2012, **26**(4): GB4006.
- [22] 水利部长江水利委员会. 长江泥沙公报, 2009 [M]. 武汉: 长江出版社, 2010. 1-35.
Changjiang Water Resources Commission of the Ministry of Water Resources. Changjiang sediment bulletin of 2009 [M]. Wuhan: Changjiang Press, 2010. 1-35.
- [23] 水利部长江水利委员会. 长江泥沙公报, 2016 [M]. 武汉: 长江出版社, 2017. 1-51.
Changjiang Water Resources Commission of the Ministry of Water Resources. Changjiang sediment bulletin of 2016 [M]. Wuhan: Changjiang Press, 2017. 1-51.
- [24] Zhang G L, Zhang J, Liu S M, et al. Methane in the Changjiang (Yangtze River) Estuary and its adjacent marine area; Riverine

- input, sediment release and atmospheric fluxes [J]. *Biogeochemistry*, 2010, **91**(1): 71-84.
- [25] Weiss R F, Price B A. Nitrous oxide solubility in water and seawater[J]. *Marine Chemistry*, 1980, **8**(4): 347-359.
- [26] Liu S M, Zhang J, Chen H T, *et al.* Factors influencing nutrient dynamics in the eutrophic Jiaozhou Bay, North China [J]. *Progress in Oceanography*, 2005, **66**(1): 66-85.
- [27] Raymond P A, Cole J J. Gas exchange in rivers and estuaries: choosing a gas transfer velocity[J]. *Estuaries*, 2001, **24**(2): 312-317.
- [28] Wang J N, Chen N W, Yan W J, *et al.* Effect of dissolved oxygen and nitrogen on emission of N_2O from rivers in China[J]. *Atmospheric Environment*, 2015, **103**: 347-356.
- [29] 杜林霞, 牛兰花, 黄童. 三峡水库水温变化特性及影响分析[J]. *水利水电快报*, 2017, **38**(6): 59-63.
- [30] Cheng F, Zhang H M, Zhang G L, *et al.* Distribution and emission of N_2O in the largest River-Reservoir System along the Yellow River[J]. *Science of the Total Environment*, 2019, **666**: 1209-1219.
- [31] 李进林, 谭晶月, 韦杰, 等. 三峡水库入出口水质及其与水情特征和排污负荷的关系[J]. *三峡生态环境监测*, 2017, **2**(1): 44-51.
- Li J L, Tan J Y, Wei J, *et al.* Water quality at inlet and outlet of the Three Gorges Reservoir and its relation to hydrological regimen and pollutants emissions[J]. *Ecology and Environmental Monitoring of Three Gorges*, 2017, **2**(1): 44-51.
- [32] 吕鑫, 刘小龙, 李军, 等. 河流拦截背景下水库氧化亚氮(N_2O)排放的研究进展[J]. *生态学杂志*, 2018, **37**(3): 613-623.
- Lv X, Liu X L, Li J, *et al.* Advances in studies on nitrous oxide (N_2O) emission in the reservoirs under the background of river impoundment[J]. *Chinese Journal of Ecology*, 2018, **37**(3): 613-623.
- [33] 陈小燕, 戴会超, 蒋定国, 等. 水库温室气体排放过程中若干问题的研究[J]. *水电能源科学*, 2009, **27**(5): 37-39, 139.
- Chen X Y, Dai H C, Jiang D G, *et al.* Research on process of greenhouse gas emission from Reservoir[J]. *Water Resources and Power*, 2009, **27**(5): 37-39, 139.
- [34] 王静, 刘洪杰, 雷禹, 等. 三峡库区小江支流沉积物硝化反硝化速率在蓄水期和泄水期的特征[J]. *环境科学*, 2017, **38**(3): 946-953.
- Wang J, Liu H J, Lei Y, *et al.* Nitrification and denitrification rates in a small tributary, Nanhe River, of Three Gorge Dam Reservoir during water collection and release events [J]. *Environmental Science*, 2017, **38**(3): 946-953.
- [35] 范志伟, 郝庆菊, 黄哲, 等. 三峡库区水体中可溶性 C、N 变化及影响因素[J]. *环境科学*, 2017, **38**(1): 129-137.
- Fan Z W, Hao Q J, Huang Z, *et al.* Change and influencing factors of dissolved carbon and dissolved nitrogen in water of the Three Gorges Reservoir[J]. *Environmental Science*, 2017, **38**(1): 129-137.
- [36] Descoux S, Chanudet V, Serça D, *et al.* Methane and nitrous oxide annual emissions from an old eutrophic temperate reservoir [J]. *Science of the Total Environment*, 2017, **598**: 959-972.
- [37] Musenze R S, Grinham A, Werner U, *et al.* Assessing the spatial and temporal variability of diffusive methane and nitrous oxide emissions from subtropical freshwater reservoirs [J]. *Environmental Science & Technology*, 2014, **48**(24): 14499-14507.
- [38] Sturm K, Yuan Z, Gibbes B, *et al.* Methane and nitrous oxide sources and emissions in a subtropical freshwater reservoir, South East Queensland, Australia [J]. *Biogeosciences*, 2014, **11**(18): 5245-5258.
- [39] 方芳, 孙志伟, 高红涛, 等. 三峡库区消落带土壤 N_2O 排放及反硝化研究[J]. *长江流域资源与环境*, 2014, **23**(2): 287-293.
- Fang F, Sun Z W, Gao H T, *et al.* N_2O emission and denitrification in the soils of water-level-fluctuation zone in the Three Gorges Reservoir area[J]. *Resources and Environment in the Yangtze Basin*, 2014, **23**(2): 287-293.
- [40] 李睿, 雷利国, 江长胜, 等. 三峡库区消落带 N_2O 排放及其影响因素[J]. *环境科学*, 2016, **37**(7): 2721-2730.
- Li R, Lei L G, Jiang C S, *et al.* Features and influencing factors of N_2O emissions from drawdown area in the Three Gorges Reservoir[J]. *Environmental Science*, 2016, **37**(7): 2721-2730.
- [41] Chen H, Yuan X Z, Gao Y H, *et al.* Nitrous oxide emissions from newly created littoral marshes in the drawdown area of the Three Gorges Reservoir, China [J]. *Water, Air, & Soil Pollution*, 2010, **211**(1-4): 25-33.
- [42] 万晓红, 王启文, 王雨春. 三峡支流朱衣河消落带 N_2O 排放特征研究[J]. *环境保护前沿*, 2018, **8**(1): 85-94.
- Wan X H, Wang Q W, Wang Y C. Study of N_2O emission at drawdown area in Zhuyi River, Three Gorges Reservoir [J]. *Advances in Environmental Protection*, 2018, **8**(1): 85-94.

CONTENTS

Size Distributions of Different Carbonaceous Components in Ambient Aerosols	DU Xiang, ZHAO Pu-sheng, DONG Qun, <i>et al.</i> (3849)
Analysis of Air Pollution Characteristics and Meteorological Conditions in Zhengzhou from 2014 to 2017	GUO Meng-meng, JIANG Nan, WANG Shen-bo, <i>et al.</i> (3856)
Characteristics of Atmospheric PM _{2.5} Pollution and Its Influence on Visibility in Background Areas of Ji'nan	BIE Shu-jun, YANG Ling-xiao, GAO Ying, <i>et al.</i> (3868)
Source Analysis and Health Risk Assessment of PAHs in PM _{2.5} During Winter in Liaocheng City	LIU Xiao-di, HOU Zhan-fang, MENG Jing-jing, <i>et al.</i> (3875)
Temporal-Spatial Characteristics and Variability in Aerosol Optical Depth over China During 2001-2017	LIU Hai-zhi, GUO Hai-yan, MA Zhen-feng, <i>et al.</i> (3886)
Spatial-Temporal Distribution of Absorptive Aerosols in the Yangtze River Delta	ZHAO Nan, CAO Fan-shi, TIAN Qing, <i>et al.</i> (3898)
Emission Characteristics of Chemical Composition of Particulate Matter from Coal-fired Boilers	YANG Yan-rong, ZHOU Xue-ming, QIN Juan-juan, <i>et al.</i> (3908)
Pollution Characteristics of Heavy Metals in PM _{2.5} Near Highway	LI Xiao-bao, LIAO Zu-wen, ZHAO Hong, <i>et al.</i> (3916)
Pollution Characteristics and Potential Ecological Risks of Heavy Metals in Road Dust in Beijing	HU Yue-qi, GUO Jian-hui, ZHANG Chao, <i>et al.</i> (3924)
Application of Test Method for Dust Suppression Efficiency of Wind Erosion Dust Suppressant	QIN Jian-ping, LI Bei-bei, YANG Tao, <i>et al.</i> (3935)
Emission Characteristics and Ozone Formation Potential of VOCs in Printing Enterprises in Beijing-Tianjin-Hebei	LIU Wen-wen, FANG Li, GUO Xiu-rui, <i>et al.</i> (3942)
Source Profiles of VOCs Associated with Typical Industrial Processes in Chengdu	ZHOU Zi-hang, DENG Ye, WU Ke-ying, <i>et al.</i> (3949)
Characterization and Health Risk Assessment of Exposure to Odorous Pollutants Emitted from Industrial Odor Sources	MENG Jie, ZHAI Zeng-xiu, JING Bo-yu, <i>et al.</i> (3962)
Analysis of HONO Concentration and Source in Typical Rural Area of North China	WANG Yu-zheng, XUE Chao-yang, ZHANG Cheng-long, <i>et al.</i> (3973)
CO-SCR Performance and Mechanism over Co ₃ O ₄ Catalysts	ZHONG Xue-mei, ZHANG Tao, LI Jia-yin, <i>et al.</i> (3982)
Pollution Characteristics of Perfluorinated Alkyl Substances (PFASs) in Seawater, Sediments, and Biological Samples from Jiaozhou Bay, China	 CUI Wen-jie, PENG Ji-xing, TAN Zhi-jun, <i>et al.</i> (3990)
Occurrence and Influencing Factors of Odorous Compounds in Reservoirs Used as Drinking Water Resources in Jiangsu Province	 SHI Peng-cheng, ZHU Guang-wei, YANG Wen-bin, <i>et al.</i> (4000)
Fluorescence Characteristics and Influencing Factors of Dissolved Organic Matter (DOM) in Water and Sediment of Urban Watershed: A Case Study of Xiaojia River in Ningbo City	 GAO Feng, SHAO Mei-ling, TANG Jian-feng, <i>et al.</i> (4009)
Water Bloom Modified Sediment Nitrogen Transformation and Removal	 XIAO Lin, YANG Jia-yi (4018)
Applicability of Bioavailable Phosphorus in Sediments to Indicating Trophic Levels of Lakes and Reservoirs	LIU Hui, HU Lin-na, ZHU Meng-yuan, <i>et al.</i> (4023)
Analysis of Nitrate Pollution Sources in the Rainy Season of the Lower Fenhe River	WANG Yin-long, FENG Min-quan, DONG Xiang-qian (4033)
Hydrochemical Characteristics and Evolution of Groundwater in the Kashgar Delta Area in Xinjiang	WEI Xing, ZHOU Jin-long, NAI Wei-hua, <i>et al.</i> (4042)
Community Diversity of Eukaryotic Nano-phytoplankton in Yellow Sea Using DNA Metabarcoding Technology Based on Multiple Amplicons	 ZHANG Li, ZHANG Yuan, LIN Jia-ning, <i>et al.</i> (4052)
Comparison of Functional Groups of Phytoplankton in FG, MFG, and MBFG; Taking Three Reservoirs as an Example in Guizhou Plateau	CHEN Qian, LI Qiu-hua, MA Xin-yang, <i>et al.</i> (4061)
Adsorption and Mechanism of Arsenic by Natural Iron-containing Minerals	SHAO Jin-qiu, WEN Qi-qian, YAN Xiu-lan, <i>et al.</i> (4072)
Removal of Pb ²⁺ from Aqueous Solution by Magnesium-Calcium Hydroxyapatite Adsorbent	HE Hao, ZHU Zong-qiang, LIU Jie, <i>et al.</i> (4081)
Intensified Electrosorption of Pb ²⁺ by 2,6-diaminoanthraquinone/Graphene Composite Electrode	JIN Sheng-yao, XIANG Yang, ZHANG Jun-yu, <i>et al.</i> (4091)
Experiment on Recovery of Phosphorus from Aqueous Solution by Calcium Doped Fe ₃ O ₄	BAI Run-ying, LIU Jian-ming, HAO Jin-feng, <i>et al.</i> (4098)
Removal of Microplastics by Different Treatment Processes in Shanghai Large Municipal Wastewater Treatment Plants	JIA Qi-long, CHEN Hao, ZHAO Xin, <i>et al.</i> (4105)
Enhanced Nutrient Removal and Microbial Community Structure in a Step-feed A ² /O Process Treating Low-C/N Municipal Wastewater	RONG Yi, LIU Xiao-chai, HE Yin-xuan, <i>et al.</i> (4113)
Performances Analysis of an Upflow Anaerobic Filter for Domestic Sewage Treatment	YANG Zhong-qi, LIU Xiu-hong, LI Hai-xin, <i>et al.</i> (4121)
Electron Equilibrium Analysis of Integrated Autotrophic and Heterotrophic Denitrification Process Under Micro-aerobic Conditions	ZHANG Ruo-chen, CHEN Chuan, SHAO Bo, <i>et al.</i> (4128)
Pilot Study on Start-up and Stable Operation at Low Temperature Based on Denitrifying Phosphorus Removal	ZHANG Fan, YU De-shuang, LIU Jie, <i>et al.</i> (4136)
Comparison of Polycaprolactone and Poly-3-hydroxybutyrate-co-3-hydroxyvalerate for Nitrogen Removal	YI Cheng-hao, QIN Wei, CHEN Zhan, <i>et al.</i> (4143)
Rapid Cultivation of Anaerobic Ammonium Oxidation Granular Sludge and Inhibition Kinetics of Granular Sludge	TANG Peng, YU De-shuang, CHEN Guang-hui, <i>et al.</i> (4152)
Effect of Ca ²⁺ on the Nitrification Activity and the Flocculation and Sedimentation Performances of the Activated Sludge	ZHANG Lan-he, ZHAO Qian-nan, ZHANG Hai-feng, <i>et al.</i> (4160)
Recovery of Phosphorus in the Form of Struvite from the Anaerobic Fermentation Supernatant of Excess Sludge	CHANG Xiao, ZENG Wei, WANG Bao-gui, <i>et al.</i> (4169)
Effect of Signal Molecule Combined with <i>Thiobacillus denitrificans</i> on Simultaneous Removal of Nitrogen and Sulfur	XU Jin-lan, CHEN Zi-wei, ZHANG Shao-feng, <i>et al.</i> (4177)
Bacterial Community Composition in Channel Sediment in Response to Mariculture Wastewater Drainage	HU Yue-hang, XUAN Li-xia, QIU Qiong-fen (4185)
Setup and Microbial Community Analysis of ANAMMOX System for Landfill Leachate Treatment Coupling Partial Nitrification-Denitrification Process	 ZHAO Qing, LIU Meng-ying, LÜ Hui, <i>et al.</i> (4195)
Effects of Rice Straw Addition on Methanogenic Archaea and Bacteria in Two Paddy Soils	BAO Qiong-li, WANG Feng-hua, BAO Wan-kui, <i>et al.</i> (4202)
Effect of Plastic Film Mulching on Greenhouse Gas Emissions from Rice-Rapeseed Rotation in Cropland	CHEN Shi-jie, JIANG Chang-sheng, NI Xue, <i>et al.</i> (4213)
N ₂ O Emissions from a Tea Field with Deep Application of Nitrogen Fertilizer and Intercropping with White Clover	LÜ Tian-xin, WU Yan-zheng, SHEN Jian-lin, <i>et al.</i> (4221)
Distribution and Emission of Nitrous Oxide (N ₂ O) in Three Gorges Reservoir and Downstream River	CHENG Fang, DING Shuai, LIU Su-mei, <i>et al.</i> (4230)
Synergy of Algal Sedimentation and Sediment Capping for Methane Emission Control in Bloom Waters	ZHU Lin, YU Jiang-hua, SHI Wen-qing, <i>et al.</i> (4238)
Impact of Newly Build Lead-Acid Battery Agglomeration Area on the Surrounding Soil Environment: A Study Based on the Spatial Characteristics of Heavy Metals	 DING Ya-li, LIAO Min, FANG Zhi-ping, <i>et al.</i> (4244)
Effects of Amendments with Different C/N/P Ratios on Plant and Soil Properties of a Pb-Zn Mine Tailings	YANG Sheng-xiang, LI Feng-mei, PENG Xi-zhu, <i>et al.</i> (4253)
Derivation of the Thresholds of Available Concentrations of Heavy Metals in Soil Based on Agricultural Product Safety	ZHANG Yun-hui, DU Ping, HE Ying, <i>et al.</i> (4262)
Content of Soil Phytolith-Occluded Organic Carbon in Different Land Use Patterns at Jinyun Mountain	LUO Dong-hai, WANG Zi-fang, LU Chang, <i>et al.</i> (4270)
Influence of Land Use Change on Litter and Soil C, N, P Stoichiometric Characteristics and Soil Enzyme Activity in Karst Ecosystem, Southwest China	 TIAN Jing, SHENG Mao-yin, WANG Pan, <i>et al.</i> (4278)
Effect of Conditioning Agent Combined with Flooding Measures on Absorption and Accumulation of Cadmium in Rice	PENG Ou, LIU Yu-ling, TIE Bai-qing, <i>et al.</i> (4287)
Distribution and Sources of OPEs in Plants and Snow in Hailuoguo	CHEN Yang, YIN Hong-ling, WU Di, <i>et al.</i> (4295)