

方知库
Eco-Environmental
Knowledge Web

环境科学

ENVIRONMENTAL SCIENCE

ISSN 0250-3301 CODEN HCKHDV
HUANJING KEXUE

冠状病毒气溶胶传播及环境影响因素

李雪, 蒋靖坤, 王东滨, 邓建国, 贺克斌, 郝吉明



■ 主办 中国科学院生态环境研究中心

■ 出版 科学出版社



2021年7月

第42卷 第7期
Vol.42 No.7

目次

冠状病毒气溶胶传播及环境影响因素	李雪, 蒋靖坤, 王东滨, 邓建国, 贺克斌, 郝吉明 (3091)
新冠肺炎疫情期间气象条件和排放变化对 PM _{2.5} 的影响	逯世泽, 史旭荣, 薛文博, 雷宇, 严刚 (3099)
基于网格的长三角 PM _{2.5} 分布影响因素及交互效应	黄小刚, 赵景波, 辛未冬 (3107)
ARIMA 时间序列分析模型在臭氧浓度中长期预报中的应用	李颖若, 韩婷婷, 汪君霞, 权维俊, 何迪, 焦热光, 吴进, 郭恒, 马志强 (3118)
中国长三角背景点冬季大气棕碳污染特征及来源解析	赵宇, 吴灿, 王益倩, 陈玉宝, 吕少君, 汪芳琳, 杜伟, 刘仕杰, 李志健, 王格慧 (3127)
四川盆地 PM _{2.5} 浓度时空变化特征遥感监测与影响因子分析	李梦真, 张廷斌, 易桂花, 秦岩宾, 李景吉, 刘贤, 蒋杰 (3136)
河网连续动态模型构建及其在典型杀虫剂时空迁移模拟中的应用	邢成, 张芊芊, 蔡雅雅, 烟晓婷, 应光国 (3147)
九龙江流域河流氮输出对土地利用模式和水文状况的响应	黄亚玲, 黄金良 (3156)
滇池近岸水体微塑料污染与富营养化的相关性	袁海英, 侯磊, 梁启斌, 李佳琛, 任甲 (3166)
白洋淀夏季入淀区沉积物间隙水-上覆水水质特征及交换通量分析	张甜娜, 周石磊, 陈召莹, 张紫薇, 孙悦, 姚波, 崔建升, 李再兴, 罗晓 (3176)
镇江市古运河和金山湖河湖上覆水体和沉积物氮及有机质分布特征及污染评价	原璐彬, 邢书语, 刘鑫, 周晓红, Adelaide Angela Dadzie (3186)
洪湖国际重要湿地沉积物磷空间分布特征及释放风险	刘永九, 黄素珍, 张璐, 彭雪, 张心怡, 葛芳杰, 刘碧云, 吴振斌 (3198)
苏州古城区域河道底泥的重金属污染分布及生态风险评价	白冬锐, 张涛, 包峻松, 陈坦, 王洪涛, 金曦, 金军, 杨婷 (3206)
武汉集中式饮用水源地土壤重金属的时空分布特征及生态风险评价	朱静, 侯耀宗, 邹书成, 曹梦华, 涂书新 (3215)
升金湖河湖交汇区地表-地下水水化学特征及成因分析	崔玉环, 王杰, 刘友存, 郝洸, 高祥 (3223)
青岛市农区地下水硝态氮污染来源解析	寇馨月, 丁军军, 李玉中, 毛丽丽, 李巧珍, 徐春英, 郑欠, 庄姗 (3232)
三峡库区支流浮游植物群落稳定性及其驱动因子分析	何书晗, 欧阳添, 赵璐, 纪璐璐, 杨安琪, 施军琼, 吴忠兴 (3242)
哈尔滨城市河网丰水期浮游植物群落分布特征及驱动因子	路枫, 李磊, 齐青松, 陆欣鑫, 刘妍, 范亚文 (3253)
湖泊沉积物中微生物群落对天然有机质输入的响应	居琪, 章奇, 曹驰程, 白雷雷, 张晖 (3263)
补给水质与社会活动对白洋淀湿地微生物的影响特征	赵志瑞, 吴会清, 毕玉方, 展庆周, 吴海森, 袁凯悦, 孟祥源, 李方红 (3272)
蓝藻衰亡过程中上覆水溶解性有机物变化特征	李翔, 李致春, 汪旋, 张思远, 王慧敏, 厉荣强, 王国祥, 李启蒙 (3281)
长江下游快速城市化地区水污染特征及源解析:以秦淮河流域为例	马小雪, 龚畅, 郭加汛, 王腊春, 徐蕴韵, 赵春发 (3291)
长江下游居民区降水地表径流的污染特征	郭文景, 张志勇, 闻学政, 张瀚文, 王岩 (3304)
潮河流域降雨径流事件污染物输出特征	包鑫, 江燕, 胡羽聪 (3316)
不透水地表粗糙度对城市面源颗粒物的累积和冲刷影响	单溪环, 谢文霞, 廖云杰, 房志达, 杨晓晶, 苏静君, 赵洪涛, 李叙勇 (3328)
基于概率方法的中国居民饮水途径暴露健康风险评估	秦宁, 刘运炜, 侯荣, 王彩云, 王贝贝, 段小丽 (3338)
蛋白类有机质在水厂各处理单元中的去除特性	李梦雅, 宋钰莹, 张晓岚, 黄海鸣 (3348)
污水处理厂不同单元工艺水中重金属及其纳米颗粒的分布	王杜珈, 何帅, 周小霞 (3358)
基于宏基因组技术分析 MBR 膜清洗后污泥中抗性基因	杜彩丽, 李中涵, 李晓光, 张列宇, 陈素华, 黎佳茜, 李曹乐 (3366)
石化废水处理厂中耐药菌和耐药基因的分布特征与去除效能解析	唐振平, 肖莎莎, 段毅, 刘迎九, 高媛媛, 吴月月, 陈怡雯, 周帅 (3375)
一段式亚硝化厌氧氨氧化 SMBBR 处理中低浓度氨氮废水	吕恺, 邵贤明, 王康舟, 姚雪薇, 彭党聪, 韩芸 (3385)
外加固体缓释碳源的两段反硝化工艺脱氮性能	唐义, 马懿文, 王金泉, 王艳, 叶刚 (3392)
臭氧投量对 SBR 系统污泥沉降性能及脱氮除磷的影响	吕永涛, 朱传首, 张旭阳, 徐超, 潘永宝, 刘爽, 崔双科, 王磊 (3400)
间歇梯度曝气下首段延时厌氧强化好氧颗粒污泥脱氮除磷	张玉君, 李冬, 王歆鑫, 张富国, 张杰 (3405)
提盐速率对序批式生物反应器性能和微生物群落结构的影响	古铂铭, 金春姬, 温淳, 侯金源, 赵阳国, 高孟春 (3413)
低温驯化对自养脱氮颗粒污泥功能活性与菌群结构的影响分析	钱飞跃, 刘雨馨, 王建芳, 刘文如 (3422)
矿渣基改性剂对城市污泥重金属稳定化	张发文, 董明坤, 陈辰慧, 赵长民 (3430)
2000~2018 年长三角土地利用变化对农田生态系统氮排放的影响	王文锦, 王卿, 朱安生, 黄凌, 顾莹, 王杨君, 王敏, 李莉 (3442)
麦秸水热炭及其改良产物对水稻产量和稻田氮挥发排放的影响	韩晨, 侯朋福, 薛利红, 冯彦房, 余姗, 杨林章 (3451)
水肥管理对热带地区双季稻田 CH ₄ 和 N ₂ O 排放的影响	李金秋, 邵晓辉, 缙广林, 邓艺欣, 谭诗敏, 徐文娟, 杨秋, 刘文杰, 伍延正, 孟磊, 汤水荣 (3458)
耐盐碱水稻土壤产甲烷菌群落特征及产甲烷途径	杨雨虹, 贺惠, 米铁柱, 刘玥腾, 刘佳音, 张国栋, 李明月, 甄毓 (3472)
铁碳微电解填料对人工湿地温室气体排放的影响	赵仲婧, 郝庆菊, 涂婷婷, 胡曼利, 张尧钰, 江长胜 (3482)
农地土壤重金属 Pb 和 Cd 有效性测定方法的筛选与评价	陈莹, 刘汉燚, 刘娜, 蒋珍茂, 魏世强 (3494)
亚热带高山森林土壤典型重金属的空间分布格局及其影响因素:以云南哀牢山为例	刘旭, 王训, 王定勇 (3507)
深圳市不同土类的重金属环境背景值与理化性质特征	林挺, 赵述华, 郝秀平, 杨坤, 吴静雅, 朱艳, 罗飞 (3518)
同步钝化土壤 Cd 和 As 材料的筛选	周嗣江, 刘针延, 熊双莲, 马烁, 黄倚豪, 雷寅, 曹梦华, 涂书新 (3527)
两种铁基材料对污染农田土壤砷、铅、镉的钝化修复	袁峰, 唐先进, 吴骥子, 赵科理, 叶正钱 (3535)
青藏高原东缘冻土中有机磷酸酯的污染特征	刘丽娅, 印红玲, 蹇林洁, 徐子文, 熊远明, 罗怡, 刘小雯, 徐维新 (3549)
成都平原氮磷化肥施用强度空间分布及影响因素分析	刘奇鑫, 王昌全, 李冰, 赵海岚, 方红艳, 邓茜, 李启权 (3555)
土壤中溶解性有机质对不同类型堆肥的响应差异	席北斗, 王燕, 檀文炳, 余红, 崔东宇, 程东会, 党秋玲 (3565)
《环境科学》征订启事 (3315) 《环境科学》征稿简则 (3357) 信息 (3391, 3441, 3564)	

九龙江流域河流氮输出对土地利用模式和水文状况的响应

黄亚玲^{1,2}, 黄金良^{1*}

(1. 厦门大学福建省海岸带污染防控重点实验室, 厦门 361102; 2. 闽江学院海洋研究院, 福州 350108)

摘要: 流域土地利用模式与水文状况影响河流氮的来源、迁移转化和输出, 关乎流域健康与淡水生态系统服务的供给。本研究基于 2010 ~ 2017 年观测数据, 采用流域模型、地理信息技术和数理统计等方法从多时空尺度探究亚热带中尺度近海流域——九龙江流域河流氮输出对流域土地利用模式和水文状况的响应机制。结果表明, NO_3^- -N 是九龙江流域河流水体主要的无机氮形态; 农业和城市流域河流体氮浓度、输出负荷及其年际与季节变异性高于自然流域; 丰水年各类流域河流体氮浓度和输出负荷差异总体上高于枯水年; 相比水文状况, 土地利用与氮年均浓度和输出负荷的正相关性更显著。总体而言, 河流氮输出时空变化特征受流域土地利用模式和水文状况的共同作用。

关键词: 近海流域; 氮输出; 土地利用模式; 水文状况; 时空变异性

中图分类号: X522 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2021)07-3156-10 DOI: 10.13227/j.hjxx.202011126

Response of Riverine Nitrogen Exports to Land Use Pattern and Hydrological Regime in the Jiulong River Watershed

HUANG Ya-ling^{1,2}, HUANG Jin-liang^{1*}

(1. Fujian Key Laboratory of Coastal Pollution Prevention and Control, Xiamen University, Xiamen 361102, China; 2. Institute of Oceanography, Minjiang University, Fuzhou 350108, China)

Abstract: Watershed land use patterns combined with hydrological regimes affect riverine nitrogen (N) sources, transformation pathways, and exports, which can affect watershed health and freshwater ecosystem service supply. Understanding how land use and hydrological regimes affect riverine N exports is therefore useful for developing sustainable watershed management strategies. Based on in-situ observations during the period 2010-2017, watershed modeling, geospatial technology, and statistical analysis were coupled in this study to explore the responses of riverine nitrogen exports to watershed land use pattern and hydrological regime in a medium-sized watershed. Results showed that nitrate was the major form of dissolved inorganic N in the Jiulong River watershed; agricultural and urban watersheds had higher N exports and greater temporal variability than those in natural watershed. The seasonal fluctuation for watershed N concentrations and exports was obvious in wet years compared with dry years. Compared with the hydrological regime, the land use pattern had significant effects on N concentrations and exports. This study demonstrated that spatiotemporal variations of riverine nitrogen exports were mainly contributed by the coupled effects of watershed land use pattern and hydrological regime.

Key words: coastal watershed; nitrogen exports; land use pattern; hydrological regime; spatiotemporal variations

近几十年来, 全球近海流域普遍存在氮(N)和磷(P)等营养盐输出通量大量增加的现象^[1,2]。河流氮通量增加会导致自然资源(土壤和淡水)退化, 生物多样性的丧失, 危害人们所依赖的生态系统服务的供给^[3,4]。随着工业化程度不断提高, 城市化进程加快, 中国近海河流受到不同程度的N污染, 加剧了我国的水资源短缺^[5], 近年来学者开始呼吁加强氮的管理以恢复中国河流水质^[6], 因此研究我国近海河流氮输出的影响机制很有必要。

河流氮输出受到流域内土地利用、水文状况和微生物N转化过程等因素影响。土地利用作为人类活动作用于生态环境的一种最显著的形式, 通过点源和非点源方式影响河流氮输出, 是导致河流-近海水体退化的主要因素^[7]。流域水文过程和生物地球化学过程是驱动河流氮输出季节或年际变化的两大重要机制^[8,9]。已有研究发现, 城市远郊、近郊以及

城市流域内由城市化引起的水文状况变化对河流氮输出起到增益效应^[10,11]。但是, 这些人为和自然因素对河流氮输出的影响程度和方式会随着时间和空间的变化而变化^[12]。从土地利用模式和水文状况的视角揭示河流氮输出时空变异性的驱动机制, 是值得深入探讨的科学问题。

因此, 本文以涉及近千万人用水安全, 且深受自然和人类双重扰动的亚热带中尺度近海流域——九龙江流域为研究对象, 基于流域内不同主导土地利用类型源头小流域 2010 ~ 2017 年水质监测数据和模拟流量数据, 分析典型小流域河流氮输出对土地

收稿日期: 2020-11-16; 修订日期: 2020-12-29

基金项目: 国家自然科学基金项目(41471154; 41971231); 福建省中青年教师教育科研项目(科技类)(JAT190629)

作者简介: 黄亚玲(1988~), 女, 博士, 助理研究员, 主要研究方向为流域水环境, E-mail: yluang@mju.edu.cn

* 通信作者, E-mail: jluang@xmu.edu.cn

利用模式和水文状况的响应机制, 以期为九龙江流域或中国其他近海流域水环境管理者 and 决策者提供有益参考, 协助其从土地利用和气候变化影响的视角制定河流氮的管理策略.

1 材料与方法

1.1 研究区域

九龙江流域 (116° 46' 55" ~ 118° 02' 17" E, 24°23'53" ~ 25°53'38"N) 作为福建省第二大流域, 流

域总面积为 $1.47 \times 10^4 \text{ km}^2$, 主要由北溪、西溪两大干流构成, 两干流在漳州汇合, 由厦门港入海 (图 1). 2010 ~ 2017 年流域平均年降雨量为 920.2 ~ 1 737.3 mm, 年均降雨量由内地向沿海递减. 流域的降雨量季节变化明显, 主要降雨集中在 4 ~ 9 月, 约占全年降雨量 70% 以上. 年均径流量为 $1.49 \times 10^{10} \text{ m}^3$, 其中北溪年平均径流量 (浦南断面) 为 $9.47 \times 10^9 \text{ m}^3$, 西溪年平均径流量 (郑店断面) 为 $4.28 \times 10^9 \text{ m}^3$.

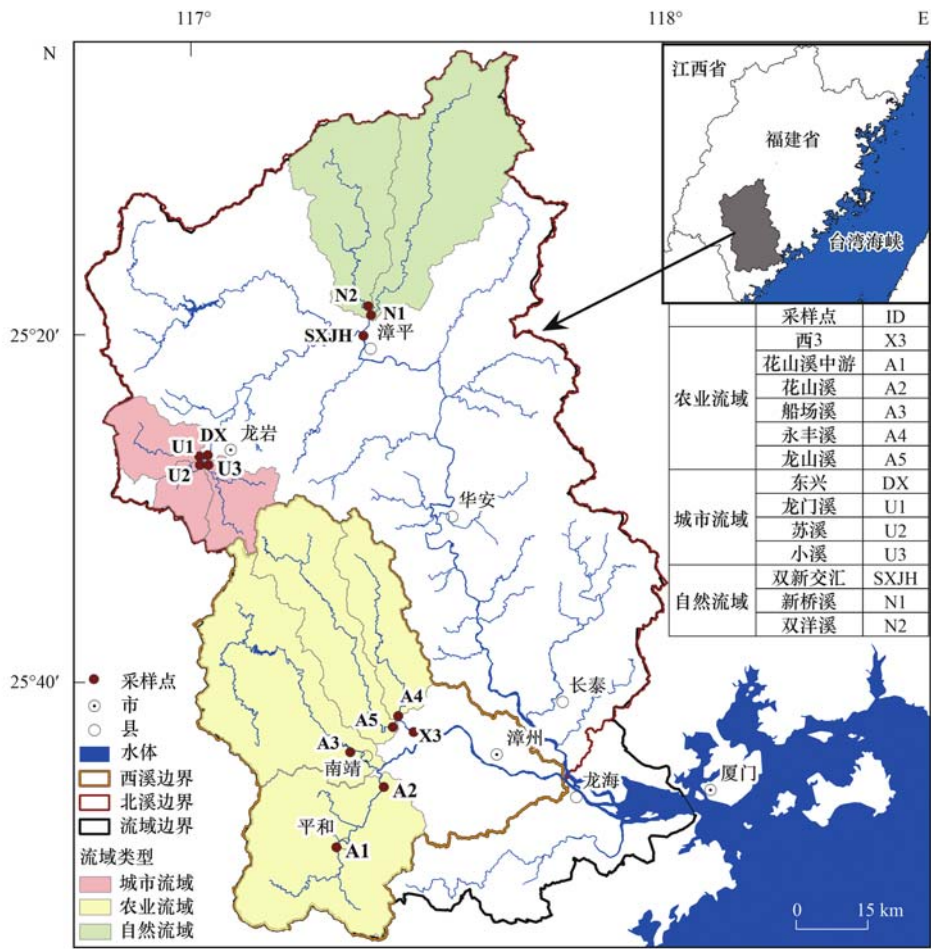


图 1 采样点位分布情况示意
Fig. 1 Location of sampling sites

1.2 水文年/季节划分

本研究分别计算 1961 ~ 2002 年北溪和西溪的年平均径流深 (runoff), 并将 2010 ~ 2017 年北溪和西溪的各年平均径流深与平均值对比, 高于平均值的定义为丰水年, 反之则为枯水年^[13]. 结果表明, 对于北溪而言, 2010、2012 ~ 2014 和 2016 年为丰水年; 2011、2015 和 2017 年为枯水年. 对于西溪而言, 2010、2013 和 2016 年为丰水年; 2011 ~ 2012、2014 ~ 2015 和 2017 年则为枯水年. 此外, 对 1961 ~ 2002 年月径流量数据计算四分位数, 以 25% 和 75% 位置上的值定义不同水

期: 枯水期 ($P < 25\%$): 11、12 和 1 月; 平水期 (P 为 $25\% \sim 75\%$): 2、3、7、9 和 10 月; 丰水期 ($P > 75\%$): 4、5、6 和 8 月^[8]. 2010 ~ 2017 年间, 由于降雨量的季节变化导致枯水年平水期的径流量反而高于丰水期, 但是为了对比丰水年和枯水年同一采样时间段内氮浓度及氮输出负荷的变化趋势, 不同水文年丰水期、平水期和枯水期的划分均参照上述划分依据.

1.3 水质监测与分析

本研究遴选 10 个不同主导土地利用模式源头小流域, 设置 13 个采样点开展基流水质调查与采样

分析. 小流域类型分别包括: 城市流域(U1 ~ U3 和 DX)、农业流域(A1 ~ A5)和自然流域(N1、N2 和 SXJH). 农业、城市和自然流域的划分原则为: 建设用地比例高于 8% 的流域为城市流域, 农业用地比例高于 10% 的流域为农业流域, 林地比例高于 80% 的为自然流域, 划分依据参考文献[8, 14], 并综合考虑流域地理位置等因素设计.

河流氮的监测时间为 2010 ~ 2017 年, 其中, 2010 年 3 月 ~ 2013 年 12 月采样频率为 3 次·a⁻¹, 平水期(2 或 3 月)、丰水期(8 月)和枯水期(11 月); 2014 年 1 ~ 12 月, 监测频率为 1 次·月⁻¹; 2015 年 3 月 ~ 2016 年 3 月, 采样频率为 2 次·月⁻¹; 2016 年 4 月 ~ 2017 年 12 月, 采样频率为 1 次·月⁻¹. 本研究中使用有机玻璃采水器(型号为 WB-PM, 2 L)采集约 0.5 m 深河流表层水, 水样装于聚乙烯瓶(500 mL), 运输过程中样品保存于 4℃ 采样箱中. 主要监测指标包括: 总氮(TN)、氨氮(NH₄⁺-N)、硝态氮(NO₃⁻-N)和亚硝态氮(NO₂⁻-N), 所有指标均在 48 h 内完成测定, 实验原理及步骤详见文献[15]. 其中 TN 和 NO₂⁻-N 的浓度于 2015 年 3 月开始监测, 因此, 河流氮输出的年际变化模式分析中仅考虑 NH₄⁺-N 和 NO₃⁻-N.

1.4 研究方法

1.4.1 流量模拟

鉴于大部分小流域出口未设置水文站点, 本研究所使用的日流量数据(2010 年 1 月 ~ 2017 年 12 月)是基于九龙江流域已构建的 HSPF 模型^[16]模拟所得. 对于北溪而言, 校准期 HSPF 模型的纳什系数(nash-sutcliffe efficiency coefficient, E_{ns})和决定系数(R^2)分别为 0.60 和 0.61, 验证期为 0.67 和 0.67; 对于西溪而言, 校准期的 E_{ns} 和 R^2 分别为 0.67 和 0.70, 验证期的 E_{ns} 和 R^2 分别为 0.79 和 0.80. 总体而言, HSPF 模型在九龙江流域日径流量模拟效果较好.

1.4.2 土地利用数据获取

本研究选用 2010 和 2016 年 Landsat TM 遥感影像数据, 影像分辨率为 30 m, 采用基于光谱特征的分类方法, 运用交互式拉伸(interactive contrast stretching)、ISODATA 聚类算法(ISODATA clustering algorithm)和再分类(reclassification)相结合解译 2010 和 2016 年 TM 遥感影像, 获取土地利用/覆被数据, 最后将土地利用数据归并成 6 大类: 林地、农业用地、水体、建设用地、果园和未利用地. 2010 和 2016 年再分类后的遥感影像精度分别为 83.7% 和 90.0%, 符合本研究对土地利用数据的精度要求.

1.4.3 输出负荷计算

首先, 采用全局均值法(global mean method, GM)和流量权重法(flow weighted method, FW)^[13]计算河流氮的输出通量. 当研究期间内的水质监测次数 < 2 时, 仅使用全局均值法计算通量, 例如日输出通量的计算. 其次, 将两种方法计算的结果取平均值, 减少一些如水文状况等引起的不确定性因素的影响^[17]. 最后, 基于研究期内的输出通量平均值计算不同类型流域单位面积的氮输出量, 即输出负荷, 用于后续的分析.

1.4.4 数理统计方法

应用 One-Sample Kolmogorov-Smirnov Test 检验水质指标 TN、NO₃⁻-N、NH₄⁺-N、NO₂⁻-N 浓度和输出负荷以及土地利用面积百分比(Forest%、Cropland%、Orchard% 和 Builtup%)、径流深是否符合正态分布, 对于不符合正态分布的指标进行 ln 转换, 使之符合正态分布. 应用 Kruskal-Wallis 非参数检验研究各类样本总体分布是否有显著差异; 应用 Pearson 相关分析研究不同变量(如氮浓度和输出负荷与土地利用、人口密度和径流深)之间的关系.

2 结果与分析

2.1 不同类型小流域径流深季节变化模式

在枯水年, 农业、城市和自然流域的日平均径流深最高值分别为 2.16、1.96 和 1.69 mm(表 1), 均出现在平水期, 最低值依次为 1.71、1.69 和 1.51 mm, 则发生在枯水期, 但除了农业流域, 其他类型流域的季节差异性不显著($P > 0.05$). 在丰水年, 丰水期的日平均径流深最高[(4.51 ± 1.36) mm], 枯水期的最低[(1.16 ± 0.16) mm], 且不同季节的差异性显著($P < 0.05$).

表 1 枯水年和丰水年不同水期农业、城市和自然流域日平均径流深/mm

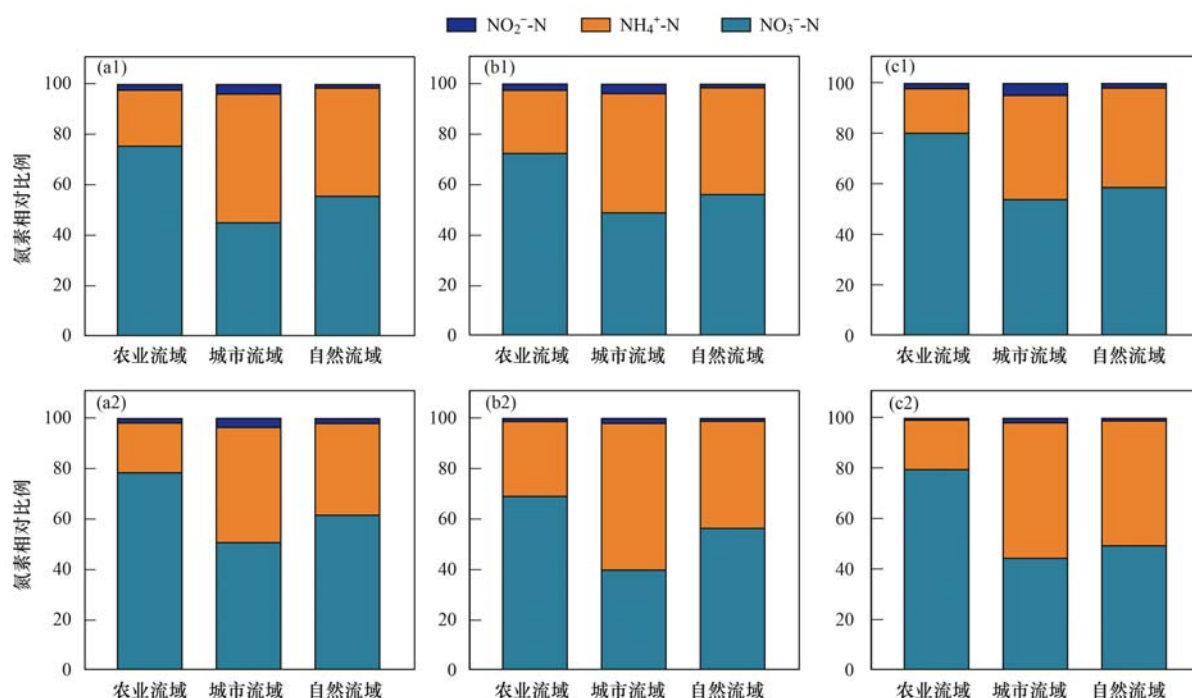
Table 1 Average daily runoff for different sampling seasons of agricultural, urban, and forest watersheds during drought and wet years/mm

流域	水期	枯水年	丰水年
农业	枯水期	1.71 ± 2.36	1.33 ± 0.68
	平水期	2.16 ± 2.53	2.77 ± 2.37
	丰水期	2.06 ± 1.49	3.64 ± 2.70
城市	枯水期	1.69 ± 1.51	1.12 ± 0.55
	平水期	1.96 ± 1.64	3.00 ± 4.20
	丰水期	1.72 ± 1.26	6.30 ± 9.35
自然	枯水期	1.51 ± 1.52	1.02 ± 0.43
	平水期	1.69 ± 1.24	2.64 ± 3.23
	丰水期	1.62 ± 1.19	4.47 ± 5.41

2.2 河流氮素的组成结构

九龙江流域河流的溶解态无机氮主要由 NO_3^- -N和 NH_4^+ -N组成,平均贡献比例达95%以上(图2)。不同类型流域的主导无机氮形态存在差异。农业流域和自然流域的主导形态为 NO_3^- -N,平均贡献比例分别为:51.7%~87.9%和55.5%~56.5%。城市流域 NH_4^+ -N的平均比重略高于 NO_3^- -N。在农业流域,

所有水期主导的溶解态无机氮均为 NO_3^- -N,尤其是在丰水期。在城市流域,枯水年的枯水期以及丰水年的平水期和丰水期, NH_4^+ -N占主导(50.8%~58.1%),而在其他水期则转变为 NO_3^- -N(49.2%~54.2%)。在自然流域,虽然 NO_3^- -N也是主导的无机氮形态,但是在枯水年丰水期的比重最大,在丰水年则转为枯水期硝态氮的主导作用最明显。



(a1) 枯水年-枯水期; (b1) 枯水年-平水期; (c1) 枯水年-丰水期; (a2) 丰水年-枯水期; (b2) 丰水年-平水期; (c2) 丰水年-丰水期

图2 枯水年和丰水年不同水期氮素组成结构

Fig. 2 Nitrogen composition for different sampling seasons during drought and wet years

2.3 河流氮输出季节变化模式

农业流域各季节的TN(6.13~8.81 $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$) 和 NO_3^- -N平均浓度(4.16~5.25 $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$)均最高,城市流域(TN: 2.29~4.79 $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 和 NO_3^- -N: 1.60~2.86 $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$)次之(图3); NH_4^+ -N浓度的空间变化趋势为:城市流域(1.26~2.02 $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$) > 农业流域(1.17~1.71 $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$) > 自然流域(0.40~0.85 $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$); 农业和城市流域的 NO_2^- -N平均浓度无明显季节差异,但明显高于自然流域。在枯水年和丰水年,大部分季节农业流域的TN、 NO_3^- -N日均负荷均是最高,分别为8.50~27.31 $\text{kg}\cdot(\text{km}^2\cdot\text{d})^{-1}$ 和5.53~14.50 $\text{kg}\cdot(\text{km}^2\cdot\text{d})^{-1}$,自然流域最小;大部分季节里城市流域的 NH_4^+ -N日均负荷[1.65~7.45 $\text{kg}\cdot(\text{km}^2\cdot\text{d})^{-1}$]最高,农业流域次之(1.80~5.28) $\text{kg}\cdot(\text{km}^2\cdot\text{d})^{-1}$;在枯水年,各季节的 NO_2^- -N日均负荷均为农业流域 > 城市流域 > 自然流域的变化趋势,在丰水年,除了枯水期外,其他两个水期的空间变化模式均为:城市流域 > 农业流域 > 自然流域。

对于TN浓度而言,无论在丰水年还是枯水年,大部分流域均为丰水期最高,枯水期最低。在枯水年,不同季节农业、城市 and 自然流域的 NO_3^- -N浓度无明显差异,而在丰水年, NO_3^- -N浓度在平水期或枯水期更高,丰水期最低。在枯水年,农业流域和城市流域的 NH_4^+ -N浓度最高值出现在枯水期[分别为(1.23±0.73) $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 和(1.75±0.78) $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$],而自然流域的最高平均浓度则出现在平水期,为(0.85±0.51) $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$;在丰水年,农业流域和城市流域最高浓度出现在平水期,而自然流域丰水期的 NH_4^+ -N高于其他两个水期。对于 NO_2^- -N而言,在枯水年,丰水期的浓度略高于其他两个水期,而在丰水年农业流域和城市流域的最高浓度则出现在枯水期。但是,无论在枯水年或丰水年,大部分流域的氮指标浓度无显著的季节差异性($P>0.05$)。对于不同水文年而言,大部分类型流域丰水年的TN、 NO_3^- -N和 NH_4^+ -N浓度高于枯水年,尤其在丰水期,且丰水年不同类型流域的氮浓度的季节差异性更显著。

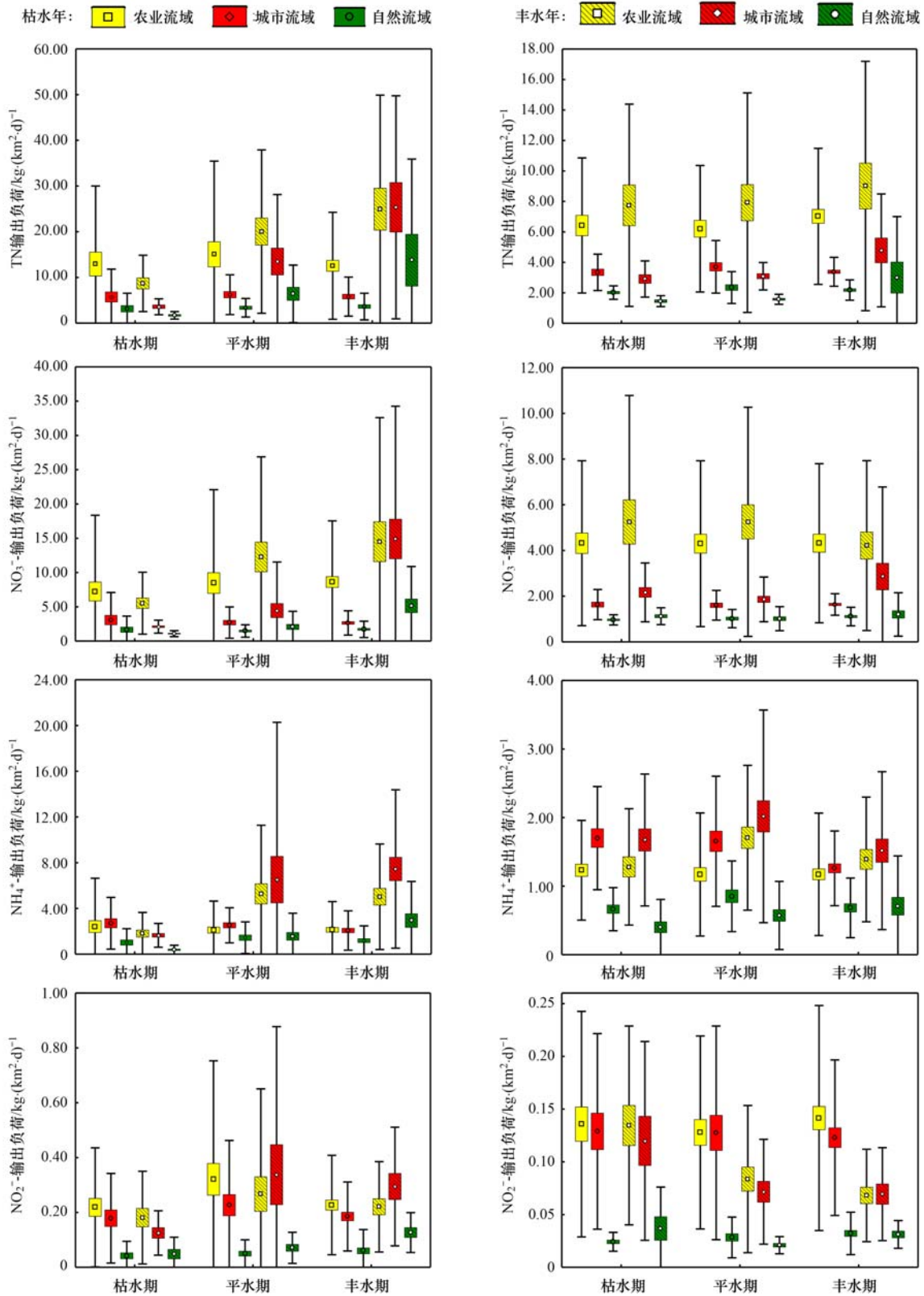


图3 枯水年和丰水年不同水期不同类型小流域 N 指标日平均输出负荷及浓度

Fig. 3 Average daily nitrogen exports and concentrations for different sampling seasons of different watershed types during drought and wet years

著(图3), NO_2^- -N 的浓度则在枯水年更高。

对于农业流域而言,在枯水年,3个水期的 TN 日均负荷变化范围为 $12.42 \sim 15.02 \text{ kg} \cdot (\text{km}^2 \cdot \text{d})^{-1}$,最高值出现在平水期,而丰水年丰水期的日均输出负荷最高,这与日均径流深季节变

化趋势一致;在枯水年,丰水期 NO_3^- -N 的日均负荷略高于平水期和枯水期,与浓度的变化趋势一致,但在丰水年,丰水期的日均负荷最高,平水期次之,变化趋势与径流深一致;在枯水年和丰水年, NH_4^+ -N 日均负荷变化范围分别为 $2.11 \sim 2.41$

$\text{kg} \cdot (\text{km}^2 \cdot \text{d})^{-1}$ 和 $1.80 \sim 5.28 \text{ kg} \cdot (\text{km}^2 \cdot \text{d})^{-1}$, 趋势与其浓度的季节变化模式一致; 在不同水文年, NO_2^- -N 的日均负荷值变化趋势均为: 平水期 > 丰水期 > 枯水期, 在枯水年主要受径流深季节变化的影响, 在丰水年浓度和径流的变化共同影响其季节变化趋势。

对于城市流域而言, 在枯水年, 平水期的 TN 日均负荷最高, 在丰水年则是丰水期最高, 说明城市流域 TN 日均负荷值的变化主要受径流深变化影响; 在枯水年, 3 个水期的 NO_3^- -N 日均负荷差异微小, 在丰水年的丰水期则明显高于枯水期和平水期; 在枯水年, NH_4^+ -N 的日均负荷的变化趋势为: 枯水期 > 平水期 > 丰水期, 与其浓度的变化趋势一致, 在丰水年的变化趋势则反之, 与径流的变化趋势一致; 对 NO_2^- -N 而言, 在枯水年和丰水年的日均负荷变化趋势与农业流域一致。

对于自然流域而言, 在不同水文年, TN 的日均负荷变化趋势均是丰水期 > 平水期 > 枯水期, 但丰水年的季节波动性明显高于枯水年。在枯水年和丰

水年, NO_3^- -N 日均负荷最高值均出现在丰水期, 与浓度的变化趋势一致; NH_4^+ -N 日均负荷最高值分别出现在平水期和丰水期。在枯水年, 丰水期的 NO_2^- -N 的日均负荷值高于其他两个水期, 与浓度的变化趋势一致, 而在丰水年的变化趋势与日径流深的变化趋势一致。

2.4 河流氮输出的年际变化模式

农业流域的 NO_3^- -N 年平均浓度 ($3.1 \sim 5.9 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$) 高于城市流域 ($1.5 \sim 3.2 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$) 和自然流域 ($0.5 \sim 1.2 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$); 城市流域的 NH_4^+ -N 平均浓度 ($0.9 \sim 2.5 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$) 最高, 农业流域 ($0.3 \sim 1.6 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$) 次之 (图 4)。农业流域 NO_3^- -N 和 NH_4^+ -N 浓度呈波动式上升趋势, 在 2016 年二者的年平均浓度达到最高值, 最低值分别出现在 2013 年和 2010 年。城市流域的 NO_3^- -N 平均浓度呈波动式下降趋势, 在 2012 年平均浓度最高, 2015 年则最低; NH_4^+ -N 平均浓度的年际变化较为剧烈, 呈先下降后上升的趋势, 在 2014 年最低, 而后持续上升, 到 2016 年达到一个小高峰, 2017 年的平均浓度较 2016 年有所下

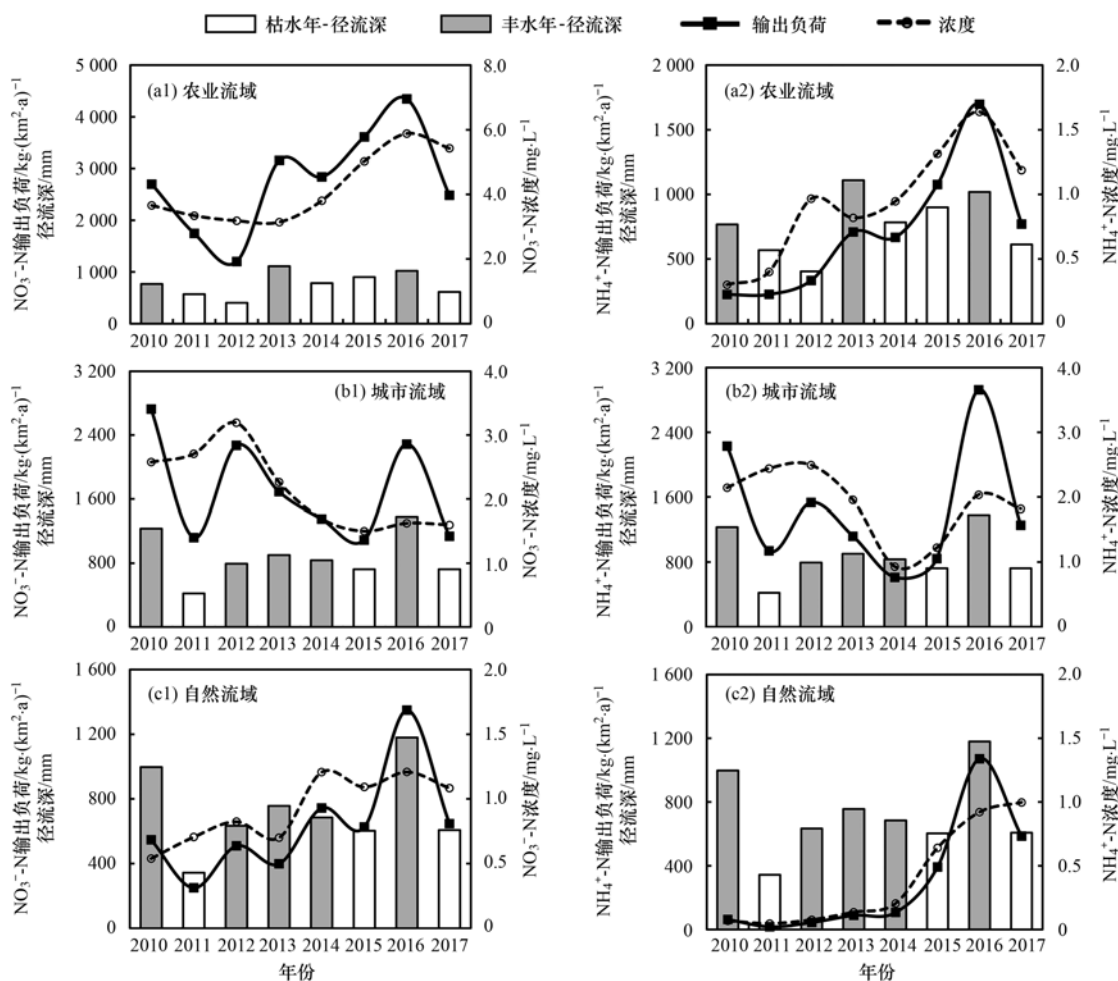


图 4 2010 ~ 2017 年不同类型流域 NO_3^- -N 和 NH_4^+ -N 年输出负荷、年平均浓度和径流深变化

Fig. 4 Annual variations in average annual runoff, exports, and concentrations of NO_3^- -N and NH_4^+ -N during 2010-2017 for agricultural, urban, and forest watersheds

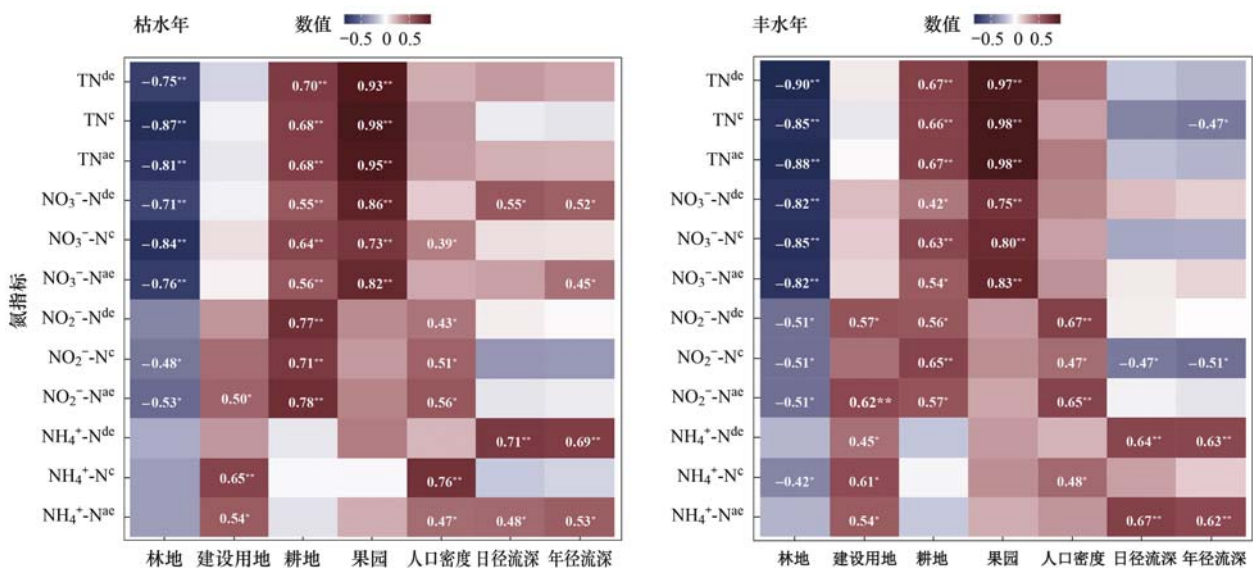
降. 2010 ~ 2017 年, 自然流域的 NO_3^- -N 浓度年际变化幅度较小, 呈小幅度上升趋势; 2010 ~ 2014 年, NH_4^+ -N 浓度变化不明显, 2014 ~ 2017 年则呈明显的上升趋势.

农业流域的 NO_3^- -N 年平均负荷变化范围为 $1\,203.3 \sim 4\,347.3 \text{ kg} \cdot (\text{km}^2 \cdot \text{a})^{-1}$, 而城市流域和自然流域分别为 $1\,090.8 \sim 2\,725.9 \text{ kg} \cdot (\text{km}^2 \cdot \text{a})^{-1}$ 和 $249.5 \sim 1\,348.4 \text{ kg} \cdot (\text{km}^2 \cdot \text{a})^{-1}$. 城市流域的 NH_4^+ -N 年平均负荷 $[611.8 \sim 2\,927.1 \text{ kg} \cdot (\text{km}^2 \cdot \text{a})^{-1}]$ 高于农业流域 $[225.8 \sim 1\,698.0 \text{ kg} \cdot (\text{km}^2 \cdot \text{a})^{-1}]$ 和自然流域 $[17.6 \sim 1\,072.0 \text{ kg} \cdot (\text{km}^2 \cdot \text{a})^{-1}]$. 对于农业流域, 2010 ~ 2013 年, NO_3^- -N 的年负荷值随着径流深减小而降低, 在 2014 ~ 2016 年, 年平均浓度和年输出负荷值均呈上升趋势, 在 2017 年, 年均浓度和径流深均减小, 而年输出负荷则急剧下降; 2010 ~ 2017 年, 农业流域的 NH_4^+ -N 年输出负荷与年平均浓度的变化趋势较为相似, 均呈波动式上升趋势; 对于城市流域和自然流域而言, 在 2010 ~ 2011 年和 2016 ~ 2017 年间, NO_3^- -N 的年输出负荷随着径流深的减少而减小; 在 2012 ~ 2015 年, 城市流域的 NO_3^- -N 年输出负荷随着浓度的减少而减小, 总体呈下降趋势, 而自然流域的 NO_3^- -N 负荷随着浓度的波动变化而变化. 城市流域的 NH_4^+ -N 输出负荷年际变化模式与 NO_3^- -N 基本一致, 但自然流域 NH_4^+ -N 年输出负荷持续升高, 到 2016 年达到峰值, 而 2017 年则随着径流深的减少而减小. 相比城市 and 自然流域, 农业流域的 NO_3^- -N 的年输出负荷变化幅度最大;

此外, 城市流域 NH_4^+ -N 的年输出负荷的波动性最明显. 总体而言, 除了城市流域的 NO_3^- -N 负荷最高值出现在 2010 年 (丰水年) 外, 3 种类型流域的 NO_3^- -N 和 NH_4^+ -N 年输出负荷最高值均出现在 2016 年, 而 2016 年径流深也是 2010 ~ 2017 年间相对较高的.

2.5 河流氮输出与土地利用和水文状况的关系

在枯水年, TN 和 NO_3^- -N 的平均浓度、日均输出负荷和年均输出负荷与果园和耕地面积百分比呈显著正相关, 与林地面积百分比呈显著负相关关系 (图 5). NO_2^- -N 的浓度或负荷主要与耕地面积百分比和人口密度呈显著正相关, 且其平均浓度和年均输出负荷与林地面积百分比呈显著负相关; NH_4^+ -N 浓度和年均输出负荷与建设用地面积百分比和人口密度呈显著正相关; 日径流深和年径流深与所有指标的年均浓度均无显著相关性, 仅与 NO_3^- -N 和 NH_4^+ -N 的日均负荷或年均负荷呈显著正相关性. 与枯水年相比, 丰水年大部分氮指标与林地面积百分比的负相关性增强, 与耕地面积百分比的相关系数有所减小, 与果园面积百分比的相关性变化不大; 建设用地对 NH_4^+ -N 和 NO_2^- -N 的影响更广泛, 而人口密度主要与 NO_2^- -N 的浓度或负荷以及 NH_4^+ -N 浓度呈显著正相关性. 日径流深和年径流深与 NO_3^- -N 日输出负荷由枯水年的显著正相关性变为弱正相关性, 且年径流深与 TN 和 NO_2^- -N 浓度呈显著负相关关系.



上标中: c 表示浓度; de 表示日输出负荷; ae 表示年输出负荷; ** 表示显著性水平 $P < 0.01$;

* 表示显著性水平 $P < 0.05$; 无数字代表显著性水平 $P > 0.05$

图 5 不同水文年氮浓度/负荷与人口密度、土地利用和径流深的 Pearson 相关系数

Fig. 5 Pearson correlation between nitrogen concentrations, exports and population density, land use compositions, and runoff in drought and wet years

3 讨论

土地利用等人类活动是驱动河流氮输出空间变异性的主要因子^[18,19]。已有研究表明,城市化扩张和农业活动会加剧河流氮的污染程度^[6,12]。不同类型流域污染源的差异导致氮素的组成形式不同。由于农业生产的需要,大量的化学肥料和粪肥在农业流域使用,而土壤中未被农作物吸收的“富余”氮素容易通过壤中流进入河流,导致河流中 NO_3^- -N 等营养盐含量增加^[20]。城市流域的主要污染源与生活污水、工业废水等点源和非点源污染相关^[18]。从而形成农业流域的 NO_3^- -N 浓度和负荷高于城市流域和自然流域,城市流域的 NH_4^+ -N 输出最高,农业流域次之的空间变化格局,与已有的研究结论一致^[21]。

不同水文年,不同类型流域,不同氮素季节变化模式不一致。无论在丰水年还是枯水年,各类型流域的 TN 平均浓度最高值分别出现在平水期和丰水期,与径流深的季节变化趋势基本一致,表明径流会冲刷滞留于地表、土壤的氮污染物进入河流,导致河流水质退化^[22]。在枯水年,农业流域的 NO_3^- -N 平均浓度最高值出现在丰水期,且 NO_3^- -N:TN 的比值大于 NH_4^+ -N:TN,这是因为九龙江流域的化肥施用主要集中在 3~5 月,降雨季节非点源污染加剧,从而导致河流硝态氮浓度增加,说明主导污染源为农业面源污染。此外,在枯水年,丰水期的径流深较平水期而言有所下降,对水体中污染物起浓缩效应,导致污染物浓度增加。在丰水年,农业流域的 NO_3^- -N 最高浓度出现在平水期,而最低值出现在丰水期,进一步证明化肥施用等农业活动是农业流域 NO_3^- -N 的主要来源^[23]。这也说明在雨季初期地表上大量的污染物容易被雨水冲刷,随径流汇入河流导致水体中的污染物浓度增加,但随着流量增加,河流径流稀释作用占主导地位,使得水体中硝态氮浓度降低^[24]。对于城市流域和自然流域而言,在枯水年 NO_3^- -N 的季节变异性小,这主要是因为受微生物活动影响^[25],在丰水年,丰水期的 NO_3^- -N 浓度最高,枯水期次之,除了受非点源污染和水文调节的影响外,可能与土壤及河道中微生物 N 转化过程有关。例如,城市流域在枯水年的丰水期 NH_4^+ -N 浓度低,而 NO_3^- -N 和 NO_2^- -N 高,意味着存在氨氮去除现象,可能发生硝化过程^[26]。除丰水年的自然流域外,大部分类型流域的 NH_4^+ -N 浓度最高值出现在枯水期或平水期,表明 NH_4^+ -N 主要受生活污水、工业废水等点源和非点源的影响^[27],径流深的增加会稀释河水

中 NH_4^+ -N 的浓度^[28]。

不同水文年,不同氮素输出负荷季节变化驱动因子不同。例如,对于 TN 而言,无论在枯水年或丰水年,3 种类型流域输出负荷季节变化趋势均与径流深一致,意味着径流变化是控制流域内 TN 输出负荷季节变化的主导因子,这与其他区域的研究结论一致^[11,29]。但是,不同氮形态季节输出负荷对人类活动和水文状况的响应存在差异。在枯水年,大部分流域 NO_3^- -N 和 NH_4^+ -N 日均输出负荷的季节变化模式与浓度的变化趋势相似,而在丰水年主要与径流深的季节变化趋势一致,说明不同水文年河流氮输出的驱动机制存在差异。

农业流域氮输出负荷与径流深的变化趋势一致,推测农业流域的氮输出负荷年际变化主要受径流的控制^[30],枯水年流域内输入的 N,如肥料施用,可能累积于地表或土壤中,在丰水年则随着径流被冲刷进入河流^[10],这与美国中西部农业流域的研究结论一致^[31]。城市流域在 2010~2012 年和 2016~2017 年的变化趋势与径流深变化一致,在 2013~2015 年与浓度变化趋势一致。对于城市流域而言,在径流深明显增加或减少的年份,氮输出负荷主要受径流深调节,而在径流深变化不明显的年份,氮输出负荷主要与受人类活动控制的氮浓度关系更密切。在自然流域氮输出负荷年际变化模式主要与浓度的变化趋势一致。2010~2017 年氮浓度呈波动上升趋势,尤其是氨氮浓度上升较为明显。通过对比 2010 和 2015 年常住人口密度(分别为 $65 \text{ 人}\cdot\text{km}^{-2}$ 和 $97 \text{ 人}\cdot\text{km}^{-2}$)、2010 和 2016 年建设用地面积比例(分别为 1.0% 和 2.1%),发现自然流域范围内常住人口密度和建设用地比例均呈上升趋势。但是,相比城市流域,自然流域的不透水地表比例总体较低,对流域水文状况的影响相对较小,且大部分氮浓度与建设用地、农业用地和人口密度呈显著正相关关系,而与径流深无显著相关性,说明人为源输入是影响自然流域氮输出负荷年际变化趋势的一个重要控制因素^[23]。

不同土地利用类型与不同形态氮浓度和输出负荷的关系不同,证明九龙江流域不同氮形态的污染来源不同。果园和耕地等表征农业活动的土地利用模式是 NO_3^- -N 的主要“源”^[20]。目前,九龙江流域农业生产仍处于粗放式阶段,肥料施用强度大,且利用效率低,盲目施肥现象普遍。另外,坡地果园的开发尤其是幼龄果园的开发,会导致土壤侵蚀和水土流失,加剧水质恶化。九龙江现有研究也发现大量氮肥施用是导致水体氮含量增加的主要因素^[32]。建设用地是影响研究区内 NH_4^+ -N 输出的重要指标。

大部分研究普遍认为随着流域内城市用地的增长, 水体污染程度会明显加重, 如 NH_4^+ -N浓度增加^[21]. 林地与大部分水质指标浓度及输出负荷呈显著负相关关系, 说明林地比例增加能够有效缓解河流水质恶化^[28].

土地利用和水文状况是影响九龙江流域河流氮输出两个重要因素, 但是不同水文年二者对其的影响程度存在差异. 在枯水年, 土地利用对氮浓度的影响更显著, 而径流深主要影响氮输出负荷; 在丰水年, 土地利用与氮浓度和氮输出负荷的相关系数差异较小, 径流深的增加对TN和 NO_2^- -N浓度有明显的稀释作用, 仅对 NH_4^+ -N输出负荷有显著的增益效应, 结果表明九龙江流域典型小流域氮浓度主要受人类活动的影响, 而河流氮输出负荷受人类活动和水文状况的双重控制. 此外, 城市流域和农业流域氮输出的季节和年际的绝对变化量比自然流域更高, 尤其在径流深显著增加的年份, 说明与气候状况相关的水文过程对农业流域和城市流域的氮输出可能存在增益作用^[11]. 已有的研究也发现九龙江流域城市和农业小流域对气候变化的响应更敏感^[33], 这可能因为城市流域和农业流域受人类活动干扰强度大, 在枯水年或枯水期污染物在流域内累积, 而在丰水年或丰水期则容易被冲刷出来, 随降雨径流汇入河流^[34].

4 结论

(1) 典型小流域河流氮输出存在显著的空间差异性. 农业流域的 NO_3^- -N浓度和输出负荷最高, 而城市流域的 NH_4^+ -N浓度和输出负荷最高.

(2) 大部分类型流域丰水年的TN、 NO_3^- -N和 NH_4^+ -N浓度高于枯水年, 且丰水年氮浓度的季节差异性更明显. 不同类型流域河流氮输出负荷年际变化模式不一致. 农业流域河流氮年输出负荷与径流深的变化趋势一致, 城市流域在2010~2012年、2016~2017年间的变化趋势与径流变化一致, 而在2013~2015年与浓度变化趋势一致; 在自然流域, 河流氮输出负荷主要与浓度的变化趋势一致.

(3) 土地利用、人口密度和径流深是影响氮浓度和输出负荷的重要因子, 总体而言, 河流氮浓度的变化趋势主要受人类活动的影响, 而河流氮输出负荷的变化趋势受人类活动和水文状况等共同控制.

参考文献:

- [1] Goyette J O, Bennett E M, Maranger R. Low buffering capacity and slow recovery of anthropogenic phosphorus pollution in watersheds [J]. *Nature Geoscience*, 2018, **11** (12): 921-925.
- [2] Hu M P, Liu Y M, Zhang Y F, *et al.* Long-term (1980-2015) changes in net anthropogenic phosphorus inputs and riverine phosphorus export in the Yangtze River basin [J]. *Water Research*, 2020, **177**, doi: 10.1016/j.watres.2020.115779.
- [3] Whitehead P G, Crossman J. Macronutrient cycles and climate change: key science areas and an international perspective [J]. *Science of the Total Environment*, 2012, **434**: 13-17.
- [4] Sinha E, Michalak A M, Calvin K V, *et al.* Societal decisions about climate mitigation will have dramatic impacts on eutrophication in the 21st century [J]. *Nature Communication*, 2019, **10** (1), doi: 10.1038/s41467-019-08884-w.
- [5] Ma T, Sun S A, Fu G T, *et al.* Pollution exacerbates China's water scarcity and its regional inequality [J]. *Nature Communications*, 2020, **11** (1), doi: 10.1038/s41467-020-14532-5.
- [6] Yu C Q, Huang X, Chen H, *et al.* Managing nitrogen to restore water quality in China [J]. *Nature*, 2019, **567** (7749): 516-520.
- [7] Xia X H, Zhang S B, Li S L, *et al.* The cycle of nitrogen in river systems: sources, transformation, and flux [J]. *Environmental Science: Processes & Impacts*, 2018, **20** (6): 863-891.
- [8] Huang J L, Huang Y L, Zhang Z Y. Coupled effects of natural and anthropogenic controls on seasonal and spatial variations of river water quality during baseflow in a coastal watershed of southeast China [J]. *PLoS One*, 2014, **9** (3), doi: 10.1371/journal.pone.0091528.
- [9] Dalu T, Wasserman R J, Magoro M L, *et al.* River nutrient water and sediment measurements inform on nutrient retention, with implications for eutrophication [J]. *Science of the Total Environment*, 2019, **684**: 296-302.
- [10] Wollheim W M, Pellerin B A, Vörösmarty C J, *et al.* N retention in urbanizing headwater catchments [J]. *Ecosystems*, 2005, **8** (8): 871-884.
- [11] Kaushal S S, Groffman P M, Band L E, *et al.* Interaction between urbanization and climate variability amplifies watershed nitrate export in Maryland [J]. *Environmental Science & Technology*, 2008, **42** (16): 5872-5878.
- [12] Zhou P, Huang J L, Hong H S. Modeling nutrient sources, transport and management strategies in a coastal watershed, Southeast China [J]. *The Science of the Total Environment*, 2018, **610-611**: 1298-1309.
- [13] Huang Y L, Huang J L, Ayu E, *et al.* Land use and climate variability amplifies watershed nitrogen exports in coastal China [J]. *Ocean & Coastal Management*, 2021, **207**, doi: 10.1016/j.ocecoaman.2018.02.024.
- [14] LAWA. German guidance document for the implementation of the EC water framework directive [EB/OL]. http://www.lawa.de/documents/arbeitshilfe_englisch_1552307273.pdf, 2003-04-30.
- [15] 国家环境保护总局. 水和废水监测分析方法 [M]. (第四版). 北京: 中国环境科学出版社, 2002.
- [16] 周培. 流域尺度土地利用与水质关联研究的理论分析和实践 [D]. 厦门: 厦门大学, 2016.
- [17] Huang J C, Lee T Y, Kao S J, *et al.* Land use effect and hydrological control on nitrate yield in subtropical mountainous watersheds [J]. *Hydrology and Earth System Sciences*, 2012, **16** (3): 699-714.
- [18] Barnes R T, Raymond P A. Land-use controls on sources and processing of nitrate in small watersheds: insights from dual isotopic analysis [J]. *Ecological Applications*, 2010, **20** (7): 1961-1978.
- [19] Zhang X X, Yi Y J, Yang Z F. Nitrogen and phosphorus

- retention budgets of a semiarid plain basin under different human activity intensity[J]. *Science of the Total Environment*, 2020, **703**, doi: 10.1016/j.scitotenv.2019.134813.
- [20] Marinos R E, Van Meter K J, Basu N B. Is the river a chemostat?: scale versus land use controls on nitrate concentration-discharge dynamics in the upper Mississippi River basin[J]. *Geophysical Research Letters*, 2020, **47**(16), doi: 10.1029/2020GL087051.
- [21] Bu H M, Zhang Y, Meng W, *et al.* Effects of land-use patterns on in-stream nitrogen in a highly-polluted river basin in northeast China[J]. *Science of the Total Environment*, 2016, **553**: 232-242.
- [22] Wong W W, Pottage J, Warry F Y, *et al.* Stable isotopes of nitrate reveal different nitrogen processing mechanisms in streams across a land use gradient during wet and dry periods [J]. *Biogeosciences*, 2018, **15**(13): 3953-3965.
- [23] Webster J R, Stewart R M, Knoepp J D, *et al.* Effects of instream processes, discharge, and land cover on nitrogen export from southern Appalachian Mountain catchments [J]. *Hydrological Processes*, 2019, **33**(2): 283-304.
- [24] 曹瑞霞, 刘京, 邓开开, 等. 三峡库区典型紫色土小流域径流及氮磷流失特征[J]. *环境科学*, 2019, **40**(12): 5330-5339.
- Cao R X, Liu J, Deng K K, *et al.* Characteristics of nitrogen and phosphorus losses and runoff in a typical purple soil watershed in the Three Gorges Reservoir area [J]. *Environmental Science*, 2019, **40**(12): 5330-5339.
- [25] Chen N W, Hong H S. Nitrogen export by surface runoff from a small agricultural watershed in southeast China: seasonal pattern and primary mechanism[J]. *Biogeochemistry*, 2011, **106**(3): 311-321.
- [26] 梁杏, 孙立群, 张鑫, 等. 无机态氮素转化机制及水土体氮源识别方法[J]. *环境科学*, 2020, **41**(9): 4333-4344.
- Liang X, Sun L Q, Zhang X, *et al.* Mechanism of inorganic nitrogen transformation and identification of nitrogen sources in water and soil[J]. *Environmental Science*, 2020, **41**(9): 4333-4344.
- [27] Ervinia A, Huang J L, Zhang Z Y. Nitrogen sources, processes, and associated impacts of climate and land-use changes in a coastal China watershed: insights from the INCA-N model[J]. *Marine Pollution Bulletin*, 2020, **159**, doi: 10.1016/j.marpolbul.2020.111502.
- [28] 卓泉龙, 林罗敏, 王进, 等. 广州流溪河氮磷浓度的季节变化和空间分布特征[J]. *生态学杂志*, 2018, **37**(10): 3100-3109.
- Zhuo Q L, Lin L M, Wang J, *et al.* Seasonal and spatial variation of nitrogen and phosphorus concentrations in Liuxi River in Guangzhou[J]. *Chinese Journal of Ecology*, 2018, **37**(10): 3100-3109.
- [29] 陈仕奇, 龙翼, 严冬春, 等. 三峡库区石盘丘小流域氮磷输出形态及流失通量[J]. *环境科学*, 2020, **41**(3): 1276-1285.
- Chen S Q, Long Y, Yan D C, *et al.* Characteristics of nitrogen and phosphorus output and loss flux in the Shipanqiu watershed, Three Gorges Reservoir area[J]. *Environmental Science*, 2020, **41**(3): 1276-1285.
- [30] Rodríguez-Blanco M L, Taboada-Castro M M, Taboada-Castro M T, *et al.* Relating nitrogen export patterns from a mixed land use catchment in NW Spain with rainfall and streamflow [J]. *Hydrological Processes*, 2015, **29**(12): 2720-2730.
- [31] Kalkhoff S J, Hubbard L E, Tomer M D, *et al.* Effect of variable annual precipitation and nutrient input on nitrogen and phosphorus transport from two Midwestern agricultural watersheds [J]. *Science of the Total Environment*, 2016, **559**: 53-62.
- [32] Huang Y L, Huang J L, Ervinia A, *et al.* Tracking riverine nitrate sources under changing land use pattern and hydrologic regime[J]. *Marine Pollution Bulletin*, 2020, **152**, doi: 10.1016/j.marpolbul.2020.110884.
- [33] Ervinia A, Huang J L, Huang Y L, *et al.* Coupled effects of climate variability and land use pattern on surface water quality: an elasticity perspective and watershed health indicators [J]. *Science of the Total Environment*, 2019, **693**, doi: 10.1016/j.scitotenv.2019.133592.
- [34] Kaushal S S, Mayer P M, Vidon P G, *et al.* Land use and climate variability amplify carbon, nutrient, and contaminant pulses: a review with management implications[J]. *Journal of the American Water Resources Association*, 2014, **50**(3): 585-614.

CONTENTS

Transmission of Coronavirus via Aerosols and Influence of Environmental Conditions on Its Transmission	LI Xue, JIANG Jing-kun, WANG Dong-bin, <i>et al.</i> (3091)
Impacts of Meteorology and Emission Variations on PM _{2.5} Concentration Throughout the Country During the 2020 Epidemic Period	LU Shi-ze, SHI Xu-rong, XUE Wen-bo, <i>et al.</i> (3099)
Factors and Their Interaction Effects on the Distribution of PM _{2.5} in the Yangtze River Delta Based on Grids	HUANG Xiao-gang, ZHAO Jing-bo, XIN Wei-dong (3107)
Application of ARIMA Model for Mid- and Long-term Forecasting of Ozone Concentration	LI Ying-ruo, HAN Ting-ting, WANG Jun-xia, <i>et al.</i> (3118)
Pollution Characteristics and Sources of Wintertime Atmospheric Brown Carbon at a Background Site of the Yangtze River Delta Region in China	ZHAO Yu, WU Can, WANG Yi-qian, <i>et al.</i> (3127)
Spatio-temporal Variation Characteristics Monitored by Remotely Sensed Technique of PM _{2.5} Concentration and Its Influencing Factor Analysis in Sichuan Basin, China	LI Meng-zhen, ZHANG Ting-bin, YI Gui-hua, <i>et al.</i> (3136)
Construction of Continuous Dynamic Model for River Networks and Its Application in Simulation of Spatiotemporal Migration of Typical Biocides	XING Cheng, ZHANG Qian-qian, CAI Ya-ya, <i>et al.</i> (3147)
Response of Riverine Nitrogen Exports to Land Use Pattern and Hydrological Regime in the Jiulong River Watershed	HUANG Ya-ling, HUANG Jin-liang (3156)
Correlation Between Microplastics Pollution and Eutrophication in the Near Shore Waters of Dianchi Lake	YUAN Hai-ying, HOU Lei, LIANG Qi-bin, <i>et al.</i> (3166)
Analysis of Water Quality and Exchange Flux of Interstitial Water-Overlying Water in Sediments of Baiyangdian Entrance Area in Summer	ZHANG Tian-na, ZHOU Shi-lei, CHEN Zhao-ying, <i>et al.</i> (3176)
Distribution Characteristics and Pollution Evaluation of Nitrogen and Organic Matter in Overlying Water and Sediment of Guyun River and Jinshan Lake in Zhenjiang City	YUAN Lu-bin, XING Shu-yu, LIU Xin, <i>et al.</i> (3186)
Spatial Distribution Characteristics of Phosphorus Fractions and Release Risk in Sediments of Honghu International Importance Wetland	LIU Yong-jiu, HUANG Su-zhen, ZHANG Lu, <i>et al.</i> (3198)
Pollution Distribution and Ecological Risk Assessment of Heavy Metals in River Sediments from the Ancient Town of Suzhou	BAI Dong-rui, ZHANG Tao, BAO Jun-song, <i>et al.</i> (3206)
Spatio-temporal Distribution Characteristic and Risk Assessment of Heavy Metals in Soils Around Centralized Drinking Water Sources in Wuhan	ZHU Jing, HOU Yao-zong, ZOU Shu-cheng, <i>et al.</i> (3215)
Hydro-chemical Characteristics and Ion Origin Analysis of Surface Groundwater at the Shengjin Lake and Yangtze River Interface	CUI Yu-huan, WANG Jie, LIU You-cun, <i>et al.</i> (3223)
Identifying the Sources of Groudwater NO ₃ ⁻ -N in Agricultural Region of Qingdao	KOU Xin-yue, DING Jun-jun, LI Yu-zhong, <i>et al.</i> (3232)
Analysis of Phytoplankton Community Stability and Influencing Factors in a Tributary of the Three Gorges Reservoir	HE Shu-han, OUYANG Tian, ZHAO Lu, <i>et al.</i> (3242)
Distribution Characteristics and Influencing Factors of Phytoplankton Community in Harbin Urban River Network During Wet Season	LU Feng, LI Lei, QI Qing-song, <i>et al.</i> (3253)
Response of Microbial Community to Natural Organic Matter Input in Lake Sediments	JU Qi, ZHANG Qi, CAO Chi-cheng, <i>et al.</i> (3263)
Effects of Water Supply Quality and Social Activity on the Microbial Community in Baiyangdian Wetland	ZHAO Zhi-rui, WU Hui-qing, BI Yu-fang, <i>et al.</i> (3272)
Characteristics of Dissolved Organic Matter in Overlying Water During Algal Bloom Decay	LI Xiang, LI Zhi-chun, WANG Xuan, <i>et al.</i> (3281)
Water Pollution Characteristics and Source Apportionment in Rapid Urbanization Region of the Lower Yangtze River: Considering the Qinhuai River Catchment	MA Xiao-xue, GONG Chang, GUO Jia-xun, <i>et al.</i> (3291)
Contamination Characteristics of Surface Runoff in Densely Populated Areas in Downstream Yangtze River, China	GUO Wen-jing, ZHANG Zhi-yong, WEN Xue-zheng, <i>et al.</i> (3304)
Characteristics of Pollutant Dynamics Under Rainfall-Runoff Events in the Chaohe River Watershed	BAO Xin, JIANG Yan, HU Yu-cong (3316)
Influence of Impervious Surface Roughness on Accumulation and Erosion of Urban Non-Point Source Particles	SHAN Xi-huan, XIE Wen-xia, LIAO Yun-jie, <i>et al.</i> (3328)
Probabilistic Risk Assessment of Arsenic Exposure Through Drinking Water Intake in Chinese Residents	QIN Ning, LIU Yun-wei, HOU Rong, <i>et al.</i> (3338)
Removal Behavior of Protein-like Dissolved Organic Matter During Different Water Treatment Processes in Full-Scale Drinking Water Treatment Plants	LI Meng-ya, SONG Yu-ying, ZHANG Xiao-lan, <i>et al.</i> (3348)
Distribution of Heavy Metals and Their Corresponding Nanoparticles in Different Treatment Unit Processes in the Sewage Treatment Plant	WANG Du-jia, HE Shuai, ZHOU Xiao-xia (3358)
Metagenomic Analysis of Resistance Genes in Membrane Cleaning Sludge	DU Cai-li, LI Zhong-hong, LI Xiao-guang, <i>et al.</i> (3366)
Distribution and Removal of Antibiotic-Resistant Bacteria and Antibiotic Resistance Genes in Petrochemical Wastewater Treatment Plants	TANG Zhen-ping, XIAO Sha-sha, DUAN Yi, <i>et al.</i> (3375)
Treatment of Medium Ammonium Wastewater by Single-stage Partial Nitrification-ANAMMOX SMBBR	LÜ Kai, SHAO Xian-ming, WANG Kang-zhou, <i>et al.</i> (3385)
Two-Stage Denitrification Process Performance with Solid Slow-Release Carbon Source	TANG Yi, MA Yong-wen, WAN Jin-quan, <i>et al.</i> (3392)
Effect of Ozone Dosage on Sludge Settleability and Biological Nutrient Removal in SBR System	LÜ Yong-tao, ZHU Chuan-shou, ZHANG Xu-yang, <i>et al.</i> (3400)
First Extended Anaerobic Phase Enhanced Nitrogen and Phosphorus Removal by Aerobic Granular Sludge Under Intermittent Gradient Aeration	ZHANG Yu-jun, LI Dong, WANG Xin-xin, <i>et al.</i> (3405)
Effect of Rate of Salinity Increase on the Performance and Microbial Community Structure of Sequencing Batch Reactors	GU Bai-ming, JIN Chun-ji, WEN Chun, <i>et al.</i> (3413)
Effects of Cold Acclimation on the Activity of Autotrophic Nitrogen Removal in Granular Sludge and Its Bacterial Population Structure	QIAN Fei-yue, LIU Yu-xin, WANG Jian-fang, <i>et al.</i> (3422)
Stabilization of Heavy Metals in Municipal Sludge Using a Slag-Based Modifying Agent	ZHANG Fa-wen, DONG Ming-kun, CHEN Chen-hui, <i>et al.</i> (3430)
Role of Land Use Changes on Ammonia Emissions from Agricultural Ecosystems in the Yangtze River Delta Region from 2000 to 2018	WANG Wen-jin, WANG Qing, ZHU An-sheng, <i>et al.</i> (3442)
Effects of Wheat Straw Hydrochar and Its Modified Product on Rice Yield and Ammonia Volatilization from Paddy Fields	HAN Chen, HOU Peng-fu, XUE Li-hong, <i>et al.</i> (3451)
Effects of Water and Fertilization Management on CH ₄ and N ₂ O Emissions in Double-rice Paddy Fields in Tropical Regions	LI Jin-qiu, SHAO Xiao-hui, GOU Guang-lin, <i>et al.</i> (3458)
Community Characteristics of Methanogens and Methanogenic Pathways in Salt-tolerant Rice Soil	YANG Yu-hong, HE Hui, MI Tie-zhu, <i>et al.</i> (3472)
Effect of Ferric-carbon Micro-electrolysis on Greenhouse Gas Emissions from Constructed Wetlands	ZHAO Zhong-jing, HAO Qing-ju, TU Ting-ting, <i>et al.</i> (3482)
Screening and Evaluation of Methods for Determining Available Lead (Pb) and Cadmium (Cd) in Farmland Soil	CHEN Ying, LIU Han-yi, LIU Na, <i>et al.</i> (3494)
Spatial Distribution Trends and Influencing Factors of Typical Heavy Metals in Subtropical Alpine Forest Soils: A Case Study from Ailao Mountain in Yunnan Province	LIU Xu, WANG Xun, WANG Ding-yong (3507)
Environmental Background Values of Heavy Metals and Physicochemical Properties in Different Soils in Shenzhen	LIN Ting, ZHAO Shu-hua, XI Xiu-ping, <i>et al.</i> (3518)
Screening of Amendments for Simultaneous Cd and As Immobilization in Soil	ZHOU Si-jiang, LIU Zhen-yan, XIONG Shuang-lian, <i>et al.</i> (3527)
Simultaneous Immobilization of Arsenic, Lead, and Cadmium in Paddy Soils Using Two Iron-based Materials	YUAN Feng, TANG Xian-jin, WU Ji-zi, <i>et al.</i> (3535)
Pollution Characteristics of Organophosphate Esters in Frozen Soil on the Eastern Edge of Qinghai-Tibet Plateau	LIU Li-ya, YIN Hong-ling, JIAN Lin-jie, <i>et al.</i> (3549)
Analysis of Spatial Distribution and Influencing Factors of Nitrogen and Phosphorus Fertilizer Application Intensity in Chengdu Plain	LIU Qi-xin, WANG Chang-quan, LI Bing, <i>et al.</i> (3555)
Different Responses of Soil Dissolved Organic Matter to Different Types of Compost	XI Bei-dou, WANG Yan, TAN Wen-bing, <i>et al.</i> (3565)