

E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, 丁志健, 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, 吴海淼, 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, 黄海鸥 (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, 马邕文, 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, 王敬鑫, 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 古柏铭, 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氨排放的影响 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氨挥发排放的影响 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 CH₄ 和 N₂O 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, 刘汉焱, 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)

青岛市农区地下水硝态氮污染来源解析

寇馨月¹, 丁军军¹, 李玉中^{1,2*}, 毛丽丽¹, 李巧珍¹, 徐春英¹, 郑欠¹, 庄姗¹

(1. 中国农业科学院农业环境与可持续发展研究所, 农业部旱作节水重点实验室, 北京 100081; 2. 中国农业科学院环境稳定同位素实验室, 北京 100081)

摘要: 为了提高作物产量, 肥料大量投入在农业种植区日益普遍, 导致了农区地下水硝态氮(NO_3^- -N)污染. 农业面源污染是地下水硝态氮污染的主要原因. 为了保障饮用水安全, 明确农区硝态氮污染的来源是十分必要的. 本研究分别于2009年和2019年在青岛农区随机选取35个采样点, 借助反距离加权法(IDW)对硝态氮含量进行空间分布分析, 通过测定氮、氧同位素进行溯源, 运用SIAR模型量化污染源的贡献率. 结果表明, 青岛市地下水硝态氮含量(平均值)由2009年的 $38.49 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 降低为2019年的 $22.37 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$, 但仍高于世界卫生组织(WHO)规定的饮用水中硝态氮的最大允许含量. 2009年和2019年硝态氮含量都呈现由南向北逐渐增加的趋势, 南部污染轻, 北部污染重. $\delta^{15}\text{N}-\text{NO}_3^-$ 和 $\delta^{18}\text{O}-\text{NO}_3^-$ 的交叉图显示青岛市地下水硝态氮主要来源是化肥、土壤氮、粪肥和污水. 水同位素表明降水是青岛市地下水的主要来源. 贝叶斯混合模型(SIAR模型)表明污染源贡献率为: 粪肥和污水(47.42%) > 土壤氮(27.80%) > 化肥(14.35%) > 大气氮沉降(10.43%). 从2009~2019年青岛市地下水质量得到了改善, 但硝态氮污染状况仍不容忽视, 应根据硝态氮污染来源, 有针对性地防治以确保农区饮用水安全和农业的可持续发展.

关键词: 氮同位素; 氧同位素; 硝态氮来源; SIAR模型; 青岛农区

中图分类号: X523 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2021)07-3232-10 DOI: 10.13227/j.hjxx.202010263

Identifying the Sources of Groudwater NO_3^- -N in Agricultural Region of Qingdao

KOU Xin-yue¹, DING Jun-jun¹, LI Yu-zhong^{1,2*}, MAO Li-li¹, LI Qiao-zhen¹, XU Chun-ying¹, ZHENG Qian¹, ZHUANG Shan¹

(1. Key Laboratory of Dryland Agriculture, Ministry of Agriculture, Institute of Environment and Sustainable Development in Agriculture, Chinese Academy of Agricultural Sciences, Beijing 100081, China; 2. Environmental Stable Isotope Laboratory, Chinese Academy of Agricultural Sciences, Beijing 100081, China)

Abstract: To increase crops yields, applying large amounts of fertilizers has become increasingly common in agricultural regions, resulting in NO_3^- -N groundwater pollution. Agricultural non-point pollution is the main source of groundwater NO_3^- -N pollution. To ensure drinking water safety and quality, it is crucial to clarify the sources of NO_3^- -N pollution in agricultural regions. In this study, 35 sampling sites were randomly selected in the Qingdao agricultural area in 2009 and 2019. The spatial distribution of NO_3^- -N concentration was analyzed by the inverse distance weighting method (IDW). The nitrogen and oxygen isotopes were used as a tool to trace sources of NO_3^- -N and the SIAR model was used to quantify contribution proportion of pollution sources. The results showed that the concentration of NO_3^- -N (average) in groundwater in Qingdao has been reduced from $38.49 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ in 2009 to $22.37 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ in 2019, but it is still higher than the maximum allowable concentration of NO_3^- -N in drinking water set by the World Health Organization (WHO). The NO_3^- -N concentration gradually increased from south to north both in 2009 and 2019. The cross diagram of $\delta^{15}\text{N}-\text{NO}_3^-$ and $\delta^{18}\text{O}-\text{NO}_3^-$ show that the main sources of NO_3^- -N in groundwater in Qingdao are chemical fertilizers, soil nitrogen, and manure and sewage. Water isotopes indicate that precipitation was the main source of groundwater in Qingdao. The SIAR model results indicated that the contribution of each source ranked as follows: manure and sewage (47.42%) > soil nitrogen (27.80%) > chemical fertilizer (14.32%) > atmospheric nitrogen depositions (10.43%). From 2009 to 2019, the quality of groundwater in Qingdao has been improved, but NO_3^- -N pollution still cannot be ignored. According to the results, prevention and control should be made to ensure the safety of drinking water and the sustainable development of agriculture.

Key words: $\delta^{15}\text{N}$; $\delta^{18}\text{O}$; NO_3^- -N source; SIAR model; agricultural area in Qingdao

随着农业的发展以及“乡村振兴”政策的实行, 农业生产快速发展带来了一系列环境问题^[1-3]. 为了追求高产过量施用化学肥料和有机肥料, 造成了农业面源污染^[4], 土壤中大量硝态氮残留物渗入地下水, 导致地下水硝态氮污染. 人体饮用 NO_3^- -N含量超标的地下水, 会患血红蛋白血症^[5,6]、肝病和癌症等疾病^[7]; 而在水体中的 NO_3^- -N会导致许多环境

和生态问题, 如水体的富营养化^[8]以及河流生态系统中的物种灭绝^[9]. 农区地下水中的硝态氮污染已

收稿日期: 2020-10-31; 修订日期: 2020-12-26

基金项目: 国家自然科学基金项目(41701308); 中央公益科学机构基础研究基金项目(Y2020PT36); 中国农业科学院农业科技创新计划项目(ASTIP)

作者简介: 寇馨月(1996~), 女, 硕士研究生, 主要研究方向为水环境, E-mail: xinyuekou1996@163.com

* 通信作者, E-mail: liyuzhong@caas.cn

成为迫切关注的问题^[10]。因此,明确地下水硝态氮污染状况,追溯和量化硝态氮污染源对于防治农区硝态氮、保障饮用水安全和促进农业可持续发展具有重要意义。

传统的溯源方法是通过调查当地的土地利用类型、地面耕作方式并结合地下水的硝态氮的含量特征确定其污染源。得到的结果多为间接和不确定的,较粗糙,从而导致溯源的结果不太准确^[3,11,12]。由于不同来源的硝态氮具有不同的 N、O 同位素组成^[4,13],目前对硝态氮污染进行溯源是利用 NO_3^- 中的 $\delta^{15}\text{N}$ 和 $\delta^{18}\text{O}$ ^[3,14~20],由于每种作用引起的分馏程度不同^[21],因此应考虑同位素分馏的因素。双同位素与传统方法^[22]相结合可以得到相对准确的溯源结果。为了估算硝态氮源的比例贡献,SIAR 模型已广泛用于量化硝态氮来源的贡献率^[23~25]。

本文以山东省的经济中心,“一带一路”新亚欧大陆桥经济走廊主要节点城市“青岛”为研究对象,旨在探究青岛市农区地下水硝态氮污染的总体状况,明确近十年前后青岛市地下水硝态氮污染的对比变化及时空分布特征,依据水化学特征和氮氧同位素对青岛农业种植区进行了硝态氮溯源,并利用贝叶斯混合模型量化污染来源的贡献率。本研究实现了由定性到定量,以期青岛市防治地下水硝态氮污染提供了坚实的理论依据、对于保障该地区居民的饮水安全具有现实意义和对促进农业的可持续发展具有长远意义。

1 材料与方法

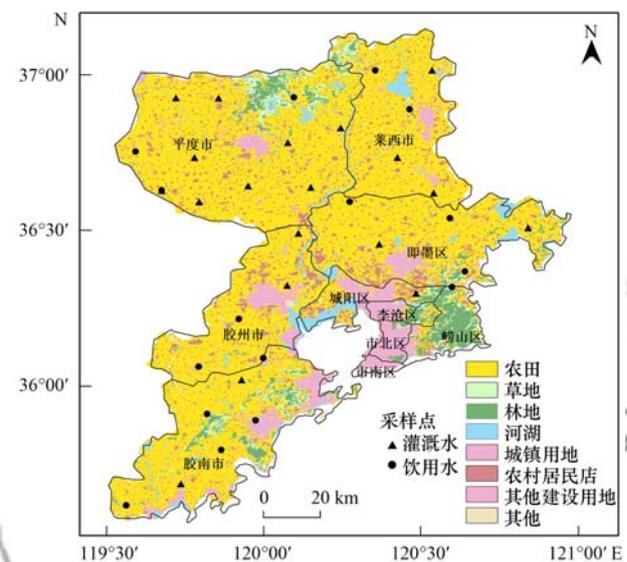
1.1 研究区概况

青岛市 (119° 30' ~ 121° 00' E, 35° 35' ~ 37° 09' N),地处山东半岛东南,东、南濒临黄海,东北与烟台市毗邻,西与潍坊市相连,西南与日照市接壤;总面积为 11 282 km²。青岛为海滨丘陵城市,地势东高西低,南北两侧隆起,中间低洼。温带季风性气候,由于临海带有海洋性特征。青岛共有大小河流 224 条,均为季风区雨源型,多为独立入海的山溪性小河。农作物耕作面积 68.37 万 hm²,其中粮食作物耕作面积 47.50 万 hm²,蔬菜耕作面积 10.75 万 hm²。青岛市蔬菜产量大约是粮食产量的 2 倍^[26]。

1.2 采样及样品测定

青岛市采样点的设置根据均匀布点、局部加密的原则,于 2009 年 11 月和 2019 年 4 月在青岛各地水井采集水样 35 个,覆盖青岛所有市(区、县),每个采样点均用 GPS 定位,记录采样井位置、深度和农田利用信息等,采样点示意图 1。用 0.45 μm 滤膜过滤后,将滤液储存在聚乙烯瓶中,并在 -20℃ 冰

箱中冷冻保存。用流动注射分析仪测量水样的 NO_3^- -N 含量。使用多参数仪测量 pH 和电导率 (EC)。用离子色谱仪 (940 professional IC Vario) 测量 Cl^- 的含量。 $\delta^{15}\text{N}-\text{NO}_3^-$ 和 $\delta^{18}\text{O}-\text{NO}_3^-$ 的测定采用反硝化细菌法^[27,28],于中国农业科学院农业环境与可持续发展研究所环境稳定同位素实验室完成。使用中国农业科学院环境稳定同位素实验室的超高精度液态水和水蒸气同位素分析仪 (PicarroL1115-I, 美国)测定 $\delta\text{D}-\text{H}_2\text{O}$ 和 $\delta^{18}\text{O}-\text{H}_2\text{O}$ 。 $\delta\text{D}-\text{H}_2\text{O}$ 和 $\delta^{18}\text{O}-\text{H}_2\text{O}$ 的分析精度分别为 0.50‰ 和 0.10‰。



数据来源于国家科技基础条件平台:

国家地球系统科学数据中心 (<http://www.geodata.cn>)

图 1 研究区土地利用及地下水采样点分布示意

Fig. 1 Distribution of land use and groundwater sampling sites in the study area

1.3 δ 值和 SIAR 模型

稳定的同位素比以 δ 表示如下^[29,30]:

$$\delta(\text{‰}) = \frac{(R_{\text{样品}} - R_{\text{标准}})}{R_{\text{标准}}} \times 1000 \quad (1)$$

式中, $R_{\text{样品}}$ 和 $R_{\text{标准}}$ 分别是样本和标准品的 $^{15}\text{N}/^{14}\text{N}$ 或 $^{18}\text{O}/^{16}\text{O}$ 比,标准分别是大气氮 (N_2) 和维也纳标准平均海水 (VSMOW)。

目前,贝叶斯混合同位素模型 (SIAR) 已广泛用于量化地下水硝态氮来源的贡献率^[1,31~33],且能够计算多于 3 个污染来源的贡献率,同时也能考虑到同位素分馏作用产生的影响,许多学者使用 SIAR 成功估算了多种硝态氮源的贡献率^[5,34,35],该模型表示为^[36]:

$$X_{ij} = \frac{\sum_{k=1}^K p_k Q_{jk} (S_{jk} + C_{jk})}{\sum_{k=1}^K p_k Q_{jk}} + \varepsilon_{ij} \quad (2)$$

$$S_{jk} \sim N(\mu_{jk}, \omega_{jk}^2) \quad (3)$$

$$C_{jk} \sim N(\lambda_{jk}, \tau_{jk}^2) \quad (4)$$

$$\varepsilon_{ij} \sim N(0, \sigma_j^2) \quad (5)$$

式中, X_{ij} 表示混合物 i 同位素 j 的 δ 值; p_k 表示来源 k 的比例; q_{jk} 是同位素 j 在第 k 种源中的浓度; S_{jk} 表示第 k 个来源的第 j 种同位素的 δ 值, 服从均值为 μ 方差为 ω 的正态分布; C_{jk} 表示第 k 个来源的 j 同位素的分馏系数, 服从均值为 λ 方差为 τ 的正态分布; ε_{ij} 是残余误差, 表示其他各个混合物间无法量化的方差, 其均值和标准差 σ 在通常情况下均为 0.

2 结果与分析

2.1 水化学

对青岛市 35 个地下水样品进行了测量, 其理化结果见表 1. 地下水的 pH 值为碱性 (7.67 ~ 10.17), 平均值为 8.20. EC 值在 224.40 ~ 4 648.10 $\mu\text{S}\cdot\text{cm}^{-1}$

之间变化, 平均值为 1 101.70 $\mu\text{S}\cdot\text{cm}^{-1}$, EC 值高, 表明受到了硝态氮污染^[25]; Cl^- 值在 18.85 ~ 1 111.24 $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 之间变化, 平均值为 159.97 $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$.

2.2 青岛市农区地下水硝态氮时间变化

硝态氮含量是评估水质的重要指标. 世界卫生组织 (WHO) 规定饮用水中硝态氮的最大允许含量为 11.30 $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ ^[37]. 《饮用水卫生标准》(GB 5749-2006) 规定, 饮用水硝态氮的限值为 10 $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$, 地下水硝态氮的限值为 20 $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$, 这也是中国饮用水 (GB/T 14848-2017) 的地下水水质标准. 中国饮用水标准 (GB/T 14848-2017) 指出, 当硝态氮的含量大于 3 $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 时, 表明它受到人为因素的影响^[38]. 水中硝态氮的含量大小与水体的质量密切相关, 可以根据水体中的硝态氮含量来评估地下水的品质^[39,40]. 根据以上标准, 为了更好地明确水质分类, 本研究将地下水水质分为以下 5 个等级 (表 2).

表 1 青岛农区地下水样品的水质特征¹⁾

Table 1 Water quality characteristics of groundwater samples in Qingdao agricultural area

编号	pH	EC / $\mu\text{S}\cdot\text{cm}^{-1}$	NO_3^- -N(2009年) / $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$	NO_3^- -N / $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$	Cl^- / $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$	$\delta^{15}\text{N}-\text{NO}_3^-$ /‰	$\delta^{18}\text{O}-\text{NO}_3^-$ /‰	$\delta^{18}\text{O}-\text{H}_2\text{O}$ /‰	$\delta\text{D}-\text{H}_2\text{O}$ /‰	用途
QD425	7.81	1 156.40	27.10	29.00	9.13	2.13	18.94	-9.61	-60.92	Y
QD426	8.12	917.40	39.80	17.60	13.44	6.00	22.85	-9.69	-63.82	Y
QD427	8.08	1 129.40	46.90	27.00	14.14	2.36	20.91	-9.76	-63.73	G
QD428	8.01	2 073.30	90.70	37.20	38.08	0.47	23.42	-9.17	-60.00	G
QD447	8.86	656.50	12.90	15.70	8.20	7.89	2.37	-9.27	-59.62	Y
QD448	8.78	522.70	25.30	11.80	3.29	3.74	-1.83	-9.28	-55.71	G
QD449	7.96	1 182.40	48.60	30.50	17.47	13.21	14.72	-9.25	-55.10	Y
QD450	7.77	852.00	18.90	6.24	13.81	11.84	5.71	-8.61	-52.66	Y
QD451	8.46	587.00	22.50	22.20	4.21	8.59	0.92	-8.72	-54.05	Y
QD452	8.23	1 118.50	22.10	27.20	10.04	17.14	27.41	—	—	G
QD453	8.02	753.80	37.10	10.90	12.63	13.41	3.13	-9.01	-56.73	Y
QD454	7.88	473.10	7.86	2.62	6.43	19.27	37.02	-8.83	-54.34	Y
QD455	7.95	677.70	22.40	16.70	7.41	10.78	4.94	-8.81	-55.66	Y
QD456	7.90	1 711.00	30.40	35.20	26.67	8.42	20.44	-9.23	-61.46	G
QD457	7.95	1 527.70	77.90	33.30	18.41	4.00	3.63	-8.29	-52.58	G
QD458	8.38	503.40	20.20	19.70	6.67	9.11	3.45	-8.86	-57.80	Y
QD459	8.00	619.70	41.40	14.80	8.63	13.42	2.59	-9.01	-57.65	G
QD460	8.18	1 210.70	32.30	39.70	11.98	7.69	9.40	-9.79	-64.81	G
QD461	8.70	236.10	6.85	7.00	4.06	11.35	21.27	-9.60	-58.55	Y
QD462	9.10	224.40	7.82	2.64	1.89	9.70	11.97	-6.42	-42.24	Y
QD463	8.17	1 087.70	26.90	12.40	15.57	29.03	14.00	-9.10	-53.38	G
QD464	8.25	670.50	44.50	22.20	8.91	14.09	3.95	-8.91	-55.88	Y
QD465	8.63	675.60	31.10	16.70	6.51	2.92	1.85	-9.30	-61.13	G
QD466	8.73	1 492.80	58.60	37.00	22.69	12.58	1.34	-9.42	-59.44	G
QD467	7.67	1 304.70	114.00	19.10	31.91	3.09	5.97	-7.81	-45.19	G
QD468	8.91	1 220.80	40.60	30.40	11.63	13.20	4.95	-9.35	-58.16	Y
QD469	7.77	1 193.00	13.80	31.20	15.88	3.15	16.28	-9.23	-59.84	Y
QD502	8.02	715.60	19.10	31.20	6.04	16.04	10.06	—	—	Y
QD503	7.85	595.30	12.70	13.50	7.55	6.84	5.63	-9.21	-60.03	G
QD504	8.00	865.50	33.80	22.90	14.01	9.01	12.75	-9.60	-62.27	G
QD505	7.70	1 942.60	161.00	46.20	12.47	1.68	-2.54	-8.81	-54.56	G
QD506	7.87	781.10	31.60	23.20	10.67	6.20	17.64	-9.28	-60.94	G
QD507	10.17	1 929.20	32.50	29.90	23.29	3.51	3.16	-9.37	-60.90	G
QD508	7.84	1 302.50	42.10	27.40	25.08	6.97	3.66	-9.94	-66.55	G
QD509	7.88	4 648.10	45.70	12.60	111.12	19.56	15.92	-8.48	-54.16	G

1) G 表示灌溉用水, Y 表示饮用水; — 表示缺少数据; 除 NO_3^- -N(2009) 为 2009 年的数据, 其余为 2019 年的水样数据

对 2009 年和 2019 年收集的 35 个水样进行的综合评估表明(表 2), 2009 年 I、II、III、IV 和 V 类水的比例分别为 0%、8.57%、14.29%、20% 和 57.14%。饮用水占 22.86%, 污染水占 77.14%。57.14% 的地下水样品严重超标, 91.43% 超过了 WHO 规定的标准。2019 年 I、II、III、IV 和 V 类水的比例分别为 5.71%、5.71%、34.29%、25.71% 和 28.57%。饮用水占 45.71%, 污染水占 54.28%。大约 28.57% 的

地下水样品严重超标, 85.71% 超过了 WHO 规定的标准。

与 2009 年相比(表 2), I 类水增加了, II 类水减少了, III 类水增加了, IV 类增加了, V 类水减少了。饮用水的比例提高, 但是水质不高, 大多数位于 10~20 mg·L⁻¹ 之间。总体而言, 2019 年青岛市硝态氮污染水平低于 2009 年, 表明地下水水质有所改善(图 2)。但是, 污染水的比例仍然很高, 地下水的状况仍不容忽视。

表 2 青岛市农区地下水质量分类¹⁾

Table 2 Groundwater quality classification in Qingdao agricultural area

类型	硝态氮含量 /mg·L ⁻¹	样本数		样本数占比/%		饮用水/%		污染水/%	
		2009 年	2019 年	2009 年	2019 年	2009 年	2019 年	2009 年	2019 年
I 类	<5	0	2	0	5.71	—	—	—	—
II 类	5~10	3	2	8.57	5.71	—	—	—	—
III 类	10~20	5	12	14.29	34.29	22.86	45.71	—	—
IV 类	20~30	7	9	20	25.71	—	—	77.14	54.28
V 类	>30	20	10	57.14	28.57	—	—	—	—

1) 其中 IV 类水和 V 类水与地下水质量标准(GB/T 14848-2017)相同; —表示文章中没有相关数据

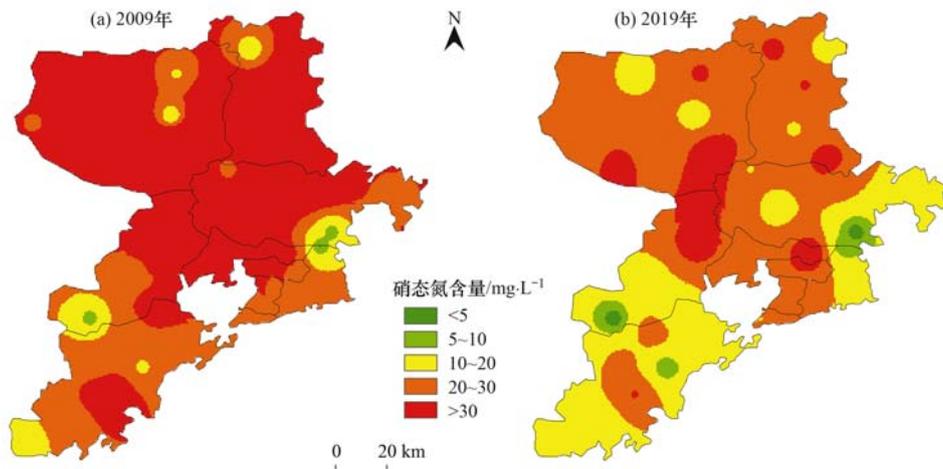


图 2 2009 年和 2019 年青岛市农区地下水硝态氮空间分布

Fig. 2 Spatial distribution of groundwater NO₃⁻-N in Qingdao agricultural area in 2009 and 2019

2.3 青岛市农区地下水硝态氮空间变化

2009 年和 2019 年青岛市农区都受到了硝态氮的污染, 2009 年污染更为严重。2009 年、2019 年青岛市农区地下水中的 NO₃⁻-N 含量范围分别为 6.85~161 mg·L⁻¹ 和 2.62~46.20 mg·L⁻¹, 平均值分别为 38.49 mg·L⁻¹ 和 22.37 mg·L⁻¹。

在 2009 年和 2019 年(图 2), 青岛市硝态氮含量都呈现由南向北逐渐增加的趋势, 南部污染轻, 北部污染重。2009 年, 平度、莱西、即墨、城阳、胶州北部和胶南东南部属于严重超标, 污染严重, 大部分区域硝态氮含量超过了 30 mg·L⁻¹。2019 年青岛市大部分区域硝态氮含量低于 30 mg·L⁻¹ 符合 IV 类水的标准, 适用于农业和工业用水, 胶南、胶州南部和即墨东部达到了最低饮用水标准。

2009~2019 年硝态氮含量存在明显的空间变化, 青岛市硝态氮污染总体降低, 局部仍保持不变或增加。但是, 2019 年平均值为 22.37 mg·L⁻¹, 仍然超过了最低饮用水 20 mg·L⁻¹ 的标准(GB/T 14848-2017)。总体上, 青岛的地下水硝态氮由 38.49 mg·L⁻¹ 降至 22.37 mg·L⁻¹ 硝态氮污染减轻, 水质得到了改善。

2.4 青岛市农区地下水同位素特征

2.4.1 水体氮氧同位素

水中硝态氮的来源通常有降水、化肥、土壤氮、污水和粪肥^[41~43]。由于粪肥和污水的氮、氧同位素的范围重叠且同位素组成相似, 因此将粪肥和污水视为同一污染源^[44~46]。本研究的 δ¹⁵N-NO₃⁻ 值范围为 0.47‰~29.03‰, 平均值为 9.38‰。δ¹⁸O-NO₃⁻ 值

范围为 -2.54‰ ~ 37.02‰ , 平均值为 10.51‰ 。图 3 表明 $\delta^{15}\text{N}-\text{NO}_3^-$ 分布呈现北部高、南部低的特点, 大部分地区低于 15‰ , 崂山区东部最高, 胶南市南部、胶州市北部、平度市和莱西区的 $\delta^{15}\text{N}-\text{NO}_3^-$ 值较低。

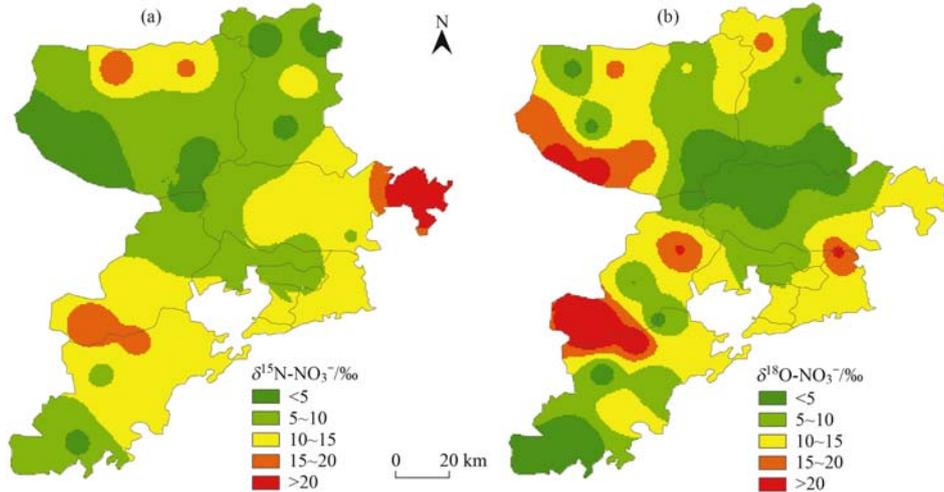


图 3 青岛市农区地下水 $\delta^{15}\text{N}-\text{NO}_3^-$ 和 $\delta^{18}\text{O}-\text{NO}_3^-$ 的空间分布

Fig. 3 Spatial distribution of groundwater $\delta^{15}\text{N}-\text{NO}_3^-$ and $\delta^{18}\text{O}-\text{NO}_3^-$ in Qingdao agricultural area

2.4.2 水体氢氧同位素

如表 1 所示, 地下水样品的 $\delta\text{D}-\text{H}_2\text{O}$ 值范围为 -66.55‰ ~ -42.24‰ , 平均值为 -57.57‰ 。地下水样品的 $\delta^{18}\text{O}-\text{H}_2\text{O}$ 值在 -9.94‰ ~ -6.62‰ 之间, 平均值为 -9.06‰ 。 $\delta\text{D}-\text{H}_2\text{O}$ 和 $\delta^{18}\text{O}-\text{H}_2\text{O}$ 关系(图 4)可以追踪水体的补给^[47]。根据全球降水同位素网络(GNIP, IAEA)提供的青岛附近站点的数据计算得出当地气象水位线(LMWL) $\delta\text{D} = 6.29\delta^{18}\text{O}-\text{H}_2\text{O} - 3.63$ 。如图 4 所示, 研究区域的地下水样品的 $\delta\text{D}-\text{H}_2\text{O}$ 和 $\delta^{18}\text{O}-\text{H}_2\text{O}$ 值位于全球气象水位线(GMWL) $\delta\text{D} = 8.1\delta^{18}\text{O}-\text{H}_2\text{O} + 10.8$ ^[48] 和当地气象水位线(LMWL)附近, 表明降水是研究区域地下水的主要来源。地下水的 $\delta\text{D}-\text{H}_2\text{O}$ 和 $\delta^{18}\text{O}-\text{H}_2\text{O}$ 值略高于

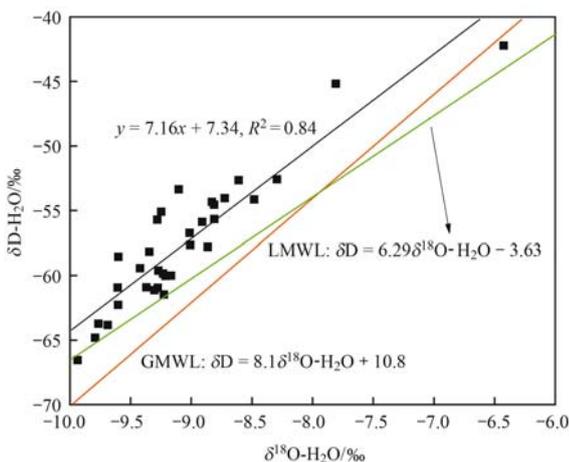


图 4 $\delta\text{D}-\text{H}_2\text{O}$ 和 $\delta^{18}\text{O}-\text{H}_2\text{O}$ 的关系

Fig. 4 Relationship between $\delta\text{D}-\text{H}_2\text{O}$ and $\delta^{18}\text{O}-\text{H}_2\text{O}$

$\delta^{18}\text{O}-\text{NO}_3^-$ 值呈现北部和南部低、中部高的特点, 平度市西南部、胶州西南部和胶南西北部出现部分高值, 莱西区、崂山区大部 and 胶南市南部的 $\delta^{18}\text{O}-\text{NO}_3^-$ 值较低。

GMWL 和 LMWL, 表明补给过程中地下水经历了蒸发^[5,32]。 $\delta\text{D}-\text{H}_2\text{O}$ 和 $\delta^{18}\text{O}-\text{H}_2\text{O}$ 的拟合回归方程为 $y = 7.16x + 7.34$ ($R^2 = 0.84$), 斜率和截距都小于 GMWL, 再次证明了蒸发的影响^[4]。

3 讨论

3.1 青岛市农区地下水硝态氮硝化与反硝化过程的判别

$\delta^{15}\text{N}-\text{NO}_3^-$ 和 $\delta^{18}\text{O}-\text{NO}_3^-$ 值主要受到硝态氮来源的影响, 但生物介导的过程(矿化、固氮、硝化和反硝化)是导致氮和氧同位素分馏的重要因素^[20]。反硝化过程会影响 $\delta^{15}\text{N}$ 和 $\delta^{18}\text{O}$ 的值, 从而改变溯源结果。因此, 判断反硝化是否发生是确定硝态氮污染源的重要前提^[49]。先前的研究表明, 微生物反硝化将增加水样品中的 $\delta^{15}\text{N}-\text{NO}_3^-$ 和 $\delta^{18}\text{O}-\text{NO}_3^-$ 值, 降低硝态氮含量, 并产生 1.3:1~2.1:1 的 $\delta^{15}\text{N}-\text{NO}_3^-$ 和 $\delta^{18}\text{O}-\text{NO}_3^-$ 比值^[50,51]。如图 7 所示, 1.3:1~2.1:1 之间只有 5 个采样点, 所以青岛的地下水反硝化不明显, 在研究过程中反硝化作用可以忽略。

从理论上讲, 微生物硝化产生的 NO_3^- 1/3 来自大气中的 O_2 , 2/3 来自 H_2O 中的 O。微生物硝化产生的 $\delta^{18}\text{O}-\text{NO}_3^-$ 值可通过以下公式计算^[43,47,52,53]:

$$\delta^{18}\text{O}_{\text{nitrate}} = \frac{2}{3}\delta^{18}\text{O}_{\text{water}} + \frac{1}{3}\delta^{18}\text{O}_{\text{air}} \quad (6)$$

其中, 大气 O_2 中的 $\delta^{18}\text{O}$ 值为 23.5‰ , H_2O 中的 O 中的 $\delta^{18}\text{O}$ 值为实测值。

硝化过程可以使用 $\delta^{18}\text{O}-\text{NO}_3^-$ 值确定^[54]。根据

硝化作用计算出的 $\delta^{18}\text{O}-\text{NO}_3^-$ 理论值约为 2‰ ^[54,55]。如图 5 所示, 大约一半的样品接近理论线^[29], 且位于 $-10\text{‰} \sim 10\text{‰}$ 之间, 这表明青岛市地下水中的硝态氮主要来自微生物硝化作用的合成肥料^[1]。一些样品的 $\delta^{18}\text{O}-\text{NO}_3^-$ 值高于理论值, 这可能是由于 $\delta^{18}\text{O}-\text{NO}_3^-$ 值受到大气来源影响^[20,29], 或者是混合了其他硝态氮来源所致^[32]。

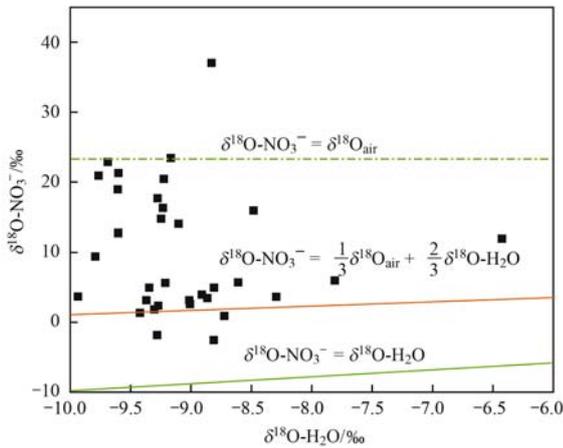


图 5 $\delta^{18}\text{O}-\text{H}_2\text{O}$ 和 $\delta^{18}\text{O}-\text{NO}_3^-$ 的关系

Fig. 5 Relationship between $\delta^{18}\text{O}-\text{H}_2\text{O}$ and $\delta^{18}\text{O}-\text{NO}_3^-$

3.2 青岛市农区地下水 NO_3^- -N 源解析

氯离子是变化较小保守示踪剂^[22], 且氯离子含量和硝态氮含量的空间分布规律类似[图 2(b) 和图 6(a)], 可用于鉴定硝态氮来源. 在两种土地利用类型中, 灌溉水中氯离子含量高 ($216.89 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$), 饮用水中氯离子含量低 ($92.38 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$), 这可能是由于在农田种植施肥引起的. Cl^- 和 $\text{NO}_3^-/\text{Cl}^-$ 的关系图也可以用来鉴别污染来源: 高 $\text{NO}_3^-/\text{Cl}^-$ 比值低 Cl^- 含量表示水样中的硝态氮主要来源于化肥, 低 $\text{NO}_3^-/\text{Cl}^-$ 比值高 Cl^- 含量表明水样中的硝态氮主要来源于生活污水和粪肥^[56,57]. 由图 6 可知, 青岛农区地下水中的硝态氮更多是低 $\text{NO}_3^-/\text{Cl}^-$ 比值高 Cl^- 含量, 表明其来自于生活污水和粪肥. 部分点具有中等的 $\text{NO}_3^-/\text{Cl}^-$ 和 Cl^- 含量, 表明其来自于混合污染^[25]。

表 3 总结了前人对 $\delta^{15}\text{N}-\text{NO}_3^-$ 和 $\delta^{18}\text{O}-\text{NO}_3^-$ 的研究范围. 根据表 3, 本研究中的 $\delta^{15}\text{N}-\text{NO}_3^-$ 和 $\delta^{18}\text{O}-\text{NO}_3^-$ 的范围为: 大气氮沉降 ($\delta^{15}\text{N}$: $-15\text{‰} \sim 10\text{‰}$, $\delta^{18}\text{O}$: $58\text{‰} \sim 98\text{‰}$), 铵肥 ($\delta^{15}\text{N}$: $-5.90\text{‰} \sim 6.60\text{‰}$, $\delta^{18}\text{O}$: $-15\text{‰} \sim 18\text{‰}$), 化肥 ($\delta^{15}\text{N}$: $-7.40\text{‰} \sim$

表 3 硝态氮来源的范围/‰

Table 3 Range of NO_3^- -N sources/‰

来源	$\delta^{15}\text{N}-\text{NO}_3^-$	$\delta^{18}\text{O}-\text{NO}_3^-$
大气氮沉降	$-15 \sim 10$ ^[58] 和 $-13 \sim 13$ ^[42,59]	$58 \sim 98$ ^[58] 和 $50 \sim 94$ ^[32]
铵肥	$-5.9 \sim 6.6$ ^[20]	$-15 \sim 15$ ^[20,29]
化肥	$-4 \sim 4$ ^[11] 、 $-7.4 \sim 6.8$ ^[11] 、 $-4 \sim 5$ ^[20,60] 和 $-6 \sim 5$ ^[43,61]	$17 \sim 25$ ^[20,41,62] 和 $18 \sim 22$ ^[41]
土壤氮	$4 \sim 9$ ^[11] 、 $3 \sim 9$ ^[42,59] 和 $3 \sim 8$ ^[53,63]	$-15 \sim 18$ ^[58]
粪肥和污水	$8 \sim 22$ ^[11] 、 $8 \sim 25$ ^[58] 和 $4 \sim 25$ ^[5,42]	$-10 \sim 15$ ^[20,29]

6.80‰ , $\delta^{18}\text{O}$: $18\text{‰} \sim 22\text{‰}$), 土壤氮 ($\delta^{15}\text{N}-\text{NO}_3^-$: $3\text{‰} \sim 9\text{‰}$, $\delta^{18}\text{O}$: $-15\text{‰} \sim 18\text{‰}$), 粪肥和污水 ($\delta^{15}\text{N}$: $4\text{‰} \sim 25\text{‰}$, $\delta^{18}\text{O}-\text{NO}_3^-$: $-15\text{‰} \sim 18\text{‰}$).

青岛农区硝态氮同位素特征值以及典型硝态氮

来源氮氧同位素范围如图 7 所示. $\delta^{15}\text{N}-\text{NO}_3^-$ 和 $\delta^{18}\text{O}-\text{NO}_3^-$ 的交叉表明 (图 7), 该研究区的大部分地下水样品均处于在污染源之内, 主要分布在化肥、土壤氮、粪肥和污水的范围中, 可能是这几种污染源混合

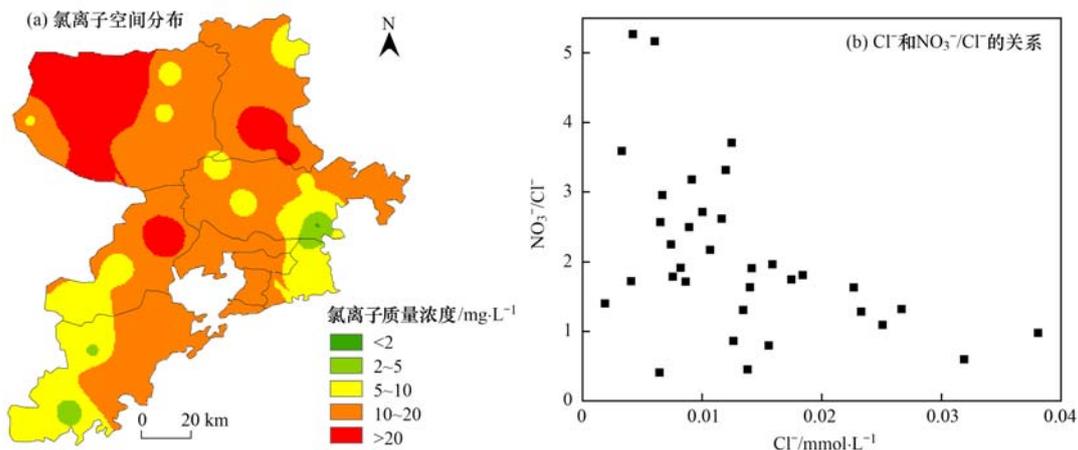


图 6 青岛市农区氯离子空间分布及 Cl^- 和 $\text{NO}_3^-/\text{Cl}^-$ 的关系

Fig. 6 Spatial distribution of chloride ions and the relationship between Cl^- and $\text{NO}_3^-/\text{Cl}^-$ in Qingdao agricultural area

作用导致青岛农区的硝态氮污染. 从图 7 知道, 落在土壤氮范围内的点较多, 说明多年的施肥使土地中积累了硝态氮. 只有几个点超出了潜在污染源的范围, 落在化肥和降水之间, 这可能是化肥和降水的混合污染造成的. $\delta^{15}\text{N}-\text{NO}_3^-$ 和 $\delta^{18}\text{O}-\text{NO}_3^-$ 值没有落在降水范围内, 表明降水不是地下水中硝态氮的主要来源. 按照地下水的用途划分, 大多灌溉水位于化肥

和土壤氮的范围内, 饮用水位于粪肥和污水范围内, 这与灌溉水来源多位于大田, 施用化肥较多有关, 而饮用水来源多取样于农户家中, 受到种植蔬菜、养殖或排放生活污水, 所以以落在粪肥和污水范围内更多. 按照纬度划分, 青岛市北部硝态氮污染更为严重, 南部的点大多落在粪肥和污水范围内.

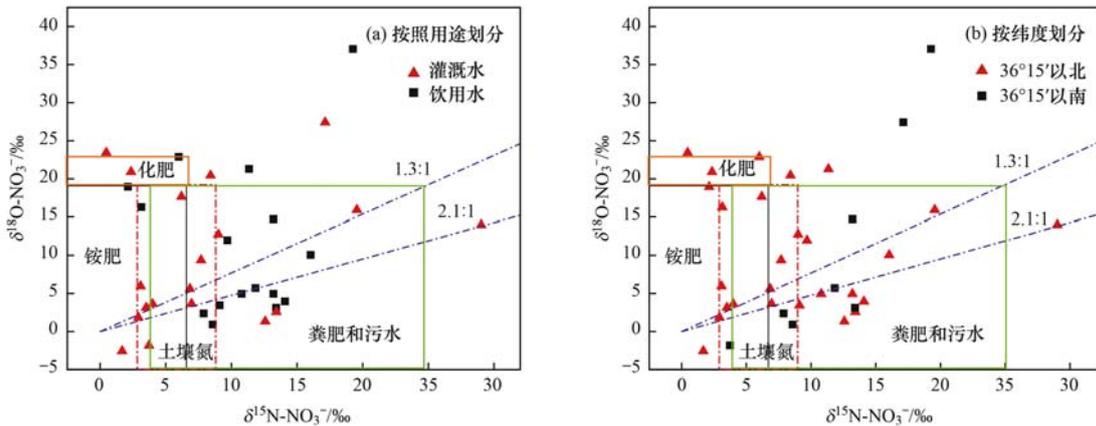


图 7 典型硝态氮来源氮氧同位素范围以及青岛农区 $\delta^{15}\text{N}-\text{NO}_3^-$ 和 $\delta^{18}\text{O}-\text{NO}_3^-$ 关系^[20]

Fig. 7 Range of nitrogen and oxygen isotopes of typical NO_3^- -N sources and the relationship between $\delta^{15}\text{N}-\text{NO}_3^-$ and $\delta^{18}\text{O}-\text{NO}_3^-$ in Qingdao agricultural region

3.3 青岛市农区硝态氮来源的量化

采用贝叶斯混合模型估算青岛农区地下水硝态氮源的比例贡献. 2 个同位素 ($\delta^{15}\text{N}$ 和 $\delta^{18}\text{O}$) 4 个来源 (化肥、土壤氮、粪肥及污水和大气氮沉降). 此外, 可以忽略不计反硝化作用, 将分馏系数 C_{jk} 设置为 0. 不同硝态氮来源的均值和标准差来自于文献 [33, 64, 65].

SIAR 模型结果显示 (图 8), 粪肥和污水 (47.42%) > 土壤氮 (27.80%) > 化肥 (14.35%) > 大气氮沉降 (10.43%), 地下水硝态氮主要来源于粪肥和污水, 生活污水和粪肥因其接近的氮氧同位素值, 目前定量模型难区分开, 所以粪肥和污水的贡献率高. 化肥的贡献率比较低, 可能是由于化肥氮素更多地储存在土壤氮中, 这是值得今后

研究的问题. 在饮用水源中, 粪肥和污水 (42.38%) > 土壤氮 (29.57%) > 化肥 (16.45%) > 大气氮沉降 (11.60%). 饮用水中不同来源的贡献率和青岛农区总的结果类似. 在灌溉水源中, 粪肥和污水 (38.58%) > 土壤氮 (32.79%) > 化肥 (19.38%) > 大气氮沉降 (9.25%). 灌溉水中粪肥和污水的贡献率有所降低, 土壤氮和化肥的贡献率上升, 这可能是多年的农业种植导致氮素的持续污染所致. 根据 SIAR 模型的结果, 青岛市应减少粪肥的使用和污水的排放, 以使青岛农区的硝态氮污染水平能够迅速降低. 本研究的结果也提示在追求经济发展注重效益的同时也该关注环境问题, 这样才可以使农业可持续发展不再成为奢望.

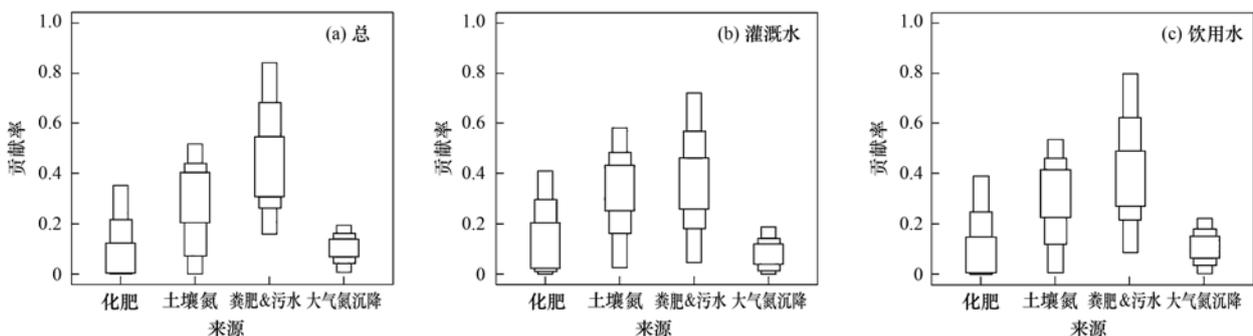


图 8 不同污染源的贡献率

Fig. 8 Contribution proportions of various sources

4 结论

(1) 2009 年达到可饮用水(Ⅲ类)标准的占 22.86%, 57.14% 的地下水样品严重超标(Ⅴ类), 91.43% 超过了 WHO 规定的标准. 2019 年达到可饮用水(Ⅲ类)标准的占 45.71%, 28.57% 的地下水样品严重超标(Ⅴ类), 85.71% 超过了 WHO 规定的标准. 总体而言, 2019 年青岛市农区硝态氮含量污染水平低于 2009 年, 地下水水质有所改善.

(2) 青岛农区硝态氮含量呈现由南向北逐渐增加的趋势, 南部污染轻, 北部污染重.

(3) 青岛农区硝态氮主要来自于化肥、土壤氮、粪肥和污水, 可能是这几种污染源混合污染. 研究区域主要发生了硝化作用, 反硝化过程不是主要因素.

(4) SIAR 模型表明, 硝态氮来源的贡献率为: 粪肥和污水(47.42%) > 土壤氮(27.80%) > 化肥(14.35%) > 大气氮沉降(10.43%). 应在实际农业种植过程中减少粪肥和生活污水的使用, 注意硝态氮污染的防治. 氮循环伴随着复杂的分馏, 这影响了可追溯性的准确性. 未来的研究应仔细分析分馏以准确得出结果.

参考文献:

- [1] 明晓星, 杨平恒, 谢世友, 等. 金佛山世界遗产地岩溶地下河系统硝酸盐来源与转化[J]. 湖泊科学, 2019, **31**(5): 1299-1309.
Ming X X, Yang P H, Xie S Y, *et al.* Sources and transformations of nitrate of the subterranean river system in Jinfoshan Karst World Heritage[J]. Journal of Lake Sciences, 2019, **31**(5): 1299-1309.
- [2] Ding J T, Xi B D, Gao R T, *et al.* Identifying diffused nitrate sources in a stream in an agricultural field using a dual isotopic approach[J]. Science of the Total Environment, 2014, **484**: 10-18.
- [3] 赵然, 韩志伟, 申春华, 等. 典型岩溶地下河流域水体中硝酸盐源解析[J]. 环境科学, 2020, **41**(6): 2664-2670.
Zhao R, Han Z W, Shen C H, *et al.* Identifying nitrate sources in a typical karst underground river basin[J]. Environmental Science, 2020, **41**(6): 2664-2670.
- [4] 金赞芳, 胡晶, 吴爱静, 等. 基于多同位素的不同土地利用区域水体硝酸盐源解析[J]. 环境科学, 2021, **42**(4): 1696-1705.
Jin Z F, Hu J, Wu A J, *et al.* Identify the nitrate sources in different land areas based on multiple isotopes[J]. Environmental Science, 2021, **42**(4): 1696-1705.
- [5] Zhang Q Q, Wang H W. Assessment of sources and transformation of nitrate in the alluvial-pluvial fan region of north China using a multi-isotope approach [J]. Journal of Environmental Sciences, 2020, **89**: 9-22.
- [6] Pasten-Zapata E, Ledesma-Ruiz R, Harter T, *et al.* Assessment of sources and fate of nitrate in shallow groundwater of an agricultural area by using a multi-tracer approach[J]. Science of the Total Environment, 2014, **470-471**: 855-864.
- [7] Zhai Y Z, Zhao X B, Teng Y G, *et al.* Groundwater nitrate pollution and human health risk assessment by using HHRA model in an agricultural area, NE China[J]. Ecotoxicology and Environmental Safety, 2017, **137**: 130-142.
- [8] Wang Y J, Peng J F, Cao X F, *et al.* Isotopic and chemical evidence for nitrate sources and transformation processes in a plateau lake basin in Southwest China[J]. Science of the Total Environment, 2020, **711**, doi: 10.1016/j.scitotenv.2019.134856.
- [9] Gautam S, Iqbal M Z. Using stable isotopes of nitrogen to study its source and transformation in a heavily farmed watershed[J]. Environmental Earth Sciences, 2010, **60**(1): 11-20.
- [10] Jin Z X, Wang J F, Chen J G, *et al.* Identifying the sources of nitrate in a small watershed using $\delta^{15}\text{N}$ - $\delta^{18}\text{O}$ isotopes of nitrate in the Kelan Reservoir, Guangxi, China [J]. Agriculture, Ecosystems & Environment, 2020, **297**, doi: 10.1016/j.agee.2020.106936.
- [11] 李玉中, 贾小娟, 徐春英, 等. 山东省地下水硝酸盐溯源研究[J]. 生态环境学报, 2013, **22**(8): 1401-1407.
Li Y Z, Jia X F, Xu C Y, *et al.* A study on the source tracing of groundwater nitrate in Shandong province [J]. Ecology and Environmental Sciences, 2013, **22**(8): 1401-1407.
- [12] 盛婷, 杨平恒, 谢国文, 等. 基于 $\delta^{15}\text{N}$ 和 $\delta^{18}\text{O}$ 的农业区地下河硝酸盐污染来源[J]. 环境科学, 2018, **39**(10): 4547-4555.
Sheng T, Yang P H, Xie G W, *et al.* Nitrate-nitrogen pollution sources of an underground river in karst agricultural area using ^{15}N and ^{18}O isotope technique [J]. Environmental Science, 2018, **39**(10): 4547-4555.
- [13] Kaown D, Koh D C, Mayer B, *et al.* Identification of nitrate and sulfate sources in groundwater using dual stable isotope approaches for an agricultural area with different land use (Chuncheon, mid-eastern Korea)[J]. Agriculture, Ecosystems & Environment, 2009, **132**(3-4): 223-231.
- [14] Blarasin M, Cabrera A, Matiatos I, *et al.* Comparative evaluation of urban versus agricultural nitrate sources and sinks in an unconfined aquifer by isotopic and multivariate analyses[J]. Science of the Total Environment, 2020, **741**, doi: 10.1016/j.scitotenv.2020.140374.
- [15] 徐志伟, 张心昱, 于贵瑞, 等. 中国水体硝酸盐氮氧双稳定同位素溯源研究进展[J]. 环境科学, 2014, **35**(8): 3230-3238.
Xu Z W, Zhang X Y, Yu G R, *et al.* Review of dual stable isotope technique for nitrate source identification in surface and groundwater in China [J]. Environmental Science, 2014, **35**(8): 3230-3238.
- [16] Yang P H, Li Y, Groves C, *et al.* Coupled hydrogeochemical evaluation of a vulnerable karst aquifer impacted by septic effluent in a protected natural area [J]. Science of the Total Environment, 2020, **658**: 1475-1484.
- [17] Liu T, Wang F, Michalski G, *et al.* Using ^{15}N , ^{17}O , and ^{18}O to determine nitrate sources in the Yellow River, China [J]. Environmental Science & Technology, 2013, **47**(23): 13412-13421.
- [18] Yu Y L, Jin Z, Chu G C, *et al.* Effects of valley reshaping and damming on surface and groundwater nitrate on the Chinese Loess Plateau[J]. Journal of Hydrology, 2020, **584**, doi: 10.1016/j.jhydrol.2020.124702.
- [19] Li C, Li S L, Yue F J, *et al.* Identification of sources and transformations of nitrate in the Xijiang River using nitrate isotopes and Bayesian model [J]. Science of the Total Environment, 2019, **646**: 801-810.
- [20] Kendall C, Elliott E M, Wankel S D. Tracing anthropogenic

- inputs of nitrogen to ecosystems[A]. In: Michener R, Lajtha K (Eds.). *Stable Isotopes in Ecology and Environmental Science* (2nd ed.) [M]. Malden; Blackwell Publishing Ltd, 2007. 375-449.
- [21] Hosono T, Tokunaga T, Kagabu M, *et al.* The use of $\delta^{15}\text{N}$ and $\delta^{18}\text{O}$ tracers with an understanding of groundwater flow dynamics for evaluating the origins and attenuation mechanisms of nitrate pollution[J]. *Water Research*, 2013, **47**(8): 2661-2675.
- [22] Meghdadi A, Javar N. Quantification of spatial and seasonal variations in the proportional contribution of nitrate sources using a multi-isotope approach and Bayesian isotope mixing model[J]. *Environmental Pollution*, 2018, **235**: 207-222.
- [23] Liu J, Shen Z Y, Yan T Z, *et al.* Source identification and impact of landscape pattern on riverine nitrogen pollution in a typical urbanized watershed, Beijing, China[J]. *Science of the Total Environment*, 2018, **628-629**: 1296-1307.
- [24] Yue F J, Li S L, Waldron S, *et al.* Rainfall and conduit drainage combine to accelerate nitrate loss from a karst agroecosystem; Insights from stable isotope tracing and high-frequency nitrate sensing[J]. *Water Research*, 2020, **186**, doi: 10.1016/j.watres.2020.116388.
- [25] 金赞芳, 张文辽, 郑奇, 等. 氮氧同位素联合稳定同位素模型解析水源地氮源[J]. *环境科学*, 2018, **39**(5): 2039-2047.
Jin Z F, Zhang W L, Zheng Q, *et al.* Contribution of nitrogen sources in water sources by combining nitrogen and oxygen isotopes and SIAR[J]. *Environmental Science*, 2018, **39**(5): 2039-2047.
- [26] 青岛市统计局, 国家统计局青岛调查队. 青岛统计年鉴[M]. 北京: 中国统计出版社, 2020.
- [27] Casciotti K L, Sigman D M, Hastings M G, *et al.* Measurement of the oxygen isotopic composition of nitrate in seawater and freshwater using the denitrifier method [J]. *Analytical Chemistry*, 2002, **74**(19): 4905-4912.
- [28] 徐春英, 李玉中, 郝卫平, 等. 反硝化细菌法结合痕量气体分析仪/同位素质谱仪分析水体硝酸盐氮同位素组成[J]. *分析化学*, 2012, **40**(9): 1360-1365.
Xu C Y, Li Y Z, Hao W P, *et al.* Analysis of nitrogen isotopic composition of nitrate in water by denitrifier method and trace-gas/isotope ratio mass spectrometry [J]. *Chinese Journal of Analytical Chemistry*, 2012, **40**(9): 1360-1365.
- [29] Kendall C, McDonnell J J. *Isotope tracers in catchment hydrology*[M]. Amsterdam; Elsevier, 1998. 519-576.
- [30] Kohl D H, Shearer G B, Comner B. Fertilizer nitrogen; contribution to nitrate in surface water in a corn belt watershed [J]. *Science*, 1971, doi: 10.1126/science.174.4016.1331.
- [31] 傅雪梅, 孙源媛, 苏婧, 等. 基于水化学和氮氧双同位素的地下水硝酸盐源解析[J]. *中国环境科学*, 2019, **39**(9): 3951-3958.
Fu X M, Sun Y Y, Su J, *et al.* Source of nitrate in groundwater based on hydrochemical and dual stable isotopes [J]. *China Environmental Science*, 2019, **39**(9): 3951-3958.
- [32] Fadhillah W, Yacob N S, Syakir M I, *et al.* Nitrate sources and processes in the surface water of a tropical reservoir by stable isotopes and mixing model [J]. *Science of the Total Environment*, 2020, **700**, doi: 10.1016/j.scitotenv.2019.134517.
- [33] 王静, 叶寅, 王允青, 等. 利用氮氧同位素示踪技术解析巢湖支流店埠河硝酸盐污染源[J]. *水科学学报*, 2017, **48**(10): 1195-1205.
Wang J, Ye Y, Wang Y Q, *et al.* Using $\delta^{15}\text{N}$ and $\delta^{18}\text{O}$ values to identify sources of nitrate in the Dianbu River in the Chaohu Lake Basin[J]. *Journal of Hydraulic Engineering*, 2017, **48**(10): 1195-1205.
- [34] Xue D M, De Baets B, Van Cleemput O, *et al.* Classification of nitrate polluting activities through clustering of isotope mixing model outputs[J]. *Journal of Environmental Quality*, 2013, **42**(5): 1486-1497.
- [35] 张妍, 张秋英, 李发东, 等. 基于稳定同位素和贝叶斯模型的引黄灌区地下水硝酸盐污染源解析[J]. *中国生态农业学报*, 2019, **27**(3): 484-493.
Zhang Y, Zhang Q Y, Li F D, *et al.* Source identification of nitrate contamination of groundwater in Yellow River Irrigation Districts using stable isotopes and Bayesian model[J]. *Chinese Journal of Eco-Agriculture*, 2019, **27**(3): 484-493.
- [36] Parnell A C, Inger R, Bearhop S, *et al.* Source partitioning using stable isotopes: coping with too much variation[J]. *PLoS One*, 2010, **5**(3), doi: 10.1371/journal.pone.0009672.
- [37] World Health Organization (WHO). *Guidelines for drinking-water quality* (4th ed.) [M]. Geneva; WHO, 2011.
- [38] Babiker I S, Mohamed M A A, Terao H, *et al.* Assessment of groundwater contamination by nitrate leaching from intensive vegetable cultivation using geographical information system [J]. *Environment International*, 2004, **29**(8): 1009-1017.
- [39] 刘宏斌, 雷宝坤, 张云贵, 等. 北京市顺义区地下水硝态氮污染的现状与评价[J]. *植物营养与肥科学报*, 2001, **7**(4): 385-390.
Liu H B, Lei B K, Zhang Y G, *et al.* Investigation and evaluation on nitrate pollution in groundwater of Shunyi district [J]. *Plant Nutrition and Fertilizer Science*, 2001, **7**(4): 385-390.
- [40] 贾小妨. 山东省地下水硝酸盐分布规律及溯源研究[D]. 北京: 中国农业科学院, 2010.
Jia X F. *Research on distributed pattern and sources of nitrate in groundwater of Shandong province* [D]. Beijing: Chinese Academy of Agricultural Sciences, 2010.
- [41] Zhang H, Xu Y, Cheng S Q, *et al.* Application of the dual-isotope approach and Bayesian isotope mixing model to identify nitrate in groundwater of a multiple land-use area in Chengdu Plain, China[J]. *Science of the Total Environment*, 2020, **717**, doi: 10.1016/j.scitotenv.2020.137134.
- [42] Xue D M, Botte J, De Baets B, *et al.* Present limitations and future prospects of stable isotope methods for nitrate source identification in surface-and groundwater[J]. *Water Research*, 2009, **43**(5): 1159-1170.
- [43] Zhang Q Q, Wang H W, Wang L. Tracing nitrate pollution sources and transformations in the over-exploited groundwater region of north China using stable isotopes [J]. *Journal of Contaminant Hydrology*, 2018, **218**: 1-9.
- [44] Yu L, Zheng T Y, Zheng X L, *et al.* Nitrate source apportionment in groundwater using Bayesian isotope mixing model based on nitrogen isotope fractionation[J]. *Science of the Total Environment*, 2020, **718**, doi: 10.1016/j.scitotenv.2020.137242.
- [45] Biddau R, Cidu R, Da Pelo S, *et al.* Source and fate of nitrate in contaminated groundwater systems: assessing spatial and temporal variations by hydrogeochemistry and multiple stable isotope tools[J]. *Science of the Total Environment*, 2019, **647**: 1121-1136.
- [46] 王开然, 郭芳, 姜光辉, 等. ^{15}N 和 ^{18}O 在桂林岩溶水氮污染源示踪中的应用[J]. *中国环境科学*, 2014, **34**(9): 2223-2230.

- Wang K R, Guo F, Jiang G H, *et al.* Application of ^{15}N and ^{18}O to nitrogen pollution source in karst water in Eastern Guilin[J]. *China Environmental Science*, 2014, **34**(9): 2223-2230.
- [47] 殷超, 杨海全, 陈敬安, 等. 基于水化学和氮氧同位素的贵州草海丰水期水体硝酸盐来源辨析[J]. *湖泊科学*, 2020, **32**(4): 989-998.
- Yin Y, Yang H Q, Chen J A, *et al.* Tracing nitrate sources with dual isotopes and hydrochemical characteristics during wet season in Lake Caohai, Guizhou Province [J]. *Journal of Lake Sciences*, 2020, **32**(4): 989-998.
- [48] Craig H. Isotopic variations in meteoric waters [J]. *Science*, 1961, **133**(3465): 1702-1703.
- [49] Nisi B, Vaselli O, Delgado Huertas A, *et al.* Dissolved nitrates in the groundwater of the Cecina Plain (Tuscany, Central-Western Italy): clues from the isotopic signature of NO_3^- [J]. *Applied Geochemistry*, 2013, **34**: 38-52.
- [50] Panno S V, Kelly W R, Martinsek A T, *et al.* Estimating background and threshold nitrate concentrations using probability graphs[J]. *Ground Water*, 2006, **44**(5): 697-709.
- [51] Nikolenko O, Jurado A, Borges A V, *et al.* Isotopic composition of nitrogen species in groundwater under agricultural areas: a review[J]. *Science of the Total Environment*, 2018, **621**: 1415-1432.
- [52] Durka W, Schulze E D, Gebauer G, *et al.* Effects of forest decline on uptake and leaching of deposited nitrate determined from ^{15}N and ^{18}O measurements[J]. *Nature*, 1994, **372**(6508): 765-767.
- [53] Li S L, Liu C Q, Li J, *et al.* Assessment of the sources of nitrate in the changjiang river, china using a nitrogen and oxygen isotopic approach [J]. *Environmental Science & Technology*, 2010, **44**(5): 1573-1578.
- [54] Ogrinc N, Tamse S, Zavadlav S, *et al.* Evaluation of geochemical processes and nitrate pollution sources at the Ljubljansko polje aquifer (Slovenia): a stable isotope perspective [J]. *Science of the Total Environment*, 2019, **646**: 1588-1600.
- [55] 李艳利, 杨梓睿, 尹希杰, 等. 太子河下游河流硝酸盐来源及其迁移转化过程[J]. *环境科学*, 2018, **39**(3): 1076-1084.
- Li Y L, Yang Z R, Yin X J, *et al.* Identification of nitrate sources and the fate of nitrate in downstream areas: a case study in the Taizi River basin [J]. *Environmental Science*, 2019, **39**(3): 1076-1084.
- [56] Liu C Q, Li S L, Lang Y C, *et al.* Using $\delta^{15}\text{N}$ -and $\delta^{18}\text{O}$ -values to identify nitrate sources in karst ground water, Guiyang, Southwest China [J]. *Environmental Science & Technology*, 2006, **40**(22): 6928-6933.
- [57] Yue F J, Liu C Q, Li S L, *et al.* Analysis of $\delta^{15}\text{N}$ and $\delta^{18}\text{O}$ to identify nitrate sources and transformations in Songhua River, Northeast China [J]. *Journal of Hydrology*, 2014, **519**: 329-339.
- [58] Nejatjahromi Z, Nassery H R, Hosono T, *et al.* Groundwater nitrate contamination in an area using urban wastewaters for agricultural irrigation under arid climate condition, southeast of Tehran, Iran [J]. *Agricultural Water Management*, 2019, **221**: 397-414.
- [59] Jin Z F, Qin X, Chen L X, *et al.* Using dual isotopes to evaluate sources and transformations of nitrate in the West Lake watershed, eastern China [J]. *Journal of Contaminant Hydrology*, 2015, **177-178**: 64-75.
- [60] Heaton T H E, Stuart M E, Sapiano M, *et al.* An isotope study of the sources of nitrate in Malta's groundwater [J]. *Journal of Hydrology*, 2012, **414-415**: 244-254.
- [61] Zhang Y, Shi P, Li F D, *et al.* Quantification of nitrate sources and fates in rivers in an irrigated agricultural area using environmental isotopes and a Bayesian isotope mixing model [J]. *Chemosphere*, 2018, **208**: 493-501.
- [62] Oelmann Y, Kreutziger Y, Bol R, *et al.* Nitrate leaching in soil: tracing the NO_3^- sources with the help of stable N and O isotopes [J]. *Soil Biology and Biochemistry*, 2007, **39**(12): 3024-3033.
- [63] Xing M, Liu W G. Using dual isotopes to identify sources and transformations of nitrogen in water catchments with different land uses, Loess Plateau of China [J]. *Environmental Science and Pollution Research*, 2016, **23**(1): 388-401.
- [64] 李玉中, 王利民, 徐春英, 等. 地下水硝酸盐污染治理研究 [M]. 北京: 中国农业科学技术出版社, 2014. 133-139.
- [65] Zhang Q Q, Wang X K, Sun F X, *et al.* Assessment of temporal and spatial differences of source apportionment of nitrate in an urban river in China, using $\delta^{15}\text{N}$ and $\delta^{18}\text{O}$ values and an isotope mixing model [J]. *Environmental Science and Pollution Research*, 2015, **22**(24): 20226-20233.

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 Groundwater 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)