

# 环境科学

(HUANJING KEXUE)

ENVIRONMENTAL SCIENCE

第39卷 第8期

Vol.39 No.8

**2018**

中国科学院生态环境研究中心 主办  
科学出版社 出版



目次

我国城市 PM<sub>2.5</sub> 污染的健康风险及经济损失评价 ..... 李惠娟, 周德群, 魏永杰 (3467)

冬季电力行业对长江中游城市群空气质量影响 ..... 孙晓伟, 郭秀锐, 程水源 (3476)

基于区域传输矩阵和 PM<sub>2.5</sub> 达标约束的大气容量计算方法 ..... 李敏辉, 廖程浩, 杨柳林, 曾武涛, 唐喜斌 (3485)

利用 SPAMS 研究天津市夏季环境空气中细颗粒物化学组成特征 ..... 温杰, 史旭荣, 田瑛泽, 徐娇, 史国良, 冯银厂 (3492)

重庆市北碚城区气溶胶中有机碳和元素碳的污染特征 ..... 彭小乐, 郝庆菊, 温天雪, 吉东生, 刘子锐, 王跃思, 陈建博, 江长胜 (3502)

杭州地区大气中含碳气溶胶特征及来源分析 ..... 徐宏辉, 徐婧莎, 何俊, 浦静姣, 齐冰, 杜荣光 (3511)

城市生活垃圾露天焚烧 PM<sub>2.5</sub> 及其组分排放特征 ..... 王艳, 郝伟伟, 程轲, 支国瑞, 易鹏, 樊静, 张洋 (3518)

民用燃煤排放分级颗粒物中碳组分排放因子 ..... 杨国威, 孔少飞, 郑淑睿, 吴剑, 郑明明, 郑煌, 严沁, 刘海彪, 王伟, 吴方琪, 程溢 (3524)

大连地区夏季非甲烷烃 (NMHC) 特征及其来源解析 ..... 纪德钰 (3535)

“十三五”挥发性有机物总量控制情景分析 ..... 张嘉妮, 陈小方, 梁小明, 柯云婷, 范丽雅, 叶代启 (3544)

浙江省包装印刷行业挥发性有机物排放特征及排放系数 ..... 王家德, 吕建璋, 李文娟, 顾震宇, 缪孝平 (3552)

有机溶剂使用企业挥发性恶臭有机物排放特征及特征物质识别 ..... 翟增秀, 孟洁, 王巨, 翟友存, 曹阳, 邹克华 (3557)

基于 MODIS\_C006 的乌鲁木齐 10 年气溶胶光学厚度变化特征 ..... 胡俊, 元燕铭, 陈勇航, 刘鑫, 李霞, 刘琼 (3563)

基于路网车流量的北京城市副中心机动车污染控制情景 ..... 樊守彬, 郭津津, 李雪峰 (3571)

北京典型跑步区域空气污染特征及跑步者呼吸暴露 ..... 陶双成, 高硕吟, 熊新竹, 姚嘉林, 邓顺熙 (3580)

丹江口水库调水前后表层沉积物营养盐和重金属时空变化 ..... 李冰, 王亚, 郑钊, 许信, 辛英督, 黄进, 郭诗君, 毕升阁, 胡兰群, 陈兆进, 李玉英 (3591)

太湖北部湖区春、冬季节天然有机质的荧光特征及环境意义 ..... 吕伟伟, 姚昕, 张保华 (3601)

太湖重点区域水环境中邻苯二甲酸酯的污染水平及生态风险评价 ..... 朱冰清, 高占啟, 胡冠九, 王骏飞, 于南洋, 韦斯 (3614)

台风强降雨输入水源水库悬浮泥沙的氮磷吸附特性 ..... 姚玲爱, 赵学敏, 马千里, 梁荣昌, 夏北成, 卓琼芳 (3622)

珠江三角洲高钾地下水赋存环境特征及成因分析 ..... 张昌延, 何江涛, 张小文, 倪泽华 (3631)

有机污染物对杭州湾海域浮游细菌群落的影响 ..... 宣丽霞, 戴文芳, 郁维娜, 周素明, 欧昌荣, 熊金波 (3640)

澜沧江流域浮游细菌群落结构特征及驱动因子分析 ..... 程豹, 望雪, 徐雅倩, 杨正健, 刘德富, 马骏 (3649)

碧流河水库细菌群落结构特征及其关键驱动因子 ..... 王欢, 赵文, 谢在刚, 魏杰, 姜洋 (3660)

浑河底泥反硝化厌氧甲烷氧化菌群落多样性的时空分布特征及其与环境因子关系分析 ..... 张亚迪, 宋永会, 彭剑桥, 张剑峰, 张盼月, 刘瑞霞, 石国强 (3670)

人类活动对河流沉积物中反硝化厌氧甲烷氧化菌群落特征的影响 ..... 刘洋, 陈永娟, 王晓燕, 许康利 (3677)

外源氮输入对不同土地利用排水沟底泥反硝化和 N<sub>2</sub>O 排放影响 ..... 余冬立, 陈心逸, 高雪梅, 张文娟, 夏永秋 (3689)

雨水管道沉积物沉淀特性及主要污染物含量分布 ..... 尚宇, 周毅, 廖安意, 方正 (3696)

水体中 Cr(VI) 对不同混凝剂混凝过程的影响 ..... 高倩, 张大为, 徐慧, 徐建坤, 张崇森, 王东升 (3704)

Co<sub>3</sub>O<sub>4</sub>/BIVO<sub>4</sub> 复合阳极活化过一硫酸盐强化光电催化降解双酚 A ..... 李蒋, 王雁, 张秀芳, 赵旭 (3713)

海藻酸钙/生物炭复合材料的制备及其对 Pb(II) 的吸附性能和机制 ..... 于长江, 董心雨, 王苗, 林强 (3719)

磁性生物炭对水中 CIP 和 OFL 的吸附行为和机制 ..... 赵华轩, 郎印海 (3729)

污水中新精神活性物质的分析方法优化及验证 ..... 陈培培, 杜鹏, 周子雷, 徐泽琼, 高婷婷, 李喜青 (3736)

臭氧-CNT 膜改性联用工艺对 PVDF 中空纤维膜污染进程的缓解 ..... 关羽琪, 王凯伦, 祝学东, 董丹, 薛小雷, 马艳林, 栾桂荣, 郭瑾 (3744)

阴离子交换树脂生物再生去除硝酸盐氮 ..... 叶婷, 张光, 王珂, 双陈冬, 李爱民 (3753)

普鲁士蓝@酵母菌催化剂的合成及其 Fenton 性能 ..... 陈思, 白波, 王洪伦, 索有瑞 (3759)

PN/A 双菌层系统的构建及其脱氮性能 ..... 许静怡, 杜俊, 杨一峰, 吕锋, 夏四清 (3767)

苯酚对 EBPR 系统除磷性能的抑制作用 ..... 马娟, 王瑾, 俞小军, 周猛, 李光银, 孙洪伟 (3775)

反硝化-短程硝化-厌氧氨氧化工艺处理晚期垃圾渗滤液的脱氮除碳性能 ..... 王凡, 陆明羽, 殷记强, 李祥, 黄勇 (3782)

好/厌氧条件下反硝化细菌脱氮特性与功能基因 ..... 康鹏亮, 陈胜男, 黄廷林, 张海涵, 商潘路, 钊珍芳, 王跃, 谭欣林 (3789)

苯并[a]芘厌氧降解的苯酚共基质协同作用与污泥微生物特性 ..... 吴海珍, 胡肖怡, 王鸣, 韦景悦, 范一文, 韦朝海, 钟练文, 彭亚环 (3797)

污泥超高温堆肥过程中 DOM 结构的光谱分析 ..... 刘晓明, 余震, 周普雄, 罗海林, 王跃强, 廖汉鹏, 周顺桂 (3807)

生物炭对华北农田土壤 N<sub>2</sub>O 通量及相关功能基因丰度的影响 ..... 刘杏认, 赵光昕, 张晴雯, 田秀平 (3816)

设施菜田土壤 N<sub>2</sub>O 产生对 O<sub>2</sub> 的响应 ..... 陈吉吉, 宋贺, 曹文超, 王乙然, 王敬国 (3826)

利用  $\mu$ -XRF 和 XANES 研究铅锌矿区土壤铅形态及其生物有效性 ..... 孙晓艳, 柳检, 罗立强 (3835)

南京市铅锌矿采场土壤重金属污染评价及优势植物重金属富集特征 ..... 李俊凯, 张丹, 周培, 刘群录 (3845)

Fe-Al 改性硅藻土的制备及其对土壤 Cd 污染固定化效果 ..... 杨雨中, 朱健, 肖媛媛, 谭蓉, 王平, 陈润华, 徐海音, 杨雄 (3854)

基于稳定碳同位素技术的干旱区绿洲土壤有机碳向无机碳的转移 ..... 李杨梅, 贡璐, 安申群, 孙力, 陈新 (3867)

生境过滤驱动庞泉沟华北落叶松林土壤真菌群落的构建过程 ..... 赵鹏宇, 李磊, 柴宝峰 (3876)

转 cry1Ab 和 epsps 基因玉米 C0030.3.5 对土壤固氮细菌丰度和群落结构的影响 ..... 王蕊, 朱珂, 李刚, 刘惠芬, 王晶, 修伟明, 赵建宁, 杨殿林 (3885)

脱硫石膏对稻田 CH<sub>4</sub> 释放及其功能微生物种群的影响 ..... 胡翔宇, 向秋洁, 木志坚 (3894)

长期施肥对不同深度稻田土壤碳氮水解酶活性的影响特征 ..... 杜林森, 唐美铃, 祝贞科, 魏亮, 魏晓梦, 周萍, 葛体达, 王久荣, 邹冬生, 吴金水 (3901)

黄河口滨岸潮滩湿地泥沙沉积及外源镉 Cd 输入对碱蓬物质量分配及抗氧化酶活性的影响 ..... 宋红丽, 王立志, 郁万妮, 吴希媛 (3910)

黄河下游开封段引黄灌区小麦中重金属污染特征及健康风险评价 ..... 康国华, 张鹏岩, 李颜颜, 杨丹, 庞博, 何坚坚, 闫宇航 (3917)

氧化石墨烯对邻苯二甲酸二丁酯藻毒性的影响 ..... 涂海峰, 刘成, 王宇擎, 储祺, 侯晓冬, 李锋民 (3927)

有机物对厌氧氨氧化微生物燃料电池脱氮产电性能的影响 ..... 祖波, 马兰, 刘波, 卢培利, 许新 (3937)

中国氢燃料电池车燃料生命周期的化石能源消耗和 CO<sub>2</sub> 排放 ..... 林婷, 吴焯, 何晓漪, 张少君, 郝吉明 (3946)

气溶胶水相反应生成二次有机气溶胶研究进展 ..... 叶招莲, 瞿珍秀, 马帅帅, 盖鑫磊 (3954)

《环境科学》征订启事 (3543) 《环境科学》征稿简则 (3570) 信息 (3600, 3728, 3844)

# 设施菜田土壤 N<sub>2</sub>O 产生对 O<sub>2</sub> 的响应

陈吉吉<sup>1</sup>, 宋贺<sup>2</sup>, 曹文超<sup>1</sup>, 王乙然<sup>1</sup>, 王敬国<sup>1\*</sup>

(1. 中国农业大学资源与环境学院, 北京 100193; 2. 安徽农业大学农学院, 合肥 230036)

**摘要:** 以添加 (DIS)/不添加 (DI) 玉米秸秆的常规设施菜田土壤为研究对象, 通过室内培养试验, 利用在线自动监测培养系统, 在不同初始氧气体积分数下 (0%、1%、3%、5% 和 10%) 监测土壤 N<sub>2</sub>O、NO、N<sub>2</sub> 和 CO<sub>2</sub> 产生量的动态变化, 并同步分析了土壤无机氮 (NO<sub>2</sub><sup>-</sup>、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>、NH<sub>4</sub><sup>+</sup>) 含量, 同时设置添加 NaClO<sub>3</sub> 的处理抑制土壤 NO<sub>2</sub><sup>-</sup> 的氧化, 以期对比研究不同碳投入菜田土壤 N<sub>2</sub>O 产生量对 O<sub>2</sub> 的响应. 结果表明, 厌氧条件下土壤 N<sub>2</sub>O 产生量显著高于有氧条件下土壤 N<sub>2</sub>O 产生量 ( $P < 0.01$ ). 当氧气体积分数  $\leq 1\%$  时, 添加秸秆的 (DIS) 土壤 N<sub>2</sub>O 产生量显著高于未添加秸秆的 (DI) 土壤 ( $P < 0.01$ ). 土壤中氧耗尽时会观察到明显的 N<sub>2</sub>O 产生速率峰值, 但 N<sub>2</sub> 产生速率峰值随着初始氧气体积分数的升高极显著降低 ( $P < 0.01$ ), 反之, 土壤中如果没有出现氧耗尽的现象, 则 N<sub>2</sub>O 和 N<sub>2</sub> 产生量随着初始氧气体积分数的升高显著降低 ( $P < 0.01$ ). 初始氧气体积分数介于 1% ~ 5% 时, 培养过程中会观察到持续的 NO<sub>2</sub><sup>-</sup> 累积, 且在该氧梯度内 N<sub>2</sub>O/(NO + N<sub>2</sub>O + N<sub>2</sub>) 指数显著高于 0% 以及 10% 初始氧气体积分数的处理, 此外, 添加 NaClO<sub>3</sub> 后, 当初始氧气体积分数为 5% 和 10% 时, 持续增加的 NO<sub>2</sub><sup>-</sup> 与 N<sub>2</sub>O 产生量两者之间线性相关 ( $R^2 \geq 0.85$ ). 本研究结果表明, 低氧条件下不完全的反硝化和 NO<sub>2</sub><sup>-</sup> 诱导的硝化细菌反硝化共同作用, 显著增加了土壤 N<sub>2</sub>O 的产生量和 N<sub>2</sub>O/(N<sub>2</sub>O + NO + N<sub>2</sub>) 指数; 但是, 有氧条件下土壤 N<sub>2</sub>O 的产生量显著低于厌氧条件 ( $P < 0.01$ ).

**关键词:** 氧; N<sub>2</sub>O; 反硝化; 硝化细菌反硝化; 亚硝酸盐; N<sub>2</sub>O/(N<sub>2</sub>O + NO + N<sub>2</sub>) 指数

中图分类号: X144 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2018)08-3826-09 DOI: 10.13227/j.hjxx.201801017

## Nitrous Oxide Production in Response to Oxygen in a Solar Greenhouse Vegetable Soil

CHEN Ji-ji<sup>1</sup>, SONG He<sup>2</sup>, CAO Wen-chao<sup>1</sup>, WANG Yi-ran<sup>1</sup>, WANG Jing-guo<sup>1\*</sup>

(1. College of Resource and Environment, China Agriculture University, Beijing 100193, China; 2. College of Agronomy, Anhui Agricultural University, Hefei 230036, China)

**Abstract:** To explore the sources of peak nitrous oxide (N<sub>2</sub>O) flushes in solar greenhouse vegetable field, an experiment was conducted with two conventional vegetable soils under different initial volume fractions of oxygen (O<sub>2</sub>) (0%, 1%, 3%, 5%, and 10%). A robotized incubation system was employed to analyze the gas kinetics [O<sub>2</sub>, N<sub>2</sub>O, nitric oxide (NO), nitrogen (N<sub>2</sub>), and carbon dioxide (CO<sub>2</sub>)] every 6 or 8 h and calculate the N<sub>2</sub>O/(NO + N<sub>2</sub>O + N<sub>2</sub>) index. Sodium chlorate (NaClO<sub>3</sub>) was used to inhibit the oxidation of NO<sub>2</sub><sup>-</sup> to further explore the relationship between N<sub>2</sub>O and nitrite (NO<sub>2</sub><sup>-</sup>). A parallel off-line incubation in triplicates was conducted under similar conditions to measure the dynamic changes in inorganic nitrogen content [ammonia (NH<sub>4</sub><sup>+</sup>), nitrate (NO<sub>3</sub><sup>-</sup>), and NO<sub>2</sub><sup>-</sup>]. The results showed that N<sub>2</sub>O production under anaerobic condition was significantly higher than that under aerobic condition. The peak value of N<sub>2</sub>O in the soil collected from a straw-added plot (DIS) was significantly higher than that in the soil from non-straw added plot (DI) ( $P < 0.01$ ) when the volume fraction of oxygen was  $\leq 1\%$ . Oxygen can directly affect N<sub>2</sub>O production by delaying or inhibiting N<sub>2</sub>O reduction, with significant increase in N<sub>2</sub>O production rate under oxygen-depleted condition. However, the N<sub>2</sub> production rate decreased significantly with increase in initial oxygen volume fraction ( $P < 0.01$ ). When the initial volume fraction of oxygen was between 1% and 5%, a continuous accumulation of NO<sub>2</sub><sup>-</sup> was observed during the incubation period, resulting in the significantly higher N<sub>2</sub>O/(NO + N<sub>2</sub>O + N<sub>2</sub>) index than that in either anaerobic or 10% of oxygen treatments. Furthermore, a linear correlation was observed between NO<sub>2</sub><sup>-</sup> and N<sub>2</sub>O at 5% and 10% of oxygen with the addition of NaClO<sub>3</sub> ( $R^2 \geq 0.85$ ). Incomplete denitrification and nitrifier denitrification from NO<sub>2</sub><sup>-</sup> induction co-occurred in the range of 1% and 5% volume fractions of oxygen, significantly increasing the soil N<sub>2</sub>O production and N<sub>2</sub>O/(NO + N<sub>2</sub>O + N<sub>2</sub>) index. In addition, N<sub>2</sub>O production under anaerobic condition was significantly higher than that under aerobic condition ( $P < 0.01$ ).

**Key words:** oxygen; N<sub>2</sub>O; denitrification; nitrifier denitrification; nitrite; N<sub>2</sub>O/(N<sub>2</sub>O + NO + N<sub>2</sub>) index

农业是大气温室气体 N<sub>2</sub>O 的重要来源且与氮肥施用有关<sup>[1,2]</sup>. 在氮肥施用量较高的我国菜田土壤, N<sub>2</sub>O 排放占全国 N<sub>2</sub>O 直接排放量的 20%<sup>[3]</sup>. 与大田作物相比, 农民习惯于对设施菜田投入更高的养分和水<sup>[4]</sup>. 过高的有机肥、化肥投入和频繁灌溉在提

收稿日期: 2018-01-02; 修订日期: 2018-02-09

基金项目: 国家自然科学基金项目 (41230856)

作者简介: 陈吉吉 (1989 ~), 女, 博士研究生, 主要研究方向为土壤氮素转化过程中微生物作用机制, E-mail: cateapple@163.com

\* 通信作者, E-mail: wangjg@cau.edu.cn

高土壤微生物活性的同时, 通常会显著降低土壤孔隙的氧含量, 造成土壤微生物常处于低氧胁迫的环境中. 低氧胁迫会显著影响硝化和反硝化过程, 进而影响土壤 $N_2O$ 的排放<sup>[5,6]</sup>.

氧气是影响土壤 $N_2O$ 排放的重要参数, 一般认为, 厌氧条件下异养反硝化过程是土壤 $N_2O$ 排放的主要途径, 即使很低的氧含量也会显著抑制异养反硝化过程<sup>[7,8]</sup>, 导致有氧条件下硝化过程是土壤 $N_2O$ 排放的主导途径<sup>[9~11]</sup>. Zhu 等<sup>[10]</sup>的研究结果显示氧气体积分数介于 0.5% ~ 3% 时, 硝化和硝化细菌的反硝化对 $N_2O$ 的贡献量达到 34% ~ 84%, 同样, Frame 等<sup>[12]</sup>认为在 0.5% 的氧浓度下, 硝化细菌反硝化作用对 $N_2O$ 的贡献量达到 43% ~ 87%. 但也有研究表明, 即使在 2%<sup>[13]</sup>、3%<sup>[14]</sup>、甚至 5%<sup>[15]</sup>氧气体积分数下, 仍可以观察到显著的 $N_2O$ 还原现象, 低氧条件下 $N_2O$ 的产生途径始终存在争议. 由于氧气在培养过程中低的可控性, 大部分关于氧气对 $N_2O$ 排放影响的研究主要针对单菌株或土壤细胞提取物<sup>[16~18]</sup>, 低氧条件下土壤氧气动态变化与 $N_2O$ 排放间的关系研究较少. 此外,  $NO_2^-$  作为 $N_2O$ 产生的重要底物, 与土壤 $N_2O$ 的产生存在相关性<sup>[19,20]</sup>, 通过  $NaClO_3$  的添加抑制  $NO_2^-$  氧化菌 (NOB) 的活性<sup>[21]</sup>, 有助于深入分析低氧条件下 $N_2O$ 的产生机制.

设施菜田中通常会采用添加高碳氮比秸秆的方法改善土壤质量, 并促进 N 的生物固持<sup>[22]</sup>, 这也同时会影响土壤 $N_2O$ 的排放<sup>[23]</sup>. 然而, 与未添加秸秆的土壤相比, 长期添加作物秸秆的土壤是否也有高的 $N_2O$ 产生潜势, 目前还不清楚. 此外, 不同碳投入土壤对氧气的响应研究更少.

为了探索低氧条件下设施菜田土壤 $N_2O$ 的产生途径及大量排放的原因, 本文以中国北方典型的设施菜田土壤为研究对象, 在不同初始氧气体积分数

下(0%、1%、3%、5%和10%), 利用在线自动监测培养系统(Robot 系统)定量测定土壤 $N_2O$ 、 $NO$ 、 $N_2$ 和 $CO_2$ 产生动态, 并分析其 $N_2O/(NO + N_2O + N_2)$ 指数, 同时, 动态监测了 $NO_2^-$ 、 $NO_3^-$ 和 $NH_4^+$ 的含量. 此外, 通过利用  $NaClO_3$  抑制  $NO_2^-$  的氧化, 进一步了解低氧条件下 $N_2O$ 产生与土壤  $NO_2^-$  累积间的关系, 以期为菜田土壤 $N_2O$ 减排措施的制定提供理论依据.

## 1 材料与方法

### 1.1 采样地点及土壤样品采集

供试土壤采自中国农业大学山东寿光蔬菜研究院的定位试验日光温室, 该试验始于 2007 年, 详细描述见 Fan 等<sup>[24]</sup>的研究. 该试验是一个裂区试验, 主处理为滴灌和漫灌, 副处理为不添加秸秆、添加小麦秸秆和添加玉米秸秆. 本研究选取的土壤样品来自于滴灌 (DI) 和滴灌 + 玉米秸秆 (DIS) 两个处理. 滴灌处理每年平均灌溉量为 309 mm, 商品鸡粪作为基肥, 平均施用量相当于  $210 \text{ kg} \cdot (\text{hm}^2 \cdot \text{季})^{-1}$  的氮, DIS 处理会额外投入高碳氮比的玉米秸秆  $8 \text{ t} \cdot \text{hm}^{-2}$  (相当于  $109 \text{ kg} \cdot \text{hm}^{-2}$  氮以及  $3406 \text{ kg} \cdot \text{hm}^{-2}$  碳) 以调节土壤碳氮平衡. 2014 年 7 月番茄收获后采集 0 ~ 20 cm 土壤样品, 充分混匀后过 2 mm 筛风干备用.

### 1.2 试验设计与方法

为了减少土壤硝态氮 ( $NO_3^-$ ) 背景值含量过高对试验结果的干扰, 同时避免厌氧条件下 NO 超标现象的发生, 试验开始前将 DI、DIS 土壤用去离子水清洗 4 次, 使其  $NO_3^-$  含量低于  $20 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$ , 待水分自然蒸发至含水量质量分数 10% ~ 15% 之间时, 过 2 mm 筛, 随后将过筛土置于 4℃ 冰箱储存备用. 该土壤样品的黏粒、粉粒、沙粒所占比例分别为 29%、52% 和 19%, 洗土后土壤基础理化性质见表 1.

表 1 土壤基础理化性质

Table 1 Physical and chemical properties of soil

土样	pH	有机碳 / $\text{g} \cdot \text{kg}^{-1}$	总氮 / $\text{g} \cdot \text{kg}^{-1}$	C/N	$NH_4^+$ / $\text{mg} \cdot \text{kg}^{-1}$	$NO_3^-$ / $\text{mg} \cdot \text{kg}^{-1}$	速效磷 / $\text{mg} \cdot \text{kg}^{-1}$	速效钾 / $\text{mg} \cdot \text{kg}^{-1}$
DIS	8.01	10.85	1.10	9.86	3.76	19.80	117.00	416.00
DI	8.01	9.22	1.08	8.53	4.93	8.21	92.51	395.00

试验一: 以 DIS 土壤为研究对象, 称取相当于 20 g 烘干土壤置于 120 mL 血清瓶, 根据实际测定的土壤  $NH_4^+$ 、 $NO_3^-$  含量, 向每个血清瓶补加  $19 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1} NH_4^+$  [ $(NH_4)_2SO_4$ ] 及  $12 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1} NO_3^-$  ( $KNO_3$ ), 使供试土壤  $NH_4^+$ 、 $NO_3^-$  含量为 30

$\text{mg} \cdot \text{kg}^{-1}$  左右, 控制土壤含水量质量分数为 25%. 所有血清瓶用铝盖密封后用 He 气通过抽真空-洗气系统(北京帅恩科技有限公司)洗气 3 次, 分别充入 0%、1%、3%、5% 以及 10% 的  $O_2/He$  混合气体, 随后将所有血清瓶置于 20℃ 恒温水浴槽中培养, 利

用 Robot 系统<sup>[25]</sup>每隔 6 h 测定一次培养瓶顶空气体 ( $O_2$ 、 $NO$ 、 $N_2O$ 、 $N_2$ 、 $CO_2$ ) 的变化情况. 同时, 根据气体监测结果, 选取 10 个气体产生关键点, 对相同培养条件下的静态培养试验进行破坏性采样, 测定培养过程中无机氮 ( $NH_4^+$ 、 $NO_3^-$  和  $NO_2^-$ ) 的动态变化. 总培养时间为 216 h, 每个处理 3 个重复.

试验二: 以 DI 土壤为研究对象, 称取相当于 20 g 烘干土壤置于 120 mL 血清瓶, ( $NH_4$ )<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> 及 KNO<sub>3</sub> 添加量与试验一相同, 只是增加了添加 NaClO<sub>3</sub> (20 mmol·L<sup>-1</sup>)<sup>[26]</sup> 的处理, 调节土壤含水量质量分数为 25%. 所有血清瓶用铝盖密封后用 He 气通过抽真空-洗气系统 (北京帅恩科技有限公司) 洗气 3 次, 分别充入 0%、1%、5% 以及 10% 的 O<sub>2</sub>/He 混合气体, 随后将所有血清瓶置于 20℃ 恒温水浴槽中培养. 利用 Robot 自动监测系统每隔 8 h 测定 O<sub>2</sub>、NO、N<sub>2</sub>O、N<sub>2</sub> 和 CO<sub>2</sub> 产生量, 总培养时间为 224 h.

### 1.3 气体动态监测及土壤无机氮素含量、pH 值测定

Robot 自动培养系统由自动进样和气体分析模块组成. 其中自动进样模块包括双向旋转的蠕动泵 (Gilson Model 222, Gilson, 法国) 和顶空自动采样器 (CTC GC-Pal). 气体分析模块包括气相色谱 (Agilent 7890A) 和氮氧化物分析仪 (Model 200E, 美国). 而气相色谱中包含热导检测器 (TCD)、电子捕获检测器 (ECD) 和火焰离子化检测器 (FID) 这 3 个检测器, 能够监测 N<sub>2</sub>O (ECD、TCD)、N<sub>2</sub> (TCD)、CO<sub>2</sub> (TCD) 和 O<sub>2</sub> (TCD) 气体浓度的变化. 氮氧化物分析仪用来定量监测 NO 气体浓度. 相关 Robot 自动培养系统的运行模块细节可参见 Molstad 等<sup>[25]</sup> 的描述.

土壤样品中  $NH_4^+$  和  $NO_3^-$  的含量用 1 mol·L<sup>-1</sup> KCl 溶液浸提后用连续流动分析仪 (TRACCS2000, 德国) 测定; 土壤亚硝态氮测定方法按照国标 HJ634-2012 方法. 土壤全氮、全碳含量利用碳氮分析仪测定 (Thermo Scientific Flash 2000 NC Analyzer, 美国). 有机碳含量采用重铬酸钾-硫酸溶液氧化滴定法测定. 速效磷含量采用 NaHCO<sub>3</sub> 浸提-钼锑抗吸光度法测定. 速效钾含量采用 NH<sub>4</sub>OAc 浸提-火焰光度法测定. 土壤 pH 值测定的水土比为 2.5:1, 用 pH 计测定.

### 1.4 数据处理

不同氧气体积分数下  $N_2O/(N_2O + NO + N_2)$  指数计算公式为<sup>[18]</sup>:

$$I_{N_2O} = \int_0^T N_2O(t) dt / \int_0^T [N_2O(t) + NO(t) + N_2(t)] dt \quad (1)$$

式中,  $N_2O(t)$ 、 $N_2(t)$ 、 $NO(t)$  均为 N<sub>2</sub>O 测量值达到高峰时间 ( $t$ ) 下的累积产生量. 质量平衡是指培养结束时土壤无机氮 ( $NH_4^+$ 、 $NO_3^-$ )、气体产生量 ( $N_2O$ 、 $N_2$ ) 之和与培养开始时土壤无机氮 ( $NH_4^+$ 、 $NO_3^-$ )、气体产生量 ( $N_2O$ 、 $N_2$ ) 之和两者间的差值. 数据采用 SPSS 20.0 进行单因素、多因素方差分析. 采用 Sigmaplot 12.5 作图, 图表中数据均为: 平均值 ± 标准误差.

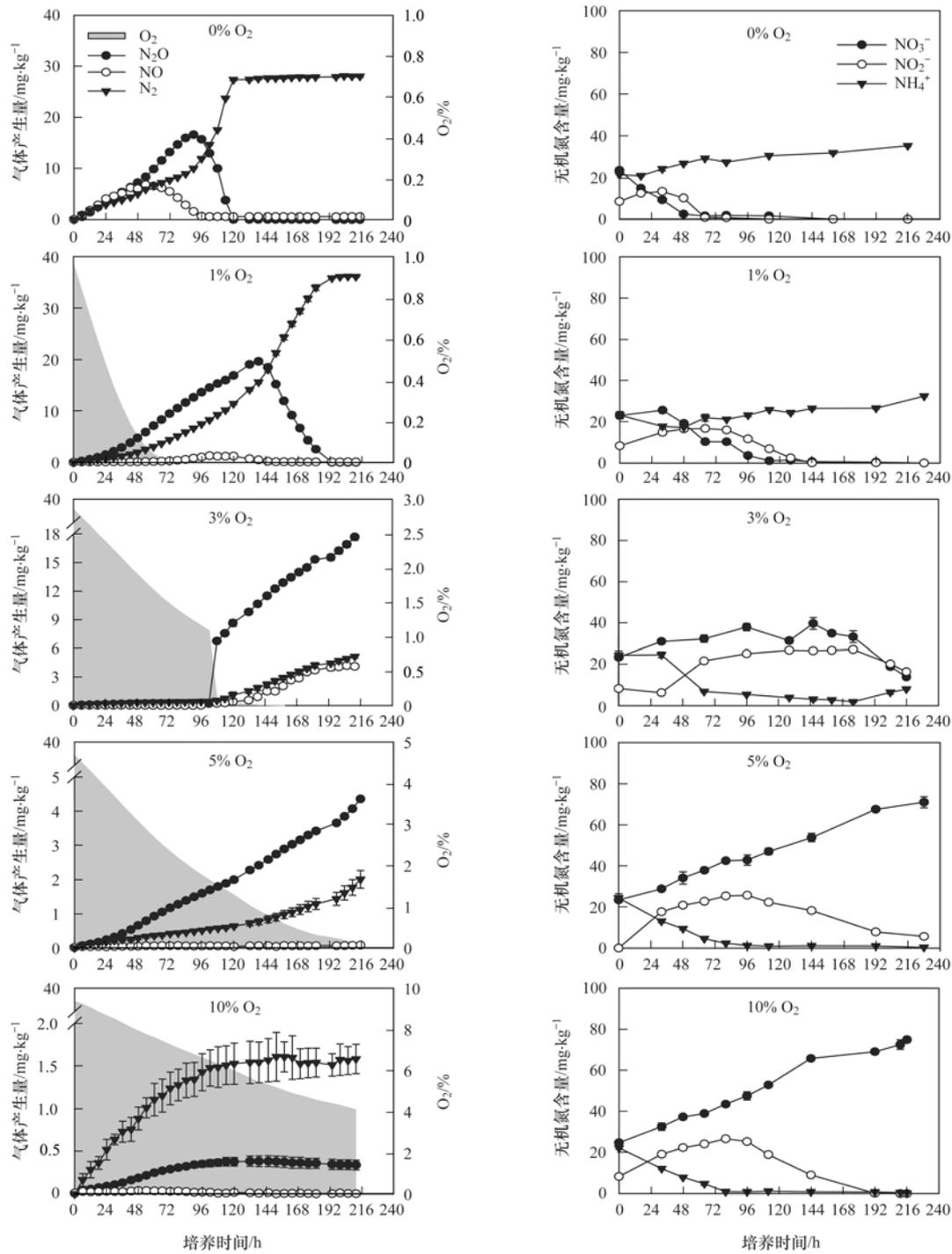
## 2 结果与分析

### 2.1 DIS 土壤不同初始氧气体积分数下无机氮、气体的动态变化

由图 1 可见, 在完全厌氧条件下, DIS 土壤中  $NO_3^-$  在培养 48 h 后全部被还原, 土壤  $NO_2^-$  含量呈先增加后下降的趋势. 土壤 NO 和 N<sub>2</sub>O 产生量分别在培养 54 h 和 90 h 时达到最大累积量, N<sub>2</sub> 产生速率在 114 h 时达到峰值 73.06 nmol·(g·h)<sup>-1</sup>. 在 120 h 时, 土壤中  $NO_3^-$  被完全还原.

初始氧气体积分数为 1% 时, 培养前期 (1~32 h) 土壤  $NH_4^+$  含量呈下降趋势, 而  $NO_2^-$  和  $NO_3^-$  的含量分别增加了 6.49 mg·kg<sup>-1</sup> 和 2.58 mg·kg<sup>-1</sup>. 从 48 h 开始 (氧气体积分数为 0.36%), 土壤  $NO_3^-$  含量显著降低,  $NO_2^-$  含量在 64 h 时达到峰值 16.71 mg·kg<sup>-1</sup>, 随后于 80 h 开始降低. 随着氧气的逐渐消耗, NO 测量值在 102 h 时达到高峰, 同时, N<sub>2</sub>O 产生速率在 64 h (氧气体积分数为 0.019%) 和 128 h (氧气体积分数为 0%) 达到峰值, 分别为 16.00 nmol·(g·h)<sup>-1</sup> 和 13.62 nmol·(g·h)<sup>-1</sup>. N<sub>2</sub> 产生速率在 152 h 时达到峰值, 为 26.50 nmol·(g·h)<sup>-1</sup>.

当初始氧气体积分数为 3% 时, 培养开始后 96 h  $NO_2^-$  含量接近峰值, 为 25.10 mg·kg<sup>-1</sup>, 该过程中  $NH_4^+$  的减少量等于  $NO_2^-$  的增加量; 96 h (氧气体积分数为 1.16%) 至 176 h (氧气体积分数为 0%) 的培养过程中,  $NO_2^-$ 、 $NO_3^-$  含量无显著变化, 其中  $NO_2^-$  最高达到 27.11 mg·kg<sup>-1</sup>,  $NH_4^+$  含量从 5.42 mg·kg<sup>-1</sup> 降至 1.83 mg·kg<sup>-1</sup>; 176 h 之后  $NO_2^-$ 、 $NO_3^-$  含量呈降低趋势,  $NH_4^+$  则相反. N<sub>2</sub>O 产生速率分别于 108 h 时 (氧气体积分数为 0.078%)、176 h (氧气体积分数为 0%) 达到峰值 77.91 nmol·(g·h)<sup>-1</sup> 及 7.08 nmol·(g·h)<sup>-1</sup>. NO、N<sub>2</sub> 产生



图中所有的气体、无机氮含量均以 N 计，下同

图 1 不同初始氧气体积分数下 DIS 土壤气体、无机氮的动态变化

Fig. 1 Dynamic changes in nitrogenous gases and mineral nitrogen contents under different initial volume fractions of oxygen in DIS soil

速率从 96 h 开始稳定增加，至 176 h 时分别达到高  
峰值 6.55 nmol·(g·h)<sup>-1</sup> 及 4.48 nmol·(g·h)<sup>-1</sup>，随  
后下降。3% 氧气体积分数下 N<sub>2</sub> 产生率峰值显著小  
于初始氧气体积分数为 0% 和 1% 的处理，导致该  
氧水平下 N<sub>2</sub>O/(N<sub>2</sub>O + NO + N<sub>2</sub>) 指数显著增加  
(表 2)。

当初始氧气体积分数为 5% 时，96 h (氧气体积  
分数为 1.76%) 时，NH<sub>4</sub><sup>+</sup> 含量由 0 h 的 22.10  
mg·kg<sup>-1</sup> 降至 1.27 mg·kg<sup>-1</sup>，此时 NO<sub>2</sub><sup>-</sup> 增长至高峰  
值 25.73 mg·kg<sup>-1</sup>，随后降低；整个培养过程中  
NO<sub>3</sub><sup>-</sup> 从 0 h 的 24.80 mg·kg<sup>-1</sup> 增长至培养结束时的  
71.0 mg·kg<sup>-1</sup>。与 5% 相比，10% 初始氧气体积分

数下氨氧化速率显著增加 ( $P < 0.05$ ), 80 h 时  $\text{NH}_4^+$  降至最低, 此时  $\text{NO}_2^-$  达到峰值  $26.61 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$ .

由图 1 中 5% 和 10% 氧梯度下气体产生动态可见, 初始氧气体积分数高于 5% 后,  $\text{N}_2\text{O}$  产生量显著降低 ( $P < 0.01$ ). 60 h 时两个氧梯度下培养瓶顶空氧气体积分数分别降至 2.50% 和 7.59%, 此时  $\text{NO}$  累积量和  $\text{N}_2\text{O}$  产生速率同时出现峰值, 分别为  $4.69 \text{ nmol} \cdot \text{g}^{-1}$ 、 $2.61 \text{ nmol} \cdot \text{g}^{-1}$  和  $1.59 \text{ nmol} \cdot (\text{g} \cdot \text{h})^{-1}$ 、 $0.38 \text{ nmol} \cdot (\text{g} \cdot \text{h})^{-1}$ , 随后  $\text{NO}$  累积

量和  $\text{N}_2\text{O}$  产生速率降低. 在 5% 初始氧气体积分数下, 从 96 h 开始至培养结束 (氧气体积分数为 0.099%),  $\text{N}_2\text{O}$  产生速率始终维持在  $1.43 \sim 1.59 \text{ nmol} \cdot (\text{g} \cdot \text{h})^{-1}$ ,  $\text{NO}$ 、 $\text{N}_2\text{O}$  测量值及  $\text{N}_2$  产生速率逐渐增加, 培养结束时分别达到  $5.79 \text{ nmol} \cdot \text{g}^{-1}$ 、 $311.14 \text{ nmol} \cdot \text{g}^{-1}$  和  $2.83 \text{ nmol} \cdot (\text{g} \cdot \text{h})^{-1}$ . 尽管 5% 初始氧气体积分数下  $\text{N}_2\text{O}$  产生量显著降低 ( $P < 0.01$ ), 但对  $\text{N}_2\text{O}/(\text{N}_2\text{O} + \text{NO} + \text{N}_2)$  指数无显著影响 (表 2).

表 2 不同初始氧气体积分数下  $\text{N}_2\text{O}/(\text{N}_2\text{O} + \text{NO} + \text{N}_2)$  指数<sup>1)</sup>

Table 2  $\text{N}_2\text{O}/(\text{N}_2\text{O} + \text{NO} + \text{N}_2)$  index under different initial volume fractions of oxygen

土样	0% $\text{O}_2$	1% $\text{O}_2$	3% $\text{O}_2$	5% $\text{O}_2$	10% $\text{O}_2$
DIS	$0.46 \pm 0.00$ cA	$0.61 \pm 0.00$ bA	$0.70 \pm 0.02$ a	$0.71 \pm 0.01$ aA	$0.19 \pm 0.01$ dA
DI	$0.46 \pm 0.01$ bA	$0.64 \pm 0.00$ aA	—	$0.58 \pm 0.07$ aB	$0.39 \pm 0.03$ bB
DI + $\text{NaClO}_3$	$0.11 \pm 0.01$ dB	$0.46 \pm 0.01$ bB	—	$0.49 \pm 0.00$ aC	$0.41 \pm 0.02$ cB

1)  $\text{N}_2\text{O}/(\text{N}_2\text{O} + \text{NO} + \text{N}_2)$  指数比以 N 计; 表中不同小写字母表示每一行差异显著 ( $P < 0.05$ ), 不同大写字母表示每一列差异极显著 ( $P < 0.01$ ); “—”表示未做此类处理, 下同

## 2.2 DI 和 DI + $\text{NaClO}_3$ 处理在不同初始氧气体积分数下气体、无机氮的动态变化

添加  $\text{NaClO}_3$  的处理反应前后土壤 pH 没有发生显著变化. 在初始氧气体积分数为 0% 和 1% 时,  $\text{NaClO}_3$  的添加显著降低土壤中  $\text{NO}_2^-$  的含量. 在初始氧气体积分数为 5% 和 10% 时, 添加  $\text{NaClO}_3$  后土壤  $\text{NO}_2^-$  含量持续增加, 培养结束时  $\text{NO}_2^-$  峰值与不添加  $\text{NaClO}_3$  处理无显著差异; 两种氧气体积分数下  $\text{NO}_3^-$  增量为不添加  $\text{NaClO}_3$  处理的 53% 左右,  $\text{NH}_4^+$  含量从培养初期的  $24.70 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$  缓慢降至培养末期的  $5.78 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$  (图 2).

在 0% 和 1% 初始氧气体积分数下,  $\text{NaClO}_3$  的添加促使  $\text{NO}$  高峰期分别提前了 16 h 和 8 h, 且高

峰值仅分别为不添加  $\text{NaClO}_3$  处理的 20.0% 和 32.8%; 添加  $\text{NaClO}_3$  的处理  $\text{N}_2\text{O}$  出现高峰的时间分别提前了 32 h 和 24 h, 且  $\text{N}_2\text{O}$  产生量峰值降低. 与  $\text{NO}$  和  $\text{N}_2\text{O}$  不同的是, 添加  $\text{NaClO}_3$  并未影响土壤  $\text{N}_2$  的产生量. 与未添加  $\text{NaClO}_3$  的处理相比, 在 5% 初始氧气体积分数下,  $\text{NO}$ 、 $\text{N}_2\text{O}$  与  $\text{N}_2$  这 3 种气体的产生量峰值分别降低了 53.7%、59.7%、55.9%, 在 10% 初始氧气体积分数下分别降低了 35.4%、21.7%、38.7% (图 3).

质量平衡计算结果表明, 各处理均存在氮的净矿化, 其中 DIS 土壤的净矿化量在  $5.9 \sim 17.8 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$  之间, 显著低于 DI 土样的净矿化量 ( $P < 0.01$ ), 后者矿化量介于  $12.2 \sim 20.5 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$  之间. 比较两种土壤在

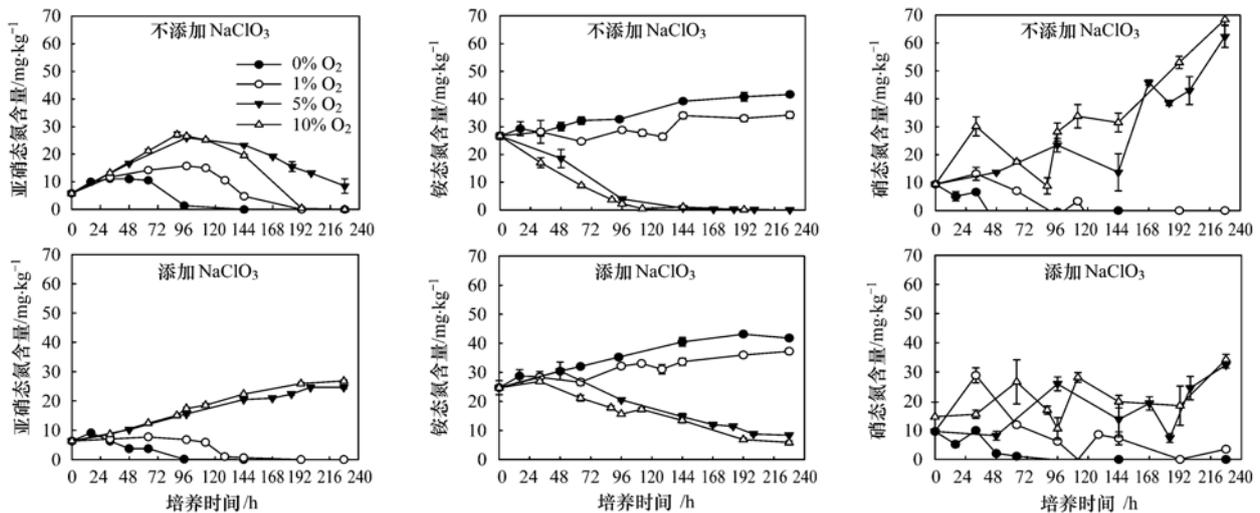


图 2 DI 土壤不添加和添加  $\text{NaClO}_3$  处理无机氮的动态变化

Fig. 2 Dynamic changes in mineral nitrogen content of DI soil with or without sodium chlorate ( $\text{NaClO}_3$ ) addition

不同氧气体积分数下的 N<sub>2</sub>O (图 1 和图 3) 产生峰值和 CO<sub>2</sub> (表 3) 累积产生量可以看出, 当初始氧气体积分数 ≤1% 时, DIS 土壤 N<sub>2</sub>O 和 CO<sub>2</sub> 产生量显著高于 DI 土壤 ( $P < 0.01$ ). 在 5% 初始氧气体积分数下, 两种土样

N<sub>2</sub>O 和 CO<sub>2</sub> 产生量无显著差异. 初始氧气体积分数为 10% 时, 培养结束时 DIS 和 DI 土壤中氧气体积分数分别为 4.09% 和 2.14%, DI 土壤 N<sub>2</sub>O 和 CO<sub>2</sub> 产生量显著高于 DIS 土壤 ( $P < 0.01$ ).

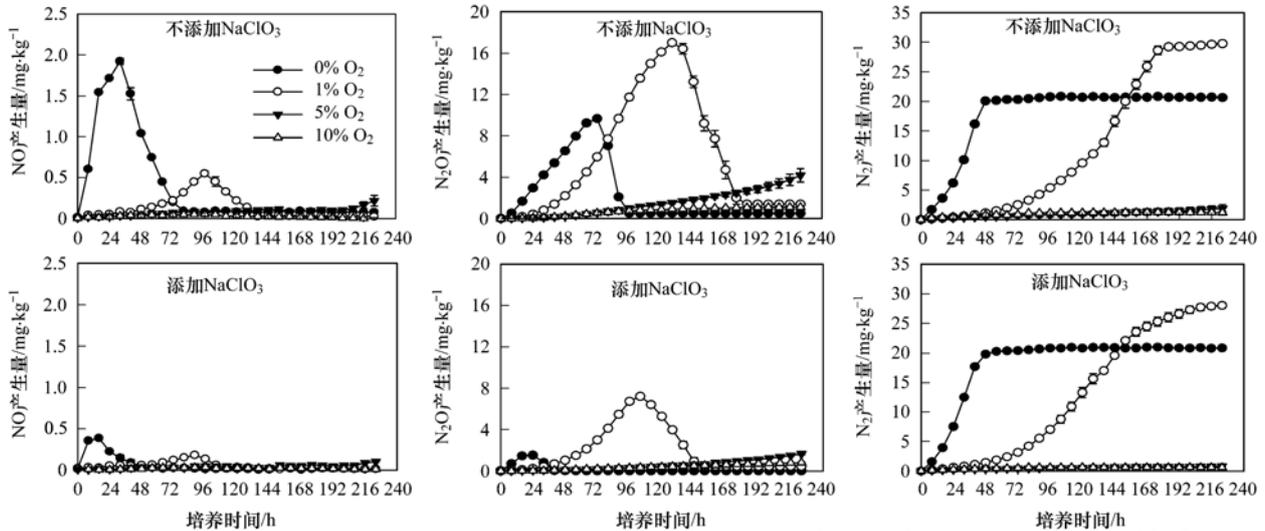


图 3 DI 土壤不添加/添加 NaClO<sub>3</sub> 处理 NO、N<sub>2</sub>O、N<sub>2</sub> 的动态变化

Fig. 3 Dynamic changes in NO, N<sub>2</sub>O, and N<sub>2</sub> of DI soil with or without NaClO<sub>3</sub> addition

表 3 不同初始氧气体积分数下 DIS 和 DI 土壤 CO<sub>2</sub> 累积产生量/nmol·g<sup>-1</sup>

Table 3 Cumulative CO<sub>2</sub> content in the soil with or without straw addition under different initial volume fractions of oxygen/nmol·g<sup>-1</sup>

土样	0% O <sub>2</sub>	1% O <sub>2</sub>	3% O <sub>2</sub>	5% O <sub>2</sub>	10% O <sub>2</sub>
DIS	1 670 ± 8.56 A	2 609 ± 12.73 A	4 854 ± 21.33	6 127 ± 49.63 A	6 587 ± 274.24 B
DI	1 363 ± 15.21 B	2 358 ± 12.70 B	—	6 009 ± 14.50 A	9 056 ± 53.85 A

### 3 讨论

在高氮投入的设施菜田, 碳氮比会严重失调<sup>[4]</sup>, 高碳氮比玉米秸秆的投入可能会对土壤氮素的转化产生一定的影响<sup>[22]</sup>. 本研究中, DI 土壤的矿化量普遍高于 DIS, 尤其是在 0% 和 1% 初始氧气体积分数下, 这主要受土壤 C/N 比的影响, 低 C/N 比的 DI 土壤更易发生矿化作用<sup>[27]</sup>. 长期添加作物秸秆的土壤有高的 N<sub>2</sub>O 产生潜势<sup>[22,23]</sup>, 当氧气体积分数 ≤1% 时, 这一现象尤为显著. 在 10% 初始氧气体积分数下, DI 土壤 N<sub>2</sub>O/(NO + N<sub>2</sub>O + N<sub>2</sub>) 指数和 CO<sub>2</sub> 产生量显著高于 DIS, 这是由于 DI 土壤较高的矿化作用和本底 NH<sub>4</sub><sup>+</sup> 含量显著增加了其氧气消耗速度, 较低的土壤氧含量会增加土壤微生物活性, 促进土壤 CO<sub>2</sub> 和 N<sub>2</sub>O 的产生<sup>[28]</sup>.

氧气会通过改变土壤功能基因的表达、酶活性等直接影响土壤氮素转化和 N<sub>2</sub>O 的产生<sup>[15,29]</sup>. 本研究中, 氧耗尽时会观察到 N<sub>2</sub>O 产生速率峰值, 但 N<sub>2</sub> 产生速率峰值随着氧气体积分数的升高显著降低,

导致 1% 和 3% 初始氧气体积分数下 N<sub>2</sub>O/(NO + N<sub>2</sub>O + N<sub>2</sub>) 指数显著增加. 这可能由于与其它反硝化酶相比, N<sub>2</sub>O 还原酶 N<sub>2</sub>OR 的活性表达时间相对滞后, 且其活性对氧气更敏感<sup>[30,31]</sup>. 同时, 考虑到供试土壤的采样时间在收获期后, 土壤有效性碳缺乏会导致电子供体不足, 也可能是导致 N<sub>2</sub>O 不能被有效还原的重要因素<sup>[32]</sup>.

氧气会通过影响中间产物 (NO<sub>2</sub><sup>-</sup>、NO 等) 的累积量, 间接地影响 NO<sub>x</sub> 的产生. Nadeem 等<sup>[33,34]</sup> 的研究认为, 有氧条件下 NO 会刺激反硝化调节蛋白 NNR (对 O<sub>2</sub> 及 NO 敏感) 的活性, 进而诱导 *nirS*、*nosZ* 基因的表达, 发生有氧条件下的异养反硝化反应. 本研究虽未对相关功能基因进行定量分析, 但 NO 的显著增加或者产生速率高峰总是伴随着氧耗竭现象的发生, 且初始氧气体积分数高于 5% 后 NO 测量值显著降低, 表明本研究中有氧条件下异养反硝化途径对 N<sub>2</sub>O 的贡献量较少<sup>[35]</sup>. 同时也说明, 本研究中 NO 产生量的大小及产生速率高峰出现的时间可以作为判断 N<sub>2</sub>O 产生途径的依据.

土壤中  $\text{NO}_2^-$  的过渡性累积会导致  $\text{N}_2\text{O}$  排放量或  $\text{N}_2\text{O}/(\text{NO} + \text{N}_2\text{O} + \text{N}_2)$  指数显著增加<sup>[20,36]</sup>. Dandie 等<sup>[37]</sup> 认为  $\text{NO}_3^-$ 、 $\text{NO}_2^-$  的还原与  $\text{N}_2\text{O}$  还原相比存在竞争优势, 导致土壤中  $\text{N}_2\text{O}$  的大量产生. 此外, 大量研究认为, 出于解毒机制,  $\text{NO}_2^-$  会诱导部分氨氧化细菌发生硝化细菌的反硝化反应, 终产物以  $\text{N}_2\text{O}$  的形式排放<sup>[20,27,38]</sup>. 在 1% 和 3% 初始氧气体积分数下, 从有氧向厌氧过渡过程中, 土壤  $\text{NO}_2^-$  持续累积且先于  $\text{NO}$  出现第一个  $\text{N}_2\text{O}$  产生速率高峰. 同时, 添加  $\text{NaClO}_3$  后,  $\text{NH}_4^+$  氧化的产物全部转化为  $\text{NO}_2^-$ , 5%、10% 初始氧气体积分数下土壤中持续增加的  $\text{NO}_2^-$  与  $\text{N}_2\text{O}$  产生量两者之间线性相关(图 4). 由此可见,  $\text{NO}_2^-$  的持续累积对  $\text{N}_2\text{O}$  的产生有诱

导效应, 且土壤  $\text{NO}_2^-$  累积量的高低可能主要受土壤初始底物浓度的影响. 5% 初始氧气体积分数下  $\text{NO}$ 、 $\text{N}_2\text{O}$  测量值显著降低, 但  $\text{N}_2\text{O}/(\text{NO} + \text{N}_2\text{O} + \text{N}_2)$  指数显著高于 0% 以及 10% 初始氧梯度的处理, 表明尽管有氧条件下土壤  $\text{N}_2\text{O}$  的产生量显著低于厌氧条件, 但  $\text{NO}_2^-$  诱导的硝化细菌反硝化过程会显著增加土壤的  $\text{N}_2\text{O}/(\text{NO} + \text{N}_2\text{O} + \text{N}_2)$  指数. Rassamee 等<sup>[11]</sup> 的研究结果显示氧气体积分数高于  $6.5 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$  (12% 氧气体积分数) 时, 即使  $\text{NO}_2^-$  存在, 只会产生很少的  $\text{N}_2\text{O}$ , 这是由于氧高于 6.83% 后  $\text{NO}_2^-$  会被迅速氧化为  $\text{NO}_3^-$ <sup>[39]</sup>, 这一观点可以由未添加  $\text{NaClO}_3$  处理的 DIS 土壤在 10% 初始氧气体积分数下无机氮、气体变化情况得以验证.

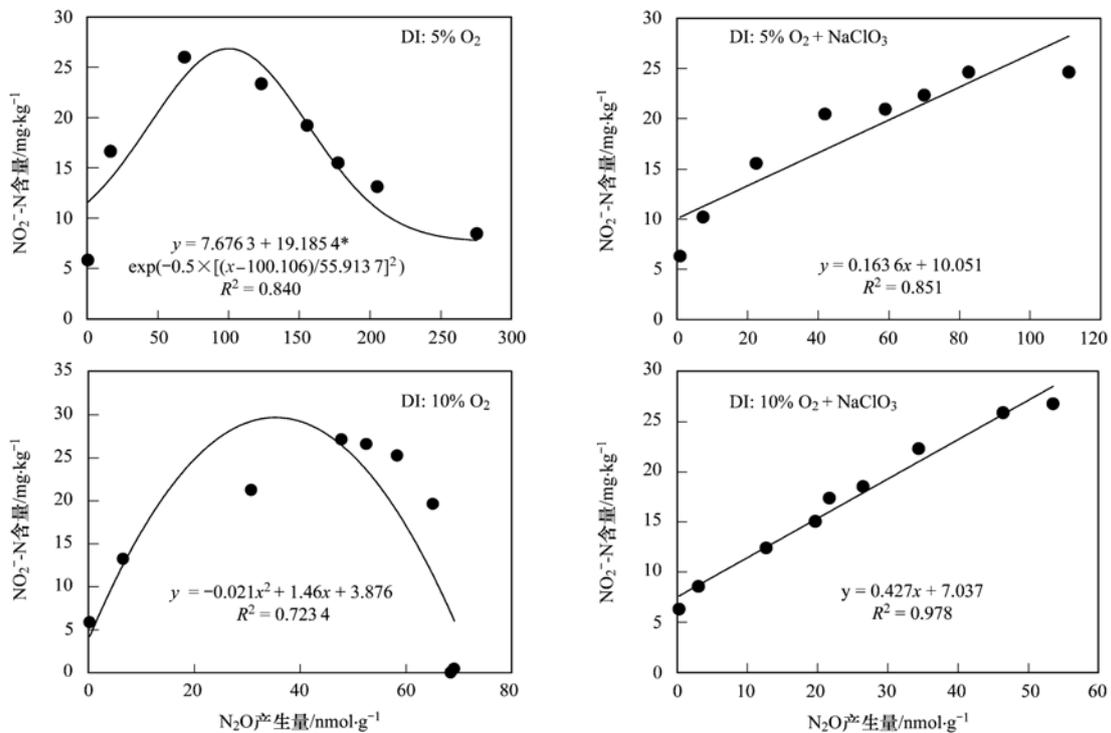


图 4 有氧条件下添加/不添加  $\text{NaClO}_3$  处理  $\text{NO}_2^-$  与  $\text{N}_2\text{O}$  的关系

Fig. 4 Relationship between  $\text{NO}_2^-$  and  $\text{N}_2\text{O}$  with or without  $\text{NaClO}_3$  addition under aerobic conditions

$\text{NaClO}_3$  的添加没有出现  $\text{N}_2\text{O}$  产生量显著高于未添加处理的现象, 这与 Schneider 等<sup>[19]</sup> 的研究结果不一致, 其认为有氧条件下氨氧化过程 ( $\text{NH}_4^+$  氧化为  $\text{NO}_2^-$ )  $\text{N}_2\text{O}$  的排放因子是亚硝酸氧化过程 ( $\text{NH}_4^+$  氧化为  $\text{NO}_3^-$ ) 的 4 倍. 这是由于本试验中虽然  $\text{CO}_2$  产生量不受  $\text{NaClO}_3$  添加的影响, 但  $\text{NaClO}_3$  不仅抑制了  $\text{NO}_2^-$  的氧化, 也同时对  $\text{NH}_4^+$  氧化过程产生了抑制效应<sup>[21]</sup>. 与大部分氨氧化抑制剂作用机理相同,  $\text{NaClO}_3$  会通过降低  $\text{NH}_4^+$  氧化速率减少  $\text{NO}_2^-$  的积累以及  $\text{N}_2\text{O}$  的产生<sup>[20,36,40]</sup>, 造成添加

$\text{NaClO}_3$  处理的 DI 土壤  $\text{N}_2\text{O}$  产生量显著低于不添加处理, 这也同时证实了硝化细菌反硝化过程对  $\text{N}_2\text{O}$  排放的贡献. 厌氧条件下添加  $\text{NaClO}_3$  后所有中间产物 ( $\text{NO}_2^-$ 、 $\text{NO}$ 、 $\text{N}_2\text{O}$ ) 累积量降低, 但  $\text{N}_2$  累积量无差异, 这可能是由于  $\text{NaClO}_3$  的添加刺激了 ROC (rapid, complete onset) 类菌株的活性, 此类菌被认为可以快速、完全地表达所有的反硝化功能基因, 而基本不会出现中间产物的过渡积累<sup>[16,17]</sup>.

#### 4 结论

(1) 有氧条件下土壤  $\text{N}_2\text{O}$  的产生量显著低于厌

氧条件, 且有氧条件下异养反硝化途径对 $N_2O$ 的贡献量较少. 长期添加作物秸秆的土壤有高的 $N_2O$ 产生潜势, 当氧气体积分数 $\leq 1\%$ 时, 这一现象尤为显著.

(2) 低氧条件下(初始氧气体积分数介于 $1\% \sim 5\%$ 时) $N_2O/(NO + N_2O + N_2)$ 指数显著高于厌氧以及好氧( $O_2 \geq 10\%$ )处理. 不完全的反硝化和 $NO_2^-$ 诱导的硝化细菌的反硝化共同作用, 显著增加了低氧条件下土壤 $N_2O$ 的产生量和 $N_2O/(N_2O + NO + N_2)$ 指数.

(3) 在田间实际条件下, 通过优化施肥保证作物正常的水肥需求的同时, 避免饱和灌溉以维持土壤较高的孔隙含氧量, 对降低土壤 $N_2O$ 产生量、 $N_2O/(NO + N_2O + N_2)$ 指数有重要意义.

#### 参考文献:

- [ 1 ] Reay D S, Davidson E A, Smith K A, *et al.* Global agriculture and nitrous oxide emissions[J]. *Nature Climate Change*, 2012, **2**(6): 410-416.
- [ 2 ] Liu Q H, Qin Y M, Zou J W, *et al.* Annual nitrous oxide emissions from open-air and greenhouse vegetable cropping systems in China[J]. *Plant and Soil*, 2013, **370**(1-2): 223-233.
- [ 3 ] Zheng X H, Han S H, Huang Y, *et al.* Re-quantifying the emission factors based on field measurements and estimating the direct  $N_2O$  emission from Chinese croplands [J]. *Global Biogeochemical Cycles*, 2004, **18**(2): GB2018.
- [ 4 ] 王敬国. 设施菜田退化土壤修复与资源高效利用[M]. 北京: 中国农业大学出版社, 2011.  
Wang J G. Management of degraded vegetable soils in greenhouses[M]. Beijing: China Agricultural University Press, 2011.
- [ 5 ] Pijuan M, Torà J, Rodríguez-Caballero A, *et al.* Effect of process parameters and operational mode on nitrous oxide emissions from a nitrification reactor treating reject wastewater[J]. *Water Research*, 2014, **49**: 23-33.
- [ 6 ] Pan M, Wen X G, Wu G X, *et al.* Characteristics of nitrous oxide ( $N_2O$ ) emission from intermittently aerated sequencing batch reactors (IASBRs) treating slaughterhouse wastewater at low temperature[J]. *Biochemical Engineering Journal*, 2014, **86**: 62-68.
- [ 7 ] Wunderlin P, Mohn J, Joss A, *et al.* Mechanisms of  $N_2O$  production in biological wastewater treatment under nitrifying and denitrifying conditions [J]. *Water Research*, 2012, **46**(4): 1027-1037.
- [ 8 ] Hu H W, Chen D L, He J Z. Microbial regulation of terrestrial nitrous oxide formation: understanding the biological pathways for prediction of emission rates [J]. *FEMS Microbiology Reviews*, 2015, **39**(5): 729-749.
- [ 9 ] Baggs E M. A review of stable isotope techniques for  $N_2O$  source partitioning in soils: recent progress, remaining challenges and future considerations [J]. *Rapid Communications in Mass Spectrometry*, 2008, **22**(11): 1664-1672.
- [ 10 ] Zhu X, Burger M, Doane T A, *et al.* Ammonia oxidation pathways and nitrifier denitrification are significant sources of  $N_2O$  and NO under low oxygen availability [J]. *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America*, 2013, **110**(16): 6328-6333.
- [ 11 ] Rassamee V, Sattayatewa C, Pagilla K, *et al.* Effect of oxic and anoxic conditions on nitrous oxide emissions from nitrification and denitrification processes [J]. *Biotechnology and Bioengineering*, 2011, **108**(9): 2036-2045.
- [ 12 ] Frame C H, Casciotti K L. Biogeochemical controls and isotopic signatures of nitrous oxide production by a marine ammonia-oxidizing bacterium [J]. *Biogeosciences*, 2010, **7**(2): 2695-2709.
- [ 13 ] Morley N, Baggs E M. Carbon and oxygen controls on  $N_2O$  and  $N_2$  production during nitrate reduction [J]. *Soil Biology and Biochemistry*, 2010, **42**(10): 1864-1871.
- [ 14 ] Miyahara M, Kim S W, Fushinobu S, *et al.* Potential of aerobic denitrification by *Pseudomonas stutzeri* TR2 to reduce nitrous oxide emissions from wastewater treatment Plants [J]. *Applied and Environmental Microbiology*, 2010, **76**(14): 4619-4625.
- [ 15 ] Figueroa-González I, Quijano G, Laguna I, *et al.* A fundamental study on biological removal of  $N_2O$  in the presence of oxygen [J]. *Chemosphere*, 2016, **158**: 9-16.
- [ 16 ] Bergaust L, Mao Y J, Bakken L R, *et al.* Denitrification response patterns during the transition to anoxic respiration and posttranscriptional effects of suboptimal pH on nitrogen oxide reductase in *Paracoccus denitrificans* [J]. *Applied and Environmental Microbiology*, 2010, **76**(19): 6387-6396.
- [ 17 ] Liu B B, Frostegård Å, Shapleigh J P. Draft genome sequences of five strains in the genus *Thauera* [J]. *Genome Announcements*, 2013, **1**(1): e00052-12.
- [ 18 ] Liu B B, Frostegård Å, Bakken L R. Impaired reduction of  $N_2O$  to  $N_2$  in acid soils is due to a posttranscriptional interference with the expression of *nosZ* [J]. *mBio*, 2014, **5**(3): 01383-14.
- [ 19 ] Schneider Y, Beier M, Rosenwinkel K H. Influence of operating conditions on nitrous oxide formation during nitrification and denitrification [J]. *Environmental Science and Pollution Research*, 2014, **21**(20): 12099-12108.
- [ 20 ] Ma L, Shan J, Yan X Y. Nitrite behavior accounts for the nitrous oxide peaks following fertilization in a fluvo-aquic soil [J]. *Biology and Fertility of Soils*, 2015, **51**(5): 563-572.
- [ 21 ] Bauhus J, Meyer A C, Brumme R. Effect of the inhibitors nitrapyrin and sodium chlorate on nitrification and  $N_2O$  formation in an acid forest soil [J]. *Biology and Fertility of Soils*, 1995, **22**(4): 318-325.
- [ 22 ] 宋贺, 王敬国, 陈清, 等. 设施菜田不同碳氮管理对反硝化菌结构和功能的影响 [J]. *微生物学通报*, 2014, **41**(11): 2283-2292.  
Song H, Wang J G, Chen Q, *et al.* Impacts of different carbon and nitrogen managements on the structure and function of denitrifier community in a greenhouse vegetable cropping system [J]. *Microbiology China*, 2014, **41**(11): 2283-2292.
- [ 23 ] Gao J M, Xie Y X, Jin H Y, *et al.* Nitrous oxide emission and denitrifier abundance in two agricultural soils amended with crop residues and urea in the North China plain [J]. *PLoS One*, 2016, **11**(5): e0154773.
- [ 24 ] Fan Z B, Lin S, Zhang X M, *et al.* Conventional flooding

- irrigation causes an overuse of nitrogen fertilizer and low nitrogen use efficiency in intensively used solar greenhouse vegetable production[J]. *Agricultural Water Management*, 2014, **144**: 11-19.
- [25] Molstad L, Dörsch P, Bakken L R. Robotized incubation system for monitoring gases ( $O_2$ , NO,  $N_2O$ ,  $N_2$ ) in denitrifying cultures[J]. *Journal of Microbiological Methods*, 2007, **71**(3): 202-211.
- [26] Belser L W, Mays E L. Specific inhibition of nitrite oxidation by chlorate and its use in assessing nitrification in soils and sediments[J]. *Applied and Environmental Microbiology*, 1980, **39**(3): 505-510.
- [27] Eberwein J R, Oikawa P Y, Allsman L A, *et al.* Carbon availability regulates soil respiration response to nitrogen and temperature[J]. *Soil Biology and Biochemistry*, 2015, **88**: 158-164.
- [28] Banerjee S, Helgason B, Wang L F, *et al.* Legacy effects of soil moisture on microbial community structure and  $N_2O$  emissions[J]. *Soil Biology and Biochemistry*, 2016, **95**: 40-50.
- [29] Bueno E, Mesa S, Bedmar E J, *et al.* Bacterial adaptation of respiration from oxic to microoxic and anoxic conditions: redox control[J]. *Antioxidants & Redox Signaling*, 2012, **16**(8): 819-852.
- [30] Zheng J Q, Doskey P V. Simulated rainfall on agricultural soil reveals enzymatic regulation of short-term nitrous oxide profiles in soil gas and emissions from the surface[J]. *Biogeochemistry*, 2016, **128**(3): 327-338.
- [31] Qu Z, Bakken L R, Molstad L, *et al.* Transcriptional and metabolic regulation of denitrification in *Paracoccus denitrificans* allows low but significant activity of nitrous oxide reductase under oxic conditions[J]. *Environmental Microbiology*, 2016, **18**(9): 2951-2963.
- [32] Chen Y G, Wang D B, Zheng X, *et al.* Biological nutrient removal with low nitrous oxide generation by cancelling the anaerobic phase and extending the idle phase in a sequencing batch reactor[J]. *Chemosphere*, 2014, **109**: 56-63.
- [33] Nadeem S, Dörsch P, Bakken L R. Autoxidation and acetylene-accelerated oxidation of NO in a 2-phase system; implications for the expression of denitrification in *ex situ* experiments[J]. *Soil Biology and Biochemistry*, 2013, **57**: 606-614.
- [34] Nadeem S, Dörsch P, Bakken L R. The significance of early accumulation of nanomolar concentrations of NO as an inducer of denitrification[J]. *FEMS Microbiology Ecology*, 2013, **83**(3): 672-684.
- [35] Guo G X, Deng H, Qiao M, *et al.* Effect of long-term wastewater irrigation on potential denitrification and denitrifying communities in soils at the watershed scale[J]. *Environmental Science & Technology*, 2013, **47**(7): 3105-3113.
- [36] Maharjan B, Venterea R T. Nitrite intensity explains N management effects on  $N_2O$  emissions in maize[J]. *Soil Biology and Biochemistry*, 2013, **66**: 229-238.
- [37] Dandie C E, Wertz S, Leclair C L, *et al.* Abundance, diversity and functional gene expression of denitrifier communities in adjacent riparian and agricultural zones[J]. *FEMS Microbiology Ecology*, 2011, **77**(1): 69-82.
- [38] Yu R, Kampschreur M J, Van Loosdrecht M C, *et al.* Mechanisms and specific directionality of autotrophic nitrous oxide and nitric oxide generation during transient anoxia[J]. *Environmental Science & Technology*, 2010, **44**(4): 1313-1319.
- [39] Peng L, Ni B J, Ye L, *et al.* The combined effect of dissolved oxygen and nitrite on  $N_2O$  production by ammonia oxidizing bacteria in an enriched nitrifying sludge[J]. *Water Research*, 2015, **73**: 29-36.
- [40] Abed R M M, Lam P, De Beer D, *et al.* High rates of denitrification and nitrous oxide emission in arid biological soil crusts from the Sultanate of Oman[J]. *The ISME Journal*, 2013, **7**(9): 1862-1875.

## CONTENTS

An Assessment of PM <sub>2.5</sub> -Related Health Risks and Associated Economic Losses in Chinese Cities .....	LI Hui-juan, ZHOU De-qun, WEI Yong-jie (3467)
Impact of the Electric Power Industry on Air Quality in Winter of Urban Agglomerations Along the Middle Reaches of the Yangtze River ...	SUN Xiao-wei, GUO Xiu-rui, CHENG Shui-yuan (3476)
Capacity Simulation Method Based on Regional Transfer Matrix and PM <sub>2.5</sub> Concentration Target Constraint .....	LI Min-hui, LIAO Cheng-hao, YANG Liu-lin, et al. (3485)
Analysis of Chemical Composition of the Fine Particulate Matter in Summer in Tianjin City via a Single Particle Aerosol Mass Spectrometer (SPAMS) .....	WEN Jie, SHI Xu-rong, TIAN Ying-ze, et al. (3492)
Pollution Characteristics of Organic Carbon and Elemental Carbon in Atmospheric Aerosols in Beibei District, Chongqing .....	PENG Xiao-le, HAO Qing-ju, WEN Tian-xue, et al. (3502)
Characteristics and Source Analysis of Atmospheric Carbonaceous Aerosols in the Cities of Hangzhou and Ningbo .....	XU Hong-hui, XU Jing-sha, HE Jun, et al. (3511)
Emission Characteristics and Chemical Components of PM <sub>2.5</sub> from Open Burning of Municipal Solid Waste .....	WANG Yan, HAO Wei-wei, CHENG Ke, et al. (3518)
Size-resolved Emission Factors of Carbonaceous Particles from Domestic Coal Combustion in China .....	YANG Guo-wei, KONG Shao-fei, ZHENG Shu-ni, et al. (3524)
Characteristics and Source Analysis of Non-methane Hydrocarbons (NMHC) in Dalian .....	Ji De-yu (3535)
Scenario Analyses of the Volatile Organic Compound Emission Allowance and Allocation in the 13th Five-Year Period .....	ZHANG Jia-ni, CHEN Xiao-fang, LIANG Xiao-ming, et al. (3544)
Pollution Characteristics and Emission Coefficients of Volatile Organic Compounds from the Packaging and Printing Industry in Zhejiang Province .....	WANG Jia-de, LÜ Jian-zhang, LI Wen-juan, et al. (3552)
Emission Characteristics and Characteristic Substance Identification of Volatile Odorous Organic Compounds in Industries Using Organic Solvents .....	ZHAI Zeng-xiu, MENG Jie, WANG Gen, et al. (3557)
Analysis of Aerosol Optical Depth Variation Characteristics for 10 years in Urumqi Based on MODIS_C006 .....	HU Jun, KANG Yan-ming, CHEN Yong-hang, et al. (3563)
Motor Vehicle Pollution Control Scenarios of Beijing Subsidiary Administrative Center Based on Road Traffic Flow .....	FAN Shou-bin, GUO Jin-jin, LI Xue-feng (3571)
Air Pollution Characteristics and Jogger Inhalation Exposure in Typical Running Area of Beijing .....	TAO Shuang-cheng, GAO Shuo-han, XIONG Xin-zhu, et al. (3580)
Temporal and Spatial Changes in Sediment Nutrients and Heavy Metals of the Danjiangkou Reservoir Before and After Water Division of the Mid-route Project .....	LI Bing, WANG Ya, ZHENG Zhao, et al. (3591)
Fluorescence Characteristics and Environmental Significance of Organic Matter in the Northern Part of Lake Taihu in Spring and Winter .....	LÜ Wei-wei, YAO Xin, ZHANG Bao-hua (3601)
Contamination Levels and Ecological Risk Assessment of Phthalate Esters (PAEs) in the Aquatic Environment of Key Areas of Taihu Lake .....	ZHU Bing-qing, GAO Zhan-qi, HU Guan-jiu, et al. (3614)
Nitrogen and Phosphorous Adsorption Characteristics of Suspended Solids Input into a Drinking Water Reservoir via Typhoon Heavy Rainfall .....	YAO Ling-ai, ZHAO Xue-min, MA Qian-li, et al. (3622)
Geochemical Characteristics and Genesis Analyses of High-arsenic Groundwater in the Pearl River Delta .....	ZHANG Chang-yan, HE Jiang-tao, ZHANG Xiao-wen, et al. (3631)
Effects of Organic Pollutants on the Bacterioplankton Community in Hangzhou Bay .....	XUAN Li-xia, DAI Wen-fang, YU Wei-na, et al. (3640)
Bacterioplankton Community Structure in the Lancang River Basin and the Analysis of Its Driving Environmental Factors .....	CHENG Bao, WANG Xue, XU Ya-qian, et al. (3649)
Bacterial Community Structure Characteristics in the Biliuhe Reservoir and Its Key Driving Factors .....	WANG Huan, ZHAO Wen, XIE Zai-gang, et al. (3660)
Analysis of the Temporal and Spatial Distribution of the Diversity of the Denitrifying Anaerobic Methane-Oxidizing Bacterial Community in the Sediments of the Hunhe River and Its Relationship with Environmental Factors .....	ZHANG Ya-di, SONG Yong-hui, PENG Jian-feng, et al. (3670)
Influences of Anthropogenic Activities on the Community Structure of N-DAMO Bacteria in the North Canal .....	LIU Yang, CHEN Yong-juan, WANG Xiao-yan, et al. (3677)
Impact of Exogenous Nitrogen Import on Sediment Denitrification and N <sub>2</sub> O Emissions in Ditches Under Different Land Uses .....	SHE Dong-li, CHEN Xin-yi, GAO Xue-mei, et al. (3689)
Sedimentation Characteristics and Pollutant Content Distribution of Storm Drainage Sediments .....	SHANG Yu, ZHOU Yi, LIAO An-yi, et al. (3696)
Effect of Cr(VI) on Coagulation Process of Different Coagulants .....	GAO Qian, ZHANG Da-wei, XU Hui, et al. (3704)
Enhancement of Photoelectrocatalytic Degradation of Bisphenol A with Peroxymonosulfate Activated by a Co <sub>3</sub> O <sub>4</sub> /BiVO <sub>4</sub> Composite Photoanode .....	LI Jiang, WANG Yan, ZHANG Xiu-fang, et al. (3713)
Preparation and Characterization of a Calcium Alginate/Biochar Microsphere and Its Adsorption Characteristics and Mechanisms for Pb(II) .....	YU Chang-jiang, DONG Xin-yu, WANG Miao, et al. (3719)
Behaviors and Mechanisms of CIP and OFL Adsorption by Magnetic Biochar .....	ZHAO Hua-xuan, LANG Yin-hai (3729)
Optimization and Validation of the Analytical Method to Detect New Psychoactive Substances in Wastewater .....	CHEN Pei-pei, DU Peng, ZHOU Zi-lei, et al. (3736)
Effect of Hybrid Process of Pre-ozonation and CNT Modification on Hollow Fiber Membrane Fouling Control .....	GUAN Yu-qi, WANG Kai-lun, ZHU Xue-dong, et al. (3744)
Bioregeneration of Anion Exchange Resin Used in Nitrate Removal .....	YE Ting, ZHANG Guang, WANG Ke, et al. (3753)
Preparation of Prussian Blue@Yeast Catalyst and Its Heterogeneous Fenton Performance .....	CHEN Si, BAI Bo, WANG Hong-lun, et al. (3759)
Nitrogen Removal of Double-bacteria-layer System via PN/A Process .....	XU Jing-yi, DU Jun, YANG Yi-feng, et al. (3767)
Inhibitory Effect of Phenol on Phosphorus Removal Performance of an EBPR System .....	MA Juan, WANG Jin, YU Xiao-jun, et al. (3775)
Treatment of Old Landfill Leachate via a Denitrification-Partial Nitritation-ANAMMOX Process .....	WANG Fan, LU Ming-yu, YIN Ji-qiang, et al. (3782)
Denitrification Characteristics and Functional Genes of Denitrifying Bacteria Under Aerobic or Anaerobic Conditions .....	KANG Peng-liang, CHEN Sheng-nan, HUANG Ting-lin, et al. (3789)
Characteristic of Benzo[a]pyrene Anaerobic Degradation by Phenol Co-substrate and Microbial Communities from Two Types of Sludge .....	WU Hai-zhen, HU Xiao-yi, WANG Ming, et al. (3797)
Spectroscopic Characterization of DOM During Hyperthermophilic Composting of Sewage Sludge .....	LIU Xiao-ming, YU Zhen, ZHOU Pu-xiong, et al. (3807)
Effects of Biochar on Nitrous Oxide Fluxes and the Abundance of Related Functional Genes from Agriculture Soil in the North China Plain .....	LIU Xing-ren, ZHAO Guang-xin, ZHANG Qing-wen, et al. (3816)
Nitrous Oxide Production in Response to Oxygen in a Solar Greenhouse Vegetable Soil .....	CHEN Ji-ji, SONG He, CAO Wen-chao, et al. (3826)
Comprehensive Study of Lead Speciation and Its Bioavailability in Soils From a Lead/Zinc Mining Area by Micro X-Ray Fluorescence and X-Ray Absorption Near-Edge Structure .....	SUN Xiao-yan, LIU Jian, LUO Li-qiang (3835)
Assessment of Heavy Metal Pollution in Soil and Its Bioaccumulation by Dominant Plants in a Lead-Zinc Mining Area, Nanjing .....	LI Jun-kai, ZHANG Dan, ZHOU Pei, et al. (3845)
Preparation of Iron-Aluminum Modified Diatomite and Its Immobilization in Cadmium-Polluted Soil .....	YANG Yu-zhong, ZHU Jian, XIAO Yuan-yuan, et al. (3854)
Transfer of Soil Organic Carbon to Inorganic Carbon in Arid Oasis Based on Stable Carbon Isotope Technique .....	LI Yang-mei, GONG Lu, AN Shen-qun, et al. (3867)
Environmental Filters Drive the Assembly of the Soil Fungal Community in the <i>Larix principis-rupprechtii</i> Forests of the Guandi Mountains .....	ZHAO Peng-yu, LI Cui, CHAI Bao-feng (3876)
Effects of Transgenic Maize with <i>cry1Ab</i> and <i>Epsps</i> Genes C0030.3.5 on the Abundance and Community Structure of Soil Nitrogen-fixing Bacteria .....	WANG Rui, ZHU Ke, LI Gang, et al. (3885)
Effects of Gypsum on CH <sub>4</sub> Emission and Functional Microbial Communities in Paddy Soil .....	HU Xiang-yu, XIANG Qiu-jie, MU Zhi-jian (3894)
Effects of Long-term Fertilization on Enzyme Activities in Profile of Paddy Soil Profiles .....	DU Lin-sen, TANG Mei-ling, ZHU Zhen-ke, et al. (3901)
Effects of Sediment Burial and Exogenous Cd Input on Biomass Allocation and Antioxidative Enzyme Activities of <i>Suaeda salsa</i> in the Coastal Wetland of the Yellow River Delta .....	SONG Hong-li, WANG Li-zhi, YU Wan-ni, et al. (3910)
Pollution Characteristics and Health Risk Assessment of Heavy Metals in Wheat Grains Cultivated in Kaifeng Irrigation Area of the Yellow River .....	KANG Guo-hua, ZHANG Peng-yan, LI Yan-yan, et al. (3917)
Effect of Graphene Oxide on Algal Toxicity of Dibutyl Phthalate .....	TU Hai-feng, LIU Cheng, WANG Yu-qing, et al. (3927)
Effects of Organic Substrates on ANAMMOX-MFC Denitrification Electrogenesis Performance .....	ZU Bo, MA Lan, LIU Bo, et al. (3937)
Well-to-Wheels Fossil Energy Consumption and CO <sub>2</sub> Emissions of Hydrogen Fuel Cell Vehicles in China .....	LIN Ting, WU Ye, HE Xiao-yi, et al. (3946)
Secondary Organic Aerosols from Aqueous Reaction of Aerosol Water .....	YE Zhao-lian, QU Zhen-xiu, MA Shuai-shuai, et al. (3954)