

环境科学

(HUANJING KEXUE)

ENVIRONMENTAL SCIENCE

第35卷 第9期

Vol.35 No.9

2014

中国科学院生态环境研究中心 主办
科学出版社 出版



目次

长江三角洲地区霾判别方法的对比分析 刘晓慧,朱彬,高晋徽,张恩红,王红磊,陈焯鑫,王姝 (3239)

1980~2012年江苏省城市霾日的时空分布及成因分析 刘端阳,魏建苏,严文莲,吕军,孙燕 (3247)

瓦里关大气二氧化碳和甲烷时间变化特征 刘鹏,张国庆,王剑琼,吴昊,李宝鑫,王宁章 (3256)

上海城区PM_{2.5}中有机碳和元素碳变化特征及来源分析 张懿华,王东方,赵倩彪,崔虎雄,李娟,段玉森,伏晴艳 (3263)

亚青会期间南京市气溶胶中OC和EC的粒径分布 王红磊,朱彬,安俊琳,段卿,邹嘉南,沈利娟 (3271)

无锡市冬季典型天气PM_{2.5}中碳组分的污染特征 云龙,陆钊,张天舒,伍德侠,盛世杰,陆亦怀,刘建国 (3280)

高炉炼铁工艺细颗粒物PM_{2.5}排放特性分析 范真真,赵亚丽,赵浩宁,梁兴印,孙静雯,王保贵,王亚军 (3287)

重庆市北碚城区大气中VOCs组成特征研究 祁心,郝庆菊,吉东生,张军科,刘子锐,胡波,王跃思,江长胜 (3293)

双组分VOCs的催化氧化及动力学分析 卜龙利,杨力,孙剑宇,梁欣欣,虎雪姣,孟海龙 (3302)

汽车排放超细颗粒物浓度及粒径谱特征的研究 陆叶强,陈秋方,孙在,蔡志良,杨文俊 (3309)

疏勒河上游地表水化学离子特征及其控制因素 周嘉欣,丁永建,曾国雄,吴锦奎,秦甲 (3315)

河流库区沉积物-水界面营养盐及气态氮的释放过程和通量 陈朱虹,陈能汪,吴殷琪,莫琼利,周兴鹏,鲁婷,田蕴 (3325)

大辽河感潮段及其近海河口重金属空间分布及污染评价 张雷,秦延文,马迎群,赵艳民,时瑶 (3336)

雅鲁藏布江中段表层沉积物重金属形态分布及风险评价 柏建坤,李潮流,康世昌,陈鹏飞,王建力 (3346)

北京奥林匹克公园地表颗粒物粒度特征分析 李海燕,石安邦,瞿杨晨,岳靖淋 (3352)

黄河表层沉积物中类二噁英多氯联苯水平分布 李光耀,金军,何畅,王英,马召辉,李明园 (3358)

合肥城郊典型源头溪流不同渠道形态的氮磷滞留特征 李如忠,杨继伟,钱靖,董玉红,唐文坤 (3365)

基于水资源调度的平原河网区城市河道氮迁移转化研究 刘波,盛明,朱强,杨霜,檀炳超,范冉,南旭军,何茂阳,王国祥 (3373)

杭州湾潮滩湿地植物不同分解过程及其磷素动态 邵学新,梁新强,吴明,叶小齐,蒋科毅 (3381)

基于数据同化的太湖叶绿素多模型协同反演 李渊,李云梅,吕恒,朱利,吴传庆,杜成功,王帅 (3389)

天然日光辐照下两江交汇处溶解性有机质(DOM)光漂白过程:以涪江-嘉陵江为例 高洁,江韬,闫金龙,魏世强,王定勇,卢松,李璐璐 (3397)

利用紫外-可见吸收光谱估算三峡库区消落带水体、土壤和沉积物溶解性有机质(DOM)浓度 李璐璐,江韬,卢松,闫金龙,高洁,魏世强,王定勇,郭念,赵铮 (3408)

Cu₂O-Ag-AgBr/MA可见光催化剂的制备及其降解2-氯苯酚的研究 王冉,周雪峰,胡学香,胡春 (3417)

不同粒径零价铁活化过硫酸钠氧化降解酸性橙7的影响及动力学研究 李欢旋,王金泉,马邕文,黄明智,王艳,陈杨梅 (3422)

还原脱氯-生物联合降解2,4-二氯苯氧乙酸 周红艺,曾思思,梁思,韩鉴 (3430)

多介质土壤滤层系统(MSL)与潜流式人工湿地技术处理海水养殖废水的效能比较 宋颖,黄玉婷,葛川,张浩,陈昕,张志剑,罗安程 (3436)

不同碳源在污水处理过程中的变化规律研究 金鹏康,常晋,王先宝,刘柯君,王晓昌 (3443)

气升装置对厌氧氨氧化反应器脱氮效能的影响 李祥,张大林,黄勇,陈宗炬,袁怡 (3449)

微波及其组合工艺强化污泥厌氧消化研究 刘吉宝,倪晓棠,魏源送,佟娟,王亚炜 (3455)

“热水解-高温厌氧消化”工艺处理高含固率剩余污泥的中试研究 吴静,王广启,曹知平,李中华,胡玉瑛,王凯军,左剑恶 (3461)

温度对ABR-MBR复合工艺处理生活污水的影响及其微生物群落分析 吴鹏,陆爽君,徐乐中,刘捷,沈耀良 (3466)

污水处理厂尾水细菌群落结构分析 徐爱玲,任杰,宋志文,吴等等,夏岩 (3473)

沼液养殖钝顶螺旋藻的中试研究 国青青,刘锐,罗金飞,王根荣,陈吕军,刘笑 (3480)

内源呼吸过程溶解性代谢产物的光谱特性分析 李志华,张芹,白旭丽,刘毅 (3487)

基于呼吸图谱的自养菌与异养菌内源呼吸过程分析 李志华,白旭丽,张芹,刘毅,贺春博 (3492)

S-异丙甲草胺与镉对斜生栅藻光合作用的影响 陈彩东,胡晓娜,章小强,刘惠君 (3498)

影响浑太河流域鱼类群落结构的不同尺度环境因子分析 李艳利,李艳粉,徐宗学 (3504)

河口区新建河道轮虫群落演替及与水环境的关系 马文华,张玮,顾琬雯,张瑞雷,王丽卿 (3513)

Fontibacter sp. SgZ-2厌氧腐殖质/Fe(III)还原特性及电子传递机制研究 马晨,杨贵芹,陆琴,周顺桂 (3522)

基于UNMIX模型的夹皮沟金矿区土壤重金属源解析 艾建超,王宁,杨净 (3530)

石河子市土壤环境磁学特征及空间分布研究 杨涵,熊黑钢,陈学刚 (3537)

不同施磷量(KH₂PO₄)作用对Cu、Zn在红壤中的迁移转化 郭亮,李忠武,黄斌,王艳,张艳 (3546)

硫素对水稻吸收砷的生物有效性及其在土壤中的形态影响 杨世杰,唐冰培,王代长,饶伟,张亚楠,王丹,朱云集 (3553)

硫对土壤中硒形态变化及油菜硒吸收的影响 刘新伟,段碧辉,夏全杰,矫威,郭再华,胡承孝,赵竹青 (3564)

再生水灌溉对土壤化学性质及可培养微生物的影响 龚雪,王继华,关键飞,杨雪辰,陈黛慈 (3572)

西南喀斯特山区寿竹林地土壤微生物量与酶活性在不同坡位和剖面层次分布特征 秦华军,何丙辉,赵旋池,李源,毛文韬,曾清平 (3580)

黔中喀斯特石漠化区不同土壤类型对常见植物叶片δ¹³C值的影响 杜雪莲,王世杰,罗绪强 (3587)

碳底物含量对厌氧条件下水稻土N₂、N₂O、NO、CO₂和CH₄排放的影响 陈诺,廖婷婷,王睿,郑循华,胡荣桂, Klaus Butterbach-Bahl (3595)

北京市典型绿化灌木阻滞吸附PM_{2.5}能力研究 梁丹,王彬,王云琦,张会兰,杨松楠,李昂 (3605)

污泥焚烧过程中氯化物对Cd迁移行为的影响 刘敬勇,卓钟旭,孙水裕,罗光前,李晓明,谢武明,王玉洁,杨佐毅,赵素莹 (3612)

京津冀区域生产和消费CO₂排放的时空特点分析 汪浩,陈操操,潘涛,刘春兰,陈龙,孙莉 (3619)

水泥工业大气污染物排放控制水平确立研究 任春,江梅,邹兰,李晓倩,魏玉霞,赵国华,张国宁 (3632)

《环境科学》征稿简则(3279) 《环境科学》征订启事(3545) 信息(3364,3486,3552,3563)

碳底物含量对厌氧条件下水稻土 N_2 、 N_2O 、 NO 、 CO_2 和 CH_4 排放的影响

陈诺^{1,2}, 廖婷婷², 王睿^{2*}, 郑循华², 胡荣桂¹, Klaus Butterbach-Bahl³

(1. 华中农业大学资源与环境学院, 武汉 430070; 2. 中国科学院大气物理研究所大气边界层物理和大气化学国家重点实验室, 北京 100029; 3. 卡尔斯鲁厄理工大学气象与气候研究所大气环境研究部, 加尔米施-帕滕基兴 82467, 德国)

摘要: 理解底物碳氮对厌氧条件下水稻土排放氮素气体——氮气(N_2)、氧化亚氮(N_2O)和一氧化氮(NO)以及二氧化碳(CO_2)和甲烷(CH_4)的影响, 有助于制定合理的温室气体减排措施, 定量了解反硝化产物组成对碳底物水平的依赖性, 也有助于氮转化过程模型研发中制定正确的关键过程参数选取方法或参数化方案. 本研究采用粉砂壤质水稻土为研究对象, 设置对照(CK)和加碳(C^+)两个处理, 前者的初始硝态氮和可溶性有机碳(DOC)含量分别为 $\sim 50 \text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ 和 $\sim 28 \text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$, 后者的分别为 $\sim 50 \text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ 和 $\sim 300 \text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$. 采用氦环境培养-气体及碳氮底物直接同步测定系统, 研究了完全厌氧条件下碳底物水平对上述气体排放的影响. 结果表明, CK处理无 CH_4 排放, 而 C^+ 处理可观测到 CH_4 排放; C^+ 处理的综合增温潜势显著高于CK处理($P < 0.01$); NO 、 N_2O 和 N_2 排放量占这3种氮素气体排放总量的比重, 在CK处理分别约为9%、35%和56%, 在 C^+ 处理分别约为31%、50%和19%, 处理间差异显著($P < 0.01$). 由此表明, 碳底物水平可显著改变所排放氮素气体的组成; 对于旱地阶段硝态氮比较丰富的水稻土, 避免在淹水前或淹水期间施用有机肥, 有利于削减温室气体排放.

关键词: 水稻土; 反硝化; 气体排放; N_2 ; N_2O ; NO ; DOC含量; NO_3^- 含量

中图分类号: X144 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2014)09-3595-10 DOI: 10.13227/j.hjxx.2014.09.048

Effect of Carbon Substrate Concentration on N_2 , N_2O , NO , CO_2 and CH_4 Emissions from a Paddy Soil in Anaerobic Condition

CHEN Nuo^{1,2}, LIAO Ting-ting², WANG Rui², ZHENG Xun-hua², HU Rong-gui¹, Klaus Butterbach-Bahl³

(1. College of Resources and Environment, Huazhong Agricultural University, Wuhan 430070, China; 2. State Key Laboratory of Atmospheric Boundary Layer Physics and Atmospheric Chemistry, Institute of Atmospheric Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100029, China; 3. Atmospheric Environmental Research, Institute for Meteorology and Climate Research, Karlsruhe Institute of Technology, Garmisch-Partenkirchen 82467, Germany)

Abstract: Understanding the effects of carbon and nitrogen substrates concentrations on the emissions of denitrification gases including nitrogen (N_2), nitrous oxide (N_2O) and nitric oxide (NO), carbon dioxide (CO_2) and methane (CH_4) from anaerobic paddy soils is believed to be helpful for development of greenhouse gas mitigation strategies. Moreover, understanding the quantitative dependence of denitrification products compositions on carbon substrate concentration could provide some key parameters or parameterization scheme for developing process-oriented model(s) of nitrogen transformation. Using a silt loam soil collected from a paddy field, we investigated the influence of carbon substrate concentration on the emissions of the denitrification gases, CO_2 and CH_4 from anaerobically incubated soils by setting two treatments: control (CK) with initial soil nitrate and dissolved organic carbon (DOC) concentrations of $\sim 50 \text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ and $\sim 28 \text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$, respectively; and DOC added (C^+) with initial soil nitrate and DOC concentrations of $\sim 50 \text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ and $\sim 300 \text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$, respectively. The emissions of denitrification gases, CO_2 and CH_4 , as well as concentrations of carbon and nitrogen substrates for each treatment were dynamically measured, using the gas-flow-soil-core technique and a paralleling substrate monitoring system. The results showed that CH_4 emission was not observed in CK treatment while observed in C^+ treatment. Aggregate emission of greenhouse gases for C^+ treatment was significantly higher comparing with the CK treatment ($P < 0.01$). The mass fractions of NO , N_2O and N_2 emissions in total nitrogen gases emissions were approximately 9%, 35% and 56% for CK treatment, respectively; and approximately 31%, 50% and 19% for C^+ treatment, respectively, with significant differences between these two treatments ($P < 0.01$). The results indicated that carbon substrate concentrations can significantly change the composition of nitrogen gas emissions. The results also implicated that organic fertilizer should not be applied to nitrate-rich paddy soils prior to or during flooding so as to mitigate greenhouse gases emissions.

Key words: paddy soil; denitrification; gas emissions; N_2 ; N_2O ; NO ; DOC concentration; NO_3^- concentration

收稿日期: 2014-02-18; 修订日期: 2014-04-11

基金项目: 国家重点基础研究发展规划(973)项目(2012CB417100); 国家自然科学基金项目(41075109, 41303060, 41321064)

作者简介: 陈诺(1989~), 女, 硕士研究生, 主要研究方向为土壤反硝化过程机制, E-mail: Nuo.C1989@gmail.com

* 通讯联系人, E-mail: wangrui@mail.iap.ac.cn

微生物反硝化作用是微生物在无氧或微氧条件下利用碳源作为电子供体,将硝态氮(NO_3^-)和亚硝态氮(NO_2^-)逐步还原成一氧化氮(NO)、氧化亚氮(N_2O)和氮气(N_2)的过程^[1]. 微生物反硝化在闭合全球氮循环中起着极其重要的作用^[2],同时,该过程的中间产物 N_2O 和 NO ,因对环境和气候产生直接和间接影响而备受关注^[3].

中国是水稻生产大国,水稻种植面积占全国耕地面积的23%^[4]. 在淹水种植条件下,稻田土壤中反硝化作用剧烈发生,从而导致 N_2O 产生和排放,严格厌氧下的有机碳转化过程还会产生进而排放大量甲烷(CH_4)^[5]. 稻田 N_2O 和 CH_4 的减排已成为国内外研究的热点^[6-8]. 影响淹水稻田土壤反硝化速率及产物组成的主要控制因子包括碳源(可溶性有机碳)和氮源(硝态氮)^[9]. 可溶性有机碳(DOC)是土壤有机质中最活跃的组分,生物有效性极高. 葡萄糖作为一种可溶性有机碳,常被用于室内研究模拟添加外源有机碳进入土壤. 目前,针对施肥影响土壤 N_2O 和 CH_4 排放的研究较多^[10-13],但同步监测土壤微生物反硝化过程中 N_2 排放的研究较少,针对每

种氮素气体、二氧化碳(CO_2)和 CH_4 的排放以及碳氮底物浓度的变化开展的综合研究更少. 因而,对稻田土壤厌氧条件下的反硝化过程速率和气体产物组成的变化规律及其与碳氮底物浓度水平的定量关系,迄今尚缺乏比较明确的认识.

本研究以采自湖北十堰地区的一个水稻土为对象,设置对照和添加碳源处理,使用氮环境培养-气体和底物直接同步测定系统^[14-16],对土壤厌氧培养过程中的氮素气体及 CO_2 和 CH_4 排放速率和碳氮底物含量动态进行测定,以探讨碳底物含量对稻田土壤氮素气体产物组成的影响,以期为氮转化过程模型研发提供不同碳底物水平条件下供试土壤的关键反硝化过程参数(产物组成等)实测值.

1 材料与方法

1.1 供试土壤

供试土壤采自湖北省十堰市西沟乡黄土村($32^\circ 20' \text{N}$, $110^\circ 30' \text{E}$)的水稻土农田,是一个粉砂壤质(silt loam)、偏酸性的土壤,其部分理化性质如表1.

表1 供试土壤的部分理化性质¹⁾

Table 1 Some physical and chemical properties of the investigated soil

土壤类型	土层深度/cm	不同粒径土粒质量分数/%			pH	有机碳 / $\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$	全氮 / $\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$
		黏粒	粉粒	砂粒			
水稻土	0~20	5.2	33.7	61.1	6.2	10.3	1.18

1) 黏粒, $<0.002 \text{ mm}$; 粉粒, $0.002 \sim 0.02 \text{ mm}$; 砂粒, $0.02 \sim 2.00 \text{ mm}$

1.2 试验设计

试验设置单加氮源的对照(CK)和碳氮源均添加(C^+)两个处理. CK处理只加入一定量的硝酸钾(KNO_3)溶液,以补足土壤初始 NO_3^- 浓度为 $\sim 50 \text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$; C^+ 处理通过加入一定量 KNO_3 和葡萄糖的混合溶液,调节土壤初始 NO_3^- 含量为 $\sim 50 \text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$,可溶性有机碳(DOC)含量为 $\sim 300 \text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$.

1.3 培养前的土壤处理

采回的鲜土经风干后磨细,过 2 mm 筛后混匀,室内干燥保存. 试验开始前2周左右,将供试土壤加水调节至土壤湿度(土壤充水孔隙度,WFPS)为 $\sim 45\%$,在 4°C 条件下预培养. 试验开始前1d,将预培养土壤充分混匀,测定土壤初始的 NO_3^- 和DOC浓度,根据测定值计算应当补充添加的 NO_3^- 和DOC的量,并配置好一定浓度的 KNO_3 溶液和 KNO_3 与葡萄糖混合溶液,置于冰箱(4°C)冷藏. 试

验开始时,再次将预培养土壤充分混合,用环刀(内直径 60 mm ,高 40 mm)取土柱39个(每个环刀的取土量参考田间实测的土壤容重来确定),其中12个土柱放入气体直接测定系统的3个培养罐内,余下27个放入同步底物测定系统的27个培养罐内. 气体和底物测定系统的培养罐内的气室体积相对于土柱体积的比值是一致的,而且两系统流过培养罐的气体流速相对于土柱体积或气室体积的比值也是一致的,这样的设计就是尽可能地减少两个系统由于培养罐尺寸和土柱数量的不同而产生培养条件的差异^[16]. 每个土柱均添加等量的 KNO_3 溶液或 KNO_3 与葡萄糖的混合液(5 mL),以将土壤初始 NO_3^- 和DOC浓度补足到设定值. 加入 5 mL 溶液后,土壤湿度增加至 52% WFPS. 紧接着,立即密闭培养罐,进行气体置换、培养和气体排放速率及土壤碳氮底物浓度动态的测定. 对气体排放速率动态测定系统和碳氮底物浓度动态测定系统的简要介绍见1.4节,

其更详细描述见文献[11,12].

1.4 土柱培养与气体排放速率测定方法

采用基于氦环境流动气体土柱培养(gas-flow-soil-core, GFSC)技术的气体排放速率测定系统和碳氮底物配套测定系统(SMOS)及其三阶段培养测定方法^[14-16],进行气体(N_2 、 N_2O 、 NO 、 CO_2 和 CH_4)排放速率动态和碳氮底物 [NO_3^- 、亚硝态氮(NO_2^-)、铵态氮(NH_4^+)和 DOC]浓度动态的同步测定. GFSC-SMOS 系统原理是用高纯氦气(He)和一定比例的高纯氧气(O_2)置换土柱内的气体,使土壤空气全部为 He(和 O_2)所取代,然后以一定时间间隔对培养容器内气体及底物浓度进行直接同步测定. 三阶段培养测定法包括低温有氧置换阶段(P_1)、低温厌氧置换阶段(P_2)和设定温度条件下的厌氧培养测定阶段(P_3)^[14-16]. P_1 阶段的气体置换,旨在将培养体系中原有的 N_2 比较彻底地清除,为测定土壤中产生的 N_2 建立无背景 N_2 培养环境,整个置换过程在低温($\sim 2^\circ C$)和 $\sim 20\%$ O_2 浓度条件下进行,低温可以避免发生氧化反应而消耗初始 NH_4^+ 和 DOC 等,有氧防止发生反硝化作用而消耗初始 NO_3^- . 为测定氮素气体排放潜势, P_2 阶段的置换气体不含 O_2 ,旨在使培养土柱内形成完全厌氧状态,但整个阶段仍然保持与 P_1 相同的低温,以使反硝化作用在此阶段不会强烈发生. P_3 阶段始于将培养环境的温度迅速调节至设置温度水平(本研究设为 $25^\circ C$). 各阶段内以设定的频率进行气体、土壤采样和测定,以取得动态的气体排放速率和碳氮底物浓度,CK 处理的培养过程结束于各种 N 素气体排放速率降至检测限附近时, C^+ 处理的培养时间长度设置为与 CK 处理完全相同.

1.4.1 气体排放速率动态测定

GFSC 由装样系统、气路系统和分析检测系统构成. 装样系统设有 3 个独立的不锈钢培养容器(内直径 142 mm,内高 56 mm),每个容器内可放置 4 个环刀土柱. 培养容器置于可设置 $0 \sim 50^\circ C$ 范围内任何温度条件的恒温水浴中,既控制培养温度,又保证容器内的气密性. 气路系统用于实现气体置换和气体在线自动采集,并将气体样品注入分析系统,实现对 N_2 、 NO 、 N_2O 、 CO_2 和 CH_4 的直接同步测定. 分析系统由带双热导检测器(TCD)的气相色谱仪(Agilent micro GC 3000,安捷伦公司,美国加州)、带电子捕获检测器(ECD)和氢火焰离子化检测器(FID)的气相色谱仪(Agilent GC 6820,安捷伦中国分公司,中国上海)和氮氧化物分析仪(42i NO- NO_2 -

NO_x ,热电环境仪器公司,美国麻省)构成,前一个气相色谱仪(GC)的两个 TCD 分别用于分析 N_2 和高浓度 NO ,后一个 GC 用于分析 N_2O 、 CO_2 和 CH_4 浓度,氮氧化物分析仪用于检测低浓度 NO . GFSC 的构造和气体浓度测定方法详见文献[14,16].

P_1 阶段,待水浴温度降低至 $2^\circ C$,测定 1 次气体排放速率(但此阶段不能测定 N_2). P_2 和 P_3 阶段,每天测定 4~6 次气体排放速率(即每 4~6 h 测定一次). 每次排放速率的测定时间持续 60 min,这期间每隔 15 min 测定一次培养容器气室的 N_2 、 N_2O 、 NO 、 CO_2 和 CH_4 浓度,共测定 5 次. 根据 5 次浓度测定值及对应的采样时间计算气体排放速率的公式^[14]如下:

$$F = \frac{V_H \cdot (\Delta c_i / \Delta t - \Delta c_l / \Delta t) \cdot M}{M_{ds} \cdot V_{corr}} \quad (1)$$

式中, F 为 N_2 、 N_2O 、 NO 、 CO_2 或 CH_4 排放速率 [$\mu g \cdot (h \cdot kg)^{-1}$], V_H 为培养罐气室体积(408 mL), $\Delta c_i / \Delta t$ 为经过稀释校正的培养罐气室内被测气体体积混合比浓度(校正方法详见文献[14])的变化率 [$\mu mol \cdot (mol \cdot h)^{-1}$], $\Delta c_l / \Delta t$ 为培养罐的渗漏率 [$\mu mol \cdot (mol \cdot h)^{-1}$], M 为每摩尔被测气体的 C 或 N 质量数 ($g \cdot mol^{-1}$), M_{ds} 为培养土壤样品的干重(g), V_{corr} 为培养罐气室温度和压力下的被测气体摩尔体积 ($L \cdot mol^{-1}$).

GFSC 测定上述气体排放速率的 95% 置信区间检测限[单位: $\mu g \cdot (h \cdot kg)^{-1}$]分别为: N_2 , 0.5; N_2O , 0.01; NO , 0.05 (NO - NO_2 - NO_x) ~ 1.1 (GC 3000); CO_2 , 2.3; CH_4 , 0.2^[15].

1.4.2 碳氮底物浓度动态测定

由于 GFSC 对气密性要求很高,不便在培养过程中监测土壤碳氮底物浓度动态,本研究采用廖婷婷^[16]建立的一套与 GFSC 配套的 SMOS 系统来完成上述 4 种碳氮底物浓度的动态测定. SMOS 的土壤样品前处理方式及培养条件与 GFSC 完全一致. SMOS 设有 3 组不锈钢密封培养罐,每组 12 个(每个培养罐的尺寸为内直径 65 mm,内高 65 mm,内可放置 1 个环刀土柱,环刀尺寸规格与 GFSC 中的一致),可实现培养过程中对底物碳氮浓度测定多达 12 次(每次 3 个重复). 培养罐置于可在 $-20 \sim 50^\circ C$ 范围任意设置温度的恒温培养箱内,以控制土壤样品的培养温度. 各个培养罐之间互相独立,因而能够在培养过程中随时从每组中各取出一个培养土柱进行底物碳氮浓度测定,取样操作不会对其他继续培养的土柱造成干扰. 在培养条件转变的关键

阶段(如升温后 12 h 内),每 4 h 测定一次底物浓度,而在其他阶段,只每天测定一次底物浓度. 每次测定都从各组培养罐中同时各随机选取一个,共取 3 个土柱用于底物浓度测定. SMOS 的构造和采样方法详见文献[16].

对每次取出的 3 个重复土柱,分别采用如下方法测定其 NO_3^- 、 NO_2^- 、 NH_4^+ 和 DOC 浓度.

NH_4^+ 和 NO_3^- ^[17]:100 mL KCl(1 mol·L⁻¹)浸提,水土比 5,振荡 1 h,流动注射分析仪(Skalar, SA5000+, 荷兰)测定.

NO_2^- ^[18]:100 mL KCl(1 mol·L⁻¹)浸提,水土比 5,振荡 1 h,分光光度计(UNICO UV-2802, 中国上海)测定.

DOC^[19]:30 mL K₂SO₄(0.05 mol·L⁻¹)浸提,水土比 5,振荡 1 h,离心(6 000 r·min⁻¹, 10 min),无碳滤膜(0.45 μm 聚醚砜, 德国)过滤,碳氮分析仪(multi NC 3000, 德国耶拿)测定.

1.5 数据处理与统计分析

采用 Microsoft Office Excel 2010(微软公司, 美国)进行数据处理,SPSS 16.0(SPSS Inc., 美国芝加哥)进行 $P < 0.05$ 水平的显著性检验和 Sigmaplot 12.2(Systat Software Inc, 印度班加罗尔)绘图.

无氧条件下,如果土壤中只发生反硝化过程, NO_3^- 的减少量应等于反硝化气体累积排放量之和($N_i = \text{NO} + \text{N}_2\text{O} + \text{N}_2$),但实际上由于测定误差和其他过程(如 NO_3^- 异化还原为铵)的存在,使得系统氮素回收率不能达到 100%. 反硝化氮素产物排放(或变化)的测定结果对消耗氮底物的回收率(R),是评价测定方法可靠性的重要指标,其值越接近 100% 越好. 当培养土壤中的 NO_2^- 浓度处于上升阶段(即 $\Delta\text{NO}_2^- \geq 0$)时, $R = (N_i + |\Delta\text{NO}_2^-|) / |\Delta\text{NO}_3^-| \times 100$; 反之,则 $R = N_i / (|\Delta\text{NO}_3^-| + |\Delta\text{NO}_2^-|) \times 100$. 式中, N_i 为反硝化气体累积排放量之和($\text{mg} \cdot \text{kg}^{-1}$), $|\Delta\text{NO}_2^-|$ 和 $|\Delta\text{NO}_3^-|$ 分别为该培养阶段土壤中亚硝态氮和硝态氮浓度变化量的绝对值($\text{mg} \cdot \text{kg}^{-1}$).

综合增温潜势(aggregate emission of greenhouse gases, AE),用来表征排放源释放的 3 种温室气体(CO_2 、 CH_4 和 N_2O)对全球温室效应总影响的一个指标,该指标以给定时间尺度的 CO_2 质量当量计($\text{CO}_2\text{-eq}$). 给定时间尺度(20 a 或 100 a)上一种温室气体释放量的 CO_2 当量,根据该时间尺度上这种温室气体的全球增温潜势(GWP, 无量纲参数)换算

而得. 根据 IPCC(2007), CO_2 、 CH_4 和 N_2O 在 100 年时间尺度上的 GWP 分别为 1、25 和 298. 由此,100 时间尺度的 AE 由式(2)计算而得.

$$\text{AE} = F_{\text{CO}_2} \cdot (44/12) + F_{\text{CH}_4} \cdot (16/12) \cdot 25 + F_{\text{N}_2\text{O}} \cdot (44/28) \cdot 298 \quad (2)$$

式中,AE 单位为 $\text{mg} \cdot \text{kg}^{-1}$ (以 $\text{CO}_2\text{-eq}$ 计); F_{CO_2} 为 CO_2 的排放量($\text{mg} \cdot \text{kg}^{-1}$); $F_{\text{N}_2\text{O}}$ 为 N_2O 的排放量($\text{mg} \cdot \text{kg}^{-1}$); F_{CH_4} 为 CH_4 的排放量($\text{mg} \cdot \text{kg}^{-1}$).

2 结果与分析

2.1 氮素气体(N_2 、 N_2O 和 NO)与 CO_2 、 CH_4 的排放速率动态

CK 和 C⁺ 处理各个培养阶段的 N_2 、 N_2O 、 NO 、 CO_2 与 CH_4 排放速率动态如图 1(a)和 1(b)所示.

在 P₁ 阶段,水浴温度刚降低至 2℃时, CO_2 排放速率仍较高,平均 $\sim 300 \mu\text{g} \cdot (\text{h} \cdot \text{kg})^{-1}$,但 N_2O 和 NO 排放均很低(接近测定系统的检测限),并检测不到 CH_4 排放.

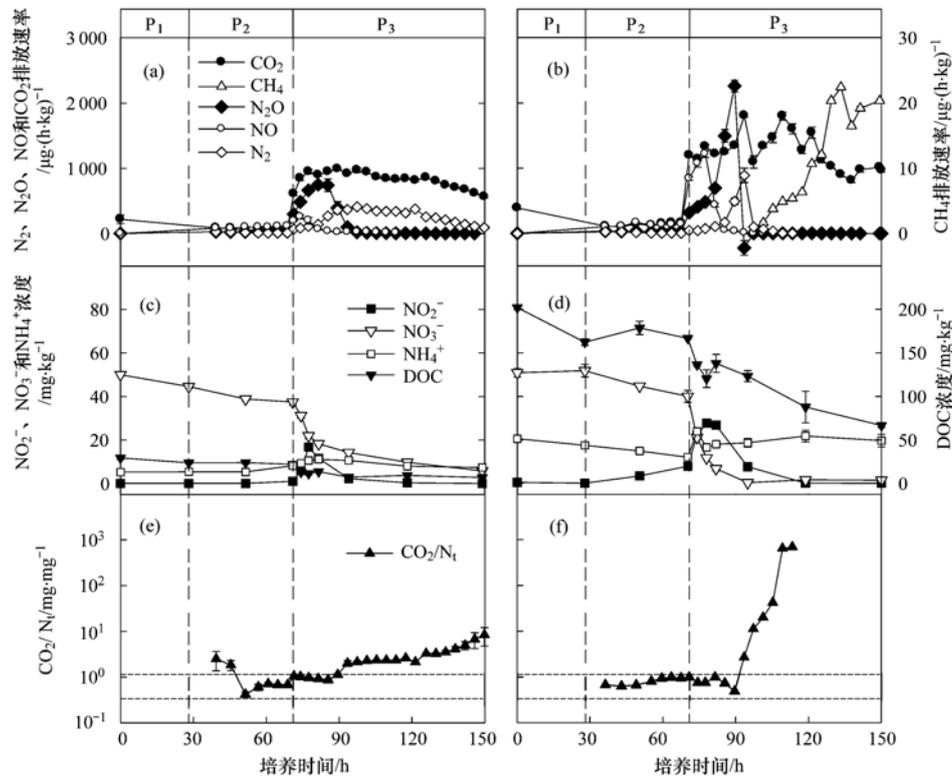
在 P₂ 阶段,随着土壤孔隙中 O_2 的减少,尽管培养温度只有 2℃,但反硝化作用还是因缺 O_2 而增强. 两处理间的 N_2 和 N_2O 排放速率都无差异,但 C⁺ 处理的 NO 和 CO_2 排放速率都显著($P < 0.01$)高于 CK 处理,两个处理的 NO 排放速率分别为 $118 \sim 192 \mu\text{g} \cdot (\text{h} \cdot \text{kg})^{-1}$ 和 $79 \sim 112 \mu\text{g} \cdot (\text{h} \cdot \text{kg})^{-1}$, CO_2 排放速率分别为 $114 \sim 161 \mu\text{g} \cdot (\text{h} \cdot \text{kg})^{-1}$ 和 $44 \sim 85 \mu\text{g} \cdot (\text{h} \cdot \text{kg})^{-1}$. 此阶段也检测不到 CH_4 排放.

在 P₃ 阶段,当水浴升温至 25℃后,两个处理的各种气体都大量排放,这表明反硝化剧烈发生, N_2 、 N_2O 、 NO 和 CO_2 排放速率都较 P₂ 阶段显著增大($P < 0.001$),但两个处理间的氮素气体排放速率峰值大小和出现时间都极不相同(表 2). C⁺ 处理的 NO 、 N_2O 和 N_2 峰值出现时间依次为升温后的 7、19 和 23 h,而 CK 处理却依次为 4、11 和 27 h. C⁺ 处理这 3 种气体的排放速率峰值分别为 (1216 ± 50) 、 (2258 ± 90) 和 $(891 \pm 110) \mu\text{g} \cdot (\text{h} \cdot \text{kg})^{-1}$, 分别是 CK 处理的 4.8、3.0 和 2.1 倍($P < 0.01$). 在 C⁺ 处理中,当 N_2 出现排放峰值时,观测到负的 N_2O 排放速率 [$(-343 \pm 22) \mu\text{g} \cdot (\text{h} \cdot \text{kg})^{-1}$, 图 1(b)],表明 N_2 最强排放时在培养容器气室中积累的 N_2O 在此时发生了净消耗.

CK 处理的 CO_2 排放,先是随 N_2O 排放增加而增强,在 N_2O 排放峰过后,又与 N_2 排放变化趋势一致.

与 CK 处理的 CO_2 排放在 P_3 阶段仅出现一个峰值不同, C^+ 处理的 CO_2 排放在此阶段出现了多个峰值, 其中第一个峰值出现的时间与 NO 峰一致, 第二个峰值出现的时间与 N_2 峰一致(表 2)。并且 C^+ 处

理在 N_2 排放峰出现后的 40 h 左右, 开始观测到 CH_4 排放, 最大排放速率为 $(22.4 \pm 0.04) \mu\text{g} \cdot (\text{h} \cdot \text{kg})^{-1}$, 而 CK 处理却没有观测到 CH_4 排放 [图 1(a) 和 1(b)]。



(a)、(c)、(e) 为对照处理(CK), 其土壤初始硝态氮(NO_3^-) 和可溶性有机碳(DOC) 含量分别为 $\sim 50 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$ 和 $\sim 28 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$; (b)、(d)、(f) 为添加 DOC(C^+) 处理, 其土壤初始 NO_3^- 和 DOC 含量分别为 $\sim 50 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$ 和 $\sim 300 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$ 。左图的图例适用于右图。e、f 中的水平虚线指示反硝化过程的 CO_2/N_t 比范围 0.64 ~ 1.07 (碳氮元素质量比), N_t 为反硝化气体累积排放($N_t = N_2 + N_2O + NO$)

图 1 培养过程中的土壤氮素气体(N_2 、 N_2O 和 NO)、 CO_2 和 CH_4 排放速率、 CO_2 排放速率和 N_t 排放速率的碳氮元素质量比(CO_2/N_t) 和碳氮底物(NO_3^- 、 NO_2^- 、 NH_4^+ 和 DOC) 浓度动态

Fig. 1 Emission rates of nitrogenous gases (N_2 , N_2O and NO), CO_2 and CH_4 , carbon to nitrogen mass

ratio of CO_2 and N_t emission rates, and concentrations of nitrogen and carbon substrates (NO_3^- , NO_2^- , NH_4^+ and DOC)

表 2 升温后(即 P_3 阶段) 各种气体排放速率峰值的大小及其出现时间¹⁾

气体	CK 处理 峰值/时间	C^+ 处理 峰值/时间
NO	$254 \pm 30/74$	$1\ 216 \pm 50/77$
N_2O	$748 \pm 41/81$	$2\ 258 \pm 90/89$
N_2	$411 \pm 22/97$	$891 \pm 110/93$
CO_2 -1	$990 \pm 37/89$	$1\ 330 \pm 31/77$
CO_2 -2	ND	$1\ 803 \pm 24/93$
CO_2 -3	ND	$1\ 798 \pm 59/109$
CH_4	ND	$22.4 \pm 0.04/133$

1) 表中的排放速率峰值数据为 3 个重复的平均值 \pm 标准误差 [$\mu\text{g} \cdot (\text{h} \cdot \text{kg})^{-1}$], 峰值出现的时间(即气体置换开始后的小时数)为 3 个重复的平均值(h); CO_2 -1、 CO_2 -2 和 CO_2 -3 分别为第 1、2 和 3 次 CO_2 排放峰; ND 表示系统未检测到

2.2 土壤 NO_3^- 、 NO_2^- 、 NH_4^+ 和 DOC 浓度动态

CK 和 C^+ 处理土壤培养过程中的 NO_3^- 、 NO_2^- 、 NH_4^+ 和 DOC 浓度动态如图 1(c) 和 1(d) 所示。

在 P_1 阶段, C^+ 处理的 NO_3^- 浓度有增加趋势, 但增量不显著, 而 NH_4^+ 浓度降低了 $(2.8 \pm 0.7) \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$ ($P < 0.05$), DOC 浓度降低了 $(38.7 \pm 9.4) \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$ ($P < 0.05$); CK 处理的 NO_3^- 浓度显著降低 ($P < 0.01$), 而 NH_4^+ 和 DOC 浓度变化不显著(表 3)。两个处理在此阶段均未观测到 NO_2^- 。

在 P_2 阶段, CK 和 C^+ 处理的 NO_3^- 分别减少了 $(5.7 \pm 0.2) \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$ ($P < 0.01$) 和 $(11.7 \pm 0.1) \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$ ($P < 0.01$)(表 3), C^+ 处理的反硝化中间产

物 NO_2^- 在此阶段明显增加了 $\sim 7.8 \text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ ($P < 0.01$), NO 和 N_2 气体也有少量排放. 与此同时, 两个处理的 CO_2 排放均比 P_1 阶段显著增强 ($P < 0.01$), 且 C^+ 的增加幅度比 CK 的大 ($P < 0.01$). C^+ 处理此阶段的 NH_4^+ 浓度减少了 $(2.7 \pm 0.2) \text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ ($P < 0.05$), 而 CK 处理的 NH_4^+ 浓度变化不显著. 两处理的 DOC 浓度在该阶段均无显著变化.

进入 P_3 阶段后, 两处理的 NO_3^- 浓度都迅速减少, C^+ 处理的 NO_3^- 浓度于升温后 15 h 降为 0, 而此时, CK 处理的 NO_3^- 浓度仍有 $(14.2 \pm 0.3) \text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$. 随着 NO_3^- 浓度降低, 中间产物 NO_2^- 浓度增加, 两处理的 NO_2^- 于升温后 7 h 左右出现各自的

最大浓度 $(16.7 \pm 0.2) \text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ (CK) 和 $(27.7 \pm 0.3) \text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ (C^+), 之后逐渐降低. C^+ 处理的 NH_4^+ 浓度呈现先增加后减少的趋势, 而 CK 处理的 NH_4^+ 浓度无明显变化趋势. 在 P_3 阶段培养过程结束时, CK 和 C^+ 处理的 DOC 浓度分别降至 $(7.5 \pm 0.4) \text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ 和 $(66.0 \pm 1.3) \text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$.

2.3 气体累积排放量及其摩尔比, 以及测定反硝化氮素产物对消耗氮底物的回收率

各阶段的氮素气体与 CO_2 、 CH_4 累积排放量、气体产物摩尔比, 测定 N 素产物对消耗氮底物的回收率 (P_1 除外) 以及综合温室效应 (AGE) 如表 3 所示.

表 3 各处理不同培养阶段氮素气体、二氧化碳 (CO_2) 和甲烷 (CH_4) 的累积排放量,

产物摩尔比, 底物变化量, 反硝化产物测定对消耗氮底物的回收率 (R), 以及综合温室效应 (AGE)¹⁾

Table 3 Cumulative emissions of nitrogenous gases, carbon dioxide (CO_2) and methane (CH_4), molar ratios of gaseous products, changes of substrates' concentrations, recovery rate of measured nitrogen reduction products toward consumed nitrogen substrates, and the aggregate emissions of greenhouse gases during different incubation periods

项目	P_1		P_2		P_3	
	CK	C^+	CK	C^+	CK	C^+
NO	ND	ND	2.8 ± 0.01^a	4.2 ± 0.05^b	3.2 ± 0.3^a	13.1 ± 0.4^b
N_2O	ND	ND	1.3 ± 0.04^a	1.6 ± 0.03^b	12.9 ± 1.3^a	21.1 ± 0.9^b
N_2	—	—	0.5 ± 0.01^a	0.4 ± 0.01^b	20.3 ± 0.4^a	7.9 ± 0.4^b
N_i	—	—	4.6 ± 0.07^a	6.2 ± 0.04^b	36.4 ± 1.1^a	42.1 ± 0.9^b
CO_2	0.2 ± 0.1^a	0.4 ± 0.1^a	8.0 ± 1.3^a	13.1 ± 0.2^b	66.5 ± 1.1^a	105 ± 2.3^b
CH_4	ND	ND	ND	ND	ND	0.6 ± 0.006
$\text{NO}/\text{N}_2\text{O}$	ND	ND	4.3 ± 0.2^a	5.3 ± 0.1^b	0.5 ± 0.01^a	1.2 ± 0.03^b
$\text{N}_2/\text{N}_2\text{O}$	—	—	0.3 ± 0.1^a	0.2 ± 0.1^b	1.6 ± 0.05^a	0.4 ± 0.03^b
CO_2/N_i	—	—	2.0 ± 0.3^a	2.5 ± 0.3^b	2.1 ± 0.03^a	2.9 ± 0.1^b
ΔNO_2^-	-0.1 ± 0.1	$0.4 \pm 0.1^{**}$	0.1 ± 0.01	$7.8 \pm 1.1^{**}$	$-1.0 \pm 0.01^*$	$-7.9 \pm 1.1^{**}$
ΔNO_3^-	$-5.5 \pm 0.7^{**}$	$-1.74 \pm 1.0^{**}$	$-5.7 \pm 0.2^{**}$	$-11.7 \pm 0.1^{**}$	$-30.7 \pm 0.3^{**}$	$-38.9 \pm 2.6^{**}$
ΔNH_4^+	0.1 ± 0.01	$-2.8 \pm 0.7^*$	0.1 ± 0.01	$-2.7 \pm 0.2^*$	$-0.8 \pm 0.1^{**}$	$5.0 \pm 0.9^*$
ΔDOC	$-5.1 \pm 0.2^*$	-38.7 ± 9.4	0.2 ± 0.01	13.0 ± 4.2	$-7.5 \pm 0.6^{**}$	$-98.3 \pm 9.7^*$
R	—	—	84 ± 6	110 ± 7	112 ± 3	91 ± 7
AGE	—	—	29.9	48.8	249.9	414.9

1) P_1 、 P_2 和 P_3 分别代表低温有氧置换、低温无氧置换和常温测定这 3 个培养阶段 (详见正文); 表中的气体累积排放量或碳氮底物浓度变化数据为 3 个重复的平均值 \pm 标准误差, ($\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$); ND 表示系统未检测到, “—”表示系统不能够检测; N_i 表示氮素气体累积排放总量 ($N_i = \text{N}_2 + \text{N}_2\text{O} + \text{NO}$, $\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$); Δ 表示培养阶段末的底物浓度与培养阶段初的底物浓度之差; R 表示反硝化产物测定值对消耗氮底物的回收率 (%), AGE 为综合温室效应 (以 CO_2 -eq 计, $\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$), 其计算公式详见 1.5 节; * 表示增量变化显著水平 $P < 0.05$, ** 表示增量变化显著水平 $P < 0.01$; a、b 表示两个处理间是否有 $P < 0.05$ 水平的显著差异 (相同字母表示没有显著差异)

在 P_2 阶段: CK 和 C^+ 处理的氮素气体产物均以 NO 为主, 其累积排放量分别为 $(2.8 \pm 0.01) \text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ 和 $(4.2 \pm 0.05) \text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$, 各占 N_i 的 61% 和 67%; 对于不同气体累积排放量的摩尔比 $\text{NO}/\text{N}_2\text{O}$ 、 $\text{N}_2/\text{N}_2\text{O}$ 和 CO_2/N_i , 两个处理比较接近, CK 分别约为 4.3、0.3 和 2.0, C^+ 分别约为 5.3、0.2 和 2.5; CK 和 C^+ 处理测定的反硝化氮素产物对消耗氮底物的回收率分别为 84% 和 110% (两个处理平均 97%). C^+ 处理的综合温室效应显著高于 CK 处

理 ($48.8 \text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ 和 $29.9 \text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$, $P < 0.01$).

在 P_3 阶段: C^+ 处理的氮素气体产物累积排放量以 N_2 最少 ($\sim 8.0 \text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$), N_2O 为主 ($\sim 21 \text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$), 各占 N_i 的 $\sim 19\%$ 和 $\sim 50\%$, 而 CK 处理则以 N_2 为主 ($\sim 20 \text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$), NO 最少 ($\sim 3 \text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$), 各占 N_i 的 $\sim 56\%$ 和 $\sim 9\%$; C^+ 处理不同气体累积排放量的摩尔比 $\text{NO}/\text{N}_2\text{O}$ 、 $\text{N}_2/\text{N}_2\text{O}$ 和 CO_2/N_i 分别约为 1.2、0.4 和 2.9, CK 处理的对应摩尔比则分别约为 0.5、1.6 和 2.1; CK 和 C^+ 处理

测定的反硝化氮素产物对消耗氮底物的回收率分别约为 112% 和 91% (两个处理平均约 102%)。C⁺ 处理的综合温室效应 ($414.9 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$) 为 CK 处理 ($249.9 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$) 的 1.7 倍 ($P < 0.01$)。

3 讨论

3.1 氮素气体产物比对碳底物水平的响应

由表 3 的数据可知, 与对照相比, 在添加碳底物条件下, 本研究 P₃ 阶段的 N_2O 累积排放量和 $N_2O/(N_2O + N_2)$ 比均显著增大, 二者各增加约 64% 和 87% ($P < 0.01$), 这与很多学者采用其他研究方法观测的结果具有一致性。例如, 前人的乙炔抑制法培养试验观测到同时添加葡萄糖和硝酸钾可释放更多的 N_2O , 并且 $N_2O/(N_2O + N_2)$ 比也较仅添加硝酸钾的处理显著增大^[20, 21], 大田试验观测到有机肥 (或绿肥、稻草) 与化肥配施会显著增加 N_2O 排放^[22, 23], ¹⁵N 标记 NO_3^- 和 NH_4^+ 的试验观测到添加有机质提高了反硝化速率, 从而使 N_2O 生成量增加^[24]。本研究观测到添加碳底物会显著降低 N_2/N_2O 比 ($P < 0.01$), 却与前人的研究观测到相反的结果。例如, Wang 等^[25] 采用 GFSC 技术在完全厌氧条件下对石灰性粉砂质黏土 (pH 为 8.7) 的观测结果显示, 其 P₃ 阶段的氮素气体排放却以 N_2 为主 (占约 50%), N_2/N_2O 摩尔比约为 1.7, 与本研究 CK 处理 P₂ + P₃ 阶段的比值 1.6 比较一致 (表 3), 尽管其初始碳氮底物含量同本研究的 C⁺ 处理。又如, 有研究报道, 在淹水或者较湿的土壤中添加易分解的碳底物有助于 N_2O 被进一步还原, 使 N_2/N_2O 比增加^[26], 稻田施用小麦秸秆降低了 N_2O 的排放, 且 N_2O 排放量与小麦秸秆的施用量成反比^[27]。这些不同的结果表明, 底物碳水平显著影响土壤反硝化速率及其产物组成, 且如何影响还可能与土壤性质 (如土壤质地、pH) 等因素有关^[28]。

Senbayram 等^[8] 认为, 土壤底物碳充足时, 反硝化过程进行彻底, 反硝化产物以终产物 (N_2) 为主, N_2/N_2O 比值较高。但本研究却观测到与其观点相反的结果 (表 3), 这可能与厌氧氨氧化有关。当严格厌氧且碳源不足时, 厌氧氨氧化细菌会与反硝化细菌竞争碳源, 尤其 C/N 比低于 2 的环境更有利于厌氧氨氧化细菌的生存^[29]。发生厌氧氨氧化过程时, NH_4^+ 会替代 DOC 成为电子供体而与 NO_2^- (有 NO_2^- 时) 或 SO_4^{2-} (无 NO_2^- 时) 发生氧化还原反应, 生成 N_2 , 同时还可能释放少量 NO ^[29]。本研究中, 添

加碳底物处理的 P₃ 阶段氮素气体产物以 NO 和 N_2O 为主, N_2 仅占 19%, N_2/N_2O 摩尔比仅为 0.4。相比之下, 对照处理 P₃ 阶段的氮素气体产物却以 N_2 为主, 占 56%, 且 N_2/N_2O 摩尔比高达 1.6 (表 3)。两个处理的这些差异可能是两方面的作用所致: 一是 GFSC 培养容器内土壤中产生的气体不断被流过土柱上方的气流携带出气室 (并被检测设备测到), 尽管土壤中存在比较丰富的碳底物, 反硝化的中间气体产物 NO 和 N_2O 也不能被进一步还原成终产物, 而在高碳条件下可以观测到较强的反硝化过程排放 NO 和 N_2O ; 二是 CK 处理的碳底物相对缺乏 [P₃ 阶段开始时, 该处理的 $DOC/(NH_4^+ + NO_3^- + NO_2^-)$ -N 质量比为 0.5], 这既抑制了反硝化作用, 同时激发的厌氧氨氧化过程又导致了大量的 N_2 产生。

De Wever 等^[30] 用壤土和砂壤土开展对比试验发现, 后者比前者更早、更快地释放含氮气体, 并且峰值排放也更高。一般认为土壤质地决定了土壤孔隙度特征, 进而影响 N_2O 在土壤中的扩散速率, 质地越黏重, 越不利于 N_2O 扩散, 被进一步还原的机会增加, 从而造成 N_2 排放增加。这种观点可以较好地解释本研究和王等^[25] 分别用粉砂质壤土和粉砂质黏土取得的不同观测结果, 即在相同碳氮底物 (DOC 和 NO_3^-) 初始浓度条件下, 粉砂质黏土的氮素气体产物以 N_2 为主, 而粉砂质壤土却以 NO 和 N_2O 为主。也有研究显示, 高 pH 值促进 N_2O 还原酶的活性, 反硝化进行彻底, 产物以 N_2 为主^[31], 这可能也是导致在相同碳氮底物条件下, Wang 等^[25] 所采用土壤 (pH 约 8.7) 主要排放 N_2 , 而本研究采用的土壤 (pH 约 6.2) 却排放较多 N_2O 的另一重要原因。

综上所述, 厌氧土壤排放的氮素气体是以 N_2 为主, 还是以 N_2O 或 N_2O 和 NO 为主, 与质地、酸碱性等土壤性质和碳底物是否缺乏有关。

3.2 N_2 排放峰值比 N_2O 排放峰值滞后的时间对碳底物水平的响应

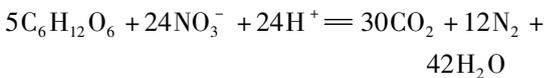
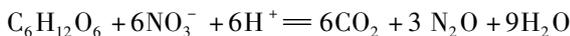
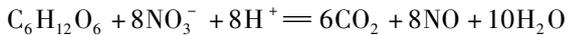
本研究观测到氮素气体排放峰值出现的顺序依次是 NO 、 N_2O 和 N_2 , 这与 3 种气体在反硝化链式反应过程中的生成顺序完全一致^[1], 但不同研究观测到的气体排放峰值间隔时间却有所不同^[32, 33]。本研究的 N_2 峰值滞后于 N_2O 峰 4 (C⁺) ~ 16 (CK) h, 这与 Mathieu 等^[32] 观测到的 6 ~ 12 h 比较一致, 但短于 Meijide 等^[33] 报道的 19 h。 N_2 排放峰滞后的主要原因, 被认为是反硝化作用的 N_2O 还原酶合成滞后

于 NO_3^- 、 NO_2^- 和 NO 还原酶的合成^[34]. 通常,参与反硝化的微生物约需 4 h 完成 NO_3^- 与 NO_2^- 还原酶的诱导合成,而 N_2O 还原酶的诱导合成要滞后一段时间,有时滞后时间甚至长达 24 h^[35]. 反硝化反应链上不同酶的合成都需要 DOC 提供电子和能量,且微生物的生长也需要用碳来合成机体组织,当受到碳源限制时,在最后合成 N_2O 还原酶的微生物往往由于缺乏碳源而生长繁殖缓慢,因而本研究中 CK 处理的 N_2 排放峰比 N_2O 排放峰滞后的时间远长于 C^+ 处理(表 2). 此外,如上所述,CK 处理排放的 N_2 可能有相当大一部分是来源于厌氧氨氧化过程^[29],而这个过程需等到土壤中的 DOC 被耗竭后才能被激发,这也可能是导致 CK 处理的 N_2 排放峰滞后时间长的另一个原因.

总而言之,碳底物限制会延长供试土壤 N_2 排放峰值比 N_2O 排放峰值滞后的时间.

3.3 CO_2/N_i 比对碳底物水平的响应

如果无氧条件下,只有反硝化作用发生时,反硝化微生物仅利用葡萄糖作为电子供体和能源,且反硝化过程产生单一气体 NO 、 N_2O 或 N_2 时,化学反应方程式如下^[36]:



CO_2/NO 、 $\text{CO}_2/\text{N}_2\text{O}$ 和 CO_2/N_2 分子摩尔比分别为 0.75、2.0 和 2.5,相应的碳氮元素质量比分别为 0.64、0.86、1.07^[36]. 如果同步测定的 CO_2/N_i 质量比(以纯碳氮计)介于 0.64 ~ 1.07 之间,意味着是反硝化主导着产生这些气体的过程,反之,则以其他过程为主^[25]. 本研究中两个处理的 CO_2/N_i 质量比动态如图 1(e) 和 1(f) 所示. 显然,在整个 P_2 阶段和 P_3 的起初一段时间,CK 处理的绝大多数和 C^+ 处理的全部 CO_2/N_i 质量比观测值分别都稳定在 0.67 ~ 0.99 和 0.64 ~ 1.04,完全符合反硝化过程的理论比值范围 0.64 ~ 1.07,表明这时排放的 CO_2 和氮素气体都主要来源于反硝化过程. 之后,CK 处理的 CO_2/N_i 质量比随着 NO_3^- 浓度的逐渐下降而高于 1.07,且一直缓慢线性增加, C^+ 处理的 CO_2/N_i 质量比在 NO_3^- 浓度迅速降为零以后短时间内急剧升至 $10^4 \sim 10^6$ 数量级,然后测定系统就再也检测不到 N_i 排放,直到培养结束,该处理的 CO_2 排放速率仍然还保持高水平(图 1). 高 CO_2/N_i 比值意味着检

测到的 CO_2 排放有部分来源于其他不产生氮素气体的过程,如厌氧发酵过程^[36],或者微生物参与的 Fe^{3+} 和 SO_4^{2-} 还原^[37]. 若以 CO_2/N_i 质量比介于 0.64 ~ 1.07 之间作为判别纯反硝化过程的依据,则在本试验的 P_3 阶段,源于单纯反硝化过程的 N_i 和 CO_2 在 CK 处理约占 39% 和 20%,在 C^+ 处理约占 59% 和 20%.

总之,可根据 CO_2/N_i 比,判别厌氧条件下的碳氮转化是否由纯反硝化过程主导.

3.4 CH_4 排放对碳底物水平的响应

C^+ 在 NO_3^- 被完全消耗之后发生了显著 CH_4 排放,而 CK 处理没有观测到 CH_4 排放,同时直到培养结束时还能观测到 NO_3^- (图 1),这意味着, CH_4 产生不仅与碳底物有关,还与是否存在 NO_3^- 有关, NO_3^- 可抑制 CH_4 产生过程. 之前有学者在厌氧培养试验中添加 NO_3^- 后观测到 CH_4 排放先是被抑制,但随着 NO_3^- 被反硝化过程完全消耗之后, CH_4 排放开始增加,而同时添加秸秆后厌氧培养可导致 CH_4 排放显著提高^[38],这与本研究的结果具有一致性,尽管添加碳的形态不同. 有学者报道,在稻田土壤中添加 NO_3^- 后,食 H_2 产 CH_4 细菌的产 CH_4 过程自由能变化立即大幅度地上升到高于 $-23 \text{ kJ}\cdot\text{mol}^{-1}$,甚至转变为正值,同时,食 H_2 产 CH_4 细菌的活性被彻底抑制,原因在于还原 NO_3^- 的细菌也消耗 H_2 ,致使 H_2 分压低到不足以产生甲烷的水平^[37,39]. 有大田观测研究也报道了类似现象,即施加氮肥对 CH_4 排放有抑制作用^[6,40],但如果施氮肥的同时施用秸秆,则 CH_4 排放量可增加 3 ~ 11 倍^[5].

上述研究结果表明,制定水稻生产的 CH_4 排放对策时,不仅要考虑如何优化有机碳管理,同时还要考虑如何优化氮肥管理.

3.5 综合增温潜势对碳底物水平的响应

加碳处理的综合增温潜势显著高于不加碳处理 ($P < 0.01$). 对于旱地阶段硝态氮比较丰富的水稻土,如果在淹水前或淹水期间施用了易降解或高 DOC 含量的有机肥,可能导致反硝化中间产物 N_2O 被排放到大气,并同时产生和排放 CH_4 ,不利于削减温室气体排放.

3.6 GFSC-SMOS 系统评价

测定土壤反硝化速率的方法有乙炔抑制法、 ^{15}N 同位素稀释法、气压过程分离法 (BaPS) 和直接测定 N_2 法 (GFSC) 等,这 4 种方法的测定原理完全不同^[41]. BaPS 系统是一种用于研究旱地非碱性土壤

碳氮转化的仪器^[42], 根据密闭、恒温、绝热空间内压力、 CO_2 和 O_2 浓度的变化, 计算出土壤总的反硝化速率, 该方法不能够准确得到每一种反硝化气体的排放量。GFSC 系统能够实现直接、自动和同步测定土壤 N_2 、 NO 、 N_2O 、 CO_2 和 CH_4 的排放, 测定 N_2 的检测限是目前国际上最好的, 为 $0.23 \mu g \cdot (h \cdot kg)^{-1}$ ^[14]。通过配合使用 SMOS 系统, 对底物浓度动态进行监测, 为深入了解控制因子影响土壤反硝化气体排放规律提供有力支撑。

4 结论

(1) 厌氧土壤排放的氮素气体是以 N_2 为主, 还是以 N_2O 或 N_2O 和 NO 为主, 不仅与质地、酸碱性等土壤性质有关, 同时还取决于碳底物是否缺乏。

(2) 厌氧条件下, 碳底物限制会延长中性偏酸土壤的 N_2 排放峰值比 N_2O 排放峰值滞后的时间, 这时厌氧氨氧化过程可能对 N_2 排放有重要贡献。

(3) 厌氧土壤中硝酸盐的存在可抑制 CH_4 产生。

(4) 对于旱地阶段硝态氮比较丰富的水稻土, 避免在淹水前或淹水期间施用有机肥, 有利于削减温室气体排放。本研究为正确认识这些过程提供了试验依据, 有助于制定更加科学的稻田氮肥和有机肥管理方式。

致谢: 对本研究提供技术支持和帮助的有中国科学院大气物理研究所的刘广仁、孙扬、王迎红、李宝江、曹娜、李思琪、李萍等, 谨致谢忱!

参考文献:

- [1] Zumft W G. Cell biology and molecular basis of denitrification [J]. *Microbiology and Molecular Biology Reviews*, 1997, **61** (4): 533-616.
- [2] Davidson E A, Seitzinger S. The enigma of progress in denitrification research [J]. *Ecological Applications*, 2006, **16** (6): 2057-2063.
- [3] IPCC. The physical science basis, Contribution of working group I to the Fourth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change [M]. Cambridge, United Kingdom, New York and USA: Cambridge University Press, 2007.
- [4] Frolking S, Qiu J J, Boles S, *et al.* Combining remote sensing and ground census data to develop new maps of the distribution of rice agriculture in China [J]. *Global Biogeochemical Cycles*, 2002, **16**(4): 38-1-38-10.
- [5] Ma J, Li X L, Xu H, *et al.* Effects of nitrogen fertiliser and wheat straw application on CH_4 and N_2O emissions from a paddy rice field [J]. *Soil Research*, 2007, **45**(5): 359-367.
- [6] Xie B H, Zheng X H, Zhou Z X, *et al.* Effects of nitrogen fertilizer on CH_4 emission from rice fields; multi-site field observations [J]. *Plant and Soil*, 2010, **326**(1-2): 393-401.
- [7] Yao Z S, Zheng X H, Dong H B, *et al.* A 3-year record of N_2O and CH_4 emissions from a sandy loam paddy during rice seasons as affected by different nitrogen application rates [J]. *Agriculture, Ecosystems and Environment*, 2012, **152**: 1-9.
- [8] Senbayram M, Chen R, Budai A, *et al.* N_2O emission and the $N_2O/(N_2O + N_2)$ product ratio of denitrification as controlled by available carbon substrates and nitrate concentrations [J]. *Agriculture, Ecosystems and Environment*, 2012, **147**: 4-12.
- [9] Skiba U, Fowler D, Smith K A. Nitric oxide emissions from agricultural soils in temperate and tropical climates; Sources, controls and mitigation options [J]. *Nutrient Cycling in Agroecosystems*, 1997, **48**(1-2): 139-153.
- [10] 蔡延江, 丁维新, 项剑. 农田土壤 N_2O 和 NO 排放的影响因素及其作用机制 [J]. *土壤*, 2012, **44**(6): 881-887.
- [11] 孟磊, 蔡祖聪, 丁维新. 长期施肥对华北典型潮土 N 分配和 N_2O 排放的影响 [J]. *生态学报*, 2008, **28**(12): 6197-6203.
- [12] 邹建文, 黄耀, 宗良纲, 等. 不同种类有机肥施用对稻田 CH_4 和 N_2O 排放的综合影响 [J]. *环境科学*, 2003, **24**(4): 7-12.
- [13] 胡小康, 苏芳, 巨晓棠, 等. 农田土壤温室气体减排措施研究进展 [A]. 见: 发展低碳农业应对气候变化——低碳农业研讨会论文集 [C]. 北京, 2010.
- [14] Wang R, Willibald G, Feng Q, *et al.* Measurement of N_2 , N_2O , NO , and CO_2 emissions from soil with the gas-flow-soil-core technique [J]. *Environmental Science and Technology*, 2011, **45**(14): 6066-6072.
- [15] Liao T T, Wang R, Zheng X H, *et al.* Automated online measurement of N_2 , N_2O , NO , CO_2 , and CH_4 emissions based on a gas-flow-soil-core technique [J]. *Chemosphere*, 2013, **93** (11): 2848-2853.
- [16] 廖婷婷. 土壤反硝化及其伴随过程产物和底物动态的直接测定系统(GFSC-SMOS)设计与检验 [D]. 北京: 中国科学院研究生院, 2013.
- [17] 鲍士旦. 土壤农化分析 [M]. 北京: 中国农业出版社, 2005.
- [18] 彭卫芳, 凌志明, 王学涛, 等. 亚硝酸盐测定方法的研究进展 [J]. *中国卫生检验杂志*, 2007, **17**(8): 1535-1536.
- [19] Sparling G, West A M. Modifications to the fumigation-extraction technique to permit simultaneous extraction and estimation of soil microbial C and N [J]. *Communications in Soil Science and Plant Analysis*, 1988, **19**(3): 327-344.
- [20] Gillam K M, Zebarth B J, Burton D L. Nitrous oxide emissions from denitrification and the partitioning of gaseous losses as affected by nitrate and carbon addition and soil aeration [J]. *Canadian Journal of Soil Science*, 2008, **88**(2): 133-143.
- [21] 李贵桐, 赵紫娟, 黄元仿, 等. 秸秆还田对土壤氮素转化的影响 [J]. *植物营养与肥料学报*, 2002, **8**(2): 162-167.
- [22] Stevens R J, Laughlin R J. Cattle slurry affects nitrous oxide and dinitrogen emissions from fertilizer nitrate [J]. *Soil Science Society of America Journal*, 2001, **65**(4): 1307-1314.
- [23] 熊正琴, 邢光熹, 鹤田治雄, 等. 豆科绿肥和化肥氮对双季稻稻田氧化亚氮排放贡献的研究 [J]. *土壤学报*, 2003, **40**

- (5): 704-710.
- [24] Speir T W, Kettles H A, More R D. Aerobic emissions of N_2O and N_2 from soil cores: measurement procedures using ^{13}N -labeled NO_3^- and NH_4^+ [J]. *Soil Biology and Biochemistry*, 1995, **27**(10): 1289-1298.
- [25] Wang R, Feng Q, Liao T T, *et al.* Effects of nitrate concentration on the denitrification potential of a calcic cambisol and its fractions of N_2 , N_2O and NO [J]. *Plant and Soil*, 2013, **363**(1-2): 175-189.
- [26] 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.
- [27] 蒋静艳, 黄耀, 宗良纲. 水分管理与秸秆施用对稻田 CH_4 和 N_2O 排放的影响 [J]. *中国环境科学*, 2003, **23**(5): 552-556.
- [28] Philippot L, Andert J, Jones C M, *et al.* Importance of denitrifiers lacking the genes encoding the nitrous oxide reductase for N_2O emissions from soil [J]. *Global Change Biology*, 2011, **17**(3): 1497-1504.
- [29] Hu Z, Loti T, van Loosdrecht M, *et al.* Nitrogen removal with the anaerobic ammonium oxidation process [J]. *Biotechnology Letters*, 2013, **35**(8): 1145-1154.
- [30] De Wever H, Mussen S, Merckx R. Dynamics of trace gas production following compost and NO_3^- amendments to soil at different initial TOC/NO_3^- ratios [J]. *Soil Biology and Biochemistry*, 2002, **34**(11): 1583-1591.
- [31] Simek M, Cooper J E. The influence of soil pH on denitrification: Progress towards the understanding of this interaction over the last 50 years [J]. *European Journal of Soil Science*, 2002, **53**(3): 345-354.
- [32] Mathieu O, Leveque J, Henault C, *et al.* Emissions and spatial variability of N_2O , N_2 and nitrous oxide mole fraction at the field scale, revealed with ^{15}N isotopic techniques [J]. *Soil Biology and Biochemistry*, 2006, **38**(5): 941-951.
- [33] Meijide A, Cardenas L M, Bol R, *et al.* Dual isotope and isotopomer measurements for the understanding of N_2O production and consumption during denitrification in an arable soil [J]. *European Journal of Soil Science*, 2010, **61**(3): 364-374.
- [34] Schreiber K, Krieger R, Benkert B, *et al.* The anaerobic regulatory network required for *Pseudomonas aeruginosa* nitrate respiration [J]. *Journal of Bacteriology*, 2007, **189**(11): 4310-4314.
- [35] Dendooven L, Anderson J M. Dynamics of reduction enzymes involved in the denitrification process in pasture soil [J]. *Soil Biology and Biochemistry*, 1994, **26**(11): 1501-1506.
- [36] Swerts M, Merckx R, Vlassak K. Influence of carbon availability on the production of NO , N_2O , N_2 and CO_2 by soil cores during anaerobic incubation [J]. *Plant and Soil*, 1996, **181**(1): 145-151.
- [37] Achtnich C, Bak F, Conrad R. Competition for electron donors among nitrate reducers, ferric iron reducers, sulfate reducers, and methanogens in anoxic paddy soil [J]. *Biology and Fertility of Soils*, 1995, **19**(1): 65-72.
- [38] Wang Z P, Delaune R D, Lindau C W, *et al.* Methane production from anaerobic soil amended with rice straw and nitrogen fertilizers [J]. *Fertilizer Research*, 1992, **33**(2): 115-121.
- [39] Klüber H D, Conrad R. Effects of nitrate, nitrite, NO and N_2O on methanogenesis and other redox processes in anoxic rice field soil [J]. *FEMS Microbiology Ecology*, 1998, **25**(3): 301-318.
- [40] Dong H B, Yao Z S, Zheng X H, *et al.* Effect of ammonium-based, non-sulfate fertilizers on CH_4 emissions from a paddy field with a typical Chinese water management regime [J]. *Atmospheric Environment*, 2011, **45**(5): 1095-1101.
- [41] Groffman P M, Altabet M A, Blöchl J K, *et al.* Methods for measuring denitrification: diverse approaches to a difficult problem [J]. *Ecological Application*. 2006, **16**(6): 2091-2122.
- [42] Ingwersen J, Butterbach-Bahl K, Gasche R, *et al.* Barometric process separation: new method for quantifying nitrification, denitrification, and nitrous oxide sources in soils [J]. *Soil Science Society of America Journal*, 1999, **63**(1): 117-128.

CONTENTS

Comparative Analysis Methods of Haze Distinction over Yangtze River Delta Region	LIU Xiao-hui, ZHU Bin, GAO Jin-hui, <i>et al.</i>	(3239)
Trends of Urban Haze in Jiangsu Province China over the Past 33 Years	LIU Duan-yang, WEI Jian-su, YAN Wen-lian, <i>et al.</i>	(3247)
Temporal Variation of Background Atmospheric CO ₂ and CH ₄ at Mount Waliguan, China	LIU Peng, ZHANG Guo-qing, WANG Jian-qiong, <i>et al.</i>	(3256)
Characteristics and Sources of Organic Carbon and Elemental Carbon in PM _{2.5} in Shanghai Urban Area	ZHANG Yi-hua, WANG Dong-fang, ZHAO Qian-biao, <i>et al.</i>	(3263)
Size Distribution and Characterization of OC and EC in Atmospheric Aerosols During the Asian Youth Games of Nanjing, China	WANG Hong-lei, ZHU Bin, AN Jun-lin, <i>et al.</i>	(3271)
Pollution Characteristics of Carbonaceous Aerosols in PM _{2.5} During Typical Winter Days in Wuxi City	YUN Long-long, LU Fan, ZHANG Tian-shu, <i>et al.</i>	(3280)
Emission Characteristics of PM _{2.5} from Blast Furnace Iron Making	FAN Zhen-zhen, ZHAO Ya-li, ZHAO Hao-ning, <i>et al.</i>	(3287)
Composition Characteristics of Atmospheric Volatile Organic Compounds in the Urban Area of Beibei District, Chongqing	QI Xin, HAO Qing-ju, JI Dong-sheng, <i>et al.</i>	(3293)
Catalytic Oxidation of Two-component VOCs and Kinetic Analysis	BO Long-li, YANG Li, SUN Jian-yu, <i>et al.</i>	(3302)
Ultrafine Particle Number Concentration and Size Distribution of Vehicle Exhaust Ultrafine Particles	LU Ye-qiang, CHEN Qiu-fang, SUN Zai, <i>et al.</i>	(3309)
Major Ion Chemistry of Surface Water in the Upper Reach of Shule River Basin and the Possible Controls	ZHOU Jia-xin, DING Yong-jian, ZENG Guo-xiong, <i>et al.</i>	(3315)
Sediment-water Flux and Processes of Nutrients and Gaseous Nitrogen Release in a China River Reservoir	CHEN Zhu-hong, CHEN Neng-wang, WU Yin-qi, <i>et al.</i>	(3325)
Spatial Distribution and Pollution Assessment of Heavy Metals in the Tidal Reach and Its Adjacent Sea Estuary of Daliaohe Area, China	ZHANG Lei, QIN Yan-wen, MA Ying-qun, <i>et al.</i>	(3336)
Chemical Speciation and Risk Assessment of Heavy Metals in the Middle Part of Yarlung Zangbo Surface Sediments	BAI Jian-kun, LI Chao-liu, KANG Shi-chang, <i>et al.</i>	(3346)
Analysis of Particle Size Characteristics of Road Sediments in Beijing Olympic Park	LI Hai-yan, SHI An-bang, QU Yang-sheng, <i>et al.</i>	(3352)
Levels and Distribution of the Dioxin-Like Polychlorinated Biphenyls (PCBs) in the Surface Sediment of the Yellow River	LI Guang-yao, JIN Jun, HE Chang, <i>et al.</i>	(3358)
Characteristics of Nitrogen and Phosphorus Retention in Two Different Channel Forms in a Typical Headwater Stream in the Suburb of Hefei City, China	LI Ru-zhong, YANG Ji-wei, QIAN Jing, <i>et al.</i>	(3365)
Migration and Transformation of Nitrogen in Urban Stream Located in Plain River-net Area Based on Water Resources Regulation	LIU Bo, SHENG Ming, ZHU Qiang, <i>et al.</i>	(3373)
Decomposition and Phosphorus Dynamics of the Litters in Standing and Litterbag of the Hangzhou Bay Coastal Wetland	SHAO Xue-xin, LIANG Xin-qiang, WU Ming, <i>et al.</i>	(3381)
Muti-model Collaborative Retrieval of Chlorophyll a in Taihu Lake Based on Data Assimilation	LI Yuan, LI Yun-mei, LÜ Heng, <i>et al.</i>	(3389)
Photobleaching of Dissolved Organic Matter (DOM) from Confluence of Two Rivers Under Natural Solar Radiation; A Case Study of Fujiang River-Jialingjiang River	GAO Jie, JIANG Tao, YAN Jin-long, <i>et al.</i>	(3397)
Using Ultraviolet-Visible (UV-Vis) Absorption Spectrum to Estimate the Dissolved Organic Matter (DOM) Concentration in Water, Soils and Sediments of Typical Water-Level Fluctuation Zones of the Three Gorges Reservoir Areas	LI Lu-lu, JIANG Tao, LU Song, <i>et al.</i>	(3408)
Synthesis of Cu ₂ O-Ag-AgBr/MA Visible Photocatalyst and Its Performance in Degradation of 2-Chlorophenol	WANG Ran, ZHOU Xue-feng, HU Xue-xiang, <i>et al.</i>	(3417)
Effects of Particle Size of Zero-Valent Iron on the Reactivity of Activating Persulfate and Kinetics for the Degradation of Acid Orange 7	LI Huan-xuan, WAN Jin-quan, MA Yong-wen, <i>et al.</i>	(3422)
Degradation of 2,4-D by Combined Catalytic Dechlorination and Biological Oxidation	ZHOU Hong-yi, ZENG Si-si, LIANG Si, <i>et al.</i>	(3430)
Treatment of Marine-Aquaculture Effluent by the Multi-Soil-Layer (MSL) System and Subsurface Flow Constructed Wetland	SONG Ying, HUANG Yu-ting, GE Chuan, <i>et al.</i>	(3436)
Variation of Different Carbon Sources in the Sewage Treatment Process	JIN Peng-kang, CHANG Jin, WANG Xian-bao, <i>et al.</i>	(3443)
Effect of Gas-lift Device on Nitrogen Removal Efficiency of ANAMMOX Reactor	LI Xiang, ZHANG Da-lin, HUANG Yong, <i>et al.</i>	(3449)
Enhancement for Anaerobic Digestion of Sewage Sludge Pretreated by Microwave and Its Combined Processes	LIU Ji-bao, NI Xiao-tang, WEI Yuan-song, <i>et al.</i>	(3455)
Pilot Study of Thermal Treatment/Thermophilic Anaerobic Digestion Process Treating Waste Activated Sludge of High Solid Content	WU Jing, WANG Guang-qi, CAO Zhi-ping, <i>et al.</i>	(3461)
Effects of Temperature on Combined Process of ABR and MBR for Domestic Sewage Treatment and Analysis of Microbial Community	WU Peng, LU Shuang-jun, XU Yue-zhong, <i>et al.</i>	(3466)
Microbial Community of Municipal Discharges in A Sewage Treatment Plant	XU Ai-ling, REN Jie, SONG Zhi-wen, <i>et al.</i>	(3473)
Pilot-Scale Cultivation of <i>Spirulina plantensis</i> with Digested Piggery Wastewater	GUO Qing-qing, LIU Rui, LUO Jin-fei, <i>et al.</i>	(3480)
Spectral Characteristics of Soluble Metabolites During Endogenous Respiration	LI Zhi-hua, ZHANG Qin, BAI Xu-li, <i>et al.</i>	(3487)
Endogenous Respiration Process Analysis of Heterotrophic Biomass and Autotrophic Biomass Based on Respiration Map	LI Zhi-hua, BAI Xu-li, ZHANG Qin, <i>et al.</i>	(3492)
Influence of S-Metolachlor and Cd ²⁺ on Photosynthesis of <i>Scenedesmus obliquus</i>	CHEN Cai-dong, HU Xiao-na, ZHANG Xiao-qiang, <i>et al.</i>	(3498)
Effect of Environmental Factors on Fish Community Structure in the Huntai River Basin at Multiple Scales	LI Yan-li, LI Yan-fen, XU Zong-xue	(3504)
Succession of Rotifer Community and Its Relationship with Environmental Factors in a New Estuarial Landscape River, Shanghai	MA Wen-hua, ZHANG Wei, GU Wan-wen, <i>et al.</i>	(3513)
Anaerobic Reduction of Humus/Fe(III) and Electron Transport Mechanism of <i>Fontibacter</i> sp. SgZ-2	MA Chen, YANG Gui-qin, LU Qin, <i>et al.</i>	(3522)
Source Apportionment of Soil Heavy Metals in Jiapigou Goldmine Based on the UNMIX Model	AI Jian-chao, WANG Ning, YANG Jing	(3530)
Environmental Magnetic Properties and Their Spatial Variability of Topsoil in Shihezi City	YANG Han, XIONG Hei-gang, CHEN Xue-gang	(3537)
Effects of Different Amounts of Phosphate Fertilizers on Copper, Zinc Transfer in Red Soil Under the Application of KH ₂ PO ₄	GUO Liang, LI Zhong-wu, HUANG Bin, <i>et al.</i>	(3546)
Influence of Sulfur on the Bioavailability of Arsenic Uptake by Rice (<i>Oryza sativa</i> L.) and Its Speciation in Soil	YANG Shi-jie, TANG Bing-pei, WANG Dai-chang, <i>et al.</i>	(3553)
Effects of Sulfur on Transformation of Selenium in Soil and Uptake of Selenium in Rape	LIU Xin-wei, DUAN Bi-hui, XIA Quan-jie, <i>et al.</i>	(3564)
Impact of Reclaimed Water Irrigation on Soil Chemical Properties and Culturable Microorganisms	GONG Xue, WANG Ji-hua, GUAN Jian-fei, <i>et al.</i>	(3572)
Influence of Different Slope Position and Profile in <i>Disporopsis pernyi</i> Forest Land on Soil Microbial Biomass and Enzyme Activity in Southwest Karst Mountain of China	QIN Hua-Jun, HE Bing-Hui, ZHAO Xuan-chi, <i>et al.</i>	(3580)
Effects of Different Soil Types on the Foliar δ ¹³ C Values of Common Local Plant Species in Karst Rocky Desertification Area in Central Guizhou Province	DU Xue-lian, WANG Shi-jie, LUO Xu-qiang	(3587)
Effect of Carbon Substrate Concentration on N ₂ , N ₂ O, NO, CO ₂ and CH ₄ Emissions from a Paddy Soil in Anaerobic Condition	CHEN Nuo, LIAO Ting-ting, WANG Rui, <i>et al.</i>	(3595)
Ability of Typical Greenery Shrubs of Beijing to Adsorb and Arrest PM _{2.5}	LIANG Dan, WANG Bin, WANG Yun-qi, <i>et al.</i>	(3605)
Effects of Chlorides on Cd Transformation in a Simulated Grate Incinerator During Sludge Incineration Process	LIU Jing-yong, ZHUO Zhong-xu, SUN Shui-yu, <i>et al.</i>	(3612)
Spatial Temporal Differentiation of Product-based and Consumption-based CO ₂ Emissions and Balance in the Beijing-Tianjin-Hebei Region; an Economic Input-Output Analysis	WANG Hao, CHEN Cao-cao, PAN Tao, <i>et al.</i>	(3619)
Study on Feasible Emission Control Level of Air Pollutions for Cement Industry	REN Chun, JIANG Mei, ZOU Lan, <i>et al.</i>	(3632)

《环境科学》第6届编辑委员会

主 编: 欧阳自远

副主编: 赵景柱 郝吉明 田 刚

编 委: (按姓氏笔画排序)

万国江 王华聪 王凯军 王绪绪 田 刚 田 静 史培军
朱永官 刘志培 汤鸿霄 陈吉宁 孟 伟 周宗灿 林金明
欧阳自远 赵景柱 姜 林 郝郑平 郝吉明 聂永丰 黄 霞
黄 耀 鲍 强 潘 纲 潘 涛 魏复盛

环 境 科 学

(HUANJING KEXUE)

(月刊 1976年8月创刊)

2014年9月15日 第35卷 第9期

ENVIRONMENTAL SCIENCE

(Monthly Started in 1976)

Vol. 35 No. 9 Sep. 15, 2014

主 管	中国科学院	Superintended	by	Chinese Academy of Sciences
主 办	中国科学院生态环境研究中心	Sponsored	by	Research Center for Eco-Environmental Sciences, Chinese Academy of Sciences
协 办	(以参加先后为序) 北京市环境保护科学研究院 清华大学环境学院	Co-Sponsored	by	Beijing Municipal Research Institute of Environmental Protection School of Environment, Tsinghua University
主 编	欧阳自远	Editor-in -Chief		OUYANG Zi-yuan
编 辑	《环境科学》编辑委员会 北京市 2871 信箱(海淀区双清路 18号, 邮政编码:100085) 电话:010-62941102, 010-62849343 传真:010-62849343 E-mail: hjkx@reeces. ac. cn http://www. hjkx. ac. cn	Edited	by	The Editorial Board of Environmental Science (HUANJING KEXUE) P. O. Box 2871, Beijing 100085, China Tel:010-62941102, 010-62849343; Fax:010-62849343 E-mail: hjkx@reeces. ac. cn http://www. hjkx. ac. cn
出 版	科 学 出 版 社 北京东黄城根北街16号 邮政编码:100717	Published	by	Science Press 16 Donghuangchenggen North Street, Beijing 100717, China
印 刷 装 订	北京北林印刷厂	Printed	by	Beijing Bei Lin Printing House
发 行	科 学 出 版 社 电话:010-64017032 E-mail: journal@ mail. sciencep. com	Distributed	by	Science Press Tel:010-64017032 E-mail: journal@ mail. sciencep. com
订 购 处	全国各地邮电局	Domestic		All Local Post Offices in China
国外总发行	中国国际图书贸易总公司 (北京399信箱)	Foreign		China International Book Trading Corporation (Guoji Shudian), P. O. Box 399, Beijing 100044, China

中国标准刊号: ISSN 0250-3301
CN 11-1895/X

国内邮发代号: 2-821

国内定价: 90.00元

国外发行代号: M 205

国内外公开发行