

环境科学

(HUANJING KEXUE)

ENVIRONMENTAL SCIENCE

第39卷 第4期

Vol.39 No.4

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

京津冀地区钢铁行业污染物排放清单及对 PM _{2.5} 影响	段文娇, 郎建全, 程水源, 贾佳, 王晓琦 (1445)
京津冀内陆平原区 PM _{2.5} 浓度时空变化定量模拟	郝静, 孙成, 郭兴宇, 王卫, 刘方田, 党海燕 (1455)
成都市冬季相对湿度对颗粒物浓度和大气能见度的影响	刘凡, 谭钦文, 江霞, 蒋文举, 宋丹林 (1466)
华山地区 PM _{2.5} 中无机离子垂直分布特征	曹聪, 王格慧, 吴灿, 李建军, 刘浪, 李瑾, 余兴 (1473)
烟花爆竹集中燃放的大气细颗粒物 (PM _{2.5}) 成分图谱	谢瑞加, 侯红霞, 陈永山 (1484)
长三角地区中小燃煤锅炉 PM _{2.5} 成分谱特征	徐健, 黄成, 李莉, 陈勇航, 楼晟荣, 乔利平, 王鸿宇 (1493)
民用燃煤排放分级颗粒物中重金属排放因子	严沁, 孔少飞, 刘海彪, 王伟, 吴剑, 郑明明, 郑淑睿, 杨国威, 吴方琪 (1502)
冬、春季青岛大气气溶胶中乙二酸的分布特征及影响因素	张帅, 石金辉, 姚小红, 高会旺 (1512)
青岛大气降水中微量元素的浓度及溶解度	李茜, 石金辉, 李鹏志, 姚小红, 高会旺 (1520)
辽东湾大气中多环芳烃的含量组成及气粒分配	张玉凤, 宋永刚, 田金, 赵海勃, 杨爽, 吴金浩 (1527)
典型地区大气新型卤代阻燃剂污染特征、来源分析及人体暴露	李琦路, 杨孔, 李军, 张干 (1537)
苏州工业园区室内外颗粒物中多溴联苯醚污染特征及人体暴露水平	王俊霞, 顾海东, 张占恩, 钱飞跃 (1544)
上海市大气污染对感冒疾病相对危险度的影响	杨丝絮, 马玉霞, 周建丁, 周骥 (1552)
城镇化河流溶解性有机质的荧光特性与水质相关性: 以宁波市北仑区芦江为例	曹昌丽, 梁梦琦, 何桂英, 纵亚男, 唐剑锋 (1560)
艾比湖区域景观格局与河流水质关系探讨	曹灿, 张飞, 阿依尼格·亚力坤, 朱世丹, 郭苗, 阿丽米热·塔力甫江, Kung Hsiangte (1568)
三峡澎溪河水华期间水体 CH ₄ 浓度及其通量变化特征初探	秦宇, 张渝阳, 李哲, 马健荣 (1578)
漓江段地表水体旱季硝酸盐动态变化特征及其来源	苗迎, 章程, 肖琼, 赵海娟, 李成习 (1589)
柳江流域饮用水源地重金属污染与健康风险评价	张清华, 韦永著, 曹建华, 于爽 (1598)
黄柏河流域梯级水库沉积物磷形态特征及磷释放通量分析	刘佳, 雷丹, 李琼, 王亮, 张平, 肖尚斌 (1608)
白洋淀典型持久性有机污染物污染特征与风险评估	高秋生, 焦立新, 杨柳, 田自强, 杨苏文, 安月霞, 贾海斌, 崔志丹 (1616)
典型有机氯农药在珠三角地区多介质环境中的归趋模拟	高梓闻, 徐月, 亦如瀚 (1628)
河道水旁路处理中试工艺中 PPCPs 的去除效果及机制	李力, 朱楦, 白瑶, 赵健, 曹之淇, 郭泓利, 李凌云, 左剑思 (1637)
蔡普生在氯消毒过程中的去除、转化与风险评价	樊鑫鑫, 杜尔登, 李佳琦, 赵丽丽, 王聿琳, 彭明国 (1645)
真空紫外/氯处理饮用水典型致嗅物质	孙昕, 张焱, 史路肖, 陈笑涵, 唐晓 (1654)
热活化过硫酸盐降解三氯生	蒋梦迪, 张清越, 季跃飞, 陆鸢鹤 (1661)
水体模拟颗粒物对四环素的吸附特性及基本规律	徐龙凤, 魏群山, 吕强, 唐立朋, 刘亚男, 柳建设 (1668)
海水优化 ANAMMOX 包埋固定化及其处理含海水污水的脱氮性能	单晓静, 于德爽, 李津, 陈光辉, 冯莉, 吕廷廷, 邵青 (1677)
外源甜菜碱投加增强高盐废水厌氧氨氧化脱氮性能	于德爽, 吴国栋, 李津, 周同, 王晓静 (1688)
硝化污泥富集及其强化高氨氮冲击的中试研究	盛晓琳, 崔灿灿, 王家德, 刘锐, 徐峰, 陈吕军 (1697)
分段进水对改良 A ² /O-BAF 双污泥系统反硝化除磷脱氮的影响	南彦斌, 彭永臻, 曾立云, 赵智超, 刘宏, 李慧, 陈永志 (1704)
不同温度下应用比值控制实现连续流好氧颗粒污泥短程硝化	梁东博, 卞伟, 阚睿哲, 王文啸, 赵青, 孙艺齐, 李军 (1713)
智能化曝气控制 A/O 工艺活性污泥特性演化对内源反硝化脱氮的作用机制	徐旻昶, 胡湛波, 张穗生, 李昊航 (1720)
温度对一体式厌氧流化床膜生物反应器运行效能及微生物群落结构的影响	李玥, 胡奇, 高文 (1731)
污泥臭原位置量工艺中抗生素的去除	汪鲁, 黄伟伟, 李彦刚, 强志民 (1739)
零价铁对污泥厌氧消化过程中四环素抗性基因水平转移的作用影响	杨帆, 徐雯丽, 钱雅洁, 刘振鸿, 薛罡, 高品 (1748)
环境因子对全自养脱氮颗粒污泥功能菌协同效应的影响	陈希, 钱飞跃, 王建芳, 高军军, 沈耀良, 贾珣 (1756)
后置固相反硝化滤池工艺沿程微生物特性	张千, 吉芳英, 徐璇 (1763)
复合菌株 YH01 + YH02 强化 SBR 好氧反硝化脱氮及菌群结构分析	陈海升, 曹刚, 张迪, 黄郑郑, 莫测辉 (1773)
氮磷失衡下膨胀污泥性能及膨胀菌群落结构变化	贺雪濛, 丁丽丽, 张璐璐, 顾卓江, 任洪强 (1782)
1 株铜绿假单胞菌对砷的降解特性及代谢途径	李想, 张雪英, 周俊, 宋军, 王建刚, 雍晓雨, 贾红华 (1794)
铜尾矿库坝面土壤微生物群落动态的驱动因子	李磊, 景炬辉, 刘晋仙, 柴宝峰 (1804)
垦殖对桂林会仙喀斯特湿地土壤养分与微生物活性的影响	黄科朝, 沈育伊, 徐广平, 黄玉清, 张德楠, 孙英杰, 李艳琼, 何文, 周龙武 (1813)
黄土丘陵区退耕还林还草对土壤细菌群落结构的影响	陈孟立, 曾全超, 黄懿梅, 倪银霞 (1824)
河岸带表层土壤的铁氨氧化 (Feammox) 脱氮机制的探究	丁帮琛, 李正魁, 朱鸿杰, 陈湜, 覃云斌, 杨建华, 胡优优 (1833)
藏猪扰动作用下的高寒草甸土壤退化特征及微生物群落结构变化	展鹏飞, 肖德荣, 闫鹏飞, 刘振亚, 马金成, 陈志明, 格茸, 田伟, 王行 (1840)
深圳湾典型红树植物根表铁膜及其重金属富集特征	沈小雪, 李瑞利, 柴民伟, 邱国玉 (1851)
香港周边海域野生鱼体内 DDTs 和 PCBs 的含量分布和食用风险评估	苏杨, 鲍恋君, 曾永平 (1861)
偏远高山湿地土壤中 PAHs 污染特征: 以神农架大九湖为例	胡天鹏, 邢新丽, 柯艳萍, 毛瑶, 黎荧, 郑煌, 喻月, 张家泉, 祁士华 (1872)
西南地区典型森林水库土壤和沉积物汞的迁移转化特征	孙涛, 马明, 王永敏, 安思危, 王定勇 (1880)
广西西江流域土壤镉含量特征及风险评估	宋波, 杨子杰, 张云霞, 王佛鹏, 周浪, 李黎, 钟雪梅 (1888)
长期施肥对旱地红壤及作物中砷累积的影响	张蓉, 余光辉, 李亚青 (1901)
三元土壤调理剂对田间水稻镉累积转运的影响	辜娇峰, 周航, 贾润语, 王倩倩, 李虹呈, 张平, 彭佩钦, 廖柏寒 (1910)
稻田土壤性质与水稻镉含量的定量关系	王梦梦, 何梦媛, 苏德纯 (1918)
钙基膨润土辅助对堆肥及土壤 Cu、Zn 形态转化和白菜吸收的影响	赵军超, 王权, 任秀娜, 李荣华, Mukesh Kumar Awasthi, Altaf Hussain Lahori, 张增强 (1926)
外源碳和氮输入对降水变化下土壤呼吸的短期影响	贺云龙, 齐玉春, 彭琴, 董云社, 郭树芳, 闫钟清, 李兆林, 王丽芹 (1934)
模拟降水量减少对大豆-冬小麦轮作农田土壤呼吸的影响	王朝辉, 陈书涛, 孙鹭, 胡正华 (1943)
紫色土丘陵区农田源头沟渠一氧化氮排放的季节差异及影响因素	田琳琳, 任光前, 朱波 (1952)
季节非对称升温对喀斯特土壤 CO ₂ 释放的影响	唐国勇, 张春华, 刘方炎, 李昆, 马艳 (1962)
《环境科学》征订启事 (1472) 《环境科学》征稿简则 (1511) 信息 (1755, 1839, 1925)	

三峡澎溪河水华期间水体 CH_4 浓度及其通量变化特征初探

秦宇¹, 张渝阳¹, 李哲^{2*}, 马健荣²

(1. 重庆交通大学水利水运工程教育部重点实验室, 重庆 400074; 2. 中国科学院重庆绿色智能技术研究院, 中国科学院水库水环境重点实验室, 重庆 400714)

摘要: 三峡库区温室气体的排放近年来备受关注. 为了揭示三峡库区澎溪河地区水华过程中不同氮磷浓度下藻类生长死亡过程中 CH_4 吸收释放的规律, 于 2016 年 4 月 22 日至 2016 年 5 月 9 日, 通过添加不同氮磷浓度在澎溪河高阳平湖水域展开野外原位实验. 结果表明, 在开始实验当日 CH_4 通量从 $(1.8093 \pm 0.0632) \mu\text{mol} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{h})^{-1}$ 到 6 d 急剧减少至 $(0.0776 \pm 0.0146) \mu\text{mol} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{h})^{-1}$. 6 d 后变化相对较小, 相比较于其他水样只添加磷的水样明显有所回升. 在本次实验中藻类的生长与死亡受到了不同 N、P 浓度梯度的影响. N 对藻类的生长影响不大, 各种指标与未加 N、P 营养盐的原水基本一致; 在适宜的 P 浓度下, 促进藻类的生长. 当 P 浓度过多时, 藻类的生长受到抑制. 水样中的 CH_4 通量的吸收与释放和添加的硝态氮有关.

关键词: 三峡水库; 澎溪河; 水华; 氮磷; CH_4

中图分类号: X16 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2018)04-1578-11 DOI: 10.13227/j.hjxx.201706044

CH_4 Fluxes During the Algal Bloom in the Pengxi River

QIN Yu¹, ZHANG Yu-yang¹, LI Zhe^{2*}, MA Jian-rong²

(1. Key Laboratory of Hydraulic and Waterway Engineering of the Ministry of Education, Chongqing Jiaotong University, Chongqing 400074, China; 2. Key Laboratory of Reservoir Environment, Chongqing Institute of Green and Intelligent Technology, Chinese Academy of Sciences, Chongqing 400714, China)

Abstract: Emissions of greenhouse gases in the Three Gorges Reservoir have been attracting attention in the recent years. This study was conducted to reveal the CH_4 emission and removal during the process of algal growth at different nitrogen and phosphorus concentrations in the Pengxi River in the Three Gorges Reservoir. In-situ field experiments were conducted in the Gaoyang Lake in Pengxi River. From April 22nd, 2016, to May 9th, 2016, different concentrations of nitrogen and phosphorus were added to different experimental chambers. Results showed that CH_4 emission decreased sharply from the first day of the experiment to the sixth day, and after that, CH_4 emission in the water samples with only added phosphorus were obviously recovered compared to the other treatment. In this experiment, algal biomass was influenced by different concentrations of N and P. The biomass of algae were not affected by N, but were promoted under suitable concentration of P, such as 1P, 10P, 1NP, and 10NP. When the P concentration was too high, the biomass of algae was also limited. The emission and removal of CH_4 in the experiment were significantly related to the addition of NO_3^- -N.

Key words: Three Gorges Reservoir; Pengxi River; algal bloom; nitrogen and phosphorus; CH_4

自三峡水库修建完成后, 大坝截留, 三峡库区水体从天然河道改变为人工水库, 库区水体较之前天然河道水位升高、流速减缓、扩散能力减弱、污染物停留时间加长, 这些改变造成了库区水质及生态系统的变化^[1-3]. 由于回水托顶加重了库湾和部分支流的污染, 水域局部水体在部分时段出现富营养化. 近年来在小江、香溪河等污染严重的支流受到了许多学者的关注^[4-7].

通常淡水生态系统被认为是大气重要的碳源, 浮游植物、浮游动物、鱼类、沉水植物、沉积物、水动力条件和风场等因素都会对水体中碳循环产生影响^[8,9]. 三峡水库生态系统的碳循环过程在不同的

时空区段内呈明显差别^[10,11]. 三峡水库每年 6~9 月的低水位运行期间近似于天然河道, 而在 10 月~次年 2 月的高水位运行期间具有深水的湖沼学特征^[12], 反季节的水位涨落在很大程度上影响到了水库的碳循环过程. 三峡水库 CO_2 释放通量小于热带水库但高于寒温带水库, CH_4 释放通量显著小于热带水库和新修建的寒温带水库^[13]. 三峡水库香

收稿日期: 2017-06-06; 修订日期: 2017-10-17

基金项目: 国家自然科学基金项目(51679226, 51609026); 重庆市教委科学技术研究项目(KJ1500506); 重庆市基础科学与前沿技术研究项目(cstc2017jcyjAX0280)

作者简介: 秦宇(1981~), 女, 博士, 副教授, 主要研究方向水生态治理, E-mail: qinyu54001@163.com

* 通信作者, E-mail: lizhe@cigit.ac.cn

溪河库湾秋季水-气界面 CO_2 、 CH_4 、 N_2O 的释放通量具有明显的日变化特征: 大部分时间均向外界大气排放 CH_4 ; 而 CO_2 和 N_2O 通量的变化全天均表现为向大气释放, 且 CO_2 和 N_2O 通量的昼夜差异较大^[14]. 三峡水库典型支流澎溪河水-气界面 CO_2 和 CH_4 通量在不同时期昼夜变化明显, 且过程不具同步性. CO_2 昼夜通量变化可能更显著地受到水柱光合/呼吸过程的影响, 但瞬时气象过程(水汽温差、瞬时风速等)在高水位时期亦可对 CO_2 通量产生显著影响; CH_4 昼夜通量变化与水温条件改变更为密切^[15].

水华是氮、磷等营养盐在淡水中富集而导致的藻类大量生长聚集的现象. 全球变暖促进了富营养化条件下发生的藻类水华在遍及全世界的湖泊中发生^[16]. 一般认为, 藻类能够通过初级生产固定大量 CO_2 成为水体的碳汇. 富营养化通过增加藻类生物量促进碳汇也有报道^[17,18]. 但这些研究只关注了藻类生活史的生长聚集阶段, 忽视了藻类死亡分解矿化等一系列生物化学过程将释放 CO_2 、 CH_4 和 N_2O ^[19]. 长期以来, 人们更多地从生态系统水平上来探讨 CH_4 的产汇, 而针对水华过程的温室气体的研究却很少涉及. 本文拟以三峡水库澎溪河回水区的夏初季节水华为研究对象, 在水华暴发时期开展野外观测和现场原位实验研究. 通过野外观测研究自然条件下藻类水华过程中 CH_4 的吸收和释放情况; 通过添加不同浓度梯度的氮、磷, 测定水华过程中藻类对 CH_4 通量的影响, 进而综合揭示该流域在水华过程中的 CH_4 变化规律.

1 材料与方法

1.1 研究区域与实验方案

澎溪河(又称“小江”)是三峡库区中段长江北岸一级支流, 流域面积 $5\,172.5\text{ km}^2$, 干流全长 182.4 km , 坝前 145 m 下回水区全长约 60 km . 其中, 高阳平湖是澎溪河 145 m 回水区中段较具独特性的水域(图 1 及图 2), 其上游(养鹿杨家坝小江电站)、下游(代李子牛栏溪)河段均为峡谷型河道, 河道狭长且断面变化不大, 水力条件相对单一, 而高阳平湖水域则是在上述两个峡谷之间水域面积为 $4\sim5\text{ km}^2$ (水位 145 m) 的开阔水域, 湖沼特征上近似于过水型湖泊. 另一方面, 高阳平湖水域河道深泓处高程约 $125\sim130\text{ m}$, 淹没区河底高程约为 $135\sim140\text{ m}$; 故在三峡水库“蓄清排浑”的调度运行模式下, 该水域在夏季低水位时期平均水深不足 15 m , 冬季高水

位时期平均水深将超过 40 m , 形成了近似于“浅水湖泊, 深水湖泊”的季节性交替特征.

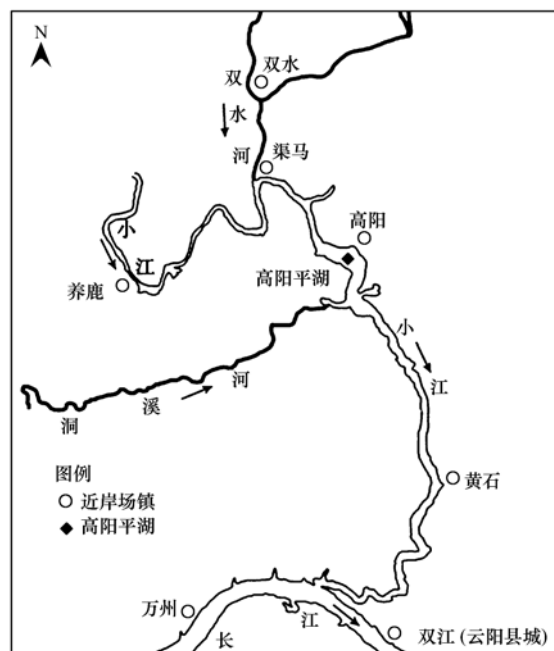


图 1 澎溪河高阳平湖示意

Fig. 1 Backwater area of the Pengxi River

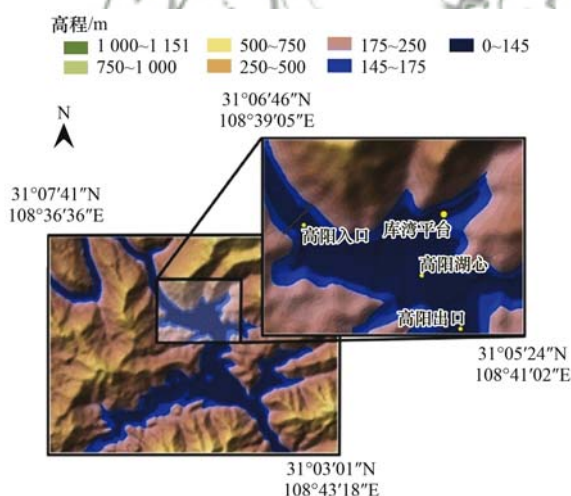


图 2 高阳平湖采样点位置

Fig. 2 Sampling location in the Gaoyang Lake

本研究采用原位实验在 2016 年 4~5 月春季水华期间, 高阳库湾取水样, 于高阳库湾平台放置大桶进行营养盐添加处理的实验以研究不同富营养状态下的藻类生长、堆积、衰亡和分解过程中的温室气体产汇规律. 取发生水华水域的水样, 根据长期研究估计氮、磷浓度, 同时添加 1 倍、10 倍和 100 倍的氮、磷和氮磷[原水(YS)、1 倍氮(1N)、10 倍氮(10N)、100 倍氮(100N)、1 倍磷(1P)、10 倍磷(10P)、100 倍磷(100P)、1 倍氮磷(1NP)、10 倍氮磷(10NP)、100 倍氮磷(100NP)]. 添加的氮为

NaNO_3 , 添加磷为 KH_2PO_4 . 人工添加磷酸盐、硝酸盐, 设置浓度梯度如表 1. 发生水华水域的水样作对照, 每个处理设 3 个重复. 每次共需 30 个 35 L 的大桶. 每 2~4 d 进行一次采样, 采样时间均为 10:00 左右, 连续培养 17 d. 并现场测量其他理化指标.

表 1 营养盐添加氮磷浓度梯度

Table 1 Concentration gradient of nitrogen and phosphorus

样品编号	TN 浓度 / $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$	TP 浓度 / $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$	备注
1、2、3	1.5	0.1	原水(YS)
4、5、6	3	0.1	1 倍氮(1N)
7、8、9	15	0.1	10 倍氮(10N)
10、11、12	150	0.1	100 倍氮(100N)
13、14、15	1.5	0.2	1 倍磷(1P)
16、17、18	1.5	1	10 倍磷(10P)
19、20、21	1.5	10	100 倍磷(100P)
22、23、24	3	0.2	1 倍氮磷(1NP)
25、26、27	15	1	10 倍氮磷(10NP)
28、29、30	150	10	100 倍氮磷(100NP)

1.2 分析方法与数据处理方案

采样时间均为采样日的 10:00 时左右. 用水样瓶采集桶内水体. 顶空瓶置于桶中, 以淹没状态进行密封, 采集的水样与顶空瓶均低温保存. 现场测试分析指标包括: pH 值、溶解氧(DO)、水温等. 其中, 采用多参数水质分析仪(HACH® MS5)现场测定 pH 值(精度分别为 0.01 个单位); 采用 YSI® Pro ODO 测定水温、DO(测试精度分别为 0.1°C , $0.01\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$); 现场气温、大气压采用手持式数字大气压计测得. 水体中 CH_4 气体浓度的测量用顶空平衡法^[20], CH_4 通量的计算采用 Liss 等^[21]提出的边界层模型. 气样分析采用安捷伦 7820 型气相色谱仪. 气体采用十通阀进样, CH_4 经 TDX-01 色谱柱分离后直接用 FID 检测器检测. 气体交换通量计算公式见文献[22]. 氮、磷等营养盐以及叶绿素 a(Chla)等生境关键指标的测定参照文献[23]进行.

顶空平衡法用气相色谱仪测出 CH_4 积分峰面积算出 CH_4 在水中的浓度, 水-气界面的 CH_4 交换通量计算公式(1)^[24]为:

$$\text{Flux} = K_x(c_1 - c_2) \quad (1)$$

式中, Flux 为 CH_4 气体扩散通量, $\mu\text{mol}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{h})^{-1}$; K_x 为气体交换系数; c_1 为顶空平衡法测出的水中 CH_4 浓度, $\text{ng}\cdot(\text{L}\cdot\text{s})^{-1}$; c_2 水中 CH_4 达到平衡时浓度, $\text{ng}\cdot(\text{L}\cdot\text{s})^{-1}$.

本研究的实验分析及计算所得数据全部录入 SPSS® 或 Origin® 进行统计分析, 采用 Spearman 相

关性分析对 CH_4 通量及各理化指标进行回归分析, 说明数据间变化的线性相关性.

2 结果与分析

2.1 溶解氧(DO)

DO 随时间变化规律详见图 3, 1P、10P、1NP、10NP 前 4 d 上升, 并在 4 d 都达到了峰值, 分别为 16.00 、 15.88 、 16.76 、 $15.59\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$, 而其他浓度梯度的水样上升相对较少或直接下降. 在 9 d 时, 基本所有浓度梯度水样的 DO 都开始回升, 1NP、10NP 的溶解氧明显高于其他水样, 1P、10P 的溶解氧略高于除 1NP、10NP 的其他水样. 17 d 时除 10NP、100NP 高达 13 左右, 其他的水样 DO 都在 9~11 之间, 推测可能为实验误差造成.

2.2 pH

pH 值随时间变化规律如图 4 所示, 与溶解氧类似, 1P、10P、1NP、10NP 的 pH 在第 4~6 d 时出现了明显大于添加其他浓度梯度的峰值, 在 9 d 时 1NP、10NP 的 pH 高于 1P、10P, 且这 4 种水样在整个实验过程中 pH 都明显高于其他水样. 在富营养的水体中, 溶解氧主要来源于藻类的光合作用, 光合作用产生的 O_2 远大于呼吸作用需要的 O_2 , 所以光合作用中产生的 O_2 会溶解在水中, 水体 pH 的变化受光合作用的影响^[25]. 王志红等^[26]研究发现在水库藻类水华现象中, pH 随藻类数量的变化呈现出有规律的变化.

2.3 叶绿素 a(Chla)

Chla 随时间变化规律如图 5 所示, 1P、10P、1NP、10NP 的 Chla 先增加再减少, 有明显的峰值. 整个实验过程中 1NP、10NP 的 Chla 基本上都大于 1P、10P 的样品, 而 1P、10P、1NP、10NP 也基本都大于添加其他浓度营养盐的样品. 1P、10P 的 Chla 在 2 d 达到峰值分别为 $85.34\text{ mg}\cdot\text{m}^{-3}$ 、 $94.19\text{ mg}\cdot\text{m}^{-3}$; 而 1NP、10NP 在 4 d 达到峰值分别为 $105.71\text{ mg}\cdot\text{m}^{-3}$ 、 $93.55\text{ mg}\cdot\text{m}^{-3}$. 其他营养盐浓度的样品基本直接下降.

2.4 CH_4 浓度

样品中 CH_4 浓度变化如图 6 和图 7 所示, 由于实验过程中样品水体与外界环境隔绝, 装样品的桶内也没有底泥, 造成 CH_4 的产生量与所研究的自然界中水体的产量相比受到极大的限制. 本实验中的水体前期 CH_4 产量远远小于 CH_4 的释放量, 导致前 4 d 水样中 CH_4 浓度含量急剧下降. 当实验水样释放 CH_4 4 d 后, CH_4 的释放量与产量相对差值

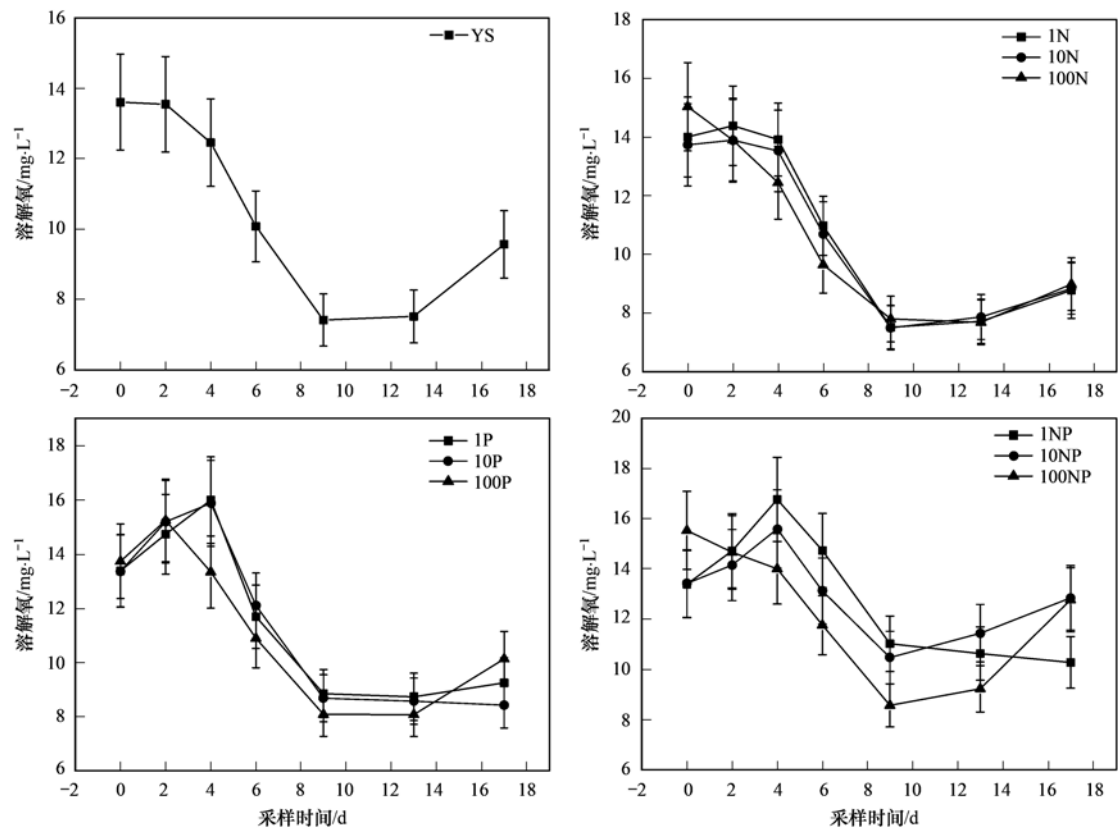


图3 DO与采样天数关系

Fig. 3 Relationship between DO and sampling days

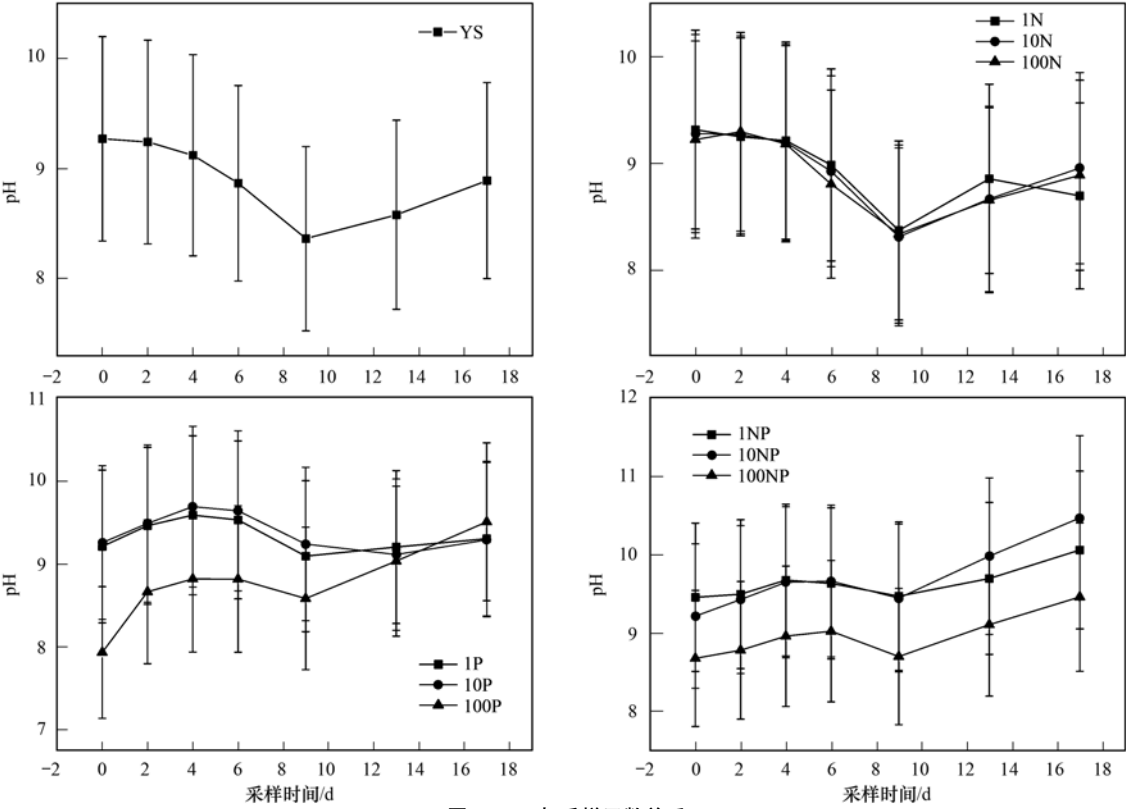


图4 pH与采样天数关系

Fig. 4 Relationship between pH and sampling days

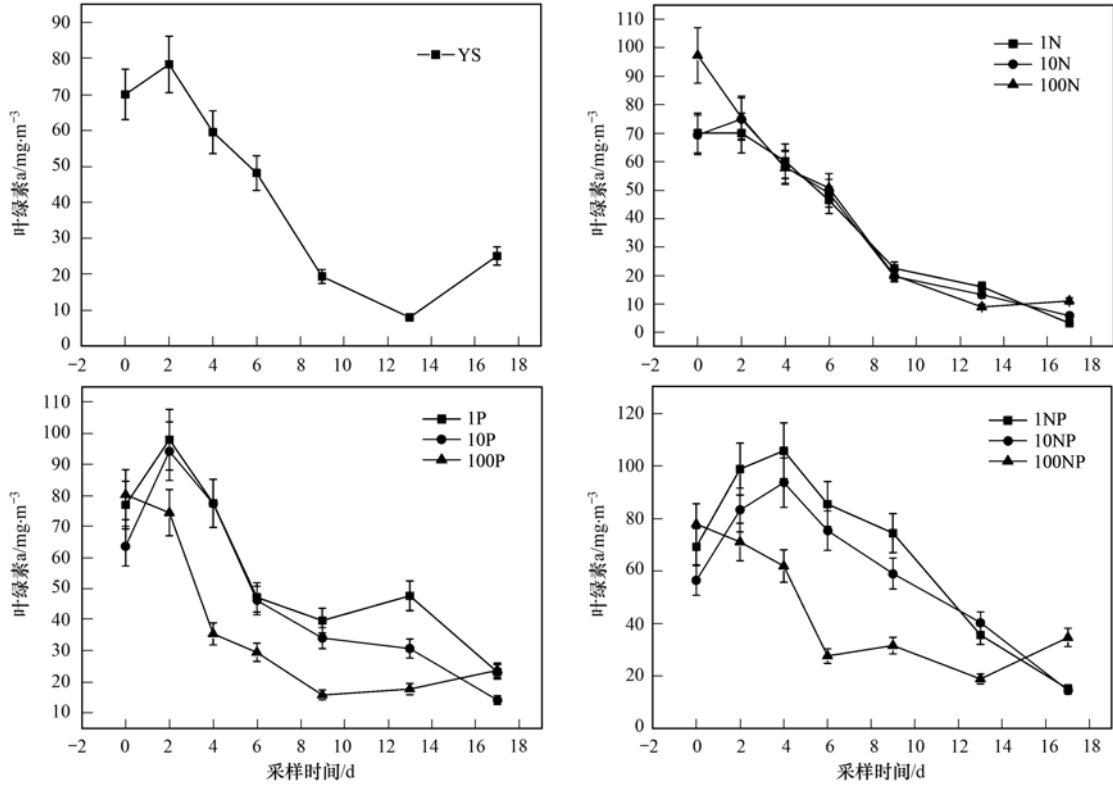


图5 Chla 与采样天数关系

Fig. 5 Relationship between Chla and sampling days

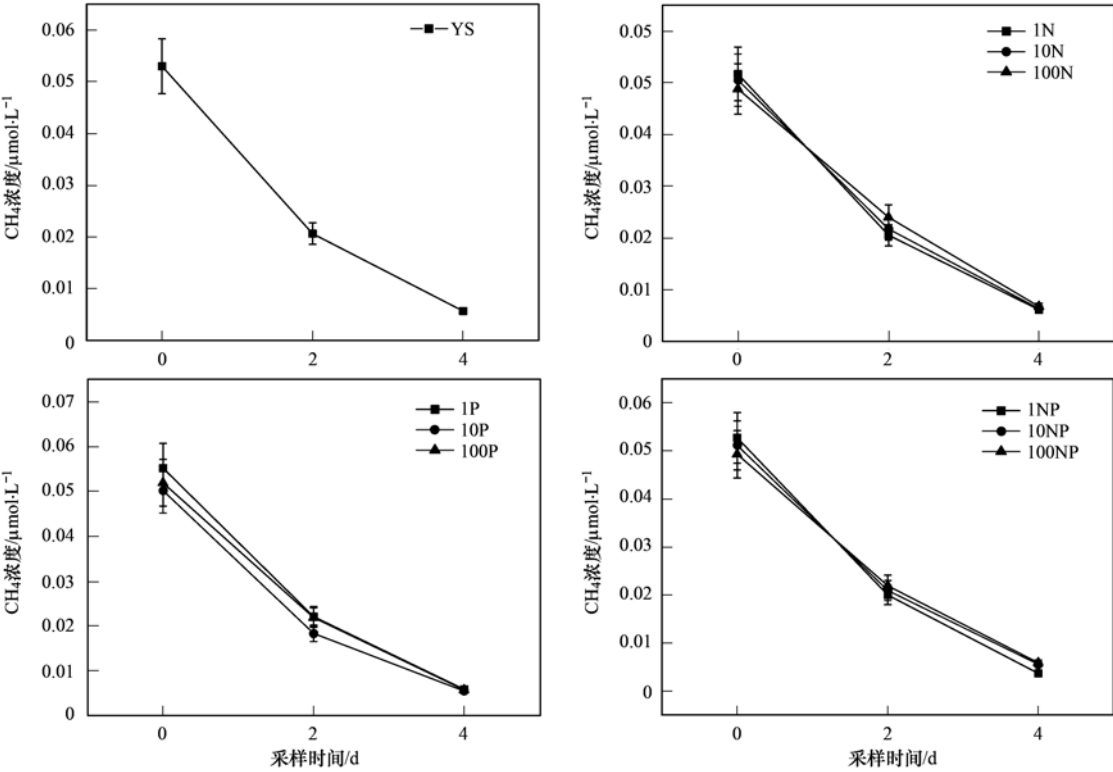


图6 添加试剂当天至4 d CH₄ 浓度与采样天数关系

Fig. 6 Relationship between CH₄ concentrations and sampling days at 0-4 days

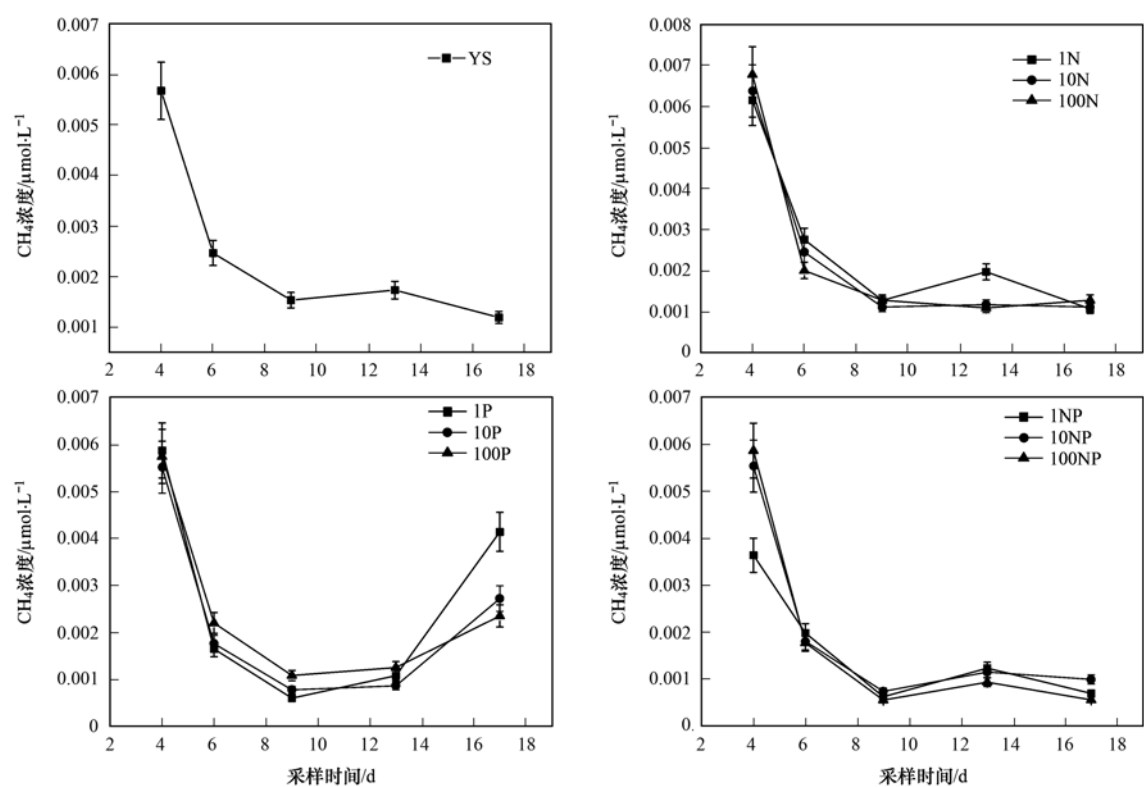


图7 4~17 d CH₄ 浓度与采样天数关系

Fig. 7 Relationship between CH₄ concentrations and sampling days at 4-17 days

变小. 这是因为当采取水样后, 水中溶存的 CH₄ 大部分是来自于采样前高阳平湖底泥产生的. 这些溶存的 CH₄ 并不能立即释放完, 这种释放具有一定的延迟. 当进行实验时, 实验桶中没有底泥, 前期 CH₄ 浓度就会急剧下降, 当下降到一定程度之后, 藻类对 CH₄ 的影响才会显现出来.

2.5 CH₄ 通量

从图8和图9可以看出, 所有样品的 CH₄ 释放通量前半期(添加试剂当天至4 d)急剧减少, 添加试剂当天至4 d 的 CH₄ 释放通量的减少量占总减少量(添加试剂当天至9 d)的88.7%, 变化范围占总变化范围的94%; 后半期(4~17 d)变化相对于前半期比较稳定, 变化范围仅为总变化范围的12.1%. 4 d至9 d CH₄ 释放通量仍在下降, 但速度

比较缓慢, 减少量仅占总减少量的9.7%. 9 d 所有样品 CH₄ 释放通量开始回升, 到13 d 原水、1N、10N、100N、1NP、10NP、100NP 到达一个相对的峰值然后下降, 但1P、10P、100P 的样品在13 d 并没有下降, 而是继续上升.

2.6 相关性分析

采用 Spearman 相关性分析对 CH₄ 通量与各环境影响因子进行回归分析, 分析结果表明, 在全期数据中 CH₄ 通量与 Chla、溶解氧呈显著正相关(表2). 实测实验前4 d CH₄ 通量与 DO 呈显著负相关($P = -0.247$, Sig. < 0.05), 与 Chla 无明显相关性; 4~9 d CH₄ 通量与 DO ($P = 0.597$, Sig. < 0.01)、Chla($P = 0.435$, Sig. < 0.01)都呈显著正相关; 而9 d后 CH₄ 通量与 DO、Chla无明显相关性.

表2 全期数据相关性分析¹⁾

Table 2 Full term data correlation table

	甲烷浓度	甲烷通量	叶绿素 a	溶解氧	pH	温度
甲烷浓度	1					
甲烷通量	0.998 **	1				
叶绿素 a	0.624 **	0.624 **	1			
溶解氧	0.657 **	0.653 **	0.827 **	1		
pH	0.188 **	0.183 *	0.437 **	0.502 **	1	
温度	-0.541 **	-0.545 **	-0.423 **	-0.588 **	-0.190 **	1

1) * 表示 Sig. ≤ 0.05 ; ** 表示 Sig. ≤ 0.01

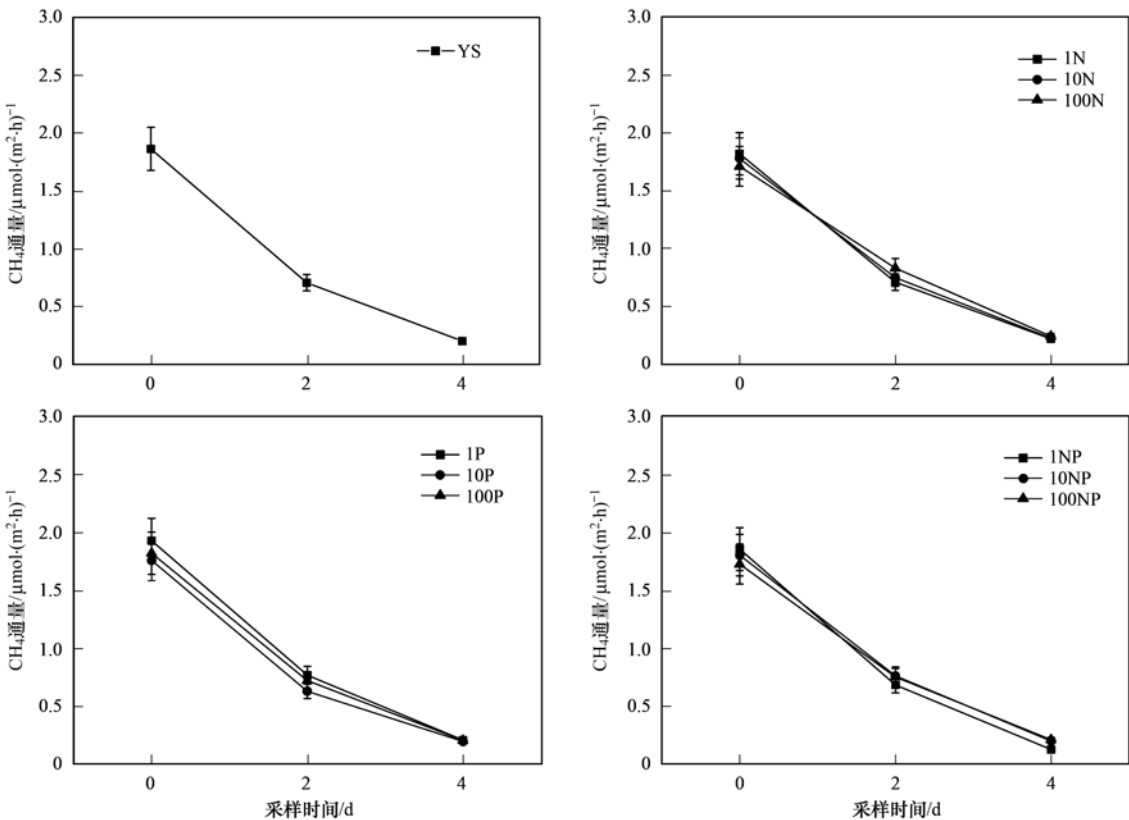


图 8 添加试剂当天至 4 d CH_4 通量与采样天数关系

Fig. 8 Relationship between CH_4 flux and sampling days at 0-4 days

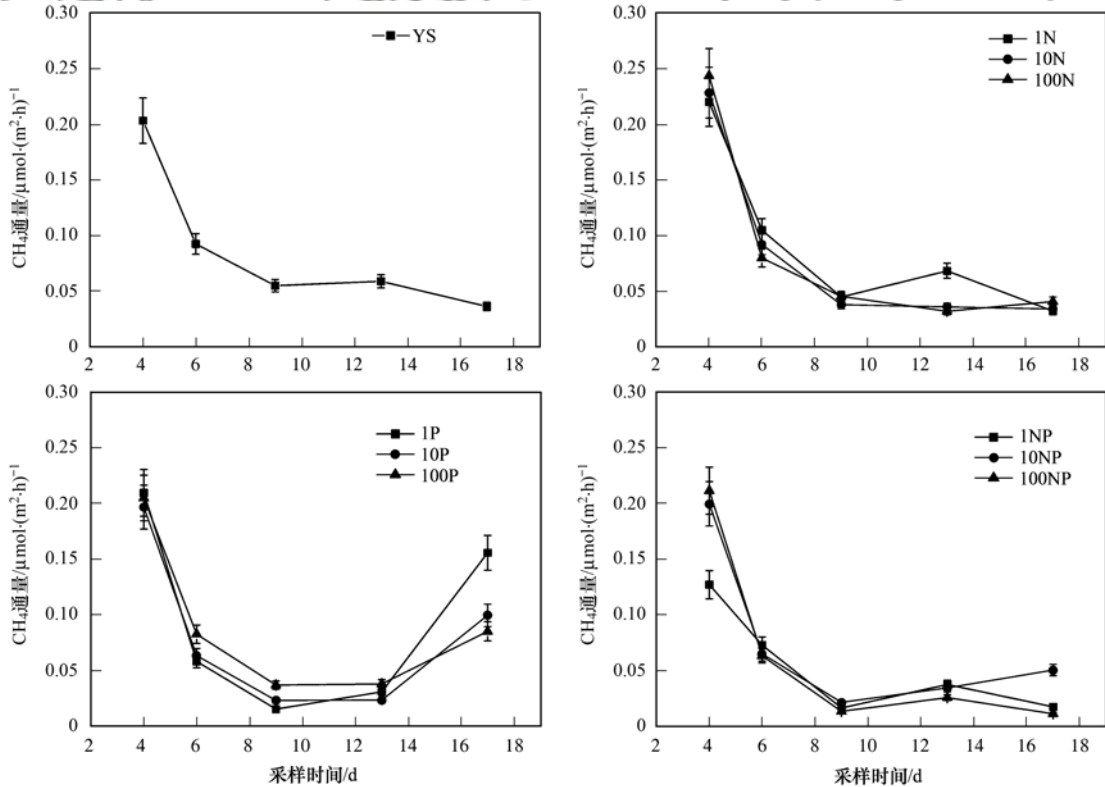


图 9 4 ~ 17 d CH_4 通量与采样天数关系

Fig. 9 Relationship between CH_4 flux and sampling days at 4-17 days

这是因为实验刚开始的 4 d, 甲烷直接开始从高浓度的水样中释放, 而藻类虽然改变了生存的环境, 但这种反映在现象上有一定的滞后性. 前 4 d 藻类还有一定的增长, 而水样中的溶解氧与藻类的生长情况密切相关, 藻类增多溶解氧增多, 而这时 CH_4 通量是直接开始减少的, 所以前 4 d CH_4 通量与 DO 呈显著负相关. 在 4 ~ 9 d, 环境改变对藻类的影响体现出来后, Chla 含量也开始大幅下降, 导致 DO 也跟着下降, 这与 CH_4 通量在 4 ~ 9 d 的趋势一样, 所以在这个时期 CH_4 通量与 Chla、DO 呈显著正相关. Chla 与 pH 呈显著正相关, 是因为藻类的光合作用消耗无机碳, 破坏了碳酸平衡, 带来了 pH 的改变. 温度与其他数据都呈显著负相关, 这是因为实验期间天气情况基本是一个急剧升温的过程, 而其他数据基本是一个减少的过程.

3 讨论

3.1 藻类与 CH_4 通量

3.1.1 氮磷对藻类的影响

对数据进行分组, 以 1P、10P、1NP、10NP 为一组, 其他水样为另一组, 进行显著性差异分析, 通过 t 检验, $\text{Sig.} < 0.01$, 这两组的 Chla 存在显著性的差异. 从 Chla、DO 以及 pH 的数据可以看出, 添加 1P、10P、1NP、10NP 的水样相对于其他的水样对藻类的生长有明显的促进作用. 只添加氮时, 水样藻类生长基本与原水一致; 只添加磷或同时添加氮磷且不过多时, 藻类生长得到促进; 添加过多磷时, 藻类生长也没有被促进; 同时添加适量氮磷时, 如 1NP、10NP, 藻类受到的促进最大. 所以在适宜的磷的浓度条件下, 藻类的生长是促进的. 磷会限制藻类的生长, 氮只有在添加了磷的条件下才会对藻类的生长起到一定的促进作用.

3.1.2 藻类对 CH_4 通量的影响

1979 年, Weimer 等^[27] 在第一届国际厌氧消化会议上提出了 4 种群说理论(四阶段理论). 该理论认为参与厌氧消化菌, 除水解发酵菌、产氢产乙酸菌、产甲烷菌外, 还有一个同型产乙酸菌种群. 这类菌可将中间代谢物的 H_2 和 CO_2 (甲烷菌能直接利用的一组基质) 转化成乙酸(甲烷菌能直接利用的另一组基质). 厌氧发酵过程分为 4 个阶段, 各类群菌的有效代谢均相互密切连贯, 达到一定的平衡, 不能单独分开, 是相互制约和促进的过程. 4 种群说理论如图 10 所示.

水华是大量的藻类聚集形成的结果, 藻类的迅

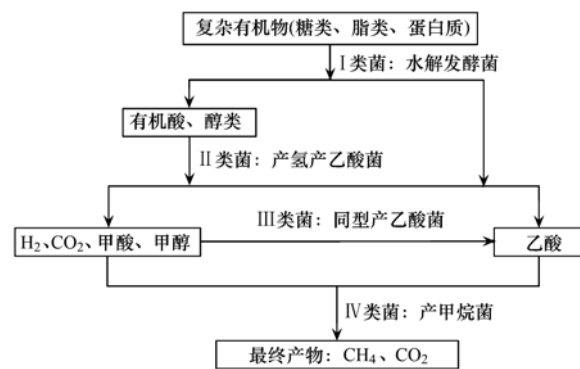


图 10 厌氧消化四阶段理论

Fig. 10 Four-stage theory of anaerobic digestion

速生长聚集要吸收大量的 CO_2 和营养盐, 死亡后为厌氧消化提供了有机物. 这些大量积聚藻类经常发生厌氧的死亡分解, 会释放 CH_4 、 CO_2 和 N_2O , 小部分藻类会沉降到水底而缓慢释放^[19].

水生生态系统温室气体主要通过沉积物-水-大气(或沉积物-植物、浮游植物-大气)体系向大气中排放. 水体中的 CH_4 来自水底淤泥中厌氧环境下的产甲烷菌, 通过植物传输、气泡排放、扩散等方式进入大气^[28]. 在本次实验中, 在水华暴发期间仅采取水样用于原位实验分析, 桶中并未添加采样点的沉积物, 更能体现出藻类的生长死亡对 CH_4 通量的影响.

本实验的前半期, CH_4 释放通量迅速下降是因为取自高阳平湖表层水体的水样本身有较高浓度的 CH_4 , 这些溶存的 CH_4 来自于采样前的底泥. 在原位实验装置中, 采样桶内水体中的 CH_4 没有底泥的补充, 前期的水样中 CH_4 仅仅是释放, 所以 CH_4 的释放通量急剧下降. 从 Chla 可以看出 2 d 大部分水样中藻类开始死亡减少, 在之后的几天逐渐沉积在实验桶的底部或附着在侧面. 4 d CH_4 释放通量下降的速度放缓是水体中 CH_4 浓度相对之前降低了许多, 而实验桶中有了淤积的藻类尸体, 为厌氧消化提供了有机物及厌氧环境, 厌氧消化反应加强, 产甲烷菌向水样中释放的 CH_4 相对较多, 减缓了 CH_4 释放通量下降的速率. 从 4 ~ 13 d, CH_4 释放通量没有减少了而是有所增加, 是因为沉积在底部的藻类尸体更多地被分解转化被产甲烷菌利用, 同时温度的升高(图 11)对微生物分解死亡的藻类产生有机物和产甲烷菌的产甲烷反应也有促进的作用. 从表 2 可看出 CH_4 通量与 Chla 呈显著正相关, 这是因为藻类生长死亡是一个动态平衡的过程. 在藻类生长达到稳定期后, 由于环境因素, 生长率开始

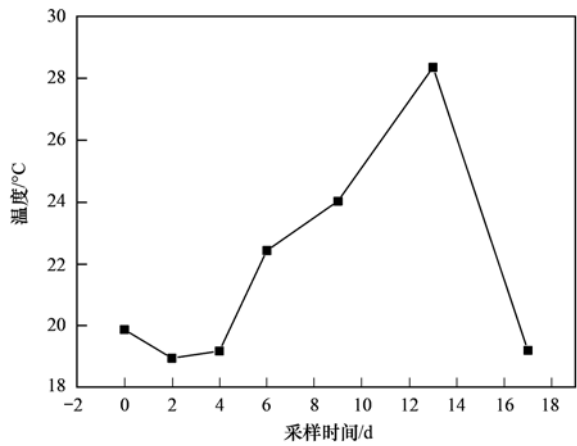


图 11 采样温度变化关系

Fig. 11 Sampling temperature variation

下降,死亡率相对大于生长率,死亡率同时也在下降,死亡的藻类为产甲烷提供了养分. 所以藻类的数量会影响到 CH_4 通量.

1P、10P、1N、10NP 的 Chla 最大值分别为 97.94、94.19、105.71、93.55 $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$,而其他水样

表 3 不同水样 CH_4 通量与硝态氮相关性¹⁾

Table 3 Correlation coefficient between CH_4 flux and nitrate at different treatment

项目	YS	1N	10N	100N	1P	10P	100P	1NP	10NP	100NP
相关性	—	0.647 **	-0.540 *	-0.505 *	0.842 **	0.820 **	0.864 **	0.877 **	—	—

1) “—”表示无明显相关性; * 表示 $\text{Sig.} \leq 0.05$; ** 表示 $\text{Sig.} \leq 0.01$

王智平等^[34]的研究发现土壤细菌的 CH_4 氧化是消耗大气中 CH_4 的重要途径. 氮输入对甲烷产生与氧化等生物化学过程的影响极其复杂,其方向和大小受生态系统类型、输入氮的化学形态以及环境条件等的影响^[35]. 从甲烷氧化来说,一些报道称氮肥对 CH_4 氧化具有抑制作用,如在森林^[36~39]、农田^[39,40]、通气的泥炭土^[41]以及草地^[42]等. 然而据报道^[43,44],氮肥对土壤 CH_4 氧化很少或无抑制作用. Christensen 等^[45]观测到无机氮肥促进瑞典石南丛生地的 CH_4 消耗. 陆地系统中氮对甲烷氧化的影响尚无定论,水体中甲烷氧化的更是鲜见研究. 笔者认为造成这种现象的原因可能是硝态氮对产甲烷过程有抑制作用,也有可能是硝态氮对甲烷氧化过程有促进作用,因而导致不同水样中仅 1P、10P、100P 的通量在 13 d 之后继续上升.

4 结论

(1)藻类的生长过程会受到不同氮磷浓度梯度的影响,只有在适宜的氮磷浓度下才会促进藻类的生长,且藻类的生长受到磷的限制.

的Chla最大值的平均值仅有73.43 $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$. 虽然适宜的氮磷促进了藻类的生长,但是本次实验中不同营养盐浓度梯度下藻类的多少并没有影响到 CH_4 的通量. 可能是实验时间不够长,产甲烷菌对死亡的藻类利用还未达到最大值,藻类的数量远远大于产甲烷菌的需求量,体现不出藻类数量不同对产甲烷菌的影响.

3.2 其他可能对 CH_4 通量造成的影响

在自然界的甲烷循环中,产甲烷菌和甲烷氧化菌都是极其重要的. 氮磷是产甲烷菌和甲烷氧化菌的影响因素^[29~31]. 从表3可以看出,硝态氮与 CH_4 通量的相关性,在原水中无明显相关性,在较多的氮(1N)呈显著正相关,在过量的氮(10N、100N)中呈显著负相关. 而在添加了磷且氮不过量的水样中,硝态氮与 CH_4 通量呈显著正相关. 可能是硝态氮对 CH_4 释放通量产生了影响. 这种影响可能是硝态氮对产甲烷菌或者甲烷氧化菌的影响所造成^[32,33].

(2)在有限的环境容量下,相对适宜的环境促进了藻类的生长. 生长的藻类越多,为藻类死亡分解提供产甲烷的养分越多. 藻类越多, CH_4 通量也越大.

参考文献:

[1] 郭劲松, 谢丹, 李哲, 等. 三峡水库开县消落区水域冬季蓄水期间藻类群落结构与水质评价[J]. 环境科学, 2012, 33(4): 1129-1135.
Guo J S, Xie D, Li Z, et al. Algal community structure and water quality assessment on drawdown area of Kaixian waters in Three Gorges Reservoir during winter storage period [J]. Environmental Science, 2012, 33(4): 1129-1135.

[2] 郭劲松, 陈杰, 李哲, 等. 156 m 蓄水后三峡水库小江回水区春季浮游植物调查及多样性评价[J]. 环境科学, 2008, 29(10): 2710-2715.
Guo J S, Chen J, Li Z, et al. Investigation of phytoplankton and assessment of algal diversity on backwater area of Xiaojiang river in Three Gorges Reservoir after its initiate impounding to the water level of 156m in spring[J]. Environmental Science, 2008, 29(10): 2710-2715.

[3] 李哲, 郭劲松, 方芳, 等. 三峡小江回水区蓝藻季节变化及其与主要环境因素的相互关系[J]. 环境科学, 2010, 31(2): 301-309.
Li Z, Guo J S, Fang F, et al. Seasonal variation of cyanobacteria and its potential relationship with key environmental factors in

- Xiaojiang backwater area, Three Gorges Reservoir [J]. Environmental Science, 2010, **31**(2): 301-309.
- [4] 李哲, 方芳, 郭劲松, 等. 三峡小江(澎溪河)藻类功能分组及其季节演替特点[J]. 环境科学, 2011, **32**(2): 392-400.
- Li Z, Fang F, Guo J S, *et al.* Seasonal succession of phytoplankton function groups in the Xiaojiang (Pengxi) river backwater area, Three Gorges Reservoir [J]. Environmental Science, 2011, **32**(2): 392-400.
- [5] 李哲, 谢丹, 郭劲松, 等. 三峡水库澎溪河典型优势藻原位生长速率的初步研究[J]. 湖泊科学, 2012, **24**(5): 746-754.
- Li Z, Xie D, Guo J S, *et al.* Preliminary study on in situ growth rate of dominant algae species in Pengxi River of the Three Gorges Reservoir [J]. Journal of Lake Sciences, 2012, **24**(5): 746-754.
- [6] 刘流, 刘德富, 肖尚斌, 等. 水温分层对三峡水库香溪河库湾春季水华的影响[J]. 环境科学, 2012, **33**(9): 3046-3050.
- Liu L, Liu D F, Xiao S B, *et al.* Effects of thermal stratification on spring blooms in Xiangxi bay of the Three Gorges Reservoir [J]. Environmental Science, 2012, **33**(9): 3046-3050.
- [7] 李媛, 刘德富, 孔松, 等. 三峡水库蓄泄水过程对香溪河库湾水华影响的对比分析[J]. 环境科学学报, 2012, **32**(8): 1882-1893.
- Li Y, Liu D F, Kong S, *et al.* Comparative analysis of the impact of discharging and impounding process of Three Gorges Reservoir on the algal bloom in the Xiangxi Bay [J]. Acta Scientiae Circumstantiae, 2012, **32**(8): 1882-1893.
- [8] Cole J J, Prairie Y T, Caraco N F, *et al.* Plumbing the global carbon cycle: integrating inland waters into the terrestrial carbon budget [J]. Ecosystems, 2007, **10**(1): 171-184.
- [9] Cole J J, Caraco N F, Kling G W, *et al.* Carbon dioxide supersaturation in the surface waters of lakes [J]. Science, 1994, **265**(5178): 1568-1570.
- [10] 王亮, 肖尚斌, 刘德富, 等. 香溪河库湾夏季温室气体通量及影响因素分析[J]. 环境科学, 2012, **33**(5): 1471-1475.
- Wang L, Xiao S B, Liu D F, *et al.* Fluxes of greenhouse gases from Xiangxi river in summer and their influencing factors [J]. Environmental Science, 2012, **33**(5): 1471-1475.
- [11] Lu F, Yang L, Wang X K, *et al.* Preliminary report on methane emissions from the Three Gorges Reservoir in the summer drainage period [J]. Journal of Environmental Sciences, 2011, **23**(12): 2029-2033.
- [12] 李哲. 三峡水库运行初期小江回水区藻类生境变化与群落演替特征研究[D]. 重庆: 重庆大学, 2009.
- [13] 李哲, 肖艳, 郭劲松, 等. 三峡水库温室气体源汇通量与减排效益[A]. 见: “全球变化下的海洋与湖沼生态安全”学术交流会议论文集[C]. 南京: 中国海洋湖沼学会, 2014.
- [14] 黄文敏, 朱孔贤, 赵玮, 等. 香溪河秋季水-气界面温室气体通量日变化观测及影响因素分析[J]. 环境科学, 2013, **34**(4): 1270-1276.
- Huang W M, Zhu K X, Zhao W, *et al.* Diurnal changes in greenhouse gases at water-air interface of Xiangxi river in autumn and their influencing factors [J]. Environmental Science, 2013, **34**(4): 1270-1276.
- [15] 李哲, 姚晓, 何萍, 等. 三峡水库澎溪河水-气界面 CO₂、CH₄ 扩散通量昼夜动态初探[J]. 湖泊科学, 2014, **26**(4): 576-584.
- Li Z, Yao X, He P, *et al.* Diel variations of air-water CO₂ and CH₄ diffusive fluxes in the Pengxi river, Three Gorges Reservoir [J]. Journal of Lake Sciences, 2014, **26**(4): 576-584.
- [16] Kiehl J T, Trenberth K E. Earth's annual global mean energy budget [J]. Bulletin of the American Meteorological Society, 1997, **78**(2): 197-208.
- [17] Trolle D, Staehr P A, Davidson T A, *et al.* Seasonal dynamics of CO₂ flux across the surface of shallow temperate lakes [J]. Ecosystems, 2012, **15**(2): 336-347.
- [18] Anderson N J, Bennion H, Lotter A F. Lake eutrophication and its implications for organic carbon sequestration in Europe [J]. Global Change Biology, 2014, **20**(9): 2741-2751.
- [19] 袁希功. 香溪河库湾藻类与水-气界面碳循环的关系[D]. 北京: 中国科学院水生生物研究所, 2013.
- [20] 杨博道, 吕峰. 顶空平衡法研究现状综述[J]. 化学工程与装备, 2016, (7): 206-207.
- [21] Liss P S, Salter P G. Flux of gases across the air-sea interface [J]. Nature, 1974, **247**(5438): 181-184.
- [22] 姚晓, 李哲, 郭劲松, 等. 水-气界面 CO₂ 通量监测的静态箱法与薄边界层模型估算法比较[J]. 湖泊科学, 2015, **27**(2): 289-296.
- Yao X, Li Z, Guo J S, *et al.* Comparison between closed static chamber method and thin boundary layer method on monitoring air-water CO₂ diffusion flux [J]. Journal of Lake Sciences, 2015, **27**(2): 289-296.
- [23] 国家环境保护总局. 水和废水监测分析方法[M]. (第四版). 北京: 中国环境科学出版社, 2002.
- [24] Tremblay A, Varfalvy I, Roehm C, *et al.* Greenhouse gas emissions-fluxes and processes: hydroelectric reservoirs and natural environments [M]. New York: Springer, 2005. 585-587.
- [25] 张澎浪, 孙承军. 地表水体中藻类的生长对 pH 值及溶解氧含量的影响[J]. 中国环境监测, 2004, **20**(4): 49-50.
- Zhang P L, Sun C J. The influence of algae growing on pH and DO in surface water [J]. Environmental Monitoring in China, 2004, **20**(4): 49-50.
- [26] 王志红, 崔福义, 安全, 等. pH 在藻类“水华”现象中的影响探讨[J]. 环境污染与防治, 2004, (2): 158.
- [27] Weimer P J, Zeikus J G. Acetate assimilation pathway of *Methanosarcina barkeri* [J]. Journal of Bacteriology, 1979, **137**(1): 332-339.
- [28] 杨平, 仝川. 淡水水生生态系统温室气体排放的主要途径及影响因素研究进展[J]. 生态学报, 2015, **35**(20): 6868-6880.
- Yang P, Tong C. Emission paths and measurement methods for greenhouse gas fluxes from freshwater ecosystems: a review [J]. Acta Ecologica Sinica, 2015, **35**(20): 6868-6880.
- [29] 丛者禹. 厌氧微生物的营养元素——氮和磷对甲烷细菌生存环境影响的探讨[J]. 环境与可持续发展, 2000, (2): 31-36.
- [30] 丁维新, 蔡祖聪. 氮肥对土壤氧化大气甲烷影响的机制[J]. 农村生态环境, 2001, **17**(3): 30-34.
- Ding W X, Cai Z C. Mechanisms of nitrogen fertilizer suppressing atmospheric methane oxidation by methanotrophs in soils [J]. Rural Eco-Environment, 2001, **17**(3): 30-34.
- [31] 胡敏杰, 仝川, 邹芳芳. 氮输入对土壤甲烷产生、氧化和传

- 输过程的影响及其机制[J]. 草业学报, 2015, **24**(6): 204-212.
- Hu M J, Tong C, Zou F F. Effects of nitrogen input on CH₄ production, oxidation and transport in soils, and mechanisms: a review[J]. Acta Prataculturae Sinica, 2015, **24**(6): 204-212.
- [32] 闵航, 陈中云, 吴伟祥, 等. 碳、氮物质对水稻田土壤甲烷氧化活性影响的研究[J]. 环境科学学报, 2002, **22**(1): 70-75.
- Min H, Chen Z Y, Wu W X, *et al.* Effect of carbon and nitrogen sources on the activity of methane oxidization in a paddy rice soil [J]. Acta Scientiae Circumstantiae, 2002, **22**(1): 70-75.
- [33] 刘德燕, 丁维新. 天然湿地土壤产甲烷菌及其影响因子研究进展[J]. 地理科学, 2011, **31**(2): 136-142.
- [34] 王智平, 胡春胜, 杨居荣. 无机氮对土壤甲烷氧化作用的影响[J]. 应用生态学报, 2003, **14**(2): 305-309.
- Wang Z P, Hu C S, Yang J R. Effect of inorganic nitrogen on CH₄ oxidation in soils[J]. Chinese Journal of Applied Ecology, 2003, **14**(2): 305-309.
- [35] Liu L, Greaver T L. A review of nitrogen enrichment effects on three biogenic GHGs: the CO₂ sink may be largely offset by stimulated N₂O and CH₄ emission[J]. Ecology Letters, 2009, **12**(10): 1103-1117.
- [36] Adamsen A P S, King G M. Methane consumption in temperate and subarctic forest soils: rates, vertical zonation, and responses to water and nitrogen [J]. Applied and Environmental Microbiology, 1993, **59**(2): 485-490.
- [37] Gullledge J, Doyle A P, Schimel J P. Different NH₄⁺-inhibition patterns of soil CH₄ consumption: a result of distinct CH₄-oxidizer populations across sites? [J]. Soil Biology and Biochemistry, 1997, **29**(1): 13-21.
- [38] Sitaula B K, Bakken L R. Nitrous oxide release from spruce forest soil: Relationships with nitrification, methane uptake, temperature, moisture and fertilization [J]. Soil Biology and Biochemistry, 1993, **25**(10): 1415-1421.
- [39] Sitaula B K, Hansen S, Sitaula J I B, *et al.* Methane oxidation potentials and fluxes in agricultural soil: effects of fertilisation and soil compaction[J]. Biogeochemistry, 2000, **48**(3): 323-339.
- [40] Hütsch B W, Webster C P, Powlson D S. Long-term effects of nitrogen fertilization on methane oxidation in soil of the Broadbalk Wheat Experiment[J]. Soil Biology and Biochemistry, 1993, **25**(10): 1307-1315.
- [41] Crill P M, Martikainen P J, Nykänen H, *et al.* Temperature and N fertilization effects on methane oxidation in a drained peatland soil[J]. Soil Biology and Biochemistry, 1994, **26**(10): 1331-1339.
- [42] Neff J C, Bowman W D, Holland E A, *et al.* Fluxes of nitrous oxide and methane from nitrogen-amended soils in a Colorado alpine ecosystem[J]. Biogeochemistry, 1994, **27**(1): 23-33.
- [43] Boon P I, Lee K. Methane oxidation in sediments of a floodplain wetland in south-eastern Australia [J]. Letters in Applied Microbiology, 1997, **25**(2): 138-142.
- [44] Mosier A, Schimel D, Valentine D, *et al.* Methane and nitrous oxide fluxes in native, fertilized and cultivated grasslands [J]. Nature, 1991, **350**(6316): 330-332.
- [45] Christensen T R, Michelsen A, Schmidt I K, *et al.* Carbon dioxide and methane exchange of a subarctic heath in response to climate change related environmental manipulations[J]. Oikos, 1997, **79**(1): 34-44.

CONTENTS

Air Pollutant Emission Inventory from Iron and Steel Industry in the Beijing-Tianjin-Hebei Region and Its Impact on PM _{2.5}	DUAN Wen-jiao, LANG Jian-lei, CHENG Shui-yuan, <i>et al.</i> (1445)
Simulation of the Spatio-temporally Resolved PM _{2.5} Aerosol Mass Concentration over the Inland Plain of the Beijing-Tianjin-Hebei Region	HAO Jing, SUN Cheng, GUO Xing-yu, <i>et al.</i> (1455)
Effect of Relative Humidity on Particulate Matter Concentration and Visibility During Winter in Chengdu	LIU Fan, TAN Qin-wen, JIANG Xia, <i>et al.</i> (1466)
Vertical Distributional Characteristics of Inorganic Ions of PM _{2.5} at Mt. Huashan, Inland China	CAO Cong, WANG Ge-hui, WU Can, <i>et al.</i> (1473)
Analysis of the Composition of Atmospheric Fine Particles (PM _{2.5}) Produced by Burning Fireworks	XIE Rui-jia, HOU Hong-xia, CHEN Yong-shan (1484)
Chemical Composition Characteristics of PM _{2.5} Emitted by Medium and Small Capacity Coal-fired Boilers in the Yangtze River Delta Region	XU Jian, HUANG Cheng, LI Li, <i>et al.</i> (1493)
Emission Factors of Heavy Metals in Size-resolved Particles Emitted from Residential Coal Combustion	YAN Qin, KONG Shao-fei, LIU Hai-biao, <i>et al.</i> (1502)
Distribution of Oxalate in Atmospheric Aerosols and the Related Influencing Factors in Qingdao, During Winter and Spring	ZHANG Shuai, SHI Jin-hui, YAO Xiao-hong, <i>et al.</i> (1512)
Concentrations and Solubility of Trace Elements in Atmospheric Precipitation in Qingdao	LI Qian, SHI Jin-hui, LI Peng-zhi, <i>et al.</i> (1520)
Occurrence and Gas-particle Partitioning of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in the Air of Liaodong Bay	ZHANG Yu-feng, SONG Yong-gang, TIAN Jin, <i>et al.</i> (1527)
Analysis of Sources, Pollution Characteristics, and Human Exposure to Atmospheric New Halogenated Flame Retardants in Selected Areas	LI Qi-lu, YANG Kong, LI Jun, <i>et al.</i> (1537)
Contamination Characterization and Human Exposure Levels to Polybrominated Diphenyl Ethers in Indoor and Outdoor Air in Industrial Park of Suzhou City	WANG Jun-xia, GU Hai-dong, ZHANG Zhan-en, <i>et al.</i> (1544)
Effect of Air Pollution on the Cold Disease in Shanghai	YANG Si-xu, MA Yu-xia, ZHOU Jian-ding, <i>et al.</i> (1552)
Fluorescent Dissolved Organic Matter and Its Correlation with Water Quality in a Urban River: A Case Study of the Lujiang River in Beilun, Ningbo	CAO Chang-li, LIANG Meng-qi, HE Gui-ying, <i>et al.</i> (1560)
Relationship Between Landscape Pattern and Water Quality in the Ebinur Lake Region	CAO Can, ZHANG Fei, Ayinigeer·Yalikun, <i>et al.</i> (1568)
CH ₄ Fluxes During the Algal Bloom in the Pengxi River	QIN Yu, ZHANG Yu-yang, LI Zhe, <i>et al.</i> (1578)
Dynamic Variations and Sources of Nitrate During Dry Season in the Lijiang River	MIAO Ying, ZHANG Cheng, XIAO Qiong, <i>et al.</i> (1589)
Heavy Metal Pollution of the Drinking Water Sources in the Lujiang River Basin, and Related Health Risk Assessments	ZHANG Qing-hua, WEI Yong-zhu, CAO Jian-hua, <i>et al.</i> (1598)
Characteristics of Phosphorus Fractions and Phosphate Diffusion Fluxes of Sediments in Cascade Reservoirs of the Huangbai River	LIU Jia, LEI Dan, LI Qiong, <i>et al.</i> (1608)
Occurrence and Ecological Risk Assessment of Typical Persistent Organic Pollutants in Baiyangdian Lake	GAO Qiu-sheng, JIAO Li-xin, YANG Liu, <i>et al.</i> (1616)
Simulating the Fate of Typical Organochlorine Pesticides in the Multimedia Environment of the Pearl River Delta	GAO Zi-wen, XU Yue, YI Ru-han (1628)
Mechanisms and Efficiencies of Removal of PPCPs by Pilot River Water Bypass Treatment Process	LI Li, ZHU Bing, BAI Yao, <i>et al.</i> (1637)
Chlorination of Naproxen: Removal, Transformation and Risk Assessment	FAN Xin-xin, DU Er-deng, LI Jia-qi, <i>et al.</i> (1645)
Removing Typical Odorants in Drinking Water by Vacuum Ultraviolet Combined with Chlorine	SUN Xin, ZHANG Yi, SHI Lu-xiao, <i>et al.</i> (1654)
Degradation of Triclosan by Heat Activated Persulfate Oxidation	JIANG Meng-di, ZHANG Qing-yue, JI Yue-fei, <i>et al.</i> (1661)
Adsorption of Tetracycline on Simulated Suspended Particles in Water	XU Long-feng, WEI Qun-shan, LÜ Qiang, <i>et al.</i> (1668)
Characteristics and Performance of Embedded ANAMMOX Bacteria in Treating Saline Wastewater	SHAN Xiao-jing, YU De-shuang, LI Jin, <i>et al.</i> (1677)
Enhanced Nitrogen Removal of ANAMMOX Treating Saline Wastewater With Betaine Addition	YU De-shuang, WU Guo-dong, LI Jin, <i>et al.</i> (1688)
Pilot-scale Experiment on Enrichment of Nitrifying Activated Sludge and Its Application in Enhancing a Wastewater Biological Treatment System Against Ammonia Shocking Loads	SHENG Xiao-lin, CUI Can-can, WANG Jia-de, <i>et al.</i> (1697)
Effect of Step Feed on Denitrifying Phosphorus and Nitrate Removal in a Modification of the Two Sludge A ² /O-BAF System	NAN Yan-bin, PENG Yong-zhen, ZENG Li-yun, <i>et al.</i> (1704)
Achieving Partial Nitrification in a Continuous-flow Aerobic Granular Sludge Reactor at Different Temperatures Through Ratio Control	LIANG Dong-bo, BIAN Wei, KAN Rui-zhe, <i>et al.</i> (1713)
Mechanism of Action of Activated Sludge Properties in Nitrogen Removal by Endogenous Denitrification Through an Intelligent Aeration-controlled A/O Process	XU Min-yang, HU Zhan-bo, ZHANG Sui-sheng, <i>et al.</i> (1720)
Effect of Temperature on the Performance and Microbial Community Structure in an Integrated Anaerobic Fluidized-bed Membrane Bioreactor Treating Benzothiazole Wastewater	LI Yue, HU Qi, GAO Da-wen (1731)
Removal of Antibiotics During In-situ Sludge Ozone-reduction Process	WANG Lu, BEN Wei-wei, LI Yan-gang, <i>et al.</i> (1739)
Effect of Zero Valent Iron on the Horizontal Gene Transfer of Tetracycline Resistance Genes During Anaerobic Sludge Digestion Process	YANG Fan, XU Wen-li, QIAN Ya-jie, <i>et al.</i> (1748)
Effects of Environmental Factors on the Synergy of Functional Bacteria in Completely Autotrophic Granular Sludge	CHEN Xi, QIAN Fei-yue, WANG Jian-fang, <i>et al.</i> (1756)
Microbiological Characteristics of a Post Solid-Phase Denitrification Biofilter Process	ZHANG Qian, JI Fang-ying, XU Xuan (1763)
Aerobic Denitrification and Microbial Community Shift in SBR Bioaugmented with Strains YH01 and YH02	CHEN Hai-sheng, CAO Gang, ZHANG Di, <i>et al.</i> (1773)
Performance, Sludge Characteristics, and the Microbial Community Dynamics of Bulking Sludge Under Different Nitrogen and Phosphorus Imbalances	HE Xue-meng, DING Li-li, ZHANG Lu-lu, <i>et al.</i> (1782)
Degradation Characteristics and Metabolic Pathway of a Pyrene-Degrading <i>Pseudomonas aeruginosa</i> Strain	LI Xiang, ZHANG Xue-ying, ZHOU Jun, <i>et al.</i> (1794)
Driving Factors of the Dynamics of Microbial Community in a Dam of Copper Mine Tailings	LI Cui, JING Ju-hui, LIU Jin-xian, <i>et al.</i> (1804)
Effects of Reclamation on Soil Nutrients and Microbial Activities in the Huixian Karst Wetland in Guilin	HUANG Ke-chao, SHEN Yu-yi, XU Guang-ping, <i>et al.</i> (1813)
Effects of the Farmland-to-Forest/Grassland Conversion Program on the Soil Bacterial Community in the Loess Hilly Region	CHEN Meng-li, ZENG Quan-chao, HUANG Yi-mei, <i>et al.</i> (1824)
Insight into the Mechanism of Feammox in the Surface Soils of a Riparian Zone	DING Bang-jing, LI Zheng-kui, ZHU Hong-jie, <i>et al.</i> (1833)
Soil Degradation-Associated Microbial Community Structure Changes in an Alpine Meadow Under Tibetan Pig Herding	ZHAN Peng-fei, XIAO De-rong, YAN Peng-fei, <i>et al.</i> (1840)
Characteristics of Iron Plaque and Its Heavy Metal Enrichment in Typical Mangrove Plants in Shenzhen Bay, China	SHEN Xiao-xue, LI Rui-li, CHAI Min-wei, <i>et al.</i> (1851)
Spatial Distribution of DDTs and PCBs in Wild Fish from Hong Kong Coastal Areas and Potential Human Health Risk Assessment	SU Yang, BAO Lian-jun, ZENG Eddy Y (1861)
Pollution Characteristics of PAHs in Soil from a Remote Mountain Wetland-Dajiu Lake, Shengnongjia	HU Tian-peng, XING Xin-li, KE Yan-ping, <i>et al.</i> (1872)
Migration and Transformation of Mercury in Unsubmerged Soil and Sediment at One Typical Forest Reservoir in Southwest China	SUN Tao, MA Ming, WANG Yong-min, <i>et al.</i> (1880)
Accumulation of Cd and Its Risks in the Soils of the Xijiang River Drainage Basin in Guangxi	SONG Bo, YANG Zi-jie, ZHANG Yun-xia, <i>et al.</i> (1888)
Effects of Long-term Fertilization Regimes on As Accumulation in Upland Red Earth and the Crops Growing on It	ZHANG Rong, YU Guang-hui, LI Ya-qing (1901)
Effects of a Tribasic Amendment on Cadmium and Arsenic Accumulation and Translocation in Rice in a Field Experiment	GU Jiao-feng, ZHOU Hang, JIA Run-yu, <i>et al.</i> (1910)
Quantitative Relationship Between Paddy Soil Properties and Cadmium Content in Rice Grains	WANG Meng-meng, HE Meng-yuan, SU De-chun (1918)
Effect of Ca-bentonite on Cu and Zn Forms in Compost and Soil, and Their Absorption by Chinese Cabbage	ZHAO Jun-chao, WANG Quan, REN Xiu-na, <i>et al.</i> (1926)
Effects of Short-term Exogenous Nitrogen and Carbon Input on Soil Respiration Under Changing Precipitation Pattern	HE Yun-long, QI Yu-chun, PENG Qin, <i>et al.</i> (1934)
Effects of Simulated Precipitation Reduction on Soil Respiration in a Soybean-Winter Wheat Rotation Cropland	WANG Zhao-hui, CHEN Shu-tao, SUN Lu, <i>et al.</i> (1943)
Seasonal Variation in Nitric Oxide Emission from an Agricultural Headwater Ditch in the Hilly Purple Soil Area and the Factors Influencing Emission	TIAN Lin-lin, REN Guang-qian, ZHU Bo (1952)
Effects of Seasonal Asymmetric Warming on Soil CO ₂ Release in Karst Region	TANG Guo-yong, ZHANG Chun-hua, LIU Fang-yan, <i>et al.</i> (1962)