

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, 朱耕, 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)	

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^{1,2,3}, 任光前^{2,4}, 朱波^{1,2,*}

(1. 中国科学院水利部成都山地灾害与环境研究所, 成都 610041; 2. 中国科学院山地表生过程与生态调控重点实验室, 成都 610041; 3. 中国科学院大学, 北京 100049; 4. 江苏大学环境与安全工程学院, 镇江 212013)

摘要: 农田源头沟渠是农田养分迁移的重要水文通道和非常活跃的氮转化场所. 本研究以紫色土丘陵区农田源头沟渠为对象, 在 2014 年 12 月~2015 年 11 月, 采用静态箱-化学发光法对其一氧化氮(NO)排放开展原位观测. 结果表明, 有自然植被覆盖的农田源头沟渠生态系统(V)中的 NO 年累积排放量为 $14.17 \text{ g} \cdot (\text{hm}^2 \cdot \text{a})^{-1}$, 而无自然植被覆盖的对照处理(NV, 代表沟渠中的沉积物-水界面系统)则为 $-0.4 \text{ g} \cdot (\text{hm}^2 \cdot \text{a})^{-1}$. 总体而言, 沟渠生态系统的年综合排放通量是 $11.27 \text{ g} \cdot (\text{hm}^2 \cdot \text{a})^{-1}$, 全年平均排放通量为 $0.13 \mu\text{g} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{h})^{-1}$. 农田源头沟渠仅在夏季是 NO 的排放源, 且夏季 NO 累积排放量显著高于 ($P < 0.05$) 春季、秋季或冬季. 沟渠上覆水 NO_3^- -N 浓度和温度是影响 NO 排放季节变化的主要控制因素. 同时, 沟渠生态系统中植物存在可显著提高所观测的 NO 排放通量, 但对全年 NO 累积排放量无显著影响.

关键词: 沟渠生态系统; 一氧化氮; 间接排放; 硝态氮; 小流域氮循环; 温度

中图分类号: X144; X171 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2018)04-1952-10 DOI: 10.13227/j.hjks.201707250

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^{1,2,3}, REN Guang-qian^{2,4}, ZHU Bo^{1,2,*}

(1. Institute of Mountain Hazards and Environment, Chinese Academy of Sciences, Chengdu 610041, China; 2. Key Laboratory of Mountain Surface Processes and Ecological Regulation, Chinese Academy of Sciences, Chengdu 610041, China; 3. University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China; 4. School of the Environment and Safety Engineering, University of Jiangsu, Zhenjiang 212013, China)

Abstract: Agricultural headwater ditches are important pathways of reactive nitrogen loss from adjacent croplands, and also act as hotspots for reactive nitrogen transformation. In this study, NO emissions from a typical agricultural ditch in the hilly area of central Sichuan Basin were measured by the closed static chamber-chemiluminescence method, from December 2014 to November 2015. The results showed that the cumulative NO emissions from the sediment-water interface without vegetation (NV) and the ditch ecosystem with natural vegetation (V) were $-0.4 \text{ g} \cdot (\text{hm}^2 \cdot \text{a})^{-1}$ and $14.17 \text{ g} \cdot (\text{hm}^2 \cdot \text{a})^{-1}$, respectively. The combined annual NO emission flux for the agricultural headwater ditch ecosystem was $11.27 \text{ g} \cdot (\text{hm}^2 \cdot \text{a})^{-1}$, with a mean NO emission rate of $0.13 \mu\text{g} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{h})^{-1}$. A net source of NO from the ditch ecosystem only occurred in summer, which had a significantly higher cumulative NO emission than those in the other seasons. The seasonal variation in NO emissions was mainly regulated by the seasonal changes in NO_3^- -N concentrations and temperature in the overlying water. Meanwhile, the presence of vegetation in the ditch ecosystem significantly increased NO emission rates, whereas it did not markedly influence the annual NO emission.

Key words: ditch ecosystem; nitric oxide; indirect emission; nitrate; nitrogen cycling in catchment; temperature

一氧化氮(NO)在对流层中可与臭氧(O_3)产生光化学反应进而破坏臭氧^[1,2], 同时也是酸沉降中硝酸的生成源^[3~5], 是一种比较活跃的活性氮气体污染物^[6,7]. 氮氧化物(NO_x)是 NO 和二氧化氮(NO_2)的统称, 且以 NO 为主. 自工业革命以来, 全球 NO_x 排放量呈不断增长趋势, 2000 年的排放量($42 \sim 47 \text{ Tg} \cdot \text{a}^{-1}$)约为工业革命前($12 \text{ Tg} \cdot \text{a}^{-1}$)的 3.5~4 倍^[8,9].

农田生态系统中大量化学氮肥施用是大气 NO_x 浓度增加的一个重要原因^[9~11]. 不过, 需要指出的

是, 随着氮肥施用量的持续增加, 有相当部分的氮素会随淋溶和地表径流损失, 进而使得越来越多的活性氮被迁移至农田附近的排水沟渠、溪流和河流等水生态系统中^[12~14]. 数以万计的农田被排水沟渠环绕, 农田源头沟渠可汇集和传输大量径流以及可溶性氮等营养物质, 其不仅是连接农田与其毗邻

收稿日期: 2017-07-28; 修订日期: 2017-09-21

基金项目: 国家重点研发计划项目(2016YFD0200309)

作者简介: 田琳琳(1987~), 女, 博士研究生, 主要研究方向为农业面源污染, E-mail: tianlin025@163.com

* 通信作者, E-mail: bzhu@imde.ac.cn

的水生生态系统的重要水文通道,也是氮素截留和转化等活跃的生物化学作用的重要场所^[12,15~18]。农业沟渠生态系统中的氮素可通过硝化和反硝化作用产生温室气体氧化亚氮(N_2O),近年来研究人员对其 N_2O 产生机理和排放特征的研究已取得了一定的成果^[19~21],但是关于同为硝化和反硝化过程产物的 NO 在农田源头沟渠生态系统中的排放还尤未可知。有报道指出,富营养化水体可产生 NO 排放,如薛超等^[22]用Zafiriou的半经验公式研究发现,富营养化的胶州湾及其邻近海域的表层海水在春季是 NO 的释放源。同时,有研究发现含氮污水的硝化和反硝化作用均可产生 NO ^[1,23~28],但仅限于室内控制实验的研究结果,而目前关于农田源头沟渠等含氮水体中 NO 排放的原位观测研究还较少涉及。

四川盆地中部的紫色土丘陵区(川中丘陵区)地处长江上游,是我国西南地区重要的农业中心^[29]。有研究发现,该区域内常规施氮量 $[\text{280 kg}\cdot(\text{hm}^2\cdot\text{a})^{-1}]$ 的农田中每年通过径流、淋洗和泥沙而损失的氮素可高达 $44 \text{ kg}\cdot\text{hm}^{-2}$ ^[30]。并且该地区紫色土耕地因淋溶产生的大部分壤中流和浅层地下水的硝态氮(NO_3^--N)浓度也长期高于 $10 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ ^[13,14,31]。密集的农业生产和大量化肥施用已在紫色土丘陵区造成了显著的农业非点源氮素污染和区域水体富营养化问题^[13,32]。该地区广泛存在着服务于农田生产的排水沟渠,常年滞水、纵横交错、密度较高,但一般以小流域为主、水深较浅。值得注意的是,该农业区地表和地下水中较高的 NO_3^--N 含量不仅影响当地水环境质量和引用水安全,也可能因流域尺度的氮素迁移造成非点源氮污染的异地效应,进而加剧长江三峡库区的水环境压力^[14,31,32]。因此,本文以紫色土丘陵区的农田源头沟渠为研究对象,开展 NO 排放的原位监测,明确其季节和全年的排放通量及影响因素,以期为该地区农业非点源氮污染的控制及地表水体中的氮转化提供科学依据。

1 材料与方法

1.1 研究区概况

研究区位于四川盆地中北部盐亭县林山乡,本实验依托于中国科学院盐亭紫色土农业生态试验站($105^\circ27'\text{E}$, $31^\circ16'\text{N}$)进行。该地处长江流域上游的涪江支流弥江、湍江的分水岭地带,年均气温 17.3°C ,极端最低和最高气温分别是 -5.1°C 和 40°C ,无霜期295 d。属中亚热带湿润季风气候,四

季分明、气候温和,年降雨量在 $800\sim1\,200 \text{ mm}$ 之间,1981~2009年间的年平均降雨量为 826 mm ,但降雨季节分配不均(春季6%、夏季66%、秋季19%、冬季9%)^[13]。区域土壤为典型石灰性紫色土,因此该地称为紫色土丘陵区,主要农田为坡耕地(坡度为 $3^\circ\sim15^\circ$)和水稻田,平均土层厚度约 60 cm ^[13,33]。该区域的小流域低洼处、丘陵中部和上部主要依次分布有水旱田、旱地、林地^[32]。农田主要轮作方式是夏玉米-冬小麦和水稻-油菜,其中在10月底至次年5月种植小麦和油菜,而在5月底或6月初至9月(当地雨季)种植玉米和水稻。林地植被以桉木和柏木为主。

1.2 实验设计

本研究的沟渠上游有紫色土旱地和水田分布,基本上全年都处于滞水状态,是该地区典型的农田源头沟渠,主要用于传输农田用水和雨季洪水。该沟渠生态系统的植被主要有过江龙[*Diphasiastrum complanatum* (L.) Holub.]、水草[*Fimbristylis milliacea* (L.) Vahl.]、水花生[*Alternanthera philoxeroides* (Mart.) Griseb.]、三叶草(*Trifolium repens* L.)及少量杂草等,均在自然状态下生长,无人工种植植物。根据土壤农业化学分析方法^[34]所测得的 $0\sim20 \text{ cm}$ 底泥土壤的基本理化性质如下:pH为7.77、有机碳为 $13.4 \text{ g}\cdot\text{kg}^{-1}$ 、总氮为 $1.64 \text{ g}\cdot\text{kg}^{-1}$ 、铵态氮(NH_4^+-N)为 $21.9 \text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ 、 NO_3^--N 为 $0.30 \text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ 、砂粒为41.3%、粉粒为36.5%、黏粒为22.2%;上述指标在 $20\sim40 \text{ cm}$ 的底泥土壤中分别为 8.06 、 $9.80 \text{ g}\cdot\text{kg}^{-1}$ 、 $1.27 \text{ g}\cdot\text{kg}^{-1}$ 、 $34.0 \text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ 、 $0.31 \text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ 、46.5%、35.1%、18.4%^[21]。

采用静态暗箱-气袋采气-化学发光氮氧化物分析法^[6,7,10]来测定 NO 排放通量。在所观测的沟渠中,设置4对静态箱底座(作为4个重复),每对间隔约 50 m 。每对底座均设置一个在无植株区域(NV,无自然植被覆盖的区域,代表沟渠中的沉积物-水界面系统)和有植株区域(V,代表自然植被覆盖的沟渠生态系统),两者间隔约 50 cm ,同步采样和观测,对比研究沟渠生态系统的 NO 排放。在观测期间,无植被覆盖的区域约占整个沟渠面积的20%(80%为有植株覆盖的区域),NV底座内需要随时人工拔掉箱内植被及根系,确保实验期间箱内无任何植物。野外采气装置详见文献^[35]。

1.3 样品采集与分析

原位观测的气体样品采集自2014年12月4日

开始至 2015 年 11 月 30 日结束,各监测点采样频率为每周 1~2 次,集中降雨后在 48 h 内采样.采集气体样品固定在上 09:00~11:00,采样时,先将顶箱放置于底座上,确保底座凹槽内充有少量水从而避免底座-顶箱密封平面处漏气.打开采气箱顶部平衡管的橡胶塞使采样箱内外压力平衡,用空气压缩泵抽取定量的采气箱内气体(约 2.5 L)在线注入气袋(中国大连德霖气体包装有限公司),并记录抽气结束时间,迅速关闭平衡管和气袋,待 40 min 后再用同样方法抽取另一气袋样品并记录时间.气体采集后立即带回实验室测定,所有气样均在 24 h 内完成 NO 浓度分析,其测定使用化学发光氮氧化物(NO-NO₂-NO_x)分析仪(型号 Thermo-Model 42i, Thermo Environmental Instruments Inc, USA).同步于 NO 采集,在两次采集气袋样品之间每隔 7 min 采集一次气体入 50 mL 的医用注射器(共 5 个气样),用以观测 N₂O 和 CO₂ 的排放^[21].

同步于气体采集,每对底座附近需要采集底泥样品(3 点法采集后混匀),迅速装入自封袋并放入装有冰袋的保温箱后及时带回实验室分析,如当天不能分析则保存于 4℃ 以下冰箱中并及时测定.鲜底泥样主要分析 NH₄⁺-N、NO₃⁻-N、可溶性有机碳(DOC)的含量,用 0.5 mol·L⁻¹ 的 K₂SO₄ 溶液浸提新鲜底泥样(水土比 5:1,质量浓度),在恒温振荡器(ZWY-1102C,上海智诚分析仪器制造有限公司)中于 300 r·min⁻¹、25℃ 下振荡 90 min 后静置,再用 0.45 μm 微孔滤膜过滤,其滤液浓度由 AA3 流动分析仪(Auto Analyzer3HR,德国 SEAL 公司)测定.底泥的含水量用烘干法测定.采样同时,也采集沟渠内底座处上覆水水样约 500 mL 装入洁净的塑料瓶中,密封后迅速带回实验室于 24 h 内完成分析,如不能在当天测定,则在水样中加入 1 mL 浓硫酸以酸化保存,放置在低于 4℃ 的冰箱中并及时测定.水样测定的浓度有 NH₄⁺-N、NO₃⁻-N 和 DOC,水样原液经 0.45 μm 微孔滤膜过滤后用 AA3 流动分析仪测定.

1.4 环境因子测定

同步于气体采集测定的环境因子有:空气温度(℃)、底泥-上覆水界面(0~5 cm)温度(℃)和底泥湿度(体积含水率)、上覆水水深(cm)等.在两次采气时间间隔内,使用便携式测温度计(JM624,上海自动化仪表公司)测定采气箱内空气温度、底泥-上覆水界面温度(下文有涉及的部分都用 SWIT 表示).用便携式水分测定仪(MP-406,杭州托普仪

器有限公司)测定底泥土壤的体积含水率(%).用不锈钢尺测量上覆水的水深(cm)和水面到底座-顶箱密封平面的基线高(cm,密封平面低于水面则基线为负,反之为正).降雨量、大气压等气象数据则由距观测点 100 m 左右的气象场站(中国科学院盐亭紫色土农业生态试验站内)获得.

1.5 数据计算与分析

1.5.1 气体排放通量

NO 的排放通量则采用其浓度随时间的变化来计算^[6,10,11],计算公式如下:

$$F = \frac{M}{V_0} \times \frac{P}{P_0} \times \frac{T_0}{T} \times \frac{dc}{dt} \times H \times k$$

式中, F 为 NO 排放通量[本研究以 NO 中 N 含量来计算,单位 $\mu\text{g} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{h})^{-1}$], M 为气体的摩尔质量($\text{g} \cdot \text{mol}^{-1}$), V_0 、 P_0 和 T_0 为标准状态下的气体摩尔体积($22.41 \times 10^{-3} \text{ m}^3 \cdot \text{mol}^{-1}$)、气压(1 013 hPa)和温度(273 K), P 为采样时观测点的气压值(hPa), T 为采样时静态箱内的平均气温(K), H 为采样箱高度与基线高之和(cm), dc/dt 为静态箱内 NO 浓度变化速率(单位时间内第二次与第一次抽气浓度的差值), k 为量纲转换系数.根据观测期内 NO 的排放速率,通过逐日内插法^[6]来计算其累积排放量($\text{g} \cdot \text{hm}^{-2}$).

1.5.2 数据统计与分析

本研究的原位观测时间持续一年整,根据天文四季划分冬季(12 月~次年 2 月)、春季(3~5 月)、夏季(6~8 月)、秋季(9~11 月).采用 Microsoft Excel 2010 软件进行实验数据处理与计算,统计分析用 SPSS 20.0 软件(SPSS, Inc., USA)进行.采用 ANOVA 单因素方差分析及多重比较(LSD 检验, $P < 0.05$ 时有显著性)对比季节平均值差异的显著性,运用配对分析比较 V 和 NV 处理间差异的显著性($P < 0.05$ 有显著性),采用 Pearson 偏相关系数法进行相关性分析.观测数据运用 Origin 8.0(Origin Lab Ltd.)绘图.文中所示的标准误差,如无特别说明,都是指 4 次重复测量的结果所产生.观测期间内的 N₂O 和 CO₂ 通量引自文献[21].

2 结果与分析

2.1 温度和降雨

如图 1 所示,观测期内全年的日平均气温是 17.0℃(范围:-3.0~36.6℃),月平均气温最高为 7 月(26.1℃)、最低为 12 月(5.99℃).冬、春、

夏、秋各季内的平均气温分别为 6.90、18.0、25.1 和 17.6℃, 冬季、夏季与春季或秋季间均有显著差异 ($P < 0.05$). SWIT 的年均值为 17.2℃ (范围: 5.8 ~ 24.6℃), 月平均 SWIT 最高为 8 月 (23.1℃)、最低为 1 月 (6.70℃), 冬、春、夏、秋各季内的平均气温分别为 7.6、15.4、22.8 和 19.8℃, 四季之间差异显著 ($P < 0.05$). 气温和 SWIT 的变化趋势比较一致, 且二者显著正相关 ($P < 0.001$, $r = 0.96$). 实验期内年降雨量为 956 mm, 比多年的平均降雨量 (826 mm) 高出 15.7%, 其中 6 月、8 月、9 月均有较高的降雨量 (分别为 257、198、228 mm), 冬、春、夏、秋各季节内降雨量分别是 18、153、496、289 mm, 分别占全年降雨量的 1.8%、16.0%、51.9% 和 30.3%, 各季节降雨量呈显著差异 ($P < 0.05$).

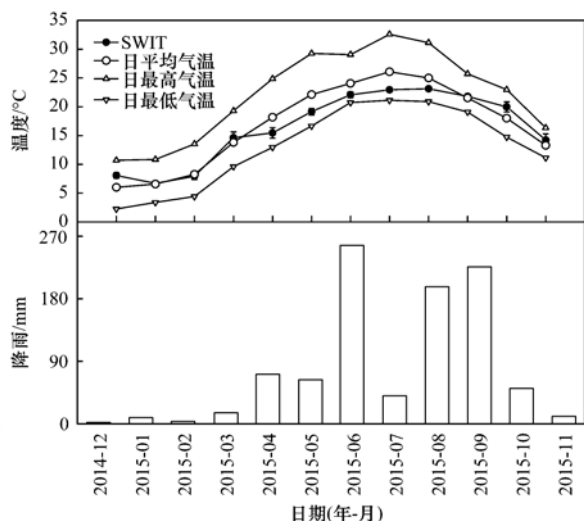


图1 月平均温度和月累积降雨的变化

Fig. 1 Variations in the monthly mean temperature and cumulative rainfall

2.2 上覆水和底泥中活性碳氮指标的变化

本研究沟渠中活性碳氮 (NO_3^- -N、 NH_4^+ -N、DOC) 指标的月平均值和季节平均值分别如图 2 ~ 4 所示. 底泥中 NO_3^- -N 的全年平均含量为 0.86 $\text{mg} \cdot \text{kg}^{-1}$, 范围 0.06 ~ 2.21 $\text{mg} \cdot \text{kg}^{-1}$, 夏季和秋季内平均含量显著低于冬季和春季 ($P < 0.05$), 但全年其含量显著低于 NH_4^+ -N 的含量 ($P < 0.05$). NH_4^+ -N 的年均含量为 20.2 $\text{mg} \cdot \text{kg}^{-1}$ (范围: 3.30 ~ 55.3 $\text{mg} \cdot \text{kg}^{-1}$), 秋季平均含量显著低于其他季节 ($P < 0.05$), 冬季、春季和夏季间无显著差异 ($P > 0.05$). DOC 的年均含量为 86.2 $\text{mg} \cdot \text{kg}^{-1}$ (范围: 17.8 ~ 214 $\text{mg} \cdot \text{kg}^{-1}$), 其中, 春季内均值显著高于冬季和夏季, 而秋季则显著低于其他季节 ($P <$

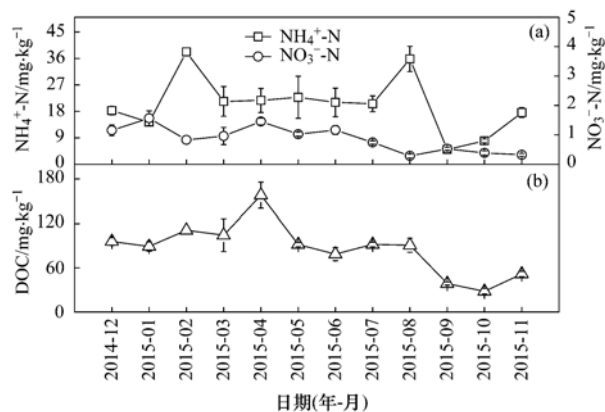


图2 沟渠底泥中活性碳氮指标月均值的动态变化

Fig. 2 Dynamic changes in the monthly mean reactive C and N indices of the sediment

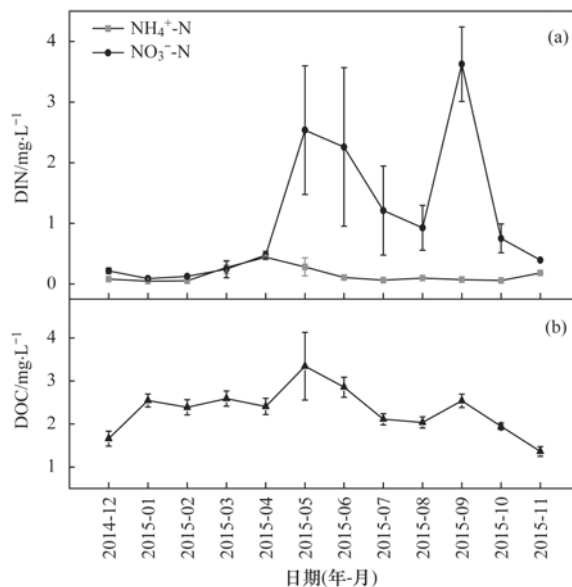
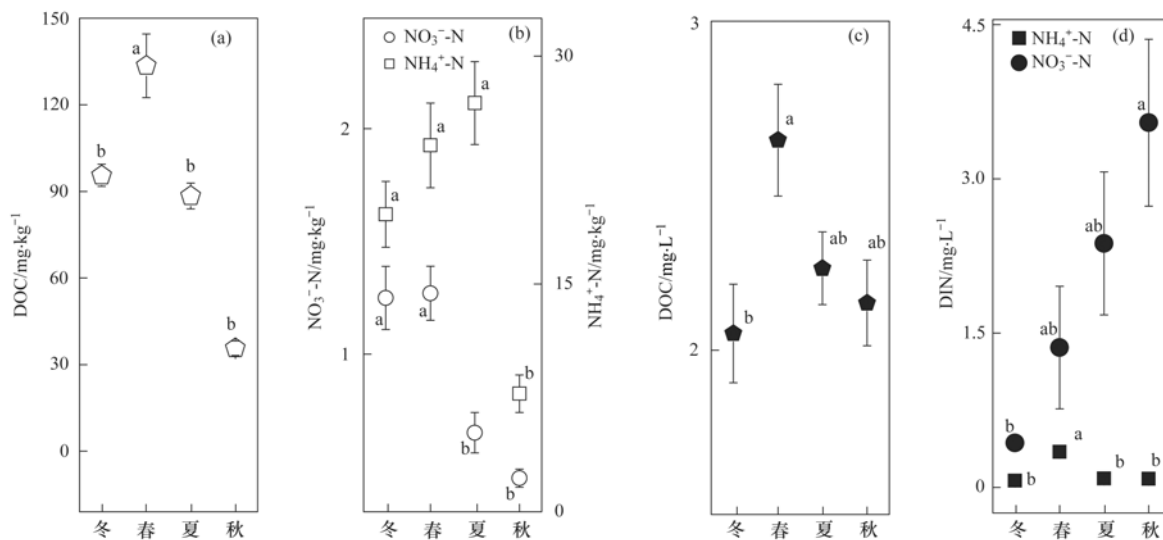


图3 沟渠上覆水中活性碳氮指标月均值的动态变化

Fig. 3 Dynamic variations in the monthly mean reactive C and N indices of the overlying water

0.05).

在观测期内, 沟渠中上覆水持续存在, 使其底泥土壤湿度处于饱和状态, 上覆水平均深度为 4.6 cm (范围: 0.3 ~ 12.9 cm). 上覆水中 NH_4^+ -N 的全年平均浓度为 0.13 $\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$ (范围: 0.02 ~ 0.49 $\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$), 全年内 NH_4^+ -N 的浓度显著低于 NO_3^- -N 的浓度 ($P < 0.05$). NO_3^- -N 的全年平均浓度为 1.11 $\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$ (范围: 0.02 ~ 6.97 $\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$), 其夏、秋季平均浓度显著较高 ($P < 0.05$). DOC 的平均浓度为 2.25 $\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$ (范围: 1.18 ~ 4.13 $\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$), 各季节中平均浓度变化范围较小, 仅春季平均浓度显著高于冬季 ($P < 0.05$). 上覆水中 pH 的范围是 7.26 ~ 7.81, 全年平均值为 7.58, 春季最低, 其他季节间



(a)和(b)为沟渠底泥, (c)和(d)为上覆水; 不同小写字母(a、b、c、d)表示同一指标在不同季节的显著差异($P < 0.05$)

图4 沟渠底泥和上覆水中活性碳氮指标的季节变化

Fig. 4 Seasonal patterns in the reactive C and N indices of the sediment and overlying water

差异不显著($P > 0.05$).

2.3 NO 排放和 NO/N₂O 比值

如图5和图6所示,观测期内NV处理的NO排放通量为 $-1.81 \sim 0.87 \mu\text{g} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{h})^{-1}$,最小值和最大值分别出现在12月和3月,平均值为 $-4.00 \times 10^{-3} \mu\text{g} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{h})^{-1}$,累积排放量为 $-0.4 \text{ g} \cdot (\text{hm}^2 \cdot \text{a})^{-1}$.春季和夏季有少量的NO排放,冬季和秋季则是NO吸收,季节间无显著差异($P > 0.05$).V处理的NO排放通量范围是 $-2.67 \sim 2.27 \mu\text{g} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{h})^{-1}$,最小值出现在12月,最大值出现在7月,全年平均值为 $0.16 \mu\text{g} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{h})^{-1}$,年累积排放量为 $14.17 \text{ g} \cdot (\text{hm}^2 \cdot \text{a})^{-1}$.根据有、无植被覆盖所占的面积比计算出该沟渠生态系统的整体累积排

放量(图6中CDE)是 $11.27 \text{ g} \cdot (\text{hm}^2 \cdot \text{a})^{-1}$,全年平均值为 $0.13 \mu\text{g} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{h})^{-1}$.但本沟渠生态系统只有在夏季(季节内累积排放 $15.43 \text{ g} \cdot \text{hm}^{-2}$)才是NO的排放源,且该值显著高于($P < 0.05$)其他季节,而春季、秋季和冬季排放通量呈负值,是NO的“汇”.统计分析表明,从观测的时间尺度上看,V和NV每次观测的平均NO排放通量具有显著性差异,V明显高于NV($P < 0.05$);但观测期内两者的季节和全年累积排放量却无显著差异($P > 0.05$).

如表1所示,NV处理下,沟渠中NO通量和N₂O通量的量比 $n(\text{NO})/n(\text{N}_2\text{O})$ 全年平均为 -0.003 ,四季差异不显著($P > 0.05$).在V处理中, $n(\text{NO})/n(\text{N}_2\text{O})$ 全年平均为 0.019 ,四季亦无

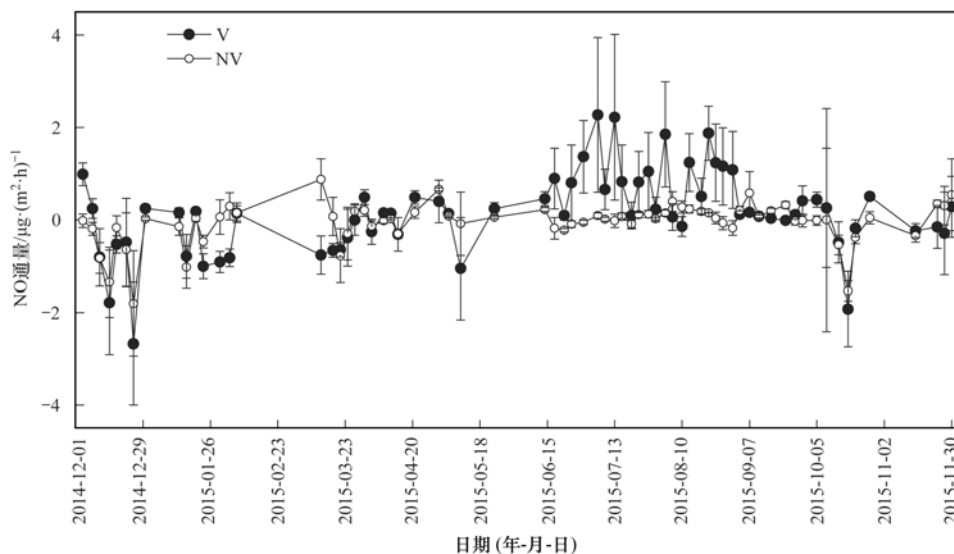
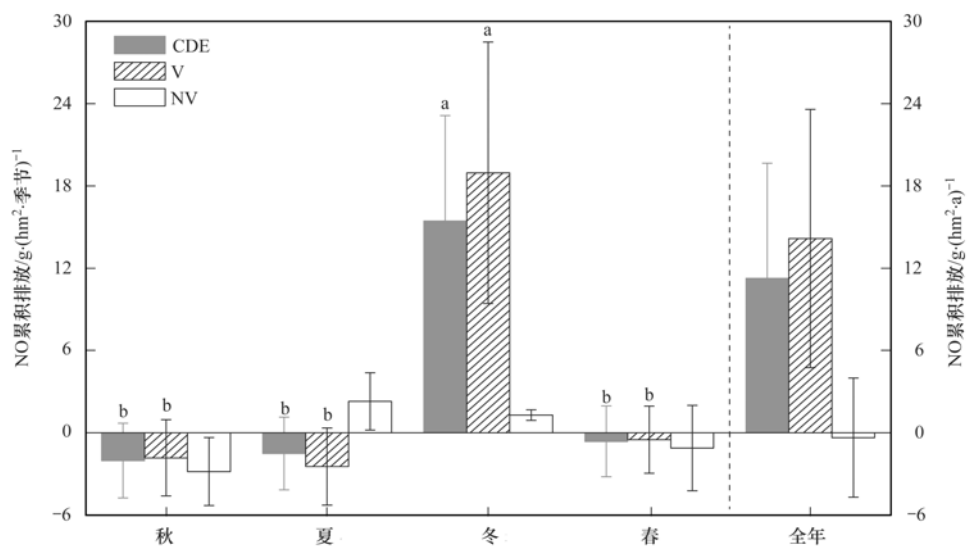


图5 沟渠NO排放通量变化

Fig. 5 Dynamic emission fluxes of NO from the ditch



CDE 表示沟渠生态系统综合的排放；不同小写字母(a、b)表示同一处理下的不同季节累积排放量的显著差异($P < 0.05$)

图6 沟渠中 NO 的季节和全年累积排放通量

Fig. 6 Seasonal and annual cumulative NO emission fluxes from the ditch

表1 沟渠 NO 通量和 N₂O 通量的量比 $n(\text{NO})/n(\text{N}_2\text{O})$

Table 1 Mole ratio of NO fluxes to N₂O fluxes in the ditch

处理	冬	春	夏	秋	全年
NV	-0.055	0.036	0.008	-0.016	-0.003
V	-0.049	-0.026	0.054	-0.003	0.019
沟渠整个区域内	-0.048	-0.017	0.050	-0.004	0.017

显著差异($P > 0.05$)。配对分析显示,两个处理间的季节和年度差异也不显著($P > 0.05$)。而在沟渠整个区域内,其 $n(\text{NO})/n(\text{N}_2\text{O})$ 全年平均为 0.017,季节间无显著差异($P > 0.05$)。

2.4 NO 排放的影响因素

相关性分析结果如表 2, V 处理中的 NO 排放通量与 CO₂ 排放通量($r = 0.43$, $P < 0.01$)、N₂O 排放通量($r = 0.46$, $P < 0.01$)、温度(气温; $r = 0.55$,

$P < 0.01$; SWIT; $r = 0.54$, $P < 0.01$)、上覆水中 NO₃⁻-N 浓度($r = 0.30$, $P < 0.05$)呈显著正相关,但与上覆水水深($r = -0.25$, $P < 0.05$)和底泥中 NO₃⁻-N 含量($r = -0.28$, $P < 0.05$)呈显著负相关。NV 处理的 NO 排放通量与 CO₂ 排放通量($r = 0.27$, $P < 0.05$)和温度(气温; $r = 0.31$, $P < 0.05$; SWIT; $r = 0.30$, $P < 0.05$)呈显著正相关,与底泥中 NO₃⁻-N 含量($r = -0.32$, $P < 0.01$)呈显著负相关。

表2 沟渠 NO 排放通量与环境指标的相关关系¹⁾

Table 2 Correlations between ditch NO fluxes and other environmental indices

处理	CO ₂ 通量	N ₂ O 通量	气温	SWIT	水深	上覆水 NO ₃ ⁻ -N 浓度	底泥 NO ₃ ⁻ -N 含量
			($n = 69$)			(n = 64)	
NV	0.27 *	—	0.31 *	0.30 *	—	—	-0.32 **
V	0.43 **	0.46 **	0.55 **	0.54 **	-0.25 *	0.30 *	-0.28 *

1) * 表示 $P < 0.05$, ** 表示 $P < 0.01$, — 表示无显著相关性

3 讨论

3.1 与国内外其他研究对比

与施肥处理下的紫色土丘陵区农田、成都平原的稻麦轮作和江苏无锡的稻麦轮作农田生态系统相比,本研究沟渠生态系统的 NO 平均排放通量较低

(表 3)。不过,该排放通量与富营养化的胶州湾及其邻近海域表层海水的 NO 排放通量相近,且明显高于成都平原不施氮肥的稻麦轮作农田中的 NO 排放通量。尽管紫色土丘陵区的农田源头沟渠生态系统具有相对较低的 NO 排放通量,但也是不容忽视的水体排放源,其区域排放特征还需进一步研究加以明确。

表 3 与其他相关研究的 NO 通量比较¹⁾

Table 3 Comparison of NO fluxes estimated in this study with those estimated in other similar studies

研究对象及地点	NO 排放通量/ $\mu\text{g}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{h})^{-1}$		文献
	平均值	范围	
川中丘陵区常规施肥的紫色土坡耕地(玉米-小麦轮作)	5.14	0~82.5	[6]
江苏无锡常规施肥的稻麦轮作农田	5.2	/	[9]
春季胶州湾及其邻近海域表层海水	0.55	/	[22]
成都平原稻-麦轮作农田(施氮量 $150\text{ kg}\cdot\text{hm}^{-2}$)	5.5	-49.8~248	[36]
成都平原稻-麦轮作农田(无施氮)	-0.8	/	[36]
紫色土丘陵区农田源头沟渠, 中国	0.13	-2.50~1.83	本研究

1) “/”表示文献中无数据提到

3.2 植株对 NO 排放的影响

有研究表明植物自身可以通过非酶促反应、固氮作用、呼吸作用等产生 NO ^[37], 也可以通过植物体内的酶促反应即在硝态氮还原酶(NR)催化作用下以 NADPH 或 NADH 为电子供体还原 NO_3^- -N 和 NO_2^- -N 而产生 NO ^[38~40]. Yamasaki 等指出^[38], 植物在对氮素的新陈代谢作用过程中可产生 NO, 有研究发现部分植物的气孔组织可以加速 NO 向大气扩散^[4]. 观测期内 V 处理的 NO 排放通量显著高于 NV 对照处理($P < 0.05$), 同时 V 处理的 CO_2 排放通量 $[10.3 \sim 97.4\text{ mg}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{h})^{-1}]$ 也明显高于($P < 0.05$)NV 处理 $[29.9 \sim 505\text{ mg}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{h})^{-1}]$ ^[21]. 相关性分析显示, V 处理下 NO 排放通量和 CO_2 排放通量呈显著正相关, 表明沟渠植株的存在可促进 NO 的排放. 然而, NO 年累积排放通量在 V 和 NV 处理中并无显著差异, 原因可能是植物生长对其生态系统中活性氮的吸收降低了硝化-反硝化作用可利用的氮素, 植株与环境的相互作用增加了沟渠生态系统中氮转化的复杂性和空间差异性^[21,35], 野外原位观测较大的空间差异可能对于其累积排放通量的统计分析后无显著差异的结果也存在影响.

3.3 NO 排放的季节差异和影响因素

本研究结果显示, NO 排放通量与上覆水中 NO_3^- -N 浓度显著正相关(表 2), 表明上覆水中 NO_3^- -N 浓度的升高可促进 NO 排放. NO_3^- -N 是反硝化发生的底物基础, DOC 则是反硝化微生物的能量来源^[19,41]. 本研究中, 沟渠上覆水中 DOC 浓度相对较稳定(图 3), 且与 NO 排放通量不显著相关, 说明上覆水中 DOC 浓度并不是 NO 排放的限制因素. $n(\text{NO})/n(\text{N}_2\text{O})$ 比是否大于 1, 一般用来判断 NO 和 N_2O 产生来自于硝化作用还是反硝化作用^[42]. Anderson 等^[5]发现, 反硝化细菌作用下形成的 $n(\text{NO})/n(\text{N}_2\text{O})$ 比值远小于 1, 郑循华等^[43]指出反硝化产生的 $n(\text{NO})/n(\text{N}_2\text{O})$ 值通常约为 0.01,

这十分接近于本研究所得 $n(\text{NO})/n(\text{N}_2\text{O})$ 的全年平均值(表 1), 此外, 上覆水和底泥中的 NH_4^+ -N (硝化作用底物)均与 NO 排放通量不显著相关, 因此, 笔者认为观测期内 NO 排放主要由上覆水中反硝化作用产生. 在反硝化过程中, NO_3^- -N 作为更优于 N_2O 的电子受体, 在碳源充足时, 水中 NO_3^- -N 浓度的升高会使得 N_2O 比 NO_3^- -N 更难被还原而出现 N_2O 的积累并释放, 使 N_2O 排放随 NO_3^- -N 浓度的增加而增加^[35,41]. Herrman 等^[20]在美国东北部农业源头溪流中的研究发现 NO_3^- -N 浓度的增加可加快其反硝化的效率, 与其一致的是, 本研究的农田源头沟渠上覆水中 NO_3^- -N 浓度和其 N_2O 排放通量显著线性正相关^[21]. 同时, Schulthess 等^[44]通过控制实验研究发现, 当 NO_3^- -N 作为首要电子受体时, N_2O 还原酶的转化率小于 NO 还原酶的转化率, 而 NO 还原酶的转化率也小于 NO_2^- 还原酶的转化率, 进而同时促进 N_2O 和 NO 的产生. 因此, 笔者认为, 在本研究的沟渠上覆水中 NO_3^- -N 浓度的增加促进了该生态系统中的反硝化作用, 使 NO 的排放量随 N_2O 排放量的增加而增加, 即二者呈显著正相关(表 2). 在同一研究区域, 研究发现农田源头沟渠上覆水中的 NO_3^- -N 浓度与采样前 72h 内的累积降雨量显著呈正相关($R^2 = 0.33$, $P < 0.05$, $n = 10$)^[21], 从而进一步证实了 Zhu 等^[13]的研究结果, 即降雨可促使紫色土坡耕地农田中的 NO_3^- -N 随地表径流和壤中流迁移出农田进而汇集周边的沟渠水体中. 因而, 降雨是沟渠水中 NO_3^- -N 浓度升高的主要驱动因素, 夏季较多的降雨(雨量占观测全年的 51.9%, 图 1)和水中较高的 NO_3^- -N 浓度[图 3(a)和图 4(d)]促使该季节产生较高的 NO 排放(图 5). 今后的研究中, 针对夏季集中降雨后的野外通量观测, 其采样频率还需要进一步提高而实现降雨过程中加密观测, 进一步减少估算误差, 从而更为准确地探寻其雨后排放通量和降雨量间的相关关系.

本研究发现 V 和 NV 两个处理的 SWIT 和气温变化趋势呈高度极度一致(图 1), 而 NO 排放通量与二者都呈显著正相关(表 2), 说明温度也是影响该生态系统中 NO 排放通量变化的重要因子. 水体温度的升高可促使微生物参与的反硝化作用效率增加^[20,41], Jenni 等^[45] 培养实验发现, 缓冲液中 NO 的产量亦随温度(10~30℃)升高而增加, 与本研究结果一致. 同时, 夏季气温和 SWIT 均显著高于其他季节($P < 0.05$), 且 NO 的季节排放通量也显著高于其他季节, 因此温度也是影响该沟渠生态系统 NO 排放季节变化的因素, 这与郑循华等^[43] 在华东麦田研究的结果一致, 即温度影响 NO 排放的季节变化. 值得注意的是, 本研究的沟渠中夏季的温度显著高于秋季、但其水中 NO_3^- -N 浓度在这两个季节中差异不显著[图 4(d)], 而最终夏季 NO 季节排放量显著高于秋季(图 6), 这说明在 NO_3^- -N 浓度较高且差异不明显的时期, 温度对 NO 排放的驱动作用更加关键.

4 结论

(1) 农田源头沟渠作为紫色土丘陵区农业的重要组成部分, 在本观测期内, 紫色土丘陵区农田源头沟渠生态系统的全年累积排放量为 $11.27 \text{ g} \cdot (\text{hm}^2 \cdot \text{a})^{-1}$, 是个不容忽视的 NO 排放源.

(2) 紫色土丘陵区农田源头沟渠生态系统只有在夏季才是 NO 的排放源, 且夏季的累积排放量显著高于其他季节. 上覆水 NO_3^- -N 浓度和温度共同影响着 NO 排放的季节变化. 夏季中较多的降雨、较高的温度和水中的 NO_3^- -N 浓度促使该季节具有较高的 NO 累积排放量.

(3) 沟渠中植株的存在可提高所观测的 NO 排放通量, 但对全年 NO 累积排放量无显著影响.

参考文献:

- [1] Zhu X Y, Chen Y G. Reduction of N_2O and NO generation in anaerobic-aerobic (low dissolved oxygen) biological wastewater treatment process by using sludge alkaline fermentation liquid [J]. *Environmental Science & Technology*, 2011, **45**(6): 2137-2143.
- [2] Zheng X H, Huang Y, Wang Y S, *et al.* Effects of soil temperature on nitric oxide emission from a typical Chinese rice-wheat rotation during the non-waterlogged period [J]. *Global Change Biology*, 2003, **9**(4): 601-611.
- [3] 蔡延江, 丁维新, 项剑. 土壤 N_2O 和 NO 产生机制研究进展 [J]. *土壤*, 2012, **44**(5): 712-718.
Cai Y J, Ding W X, Xiang J. Mechanisms of nitrous oxide and nitric oxide production in soils: a review [J]. *Soils*, 2012, **44**(5): 712-718.
- [4] 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.
Cai Y J, Ding W X, Xiang J. Factors controlling N_2O and NO emissions from agricultural soils and their influencing mechanisms: a review [J]. *Soils*, 2012, **44**(6): 881-887.
- [5] Anderson I C, Levine J S. Relative rates of nitric oxide and nitrous oxide production by nitrifiers, denitrifiers, and nitrate respirers [J]. *Applied and Environmental Microbiology*, 1986, **51**(5): 938-945.
- [6] 胡廷旭, 刘韵, 柯韵, 等. 紫色土夏玉米-冬小麦轮作农田的 NO 排放特征 [J]. *农业环境科学学报*, 2015, **34**(7): 1407-1413.
Hu T X, Liu Y, Ke Y, *et al.* Characteristics of NO emissions from purple soil under summer maize-winter wheat rotation [J]. *Journal of Agro-Environment Science*, 2015, **34**(7): 1407-1413.
- [7] 杜雁冰, 姚志生, 邹建文, 等. 水稻覆膜节水种植对 NO 排放的影响 [J]. *气候与环境研究*, 2015, **20**(2): 235-244.
Du Y B, Yao Z S, Zou J W, *et al.* Effect of water-saving ground cover rice production system on NO emission from a rice-fallow rotation cycle [J]. *Climatic and Environmental Research*, 2015, **20**(2): 235-244.
- [8] IPCC. Climate change 2007: the physical science basis. Contribution of Working Group I to the Fourth assessment report of the intergovernmental panel on climate change [R]. United Kingdom, New York, USA: Cambridge University Press, 2007.
- [9] Zhou Z X, Zheng X H, Xie B H, *et al.* Nitric oxide emissions from rice-wheat rotation fields in eastern China: effect of fertilization, soil water content, and crop residue [J]. *Plant and Soil*, 2010, **336**(1-2): 87-98.
- [10] Mei B L, Zheng X H, Xie B H, *et al.* Nitric oxide emissions from conventional vegetable fields in southeastern China [J]. *Atmospheric Environment*, 2009, **43**(17): 2762-2769.
- [11] Zheng X H, Huang Y, Wang Y S, *et al.* Seasonal characteristics of nitric oxide emission from a typical Chinese rice-wheat rotation during the non-waterlogged period [J]. *Global Change Biology*, 2003, **9**(2): 219-227.
- [12] Peterson B J, Wollheim W M, Mulholland P J, *et al.* Control of nitrogen export from watersheds by headwater streams [J]. *Science*, 2001, **292**(5514): 86-90.
- [13] Zhu B, Wang T, Kuang F H, *et al.* Measurements of nitrate leaching from a hillslope cropland in the Central Sichuan Basin, China [J]. *Soil Science Society of America Journal*, 2009, **73**(4): 1419-1426.
- [14] Wang T, Zhu B. Nitrate loss via overland flow and interflow from a sloped farmland in the hilly area of purple soil, China [J]. *Nutrient Cycling in Agroecosystems*, 2011, **90**(3): 309-319.
- [15] Kröger R, Holland M M, Moore M T, *et al.* Hydrological variability and agricultural drainage ditch inorganic nitrogen reduction capacity [J]. *Journal of Environmental Quality*, 2007, **36**(6): 1646-1652.
- [16] Mulholland P J, Helton A M, Poole G C, *et al.* Stream denitrification across biomes and its response to anthropogenic nitrate loading [J]. *Nature*, 2008, **452**(7184): 202-205.
- [17] Royer T V, Tank J L, David M B. Transport and fate of nitrate in headwater agricultural streams in Illinois [J]. *Journal of Environmental Quality*, 2004, **33**(4): 1296-1304.

- [18] 姜翠玲, 崔广柏, 范晓秋, 等. 沟渠湿地对农业非点源污染物的净化能力研究[J]. 环境科学, 2004, **25**(2): 125-128.
- Jiang C L, Cui G B, Fan X Q, *et al.* Purification capacity of ditch wetland to agricultural non-point pollutants [J]. Environmental Science, 2004, **25**(2): 125-128.
- [19] Beaulieu J J, Arango C P, Tank J L. The effects of season and agriculture on nitrous oxide production in headwater streams[J]. Journal of Environmental Quality, 2009, **38**(2): 637-646.
- [20] Herman K S, Bouchard V, Moore R H. Factors affecting denitrification in agricultural headwater streams in Northeast Ohio, USA[J]. Hydrobiologia, 2008, **598**(1): 305-314.
- [21] Tian L L, Zhu B, Akiyama H. Seasonal variations in indirect N_2O emissions from an agricultural headwater ditch[J]. Biology and Fertility of Soils, 2017, **53**(6): 651-662.
- [22] 薛超, 刘春颖, 杨桂朋, 等. 胶州湾及邻近海域表层海水中一氧化氮浓度分布及其影响因素探讨[J]. 环境科学, 2012, **33**(4): 1086-1090.
- Xue C, Liu C Y, Yang G P, *et al.* Distribution and controlling factors of nitric oxide concentrations in surface seawater of Jiaozhou Bay and adjacent waters[J]. Environmental Sciences, 2012, **33**(4): 1086-1090.
- [23] Stüven R, Bock E. Nitrification and denitrification as a source for NO and NO_2 production in high-strength wastewater[J]. Water Research, 2001, **35**(8): 1905-1914.
- [24] Kampschreur M J, Tan N C G, Kleerebezem R, *et al.* Effect of dynamic process conditions on nitrogen oxides emission from a nitrifying culture [J]. Environmental Science & Technology, 2008, **42**(2): 429-435.
- [25] Kampschreur M J, van der Star W R L, Wielders H A, *et al.* Dynamics of nitric oxide and nitrous oxide emission during full-scale reject water treatment[J]. Water Research, 2008, **42**(3): 812-826.
- [26] Ahn J H, Kwan T, Chandran K. Comparison of partial and full nitrification processes applied for treating high-strength nitrogen wastewaters: microbial ecology through nitrous oxide production [J]. Environmental Science & Technology, 2011, **45**(7): 2734-2740.
- [27] Perez-Garcia O, Villas-Boas S G, Swift S, *et al.* Clarifying the regulation of NO/N_2O production in *Nitrosomonas europaea* during anoxic-oxic transition via flux balance analysis of a metabolic network model[J]. Water Research, 2014, **60**: 267-277.
- [28] 陈杰, 周东, 王亚宜. 溶解氧水平对污水生物硝化过程 N_2O 和 NO 气体释放特性的影响[J]. 四川环境, 2016, **35**(1): 6-11.
- Chen J, Zhou D, Wang Y Y. Impact of dissolved oxygen levels on N_2O and NO emissions during nitrification process of municipal wastewater[J]. Sichuan Environment, 2016, **35**(1): 6-11.
- [29] 朱波, 汪涛, 徐泰平, 等. 紫色丘陵区典型小流域氮素迁移及其环境效应[J]. 山地学报, 2006, **24**(5): 601-606.
- Zhu B, Wang T, Xu T P, *et al.* Non-point-source nitrogen movement and its environmental effects in a small watershed in hilly area of purple soil[J]. Journal of Mountain Science, 2006, **24**(5): 601-606.
- [30] 朱波, 彭奎, 谢红梅. 川中丘陵区典型小流域农田生态系统氮素收支探析[J]. 中国生态农业学报, 2006, **14**(1): 108-111.
- Zhu B, Peng K, Xie H M. Nitrogen balance of agro-ecosystem in a typical watershed in the hilly area of Central Sichuan Basin[J]. Chinese Journal of Eco-Agriculture, 2006, **14**(1): 108-111.
- [31] 朱波, 汪涛, 况福虹, 等. 紫色土坡耕地硝酸盐淋失特征[J]. 环境科学学报, 2008, **28**(3): 525-533.
- Zhu B, Wang T, Kuang F H, *et al.* Characteristics of nitrate leaching from hilly cropland of purple soil [J]. Acta Scientiae Circumstantiae, 2008, **28**(3): 525-533.
- [32] 杨小林, 朱波, 董玉龙, 等. 紫色土丘陵区小流域非点源氮迁移特征研究[J]. 水利学报, 2013, **44**(3): 276-283.
- Yang X L, Zhu B, Dong Y L, *et al.* Transport processes of diffuse nitrogen in typical catchments in the hilly area of purple soil [J]. Journal of Hydraulic Engineering, 2013, **44**(3): 276-283.
- [33] 朱波, 周明华, 况福虹, 等. 紫色土坡耕地氮素淋失通量的实测与模拟[J]. 中国生态农业学报, 2013, **21**(1): 102-109.
- Zhu B, Zhou M H, Kuang F H, *et al.* Measurement and simulation of nitrogen leaching loss in hillslope cropland of purple soil [J]. Chinese Journal of Eco-Agriculture, 2013, **21**(1): 102-109.
- [34] 鲁如坤. 土壤农业化学分析方法[M]. 北京: 中国农业科技出版社, 2000.
- Lu R K. Analysis methods of soil agricultural chemistry [M]. Beijing: China Agricultural Science and Technology Press, 2000.
- [35] 田琳琳, 朱波, 汪涛, 等. 川中丘陵区农田源头沟渠玉米季中氧化亚氮排放及其影响因素[J]. 环境科学, 2017, **38**(5): 2074-2083.
- Tian L L, Zhu B, Wang T, *et al.* Nitrous oxide emissions and its influencing factors from an agricultural headwater ditch during a maize season in the Hilly Area of Central Sichuan Basin [J]. Environmental Science, 2017, **38**(5): 2074-2083.
- [36] 于亚军, 王小国, 朱波. 成都平原水稻-小麦轮作系统 NO 排放及其主要影响因素[J]. 生态学报, 2015, **35**(9): 2910-2916.
- Yu Y J, Wang X G, Zhu B. NO emission and its main impacting factors in rice-wheat rotation system in Chengdu Plain of Sichuan Basin [J]. Acta Ecologica Sinica, 2015, **35**(9): 2910-2916.
- [37] 王文重, 高继国. NO 在植物体内产生的途径及其作用[J]. 东北农业大学学报, 2006, **37**(4): 546-551.
- Wang W Z, Gao J G. The source of endogenous NO and effect in plant [J]. Journal of Northeast Agricultural University, 2006, **37**(4): 546-551.
- [38] Yamasaki H, Sakihama Y, Takahashi S. An alternative pathway for nitric oxide production in plants: new features of an old enzyme[J]. Trends in Plant Science, 1999, **4**(4): 128-129.
- [39] 赵晓刚, 徐张红, 何奕昆, 等. NO 在植物中的调控作用[J]. 植物学通报, 2004, **21**(1): 44-51.
- Zhao X G, Xu Z H, He Y K, *et al.* The regulation of nitric oxide in plant [J]. Chinese Bulletin of Botany, 2004, **21**(1): 44-51.
- [40] Gupta K J, Fernie A R, Kaiser W M, *et al.* On the origins of nitric oxide [J]. Trends in Plant Science, 2011, **16**(3): 160-168.
- [41] Stow C A, Walker J T, Cardoch L, *et al.* N_2O emissions from

- streams in the Neuse River Watershed, North Carolina [J]. *Environmental Science & Technology*, 2005, **39** (18): 6999-7004.
- [42] 冯琪, 王睿, 郑循华, 等. 厌氧条件下土壤反硝化气体 (N_2 , N_2O , NO) 和 CO_2 排放——氮环境培养—气体同步直接测定法的应用初探[J]. *气候与环境研究*, 2013, **18** (3): 297-310.
- Feng Q, Wang R, Zheng X H, *et al.* Direct measurements of denitrification gas (N_2 , N_2O , NO) and CO_2 emissions using the gas-flow-soil-core technique with helium environment incubation [J]. *Climatic and Environmental Research*, 2013, **18** (3): 297-310.
- [43] 郑循华, 王明星, 王跃思, 等. 华东稻麦轮作生态系统冬小麦田 NO 排放观测研究[J]. *应用生态学报*, 2000, **11** (4): 577-581.
- Zheng X H, Wang M X, Wang Y S, *et al.* NO emission from winter wheat fields of rice-wheat rotation ecosystem in southeast China[J]. *Chinese Journal of Applied Ecology*, 2000, **11** (4): 577-581.
- [44] Schulthess R V, Kühni M, Gujer W. Release of nitric and nitrous oxides from denitrifying activated sludge [J]. *Water Research*, 1995, **29** (1): 215-226.
- [45] Jenni S, Mohn J, Emmenegger L, *et al.* Temperature dependence and interferences of NO and N_2O microelectrodes used in wastewater treatment [J]. *Environmental Science & Technology*, 2012, **46** (4): 2257-2266.

环境科学

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)