

环境科学

(HUANJING KEXUE)

ENVIRONMENTAL SCIENCE

第37卷 第9期

Vol.37 No.9

2016

中国科学院生态环境研究中心 主办
科学出版社 出版



目次

1960~2013年我国霾污染的时空变化 符传博, 唐家翔, 丹利, 何媛 (3237)

太原大气颗粒物中水溶性无机离子质量浓度及粒径分布特征 王璐, 温天雪, 苗红妍, 高文康, 王跃思 (3249)

石家庄秋季一次典型霾污染过程水溶性离子粒径分布特征 刘景云, 刘子锐, 温天雪, 魏俊龙, 黄小娟, 乔宝文, 王莉莉, 杨洋, 徐仲均, 王跃思 (3258)

南京北郊大气颗粒物的粒径分布及其影响因素分析 吴丹, 曹双, 汤莉莉, 夏俊荣, 陆建刚, 刘刚, 杨孟, 李凤英, 盖鑫磊 (3268)

南京北郊黑碳气溶胶污染特征及影响因素分析 肖思晗, 于兴娜, 朱彬, 何稼祺 (3280)

上海崇明地区大气分形态汞污染特征 李舒, 高伟, 王书肖, 张磊, 李智坚, 王龙, 郝吉明 (3290)

三峡库区典型农田系统大气汞浓度及不同自然界面释汞通量 王永敏, 赵铮, 孙涛, 王娅, 薛金平, 张成, 王定勇 (3300)

长白山背景站大气 VOCs 浓度变化特征及来源分析 吴方堃, 孙杰, 余晔, 唐贵谦, 王跃思 (3308)

铅冶炼厂无组织排放源不同颗粒物中铅含量特征 刘大钧, 汪家权 (3315)

祁连山东段降水的水化学特征及离子来源研究 贾文雄, 李宗省 (3322)

三峡库区(重庆—宜昌段)沉积物中钒的污染特征及生态风险评价 郭威, 殷淑华, 徐建新, 徐东昱, 高丽, 郝红, 高博 (3333)

太湖不同富营养化水域磷的分布特征及其环境影响因素 车霏霏, 王大鹏, 甄卓, 颜昌宙, 王灶生 (3340)

太湖表层沉积物中 PPCPs 的时空分布特征及潜在风险 张盼伟, 周怀东, 赵高峰, 李昆, 刘巧娜, 任敏, 赵丹丹, 李东佼 (3348)

岩溶地下河系统中有机氯的分布特征与来源分析 张媚, 孙玉川, 谢正兰, 余琴, 徐昕 (3356)

西南典型岩溶地下河系统水文地球化学特征对比:以重庆市青木关、老龙洞为例 詹兆君, 陈峰, 杨平恒, 任娟, 张海月, 刘黛薇, 蓝家程, 张宇 (3365)

不同水源补给情形的溪流沟渠沉积物磷形态及释放风险分析 李如忠, 秦如彬, 黄青飞, 耿若楠 (3375)

滇池柱状沉积物磷形态垂向变化及对释放的贡献 李乐, 王圣瑞, 焦立新, 余佑金, 丁帅, 王跃杰 (3384)

荧光光谱结合平行因子分析研究夏季周村水库溶解性有机物的分布与来源 黄廷林, 方开凯, 张春华, 周石磊, 曾明正, 刘飞, 夏超, 丛海兵 (3394)

富营养化水体中黑水团的吸收及反射特性分析 张思敏, 李云梅, 王桥, 朱利, 王旭东, 温爽 (3402)

基于微生物生物完整性指数的地下水生态系统健康评价:以包钢稀土尾矿库周边地下水生态系统为例 安新丽, 陈廷廷, 赵晗, 张又弛, 侯艳伟, 蔡超 (3413)

于桥水库水源地水体沉积物重金属空间分异与景观格局的关系 王祖伟, 王玮玮, 侯迎迎, 包姗姗, 王子璐, 王倩倩 (3423)

人工湿地构型对水产养殖废水含氮污染物和抗生素去除影响 刘佳, 易乃康, 熊永娇, 黄翔峰 (3430)

共生细菌对盐生小球藻富集和转化硝酸盐的影响 许平平, 刘聪, 王亚, 郑燕恒, 张春华, 葛滢 (3438)

模拟水体硝态氮对黄菖蒲生长及其氮吸收的影响 王兵, 温春翔, 肖波 (3447)

对羟基联苯在黄河兰州段底泥上的吸附行为 周琦, 蒋煜峰, 孙航, 慕仲锋, 张振国, 展惠英 (3453)

多级 A/O 工艺强化处理城市污水的效果研究 尹子华, 盛晓琳, 刘锐, 陈吕军, 张永明 (3460)

某微污染源自来水厂的纳滤深度处理效果研究 吴玉超, 陈吕军, 兰亚琼, 刘锐 (3466)

Fe⁰-PRB 去除Cr(VI)反应动力学及影响机制 卢欣, 李森, 唐翠梅, 辛佳, 林朋飞, 刘翔 (3473)

EDTA-nSiO₂ 纳米颗粒对 Cd²⁺ 的吸附 蒋顺成, 秦睿, 李满林, 李荣华, 张增强, Amjad Ali, 梁文 (3480)

硝酸-PPy/AQDS 联合处理改善阳极性能的分析表征 沈伟航, 朱能武, 尹富华, 吴平霄, 张彦鸿 (3488)

人工合成水铁矿对含磷废水的吸附性能 崔蒙蒙, 王殿升, 黄天寅, 刘锋 (3498)

生物沸石人工湿地处理分散养猪冲洗水性能 牟锐, 沈志强, 周岳溪, 陈学民, 伏小勇, 谭蕾蕾, 瞿畏 (3508)

甘油基混合培养物合成 PHA 及其与 OUR 的关系 刘东, 张小婷, 张代钧, 曾善文, 卢培利 (3518)

光催化体系中噻虫胺降解动力学及机制 胡倩, 阳海, 石妮, 胡乐天, 易兵 (3524)

宁夏干旱地区工业区对农田土壤重金属累积的影响 王美娥, 彭驰, 陈卫平 (3532)

北方某大型钢铁企业表层土壤中多环芳烃污染特征与健康风险评价 董捷, 黄莹, 李永霞, 张厚勇, 高甫威 (3540)

红壤剖面重金属分布特征及对有机碳响应 贾广梅, 马玲玲, 徐殿斗, 成杭新, 周国华, 杨国胜, 罗敏, 路雨楠, 刘志明 (3547)

外源锌刺激水稻对土壤镉的累积效应 辜娇峰, 杨文骏, 周航, 张平, 彭佩钦, 廖柏寒 (3554)

改性生物炭材料对稻田原状和外源镉污染土钝化效应 杨兰, 李冰, 王昌全, 刘倾城, 张庆冲, 肖瑞, 李一丁 (3562)

生物淋滤联合类 Fenton 反应去除污染土壤中重金属的效果 周普雄, 严颀, 余震, 王跃强, 朱艺, 周顺桂 (3575)

长期石油污染对盐碱化土壤中微生物群落分子生态网络的影响 赵慧慧, 肖娴, 裴孟, 赵远, 梁玉婷 (3582)

应用 PLFA 法分析氮沉降对缙云山马尾松林土壤微生物群落结构的影响 曾清苹, 何丙辉 (3590)

三江平原不同退化阶段小叶章湿地土壤真菌群落结构组成变化 隋心, 张荣涛, 许楠, 刘赢男, 柴春荣, 王继丰, 付晓玲, 钟海秀, 倪红伟 (3598)

外源氮、硫添加对闽江河口湿地 CH₄、CO₂ 排放的短期影响 胡敏杰, 任鹏, 黄佳芳, 仝川 (3606)

模拟条件下侵蚀-沉积部位土壤 CO₂ 通量变化及其影响因素 杜兰兰, 王志齐, 王蕊, 李如剑, 吴得峰, 赵慢, 孙棋棋, 高鑫, 郭胜利 (3616)

太原晋祠地区果园土壤呼吸的年际变化及其温度敏感性 严俊霞, 郝忠, 荆雪雷, 李洪建 (3625)

生物炭对壤土土壤温室气体及土壤理化性质的影响 王月玲, 耿增超, 王强, 尚杰, 曹胜磊, 周凤, 李鑫, 刘福义, 张萍 (3634)

氮沉降对臭氧胁迫下青杨光合特性和生物量的影响 辛月, 尚博, 陈兴玲, 冯兆忠 (3642)

冠层辐射温度对冬小麦生态系统碳通量的影响 李洪建, 杨艳, 严俊霞 (3650)

堆肥过程水溶性有机物组成和结构演化研究 李丹, 何小松, 席北斗, 高如泰, 张慧, 黄彩红, 党秋玲 (3660)

酸碱改性活性炭及其对甲苯吸附的影响 刘寒冰, 杨兵, 薛南冬 (3670)

《环境科学》征订启事 (3517) 《环境科学》征稿简则 (3561) 信息 (3289, 3321, 3422)

外源氮、硫添加对闽江河口湿地 CH₄、CO₂ 排放的短期影响

胡敏杰, 任鹏, 黄佳芳, 仝川*

(福建师范大学地理科学学院, 湿润亚热带生态-地理过程教育部重点实验室, 亚热带湿地研究中心, 福州 350007)

摘要: 于 2015 年 4 月在闽江河口鱗鱼滩湿地原位开展氮、硫添加实验, 研究外源氮、硫添加对河口湿地 CH₄、CO₂ 排放通量的短期影响, 并同步观测相关环境因子. 结果表明, NH₄Cl (NH) 和 NH₄NO₃ + K₂SO₄ (NS) 添加显著促进了河口湿地 CH₄ 平均排放通量 ($P < 0.01$), NS 耦合添加显著促进了湿地 CO₂ 平均排放通量 ($P < 0.05$); KNO₃ (NO) 和 K₂SO₄ (S) 处理在实验期间对 CH₄、CO₂ 排放通量表现为促进与抑制作用的交互影响, 并且影响均不显著 ($P > 0.05$). 与对照 (CK) 相比, NH 和 NS 添加使 CH₄ 平均排放通量分别提高了 (286.36%、122.73%), 使 CO₂ 平均排放通量分别提高了 (39.92%、34.24%). 氮、硫添加对河口滩涂湿地 CH₄、CO₂ 排放的影响具有明显的时间变异性, 改变了短叶荳芰湿地生长季 CH₄ 排放时间变化规律, 但未改变 CO₂ 排放时间规律. 相关分析显示, NH 和 NS 添加处理下河口湿地土壤 CH₄、CO₂ 排放通量主要受土温、EC、DOC 以及 NH₄⁺-N 的控制 ($P < 0.05$ 或 $P < 0.01$), NO 和 S 处理主要受土温、EC、pH、DOC、NO₃⁻-N 的控制 ($P < 0.05$ 或 $P < 0.01$), CK 处理则主要受土温的影响 ($P < 0.01$). 温度、盐度、氮有效性是影响河口湿地 CO₂、CH₄ 排放的主要因素.

关键词: 温室气体排放; 氮、硫添加; 短叶荳芰; 滩涂湿地; 闽江河口

中图分类号: X144 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2016)09-3606-10 DOI: 10.13227/j.hjx.2016.09.044

Short-term Effects of Nitrogen and Sulfate Addition on CH₄ and CO₂ Emissions in the Tidal Marsh of Minjiang River Estuary

HU Min-jie, REN Peng, HUANG Jia-fang, TONG Chuan*

(Research Centre of Wetlands in Subtropical Region, Key Laboratory of Humid Sub-tropical Eco-geographical Process of the Ministry of Education, School of Geographical Sciences, Fujian Normal Universities, Fuzhou 350007, China)

Abstract: In April 2015, using enclosed static opaque chamber-GC techniques, the short-term effects of nitrogen and sulfate addition on the CH₄ and CO₂ emissions were measured in the *Cyperus malaccensis* marsh in the high tidal flat of the Minjiang River estuary, and the key factors controlling the variation of CH₄ and CO₂ were examined. The influences of nitrogen and sulfate addition on the CH₄ and CO₂ emissions were different in different time scales. CH₄ emission increased significantly under the NH₄Cl (NH) and NH₄NO₃ + K₂SO₄ (NS) additions ($P < 0.01$), CO₂ emission increased significantly with NS addition ($P < 0.05$), but CH₄ and CO₂ emissions demonstrated an obvious fluctuation pattern with KNO₃ (NO) and K₂SO₄ (S) additions. Compared with the control (CK), average CH₄ emissions increased by 286.36% and 122.73%, respectively, in the NH and NS addition treatments, average CO₂ emissions increased by 39.92% and 34.24%, respectively, with the NH and NS additions treatments. The nitrogen and sulfate addition changed the temporal variation of CH₄ and CO₂ emissions from the *C. malaccensis* wetlands in growing season. Significant correlations were found among CO₂, CH₄ emissions, and soil temperature, electrical conductivity (EC), DOC (dissolved organic carbon) and NH₄⁺-N ($P < 0.05$ or $P < 0.01$) in the treatments with NH and NS additions; and soil temperature, EC, DOC and NO₃⁻-N ($P < 0.05$ or $P < 0.01$) in the treatments with NO and NS additions. Temperature, EC and nitrogen availability were the dominant factors controlling the temporal variations of CH₄ and CO₂ emissions in estuarine tidal marsh ecosystem.

Key words: greenhouse gas emissions; nitrogen and sulfate addition; *Cyperus malaccensis*; tidal wetlands; Minjiang River estuary

CO₂ 和 CH₄ 是大气中重要的温室气体, 自 1750 年以来, 其浓度分别增加了 40% 和 105%, 达到了 391×10^{-6} 和 1803×10^{-9} [1], 对其排放通量的研究一直是全球变化研究的焦点 [2]. 研究已证实, 湿地是重要的 CO₂ 汇和 CH₄ 源 [3], 在全球温室气体排放中居于重要地位. 当前, 由于人类活动, 如化石燃料的燃烧、农业施肥等的影响, 活性氮、硫排放明显增加 [4,5]. 尤其是我国氮、硫沉降强度不断增加, 已经

成为继欧美之后世界第 3 大氮、硫沉降区 [6], 这势必会对温室气体排放产生显著影响.

湿地是地球陆地表面碳密度最高的生态系

收稿日期: 2016-02-27; 修订日期: 2016-04-07

基金项目: 国家自然科学基金项目 (41371127); 福建省科技计划重点项目 (2014R1034-1); 福建师范大学亚热带河口生物地球化学创新团队项目 (IRTL1205); 福建师范大学地理科学学院研究生创新基金项目

作者简介: 胡敏杰 (1988~), 男, 博士研究生, 主要研究方向为河口湿地生物地球化学循环, E-mail: mjhu0014@163.com

* 通讯联系人, E-mail: tongch@fjnu.edu.cn

统^[7]. CH₄ 是湿地厌氧土壤碳输出的重要途径,控制土壤碳循环过程的微小改变都将会对 CH₄ 代谢过程产生显著影响^[8]. 其中,外源的氮、硫输入是影响 CH₄ 代谢过程的最关键因子之一. 外源氮输入可通过改变土壤微生物和植被的生理机能^[9],增强土壤酶的活性^[10]等控制 CH₄ 的产生与消耗过程; SO₄²⁻ 通过使湿地中的硫酸盐还原菌变得活跃,并与甲烷产生菌竞争基质,从而抑制土壤 CH₄ 的产生和排放^[11]. 关于氮、硫沉降对湿地生态系统呼吸及湿地土壤呼吸影响的报道较少,且研究结果存在明显的不确定性^[12,13]. 一般认为,硫酸盐还原过程往往伴随 CO₂ 的产生^[14]. 目前,关于氮、硫沉降对湿地生态系统温室气体排放的影响研究主要集中在水稻田和泥炭地且结论不一致,对于天然河口湿地的研究较少,潜在机制尚不清楚.

河口潮汐湿地是对全球环境变化响应敏感的生态系统,是全球重要的碳汇/源. 盐水入侵、外来植物入侵与氮、硫沉降等是河口湿地面临的主要环境问题,这些全球变化过程的发生将深刻影响着河口湿地生态系统的结构与功能. 尤其是河口潮汐湿地土壤中往往硫酸盐含量较丰富,硫酸盐还原过程明显,可促使有机碳分解速率达到总分解速率的 50%^[15],这对湿地温室气体排放过程具有深远影

响. 闽江是我国东南沿海重要入海河流之一,地处中亚热带与南亚热带过渡区,具有流量大、流速快的特点. 闽江口鱮鱼滩湿地是闽江流域最大的自然湿地,承接来自中上游排放以及潮汐携带的大量含氮、硫物质,可以推断外源氮、硫输入将对该潮汐湿地土壤碳循环产生显著影响. 通过研究土壤碳循环过程 (CO₂、CH₄ 排放) 对于这种高氮、硫输入的短期响应,以全面认识氮、硫沉降对河口湿地土壤生物地球化学循环影响的时间变异性和不确定性,以期对温室气体排放清单提供补充、说明.

1 材料与方法

1.1 研究区概况

闽江河口鱮鱼滩湿地 (26°00'36" ~ 26°03'42"N, 119°34'12" ~ 119°40'40"E) 是福建省闽江河口湿地自然保护区面积最大的自然湿地. 气候温暖湿润,年均气温 19.6℃,年均降水量 1 346 mm^[16]. 该区是典型的开放式感潮河口,潮汐属典型半日潮,土壤以潮汐盐土为主^[17]. 芦苇 (*Phragmites australis*)、短叶荇苳 (*Cyperus malaccensis* var. *brevifolius*) 和蘆草 (*Scirpus triquetus*) 是该区的土著优势植物. 本研究在鱮鱼滩湿地西侧高潮滩短叶荇苳湿地选择一个典型样区进行实验布设 (图 1),其基本理化性质见表 1.

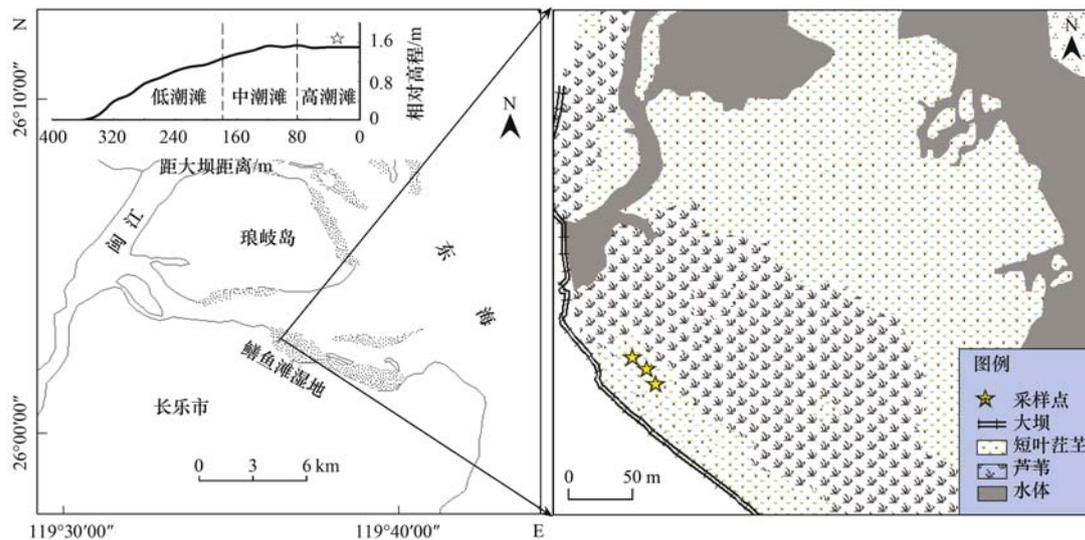


图 1 采样点示意

Fig. 1 Distribution of sampling sites in the Minjiang River estuary

表 1 闽江河口高潮滩湿地土壤基本理化性质特征¹⁾

Table 1 Soil physicochemical properties of the high tidal flat wetlands in the Minjiang River estuary

指标	pH	EC /mS·cm ⁻¹	容重 /g·cm ⁻³	含水率 /%	TC /g·kg ⁻¹	DOC /mg·kg ⁻¹	TN /g·kg ⁻¹	NH ₄ ⁺ -N /mg·kg ⁻¹	NO ₃ ⁻ -N /mg·kg ⁻¹
参数	6.84 ± 0.06	3.43 ± 0.12	0.69 ± 0.09	96.56 ± 17.24	31.00 ± 1.60	206.38 ± 60.54	2.90 ± 0.10	10.51 ± 0.01	0.59 ± 0.09

1) 表中数值为均值 ± 标准差; 土样采集时间为 2015 年 4 月 (添加处理前); n = 15

1.2 实验设计

在高潮滩短叶茳芰湿地内与海岸线平行的方向,布设1条30 m×3 m的添加处理样带,将样带等距离分为3个平行处理样区(作为3个重复),每个处理样区间相隔2 m;在每个处理样区内进一步布设5个1 m×1 m的平行处理小区用于添加处理实验,小间距留有缓冲带,防止相互干扰(与处理小区平行另布5个底座同样进行添加处理,用于土壤样品采集)。为方便到达采样点及减少采样时的践踏和扰动,沿样线搭设木制栈桥直通采样点。原位根据中国市域氮、硫沉降的一般区间以及同类研究^[12,18],并结合闽江河口区实际沉降量,按照中偏高输入标准,向各处理样区添加氮、硫和氮+硫,5个处理分别为对照CK(0 g·m⁻²)、NH(2 g·m⁻², NH₄⁺-N)、NO(2 g·m⁻², NO₃⁻-N)、S(2 g·m⁻², SO₄²⁻-S)、NS(2 g·m⁻², N+2 g·m⁻², S)。其中,氮、硫耦合输入按1:1配比,即以2g NH₄NO₃+2g K₂SO₄复合溶液添加。为了使喷洒的溶液最大限度地保留在实验样地,喷洒日选定在小潮日退潮后地表出露无潮水水淹时段,以尽量减少潮水冲刷的影响^[19]。模拟添加实验使用喷壶向静态箱底座内土壤表面施加不同处理组的可溶性NH₄Cl、KNO₃、K₂SO₄以及NH₄NO₃+K₂SO₄复合溶液,对照样地则喷洒相同量的自来水。实验于2015年4月14日开始添加处理,原位在不同设定时间采集气体,实验持续时间为1个月。同时,在添加处理后第5、24、240、720 h从另设底座内采集表层土壤样品(0~15 cm),测定相关土壤理化因子。

1.3 气体采集与测定

采用静态箱-气相色谱法进行气体采集与测定。静态箱由底座和顶箱2部分组成。底座(35 cm×35 cm×40 cm)上部带有边槽,用于采样时注水密封。顶箱(35 cm×35 cm×120 cm)内部上侧装有1个小风扇用于混匀箱内气体,侧面安装气体采样口。为防止施加溶液的过快流失及交叉影响,底座深入土壤35 cm,出露沉积物表面小于5 cm,并且底座在整个实验期间始终固定在样点。本研究一次性向底座内施加不同处理溶液,分别在添加处理后第0、2、5、24、48、96、168、240、360、480、720 h采集气样,并同步观测相关环境因子。气样用60 mL带有三通阀的注射器从箱内抽取,1个通量测定共抽气4次,分别在盖箱后0、10、20、30 min采集,并将抽取的气体注入100 mL气体采集袋中。样品采集后立刻运回实验室,用气相色谱仪(Shimadzu GC-2010,

Japan)测定气样中CH₄和CO₂浓度。根据以下公式计算排放到大气环境中的CH₄和CO₂通量:

$$F = \frac{M}{V} \cdot \frac{dc}{dt} \cdot H \cdot \left(\frac{273}{273 + T} \right)$$

式中, F :温室气体通量[mg·(m²·h)⁻¹]; M :CH₄和CO₂的摩尔质量(g·mol⁻¹); V :标准状态下的气体摩尔体积; dc/dt :CH₄和CO₂的浓度变化率; T :采样箱内温度(°C); H :采样箱的箱高。测量的浓度数据只有在线性回归系数 $R^2 > 0.9$ 才视为有效数据并计算温室气体通量。

1.4 环境因子测定

在各采样日同步测定每个静态箱内5、10、15 cm的土壤温度、电导率(EC)以及箱温、气温等指标。土壤pH采用IQ150便携式pH仪(IQ Scientific Instruments, USA)测定,土壤温度与EC采用2265FS便携式电导/温度计(Spectrum Technologies Inc, USA)测定,含水率用烘干法测定,容重用环刀法进行测定,气温则利用Kestrel 3500手持气象站(NK, USA)测定。土壤全氮(TN)、全碳(TC)使用碳氮元素分析仪测定(vario MAX, 德国),无机氮(NH₄⁺-N、NO₃⁻-N)经KCl浸提后使用连续流动分析仪(Skalar San⁺⁺, 荷兰)测定。土壤溶解性有机碳(DOC)经浸提后使用TOC-V_{CPH}总有机碳分析仪(Shimadzu, Japan)测定。

1.5 数据处理与分析

差异性分析使用SPSS 17.0中的单因素方差分析(ANOVA)进行统计。CH₄和CO₂排放通量与环境因子之间的相关关系使用SPSS 17.0中Pearson相关分析进行分析。数据作图使用Original 8.0进行。此外,CH₄和CO₂通量增加率是指以对照处理为基准,观察氮、硫添加处理下的CH₄和CO₂通量较对照处理的生长百分比,百分比为正值即为正增长,反之为负增长。

2 结果与分析

2.1 氮、硫添加对湿地CH₄排放的影响

外源氮、硫添加对闽江河口短叶茳芰湿地CH₄排放通量的影响随时间变化存在差异,呈现出较为明显的波动变化特征,在观测期间不同处理均表现为CH₄的源(图2)。数据分析显示,CK、NH、NO、S和NS添加处理下CH₄平均排放通量分别为(0.22±0.03)、(0.85±0.14)、(0.19±0.03)、(0.24±0.04)和(0.49±0.09) mg·(m²·h)⁻¹。与CK相比,NH和NS处理分别使湿地CH₄平均排放

通量增加了 286.36% 和 122.73%, NO 和 S 处理基本无影响.

外源氮、硫添加在不同时间对湿地 CH₄ 排放通量的影响不尽一致(图 3), NH 和 NS 处理在不同时间均促进了 CH₄ 排放通量, 其排放高值和低值均分别发生在处理后第 24 h 和 720 h, 最大和最小增幅均分别出现在处理后第 240 h 和 720 h, 较 CK 分别增加了 973.48%、48.68% 和 603.05%、15.86%. NO 和 S 处理在实验期间均表现为促进与抑制作用的交互影响, 但在整体上并未对 CH₄

排放通量产生显著影响(图 3). NO 添加除在第 2、96、168、360 和 720 h 表现为抑制作用外, 其他时间均表现为促进作用, 最大增长率为 101.01% (0 h). S 处理在添加后第 24、168 和 720 h 表现为抑制作用, 其他时间表现为促进作用. 方差分析显示, NH 和 NS 处理均与 CK、NO、S 处理存在极显著差异($P < 0.01$), NH 和 NS 处理之间也存在显著差异($P < 0.05$). 这表明 NH 和 NS 处理显著促进了 CH₄ 排放通量, 并且 NH 处理的促进作用优于 NS 处理.

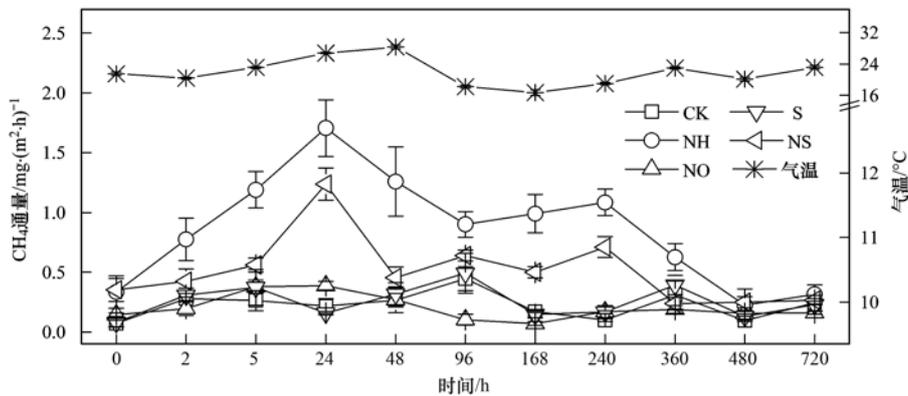
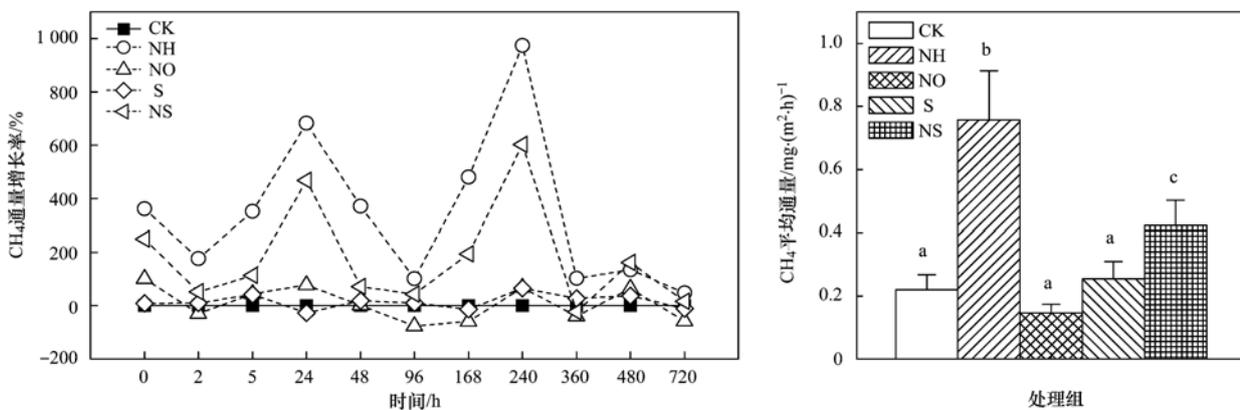


图 2 氮、硫添加对河口潮滩湿地 CH₄ 排放通量的影响

Fig. 2 Variations of CH₄ fluxes in estuarine wetland treated with different nitrogen and sulfate addition



不同小写字母代表不同处理间差异性显著, 下同

图 3 氮、硫添加对河口潮滩湿地 CH₄ 平均排放通量及增长百分比的影响

Fig. 3 Variations of CH₄ average fluxes and the growth rate in estuarine wetland treated with different nitrogen and sulfate addition

2.2 氮、硫添加对湿地 CO₂ 排放的影响

闽江河口短叶茳芩湿地 CO₂ 排放通量在各添加处理下均具有相似的变化动态, 氮、硫添加处理并没有改变潮滩湿地 CO₂ 排放时间变化规律(图 4). 统计分析可知, CK、NH、NO、S 和 NS 添加处理下 CO₂ 平均排放通量分别为 (476.72 ± 54.79)、(639.31 ± 75.05)、(574.73 ± 74.52)、(501.34 ± 54.81) 和 (666.67 ± 65.02) mg·(m²·h)⁻¹. 与 CK

相比, NH、NO、S 和 NS 处理分别使湿地 CO₂ 平均排放通量增加了 34.24%、20.59%、5.25% 和 39.92%. 不同处理组对 CH₄ 排放通量的促进能力依次为: NS > NH > NO > S.

外源氮、硫添加在不同时间对湿地 CO₂ 排放通量的影响存在明显差异, 各添加处理下最大值和最小值均出现在处理后第 720 h 和 96 h. NH 和 NS 处理在不同时间均促进了 CO₂ 排放通量,

其最大和最小增幅分别出现在处理后第 24 h、480 h 和 96 h, 0 h, 较 CK 分别增加了 51.10%、0.38% 和 70.15%、24.64% (图 5)。NO 和 S 处理在实验期间均表现为促进与抑制作用的交互

影响,但在整体上并未对 CO_2 排放通量产生显著影响。方差分析显示,除 NS 处理与 CK 存在显著差异 ($P < 0.05$) 外,其他处理间无显著差异 ($P > 0.05$)。

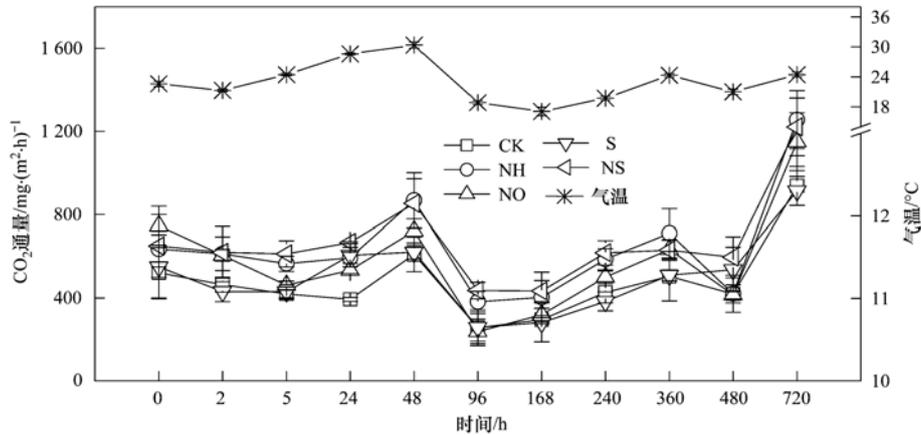


图 4 氮、硫添加对河口潮滩湿地 CO_2 排放通量的影响

Fig. 4 Variations of CO_2 fluxes in estuarine wetland treated with different nitrogen and sulfate addition

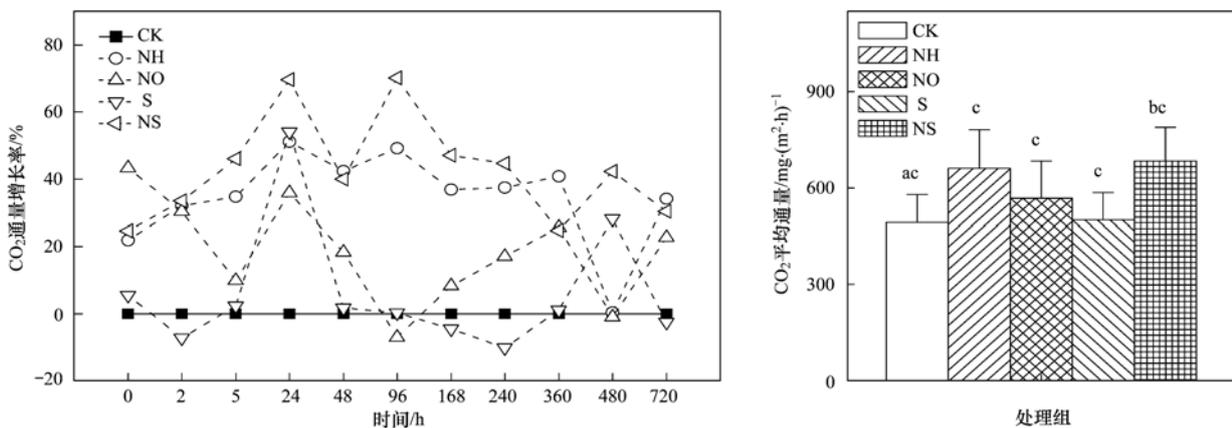


图 5 氮、硫添加对河口潮滩湿地 CO_2 平均排放通量及增长百分比的影响

Fig. 5 Variations of CO_2 average fluxes and the growth rate in estuarine wetland treated with different nitrogen and sulfate addition

2.3 环境因子及其与温室气体排放相关关系

外源氮、硫添加后土壤基本理化因子特征如图 6 所示。各样点土温与气温具有较高一致性,具有波动变化特征;土壤 EC 在不同处理间无显著差异 ($P > 0.05$)。NH 和 NS 添加下土壤 NH_4^+ -N 含量以及 NO 和 NS 添加下 NO_3^- -N 含量均显著高于对照处理 ($P < 0.05$)。添加处理组土壤 DOC 均略高于对照组 ($P > 0.05$); pH 均低于对照组 ($P > 0.05$),使土壤呈弱酸性。

相关分析显示(表 2),湿地土壤 CH_4 、 CO_2 排放通量与土温、DOC、 NH_4^+ -N 间主要为正相关关系,与 EC 和 NO_3^- -N 间主要为负相关关系。NH 和 NS 添加处理下河口湿地土壤 CH_4 、 CO_2 排放通量主要受

土温、EC、DOC 以及 NH_4^+ -N 的控制 ($P < 0.05$ 或 $P < 0.01$),NO 和 S 处理主要受土温、EC、pH、DOC、 NO_3^- -N 的控制 ($P < 0.05$ 或 $P < 0.01$),CK 处理则主要受土温的影响 ($P < 0.01$)。

3 讨论

3.1 氮、硫添加对河口湿地土壤理化性质的影响

氮、硫添加后土壤 EC 随时间呈波动变化特征,不同处理对土壤 EC 影响不大 ($P > 0.05$)。这主要是因为河口湿地土壤 EC 主要受潮汐、雨水和径流等咸淡水的交互作用,少量的氮、硫添加在短时间内不足以显著影响土壤 EC 变化。不同处理下湿地土壤 pH 随时间变化较为平稳,氮、硫添加在不同时

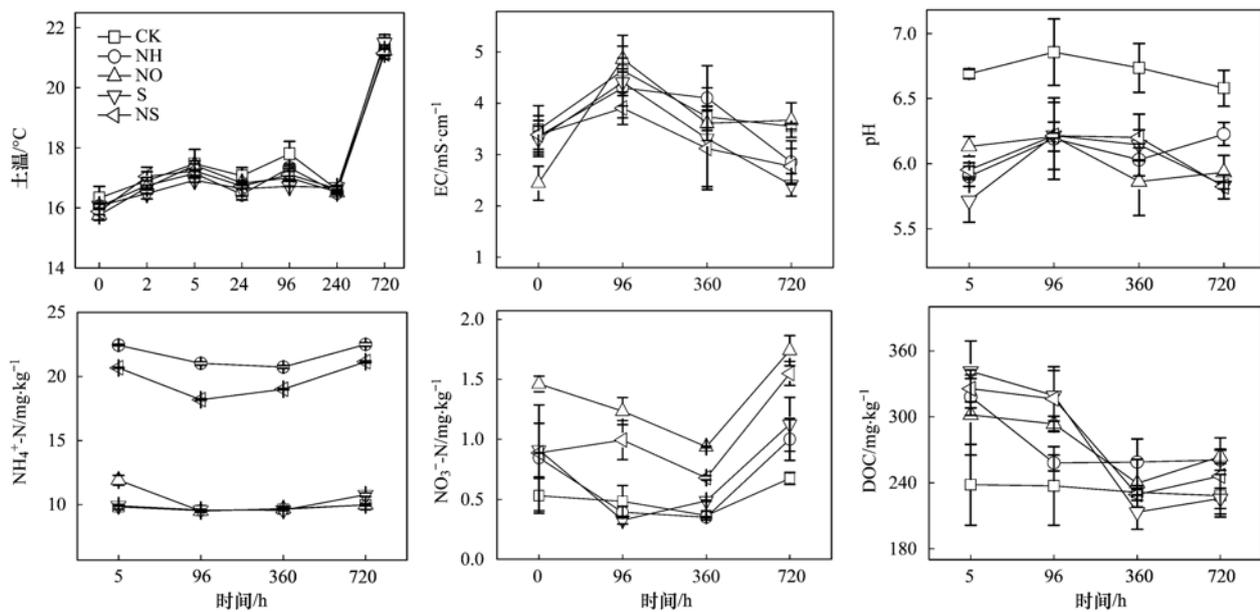


图 6 不同处理组土壤平均理化性质

Fig. 6 Average physical and chemical properties of soils with different nitrogen and sulfate addition

表 2 不同处理组 CH₄、CO₂ 排放通量与土壤理化因子间相关关系¹⁾Table 2 Pearson correlation analysis between CH₄, CO₂ fluxes and soil environmental parameters

指标	CH ₄					CO ₂				
	CK	NH	NO	S	NS	CK	NH	NO	S	NS
土温	0.891 **	0.732 **	0.850 **	0.768 **	0.769 **	0.827 **	0.891 **	0.807 **	0.805 **	0.753 **
EC	-0.399	-0.607 **	-0.640 **	-0.477 *	-0.521 *	0.089	-0.506 *	0.314	-0.653 **	-0.443
pH	0.105	-0.045	0.182	-0.035	-0.441	-0.547	-0.461	-0.757 **	-0.682 *	-0.807 **
DOC	0.305	0.506 *	0.376	0.602 *	0.673 *	0.112	0.617 *	-0.157	0.638 *	0.602 *
NH ₄ ⁺ -N	-0.290	0.587 *	0.495 *	0.301	0.897 **	0.885 **	0.961 **	0.920 **	0.986 **	0.922 **
NO ₃ ⁻ -N	0.303	0.329	-0.605 *	-0.261	-0.688 *	0.379	-0.367	0.738 **	0.726 **	0.627 *

1) * 和 ** 分别表示在 0.05 和 0.01 水平上显著相关

间均降低了湿地土壤 pH 值,使土壤处于弱酸性环境. 这是因为氮添加促进了 NH₄⁺ 的硝化和 NO₃⁻ 的淋失,加速了土壤的酸化^[20]. 氮、硫添加在不同时间对湿地土壤 pH 的影响均未达到显著性水平,主要是由于滨海河口区外部环境复杂,土壤 pH 受多种因素的控制,较少的氮、硫输入在短时间内不足以显著影响土壤 pH 的变化.

土壤 NH₄⁺-N 含量在 NH 和 NS 处理下以及 NO₃⁻-N 在 NO 和 NS 处理下均显著高于对照组 ($P < 0.05$). 由于植物和微生物等对 NH₄⁺-N 和 NO₃⁻-N 的吸收、转化和消耗需要一个时间过程,外源 NH₄⁺-N 和 NO₃⁻-N 的直接添加短时间内显著提高了土壤 N 的有效性和可利用性. 较 CK 处理相比,外源氮、硫添加均促进了河口湿地 DOC 含量,但除 NH 处理外 ($P < 0.05$),其他影响均不显著. DOC 是凋落物和土壤有机质分解和淋溶的产物^[21],氮输入对 DOC 的促进作用主要是氮有效性和微生物活性增强的结

果. 外源氮添加处理后,增加的氮会刺激微生物活性且抑制木质素的产生^[22],并可促进土壤中可溶性酚类物质的积累^[23],从而增加土壤中 DOC 的含量. 此外, NH₄⁺-N 也可以通过影响土壤酶活性来调节土壤 DOC 含量. 一般认为, NH₄⁺-N 可增强水解酶的活性,而降低氧化酶的活性^[24]. 水解酶活性的增强将加速易分解的纤维素类物质的降解,从而促进有机质的矿化、分解速率;氧化酶活性的降低将会导致土壤中可溶性酚类物质的增加,而酚氧化酶能够进一步氧化酚类物质中的苯环,从而刺激了 DOC 的释放^[23]. 关于土壤酶活性对氮、硫添加的响应是本研究正在开展的一个重要方向,相关结论有待进一步整理、发表.

3.2 氮、硫添加对河口湿地 CH₄、CO₂ 排放的短时间效应

氮、硫添加对闽江河口潮滩湿地 CH₄ 排放的影响具有明显的时间效应. 各处理对 CH₄ 排放通量的

影响主要发生在第 5 ~ 240 h, 第 360 h 后几乎无影响。可见, 外源物质添加后, 在不同采样时间均会对湿地温室气体排放通量产生影响, 但不同时间的影响存在差异。其原因可能是与 CH_4 排放影响因素的复杂性有关。一方面, 外源输入物质在湿地生态系统中的分解、吸收、转化和累积等过程往往随时间存在差异, 动植物、微生物等对外源输入物质的反应也需要一个时间过程^[17]; 另一方面, CH_4 排放是 CH_4 产生、氧化和传输过程综合作用的结果, 而这些过程都会受到外源输入物质的影响, 由于各个过程对外源氮、硫添加响应时间和机制的不同, 因而 CH_4 排放必然具有时间上的变异性。此外, 也有研究认为外源营养物质添加后不同生态系统生态响应的的时间变异性还与添加频率、采样时间间隔、本底条件以及采样环境密切相关^[25]。一般而言, 硫酸盐还原过程对 CH_4 产生的影响主要表现为抑制作用^[26]。但本研究中, SO_4^{2-} -S 添加后不同时间对河口潮滩湿地 CH_4 排放通量的影响存在促进-抑制的交互作用(图 3), 分析原因主要是闽江河口湿地硫酸盐浓度已接近或达到饱和状态, 少量添加的 SO_4^{2-} -S 在短时间内对硫酸盐还原过程的影响有限, 还可能与河口潮汐湿地甲烷产生基质种类的多样性有关^[19], 如非竞争性的甲醇、三甲胺和甲硫氨酸等底物不易被硫酸盐还原菌利用, 而易被产甲烷菌利用^[27]。NS 复合添加对河口潮滩湿地 CH_4 排放通量的显著促进作用($P < 0.05$) 是上述因子综合作用的结果, 并且氮输入所引起的植物生物量的增加和微生物活性的增强对甲烷产生的促进作用抵消或减弱了硫的抑制作用^[28]。

闽江河口潮滩湿地 CO_2 排放通量在各处理下均具有相似的时间变化动态, 氮、硫添加处理并没有改变潮滩湿地 CO_2 排放时间变化规律。氮、硫添加处理后湿地 CO_2 排放具有明显的波动变化特征, 在第 48 h 和 720 h 出现两个高峰值, 在第 96 h 出现低峰值。外源氮、硫输入在不同时间对湿地 CO_2 排放影响的差异是多因素作用的结果。由于河口湿地生态环境的复杂性, 外源输入到湿地土壤中的氮能否转换为植物、微生物等可利用的氮素还受许多因素的限制, 如水热条件等。水热条件是影响土壤微生物异养呼吸和植物根系呼吸产 CO_2 过程的主要因素^[29]。而土壤与大气之间的水热交换往往需要一定的时间来平衡与稳定^[30], 这就导致水热条件对土壤温室气体的影响在不同时间具有不同的表现形式和影响强度^[31]。不同添加处理下 CO_2 排放通量

与土温间的极显著关系也证实了这一点(表 2)。此外, Blagodatskaya 等^[32]还认为外源氮的添加显著促进了土壤微生物活性, 并认为这是营养物质添加后土壤有机质分解短期变化的主要原因。硫输入对湿地 CO_2 排放影响的时间效应, 主要是通过调节土壤 pH 来实现的, 硫输入易引起土壤酸化, 而土壤酸化又会对微生物的丰度、活性等产生影响^[33], 并且这种影响存在时滞效应, 从而影响土壤碳排放动态。

3.3 氮、硫添加后河口湿地 CH_4 和 CO_2 排放的主要影响因素

闽江河口湿地 CH_4 和 CO_2 排放通量与土温间均存在极显著正相关关系($P < 0.01$), 温度是控制湿地 CH_4 和 CO_2 排放动态变化的关键环境因子。温度的升高不仅可以促进土壤微生物的活性, 刺激甲烷产生菌的生长, 也可通过增强土壤中氧的消耗, 阻碍甲烷氧化菌的生长和功能的发挥, 抑制 CH_4 的氧化^[34]。Chin 等^[35]证实, 厌氧土壤中的产甲烷菌群落结构和功能会随温度发生变化, 促进优势产甲烷菌群落演替从而提高了产甲烷菌的产甲烷能力。温度升高可增强植物体和根系的呼吸作用, 增加生物量, 为有机碳的分解提供了更多的碳源, 较高的温度也提高了微生物的分解速率, 进而释放更多的 CO_2 ^[36]。本研究中, 闽江河口湿地 CO_2 、 CH_4 排放对外源氮、硫添加的短期响应在各采样节点均与温度具有较强的一致性, 表明在研究外源营养物质对温室气体排放的影响时要考虑温度的调节作用。

闽江河口潮滩湿地 CH_4 和 CO_2 通量在各添加处理下均与土壤 EC 呈负相关关系, 土壤盐度是影响河口湿地温室气体排放的重要控制因素。 CH_4 和 CO_2 的产生与排放是湿地土壤碳输出的主要气态损失途径, 有机碳的分解过程影响了 CH_4 和 CO_2 的产生与排放, 而盐度主要通过硫酸盐还原作用和离子胁迫作用两种途径来影响湿地土壤有机碳的矿化和分解等循环过程。一方面, SO_4^{2-} 作为一种重要的电子受体, 可通过与甲烷产生菌竞争底物, 提高甲烷产生的氧化还原环境以及 H_2S 对甲烷产生菌的毒害作用等方面抑制 CH_4 的产生^[37]。另一方面, 盐度中较高的 Cl^- 浓度, 会通过离子胁迫作用限制产甲烷微生物的生长与活性, 进而减少甲烷产生^[38]。对于 CO_2 而言, 随着盐水入侵、盐度升高, 其所携带的 SO_4^{2-} 、 Cl^- 等电子受体显著增加, 会还原产生大量 H_2S , 对微生物生长具有直接或间接的毒害作用, 抑制了土壤微生物活性。此外, 高盐环境下盐析作用强烈, 导致脱氢酶的活性下降, 微生物的新陈代谢作

用减弱,土壤微生物的数量减少,明显降低了土壤异养呼吸速率,降低了 CO₂ 的产生与排放^[39]。牟晓杰等^[40]的研究也表明高氮处理对 CH₄ 排放通量的短期影响(8 d)与 5 cm 土壤 EC 存在显著负相关关系。

本研究发现,土壤 NH₄⁺-N 含量与 NH 和 NS 处理下的湿地 CH₄ 和 CO₂ 排放均具有显著正相关关系 ($P < 0.05$); 土壤 NO₃⁻-N 含量与 NO 处理下的湿地 CH₄ 排放具有显著负相关关系 ($P < 0.05$), 与 NO 和 NS 处理下湿地 CO₂ 排放具有显著或极显著正相关关系 ($P < 0.05$ 或 $P < 0.01$)。表明土壤氮的有效性是影响湿地温室气体排放的重要因素。关于 NH₄⁺-N 添加对湿地 CH₄ 氧化的影响机制主要包括微生物机制与化学机制。从微生物机制的角度来看,由于甲烷氧化菌氧化甲烷和硝化细菌氧化氨时需要相同的微生物酶参与, NH₄⁺-N 的输入可通过增加硝化细菌数量而抑制甲烷氧化菌的生长与活性,从而抑制 CH₄ 的氧化^[40]。从化学机制的角度来看, Shukla 等^[41]认为,阳离子的添加引起的土壤铵的生理盐胁迫和离子交换可能引起土壤 CH₄ 氧化的下降,而氨氧化代谢产生的硝酸盐和亚硝酸盐对产甲烷菌的毒害作用是其他可能的原因。本研究中,高潮滩土壤本底 NH₄⁺-N 含量较低,受 NH₄⁺-N 的限制,外源添加的 NH₄⁺-N 显著增加了湿地氮的有效性,改变了 CH₄ 产生与氧化的微生物过程^[42],最终刺激了 CH₄ 的排放。NO₃⁻-N 含量与高潮滩 CH₄ 排放通量的负相关关系主要是由 NO₃⁻-N 对 CH₄ 产生过程影响的复杂性引起的。一方面 NO₃⁻-N 反硝化过程中的产物对甲烷产生菌活性具有直接抑制作用^[43]; 另一方面 NO₃⁻-N 还原过程与甲烷产生过程相比较,具有明显的底物利用优势,从而使得甲烷产生底物浓度降低到甲烷产生菌无法利用的程度,限制了 CH₄ 的生成^[44]。然而, NO₃⁻-N 添加处理并没有显著影响 CH₄ 排放(图 2),这表明少量的 NO₃⁻-N 添加在短时间内不足以改变温室气体排放模式。Nykänen 等^[45]也证实在外源添加的 NO₃⁻-N 到达厌氧的土壤产甲烷区前,可能已经被有氧的最上层土壤中的微生物和植物吸收、利用了。氮输入可提高湿地生态系统生产力,增加生物量,提高土壤有机质含量和微生物活性,有利于湿地 C 的转化,从而促进 CO₂ 通量的增加^[46]。Song 等^[47]研究也表明,氮添加通过增强土壤酶的活性,可以影响土壤有机质的分解,增加可溶性有机碳含量。Bragazza 等^[48]也认为,氮输入有助

于通过消除氮在微生物新陈代谢上的限制作用,改进枯落物的化学特性,以促进微生物酶的活性来提高微生物的分解速率,并降低 C/N,从而促进 CO₂ 通量的增加。

4 结论

(1) 氮、硫添加使闽江河口潮滩湿地 CH₄ 排放通量呈现出较为明显的波动变化特征, NH 和 NS 处理均显著促进了湿地 CH₄ 排放 ($P < 0.05$)。时间动态上, NH 和 NS 处理在不同时间均促进了 CH₄ 排放通量,其排放高值和低值均分别发生在处理后第 24 h 和 720 h,最大和最小增幅均分别出现在处理后第 240 h 和 720 h。NO 和 S 处理在实验期间均表现为促进与抑制作用的交互影响,但在整体上并未对湿地 CH₄ 排放通量产生显著影响。

(2) 氮、硫添加处理并没有改变潮滩湿地 CO₂ 排放时间变化规律。各处理均促进了湿地 CO₂ 平均排放通量,但除 NS 处理与 CK 存在显著差异外 ($P < 0.05$),其他处理间无显著差异。不同处理组对 CH₄ 排放通量的促进能力依次为: NS > NH > NO > S。时间动态上,各添加处理下最大值和最小值均出现在处理后第 720 h 和 96 h。

(3) 外源氮、硫添加后,河口湿地土温、EC 在不同处理间无显著差异 ($P > 0.05$)。NH 和 NS 添加下土壤 NH₄⁺-N 含量以及 NO 和 NS 添加下 NO₃⁻-N 含量均显著高于对照处理 ($P < 0.05$)。添加处理组土壤 DOC 均略高于对照组 ($P > 0.05$), pH 均低于对照组 ($P > 0.05$)。

(4) NH 和 NS 添加处理下河口湿地土壤 CH₄、CO₂ 排放通量主要受土温、EC、DOC 以及 NH₄⁺-N 的控制 ($P < 0.05$ 或 $P < 0.01$), NO 和 S 处理主要受土温、EC、pH、DOC、NO₃⁻-N 的控制 ($P < 0.05$ 或 $P < 0.01$), CK 处理则主要受土温的影响 ($P < 0.01$)。温度、盐度、氮有效性是影响河口湿地 CH₄、CO₂ 排放的主要因素。

参考文献:

- [1] IPCC. Climate change 2013; the physical science basis [M]. New York: Cambridge University Press, 2013.
- [2] Batson J, Noe G B, Hupp C R, *et al.* Soil greenhouse gas emissions and carbon budgeting in a short-hydroperiod floodplain wetland[J]. Journal of Geophysical Research, 2015, **120** (1): 77-95.
- [3] 宋长春, 张丽华, 王毅勇, 等. 淡水沼泽湿地 CO₂、CH₄ 和 N₂O 排放通量年际变化及其对氮输入响应[J]. 环境科学, 2006, **27** (12): 2369-2375.
- [4] Gauci V, Dise N B, Howell G, *et al.* Suppression of rice

- methane emission by sulfate deposition in simulated acid rain [J]. *Journal of Geophysical Research*, 2008, **113** (G3): G00A07.
- [5] Gundale M J, From F, Bach L H, *et al.* Anthropogenic nitrogen deposition in boreal forests has a minor impact on the global carbon cycle[J]. *Global Change Biology*, 2014, **20** (1): 276-286.
- [6] Liu X J, Zhang Y, Han W X, *et al.* Enhanced nitrogen deposition over China [J]. *Nature*, 2013, **494** (7438): 459-462.
- [7] Scholz M, Harrington R, Carroll P, *et al.* The integrated constructed wetlands (ICW) concept [J]. *Wetlands*, 2007, **27** (2): 337-354.
- [8] Bridgham S D, Cadillo-Quiroz H, Keller J K, *et al.* Methane emissions from wetlands: biogeochemical, microbial, and modeling perspectives from local to global scales [J]. *Global Change Biology*, 2013, **19** (5): 1325-1346.
- [9] Mosier A R, Halvorson A D, Reule C A, *et al.* Net global warming potential and greenhouse gas intensity in irrigated cropping systems in northeastern Colorado [J]. *Journal of Environmental Quality*, 2006, **35** (4): 1584-1598.
- [10] Wang Y, Cheng S, Fang H, *et al.* Relationships between ammonia-oxidizing communities, soil methane uptake and nitrous oxide fluxes in a subtropical plantation soil with nitrogen enrichment [J]. *European Journal of Soil Biology*, 2016, **73**: 84-92.
- [11] Middelburg J J, Nieuwenhuize J, Iversen N, *et al.* Methane distribution in European tidal estuaries [J]. *Biogeochemistry*, 2002, **59** (1-2): 95-119.
- [12] Kivimäki S K, Sheppard L J, Leith I D, *et al.* Long-term enhanced nitrogen deposition increases ecosystem respiration and carbon loss from a *Sphagnum* bog in the Scottish Borders [J]. *Environmental and Experimental Botany*, 2013, **90**: 53-61.
- [13] Tao B X, Song C C, Guo Y D. Short-term effects of nitrogen additions and increased temperature on wetland soil respiration, Sanjiang Plain, China [J]. *Wetlands*, 2013, **33** (4): 727-736.
- [14] Chambers L G, Reddy K R, Osborne T Z. Short-term response of carbon cycling to salinity pulses in a freshwater wetland [J]. *Soil Science Society of America Journal*, 2011, **75** (5): 2000-2007.
- [15] Jørgensen B B. Mineralization of organic matter in the sea bed—the role of sulphate reduction [J]. *Nature*, 1982, **296** (5858): 643-645.
- [16] 刘剑秋, 曾从盛, 陈宁. 闽江河口湿地研究 [M]. 北京: 科学出版社, 2006.
- [17] Mou X J, Liu X T, Tong C, *et al.* Responses of CH₄ emissions to nitrogen addition and *spartina alterniflora* invasion in Minjiang river estuary, Southeast of China [J]. *Chinese Geographical Science*, 2014, **24** (5): 562-574.
- [18] 高伟, 郭怀成, 后希康. 中国大陆市域人类活动净氮输入量 (NANI) 评估 [J]. *北京大学学报 (自然科学版)*, 2014, **50** (5): 951-959.
- [19] 仝川, 柳铮铮, 曾从盛, 等. 模拟 SO₄²⁻ 沉降对河口潮汐湿地甲烷排放通量的影响 [J]. *环境科学学报*, 2010, **30** (3): 302-308.
- [20] Sinsabaugh R L, Moorhead D L. Resource allocation to extracellular enzyme production: a model for nitrogen and phosphorus control of litter decomposition [J]. *Soil Biology and Biochemistry*, 1994, **26** (10): 1305-1311.
- [21] Cusack D F, Silver W L, Torn M S, *et al.* Changes in microbial community characteristics and soil organic matter with nitrogen additions in two tropical forests [J]. *Ecology*, 2011, **92** (3): 621-632.
- [22] Guggenberger G. Acidification effects on dissolved organic matter mobility in spruce forest ecosystems [J]. *Environment International*, 1994, **20** (1): 31-41.
- [23] DeForest J L, Zak D R, Pregitzer K S, *et al.* Atmospheric nitrate deposition, microbial community composition, and enzyme activity in northern hardwood forests [J]. *Soil Science Society of America Journal*, 2004, **68** (1): 132-138.
- [24] Carreiro M M, Sinsabaugh R L, Repert D A, *et al.* Microbial enzyme shifts explain litter decay responses to simulated nitrogen deposition [J]. *Ecology*, 2000, **81** (9): 2359-2365.
- [25] Inselsbacher E, Wanek W, Ripka K, *et al.* Greenhouse gas fluxes respond to different N fertilizer types due to altered plant-soil-microbe interactions [J]. *Plant and Soil*, 2011, **343** (1-2): 17-35.
- [26] Nedwell D B, Embley T M, Purdy K J. Sulphate reduction, methanogenesis and phylogenetics of the sulphate reducing bacterial communities along an estuarine gradient [J]. *Aquatic Microbial Ecology*, 2004, **37** (3): 209-217.
- [27] Lyimo T J, Pol A, den Camp H J M O. Sulfate reduction and methanogenesis in sediments of Mtoni mangrove forest, Tanzania [J]. *AMBIO*, 2002, **31** (7-8): 614-616.
- [28] Eriksson T, Öquist M G, Nilsson M B. Effects of decadal deposition of nitrogen and sulfur, and increased temperature, on methane emissions from a boreal peatland [J]. *Journal of Geophysical Research*, 2010, **115** (G4), doi: 10.1029/2010JG001285.
- [29] Bragazza L, Buttler A, Habermacher J, *et al.* High nitrogen deposition alters the decomposition of bog plant litter and reduces carbon accumulation [J]. *Global Change Biology*, 2012, **18** (3): 1163-1172.
- [30] Hillel D. *Environmental soil physics: fundamentals, applications, and environmental considerations* [M]. New York: Academic Press, 1998.
- [31] 李晓密, 伦小秀. 施肥与不施肥措施下小麦田的 CO₂、CH₄、N₂O 排放日变化特征 [J]. *生态环境学报*, 2014, **23** (1): 178-182.
- [32] Blagodatskaya E, Yuyukina T, Blagodatsky S, *et al.* Three-source-partitioning of microbial biomass and of CO₂ efflux from soil to evaluate mechanisms of priming effects [J]. *Soil Biology & Biochemistry*, 2011, **43** (4): 778-788.
- [33] Vile M A, Bridgham S D, Wieder R K. Response of anaerobic carbon mineralization rates to sulfate amendments in a boreal peatland [J]. *Ecological Applications*, 2003, **13** (3): 720-734.
- [34] 丁维新, 蔡祖聪. 温度对甲烷产生和氧化的影响 [J]. *应用生态学报*, 2003, **14** (4): 604-608.
- [35] Chin K J, Lukow T, Conrad R. Effect of temperature on structure and function of the methanogenic archaeal community in an anoxic rice field soil [J]. *Applied and Environmental Microbiology*, 1999, **65** (6): 2341-2349.
- [36] Tong C, Wang C, Huang J F, *et al.* Ecosystem respiration does not differ before and after tidal inundation in brackish marshes of the Min River estuary, Southeast China [J]. *Wetlands*, 2014,

- 34(2): 225-233.
- [37] 王维奇, 曾从盛, 全川. 闽江口芦苇湿地土壤甲烷产生与氧化能力研究[J]. 湿地科学, 2008, 6(1): 60-68.
- [38] Chambers L G, Osborne T Z, Reddy K R. Effect of salinity-altering pulsing events on soil organic carbon loss along an intertidal wetland gradient: a laboratory experiment [J]. Biogeochemistry, 2013, 115(1-3): 363-383.
- [39] Thottathil S D, Balachandran K K, Jayalakshmy K V, *et al.* Tidal switch on metabolic activity: Salinity induced responses on bacterioplankton metabolic capabilities in a tropical estuary[J]. Estuarine, Coastal and Shelf Science, 2008, 78(4): 665-673.
- [40] 牟晓杰, 刘兴土, 全川, 等. 闽江河口短叶荇菜湿地 CH₄ 和 N₂O 排放对氮输入的短期响应[J]. 环境科学, 2012, 33(7): 2482-2489.
- [41] Shukla P N, Pandey K D, Mishra V K. Environmental determinants of soil methane oxidation and methanotrophs [J]. Critical Reviews in Environmental Science and Technology, 2013, 43(18): 1945-2011.
- [42] 葛瑞娟, 宋长春, 侯翠翠, 等. 氮输入对小叶章不同生长阶段土壤 CH₄ 氧化的影响[J]. 中国环境科学, 2010, 30(8): 1097-1102.
- [43] Patra A K, Yu Z T. Combinations of nitrate, saponin, and sulfate additively reduce methane production by rumen cultures *in vitro* while not adversely affecting feed digestion, fermentation or microbial communities[J]. Bioresource Technology, 2014, 155: 129-135.
- [44] Min K, Kang H, Lee D. Effects of ammonium and nitrate additions on carbon mineralization in wetland soils [J]. Soil Biology and Biochemistry, 2011, 43(12): 2461-2469.
- [45] Nykänen H, Vasander H, Huttunen J T, *et al.* Effect of experimental nitrogen load on methane and nitrous oxide fluxes on ombrotrophic boreal peatland [J]. Plant and Soil, 2002, 242(1): 147-155.
- [46] Alm J, Schulman L, Walden J, *et al.* Carbon balance of a boreal bog during a year with an exceptionally dry summer [J]. Ecology, 1999, 80(1): 161-174.
- [47] Song Y Y, Song C C, Li Y C, *et al.* Short-term effect of nitrogen addition on litter and soil properties in *Calamagrostis angustifolia* freshwater marshes of Northeast China[J]. Wetlands, 2013, 33(3): 505-513.
- [48] Bragazza L, Freeman C, Jones T, *et al.* Atmospheric nitrogen deposition promotes carbon loss from peat bogs[J]. Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America, 2006, 103(51): 19386-19389.

CONTENTS

Temporal and Spatial Variation of Haze Pollution over China from 1960 to 2013	FU Chuan-bo, TANG Jia-xiang, DAN Li, <i>et al.</i>	(3237)
Concentrations and Size Distributions of Water-soluble Inorganic Ions in Aerosol Particles in Taiyuan, Shanxi	WANG Lu, WEN Tian-xue, MIAO Hong-yan, <i>et al.</i>	(3249)
Characteristics of the Size Distribution of Water Soluble Inorganic Ions During a Typical Haze Pollution in the Autumn in Shijiazhuang	LIU Jing-yun, LIU Zi-rui, WEN Tian-xue, <i>et al.</i>	(3258)
Variation of Size Distribution and the Influencing Factors of Aerosol in Northern Suburbs of Nanjing	WU Dan, CAO Shuang, TANG Li-li, <i>et al.</i>	(3268)
Characteristics of Black Carbon Aerosol and Influencing Factors in Northern Suburbs of Nanjing	XIAO Si-han, YU Xing-na, ZHU Bin, <i>et al.</i>	(3280)
Characteristics of Speciated Atmospheric Mercury in Chongming Island, Shanghai	LI Shu, GAO Wei, WANG Shu-xiao, <i>et al.</i>	(3290)
Total Gaseous Mercury and Mercury Emission from Natural Surface at One Typical Agricultural Region in Three Gorges Reservoir	WANG Yong-min, ZHAO Zheng, SUN Tao, <i>et al.</i>	(3300)
Variation Characteristics and Sources Analysis of Atmospheric Volatile Organic Compounds in Changbai Mountain Station	WU Fang-kun, SUN Jie, YU Ye, <i>et al.</i>	(3308)
Characterization of Particle Size Distributions of the No-organized Lead Emission for a Lead and Zinc Smelter	LIU Da-jun, WANG Jia-quan	(3315)
Hydrochemical Characteristics and Sources of Ions in Precipitation at the East Qilian Mountains	JIA Wen-xiong, LI Zong-xing	(3322)
Pollution Characteristics and Ecological Risk Assessment of Vanadium in Sediments of the Three Gorges Reservoir (Chongqing-Yichang Section)	GUO Wei, YIN Shu-hua, XU Jian-xin, <i>et al.</i>	(3333)
Distributions of Arsenic Species in Different Eutrophic Waters of Lake Taihu and Their Relations to Environmental Factors	CHE Fei-fei, WANG Da-peng, ZHEN Zhuo, <i>et al.</i>	(3340)
Spatial, Temporal Distribution Characteristics and Potential Risk of PPCPs in Surface Sediments from Taihu Lake	ZHANG Pan-wei, ZHOU Huai-dong, ZHAO Gao-feng, <i>et al.</i>	(3348)
Distribution Characteristics and Source Identification of Organochlorine Pesticides in the Karst Groundwater System	ZHANG Mei, SUN Yu-chuan, XIE Zheng-lan, <i>et al.</i>	(3356)
Comparison on the Hydrogeochemical Characteristics of Typical Karst Groundwater System in Southwest China, a Case of Qingmuguan and Laolongdong in Chongqing	ZHAN Zhao-jun, CHEN Feng, YANG Ping-heng, <i>et al.</i>	(3365)
Fractions and Release Risk of Phosphorus in Surface Sediments of Three Headwater Streams with Different Styles of Water Supply	LI Ru-zhong, QIN Ru-bin, HUANG Qing-fei, <i>et al.</i>	(3375)
Vertical Variation of Phosphorus Forms in Lake Dianchi and Contribution to Release	LI Le, WANG Sheng-rui, JIAO Li-xin, <i>et al.</i>	(3384)
Analysis of Distribution Characteristics and Source of Dissolved Organic Matter from Zhoucun Reservoir in Summer Based on Fluorescence Spectroscopy and PARAFAC	HUANG Ting-lin, FANG Kai-kai, ZHANG Chun-hua, <i>et al.</i>	(3394)
Absorption and Reflection Characteristics of Black Water Blooms in the Eutrophic Water	ZHANG Si-min, LI Yun-mei, WANG Qiao, <i>et al.</i>	(3402)
Assessment of Ecosystem Health of Baogang Tailings Groundwater Based on Microbiome Index of Biotic Integrity (M-IBI)	AN Xin-li, CHEN Ting-ting, ZHAO Han, <i>et al.</i>	(3413)
Relationship Between Landscape Pattern and Spatial Variation of Heavy Metals in Aquatic Sediments in Headwaters Area of Yuqiao Reservoir	WANG Zu-wei, WANG Yi-wei, HOU Ying-ying, <i>et al.</i>	(3423)
Effect of Constructed Wetland Configuration on the Removal of Nitrogen Pollutants and Antibiotics in Aquaculture Wastewater	LIU Jia, YI Nai-kang, XIONG Yong-jiao, <i>et al.</i>	(3430)
Effects of a Symbiotic Bacterium on the Accumulation and Transformation of Arsenate by <i>Chlorella salina</i>	XU Ping-ping, LIU Cong, WANG Ya, <i>et al.</i>	(3438)
Effects of Nitrate in Water on the Growth of <i>Iris pseudacorus</i> L. and Its Adsorption Capacity of Nitrogen in a Simulated Experiment	WANG Bing, WEN Fen-xiang, XIAO Bo	(3447)
Adsorption Behavior of <i>p</i> -hydroxy Biphenyl onto Sediment of the Yellow River in Lanzhou	ZHOU Qi, JIANG Yu-feng, SUN Hang, <i>et al.</i>	(3453)
Enhanced Pollutants Removal in a Municipal Wastewater Treatment Plant with Multistage A/O Process	YIN Zi-hua, SHENG Xiao-lin, LIU Rui, <i>et al.</i>	(3460)
Performance of Nanofiltration for Improving the Drinking Water Quality in a Water Supply Plant with Micropolluted Water Resource	WU Yu-chao, CHEN Li-jun, LAN Ya-qiong, <i>et al.</i>	(3466)
Reaction Kinetics and Impacting Mechanism of Cr(VI) Removal in Fe ⁰ -PRB Systems	LU Xin, LI Miao, TANG Cui-mei, <i>et al.</i>	(3473)
Adsorption Cd ²⁺ from Solution by EDTA-modified Silicate Nanoparticles	JIANG Shun-cheng, QIN Rui, LI Man-lin, <i>et al.</i>	(3480)
Analysis and Characterization of Multi-modified Anodes via Nitric Acid and PPY/AQDS in Microbial Fuel Cells	SHEN Wei-hang, ZHU Neng-wu, YIN Fu-hua, <i>et al.</i>	(3488)
Adsorption Characteristics of Phosphorus Wastewater on the Synthetic Ferrihydrate	CUI Meng-meng, WANG Dian-sheng, HUANG Tian-yin, <i>et al.</i>	(3498)
Performance of Bio-zeolite Constructed Wetland in Dispersed Swine Wastewater Treatment	MOU Rui, SHEN Zhi-qiang, ZHOU Yue-xi, <i>et al.</i>	(3508)
Polyhydroxyalkanoate (PHA) Synthesis by Glycerol-based Mixed Culture and Its Relation with Oxygen Uptake Rate (OUR)	LIU Dong, ZHANG Xiao-ting, ZHANG Dai-jun, <i>et al.</i>	(3518)
Kinetics and Mechanistic Investigation of the Photocatalytic Degradation of Clothianidin	HU Qian, YANG Hai, SHI Ni, <i>et al.</i>	(3524)
Impacts of Industrial Zone in Arid Area in Ningxia Province on the Accumulation of Heavy Metals in Agricultural Soils	WANG Mei-e, PENG Chi, CHEN Wei-ping	(3532)
Pollution Characteristics and Health Risk Assessment of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in the Surface Soils of a Large Steel enterprise in the North of China	DONG Jie, HUANG Ying, LI Yong-xia, <i>et al.</i>	(3540)
Vertical Distribution of Heavy Metals and Its Response to Organic Carbon in Red Soil Profile	JIA Guang-mei, MA Ling-ling, XU Dian-dou, <i>et al.</i>	(3547)
Provoking Effects of Exogenous Zn on Cadmium Accumulation in Rice	GU Jiao-feng, YANG Wen-tao, ZHOU Hang, <i>et al.</i>	(3554)
Effect of Modified Biochars on Soil Cadmium Stabilization in Paddy Soil Suffered from Original or Exogenous Contamination	YANG Lan, LI Bing, WANG Chang-quan, <i>et al.</i>	(3562)
Performance of Bioleaching Combined with Fenton-like Reaction in Heavy Metals Removal from Contaminated Soil	ZHOU Pu-xiong, YAN Xie, YU Zhen, <i>et al.</i>	(3575)
Effect of Long-term Oil Contamination on the Microbial Molecular Ecological Networks in Saline-alkali soils	ZHAO Hui-hui, XIAO Xian, PEI Meng, <i>et al.</i>	(3582)
Effect of Nitrogen Deposition on Soil Microbial Community Structure Determined with the PLFA Method Under the Masson Pine Forest from Mt. Jinyun, Chongqing	ZENG Qing-ping, HE Bing-hui	(3590)
Fungal Community Structure of Different Degeneration <i>Deyeuxia angustifolia</i> Wetlands in Sanjiang Plain	SUI Xin, ZHANG Rong-tao, XU Nan, <i>et al.</i>	(3598)
Short-term Effects of Nitrogen and Sulfate Addition on CH ₄ and CO ₂ Emissions in the Tidal Marsh of Min River Estuary	HU Min-jie, REN Peng, HUANG Jia-fang, <i>et al.</i>	(3606)
Variation of Soil CO ₂ Flux and Environmental Factors Across Erosion-Deposition Sites Under Simulation Experiment	DU Lan-lan, WANG Zhi-qi, WANG Rui, <i>et al.</i>	(3616)
Interannual Variations of Soil Respiration and Its Temperature Sensitivity in an Orchard in Jimci Region of Taiyuan City	YAN Jun-xia, HAO Zhong, JING Xue-kai, <i>et al.</i>	(3625)
Influence of Biochar on Greenhouse Gases Emissions and Physico-chemical Properties of Loess Soil	WANG Yue-ling, GENG Zeng-chao, WANG Qiang, <i>et al.</i>	(3634)
Effects of Elevated Ozone and Nitrogen Deposition on Photosynthetic Characteristics and biomass of <i>Populus cathayana</i>	XIN Yue, SHANG Bo, CHEN Xing-ling, <i>et al.</i>	(3642)
Effects of Canopy Temperature on Carbon Dioxide Exchange of Winter Wheat in Taiyuan Basin	LI Hong-juan, YANG Yan, YAN Jun-xia	(3650)
Composition and Evolution Characteristics of Dissolved Organic Matter During Composting Process	LI Dan, HE Xiao-song, XI Bei-dou, <i>et al.</i>	(3660)
Effects of Acidic and Basic Modification on Activated Carbon for Adsorption of Toluene	LIU Han-bing, YANG Bing, XUE Nan-dong	(3670)

《环境科学》第6届编辑委员会

主 编: 赵进才

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 刘 毅 汤鸿霄 孟 伟 周宗灿 林金明
赵进才 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)

2016年9月15日 第37卷 第9期

ENVIRONMENTAL SCIENCE

(Monthly Started in 1976)

Vol. 37 No. 9 Sep. 15, 2016

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	赵进才	Editor-in -Chief		ZHAO Jin-cai
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@rcees. 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@rcees. 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	中国国际图书贸易集团有限公司 (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: 120.00元

国外发行代号: M 205

国内外公开发行