

百方知库
Eco-Environmental
Knowledge Web

环境科学

ENVIRONMENTAL SCIENCE

ISSN 0250-3301 CODEN HCKHDV
HUANJING KEXUE

■ 主办 中国科学院生态环境研究中心
■ 出版 科学出版社



2019

Vol.40 No.2
第40卷 第2期

目次

冬季山谷风和海陆风对京津冀地区大气污染分布的影响 李青春, 李炬, 郑祚芳, 王耀庭, 于淼 (513)

珠三角地区利用 PM_{2.5} 反演气溶胶数浓度谱方法 李菲, 谭浩波, 邓雪娇, 邹宇, 刘礼, 蔡明甫, 张芷言, 周声圳 (525)

广州冬季气溶胶中水溶性有机物和类腐殖质的吸光性和荧光光谱特性 范行军, 余旭芳, 操涛, 王艳, 肖新, 谢越, 李飞跃, 宋建中, 彭平安 (532)

扬州市 PM_{2.5} 中重金属来源及潜在健康风险评估 董世豪, 谢扬, 皇甫延琦, 史旭荣, 易睿, 史国良, 冯银厂 (540)

聊城市冬季 PM_{2.5} 中正构烷烃和糖类的污染特征及来源解析 刘晓迪, 孟静静, 侯战方, 衣雅男, 魏本杰, 伏梦璇 (548)

博斯腾湖流域大气多环芳烃污染特征、干沉降通量及来源 宋世杰, 黄韬, 赵留元, 毛潇萱, 穆熙, 高宏, 马建民 (558)

某集约化肉鸡饲养场 PM_{2.5} 中抗生素抗性基因的分布特征 刘菲, 许霞, 屠博文, 汪楚乔, 江晓栋, 王利平, 薛银刚 (567)

水汽源地和局地蒸发对大气降水氢氧稳定同位素组分的影响 胡勇博, 肖薇, 钱雨妃, 刘强, 谢成玉, 张秀芳, 张文庆, 温学发, 刘寿东, 李旭辉 (573)

滇池大气沉降氮磷形态特征及其入湖负荷贡献 任加国, 贾海斌, 焦立新, 王一茹, 杨苏文, 武倩倩, 高秋生, 崔志丹, 郝子峰 (582)

基于地统计学分析的太湖颗粒态和溶解态氮、磷营养盐时空分布特征及来源分析 吕伟伟, 姚昕, 张保华, 高光, 邵克强 (590)

湖泊蓝藻水华对连通河道水质的影响 余茂蕾, 洪国喜, 许海, 朱广伟, 朱梦圆, 权秋梅 (603)

异龙湖沉积物重金属人为污染与潜在生态风险 李小林, 刘恩峰, 于真真, 张恩楼, 林祺, 王荣, 沈吉 (614)

珠江河口悬浮物中重金属时空变化特征及其影响因素 杜佳, 王永红, 黄清辉, 戴琦, 杨远东 (625)

北运河粪源微生物分布特征及健康风险评估 陈磊, 李蕾芳, 郅晓沙, 张普, 戴莹, 肖月晨, 沈珍瑶 (633)

氧化还原循环过程中沉积物磷的形态及迁移转化规律 郝文超, 王从锋, 杨正健, 刘德富, 纪道斌, 赵萍, 丹勇, 胡子龙 (640)

磁性铁改性膨润土添加对河道底泥磷迁移与形态转化的影响 王艳, 林建伟, 詹艳慧, 张宏华, 张志斌, 何思琪, 赵钰颖, 吴小龙, 俞阳 (649)

钙预处理对磁性铁改性膨润土吸附水中磷酸盐的影响 赵钰颖, 林建伟, 张宏华, 张志斌, 詹艳慧, 姜博汇, 何思琪, 俞阳, 吴小龙, 王艳, 陈璐, 李十盛 (658)

NH₄⁺ 对镁改性生物炭除磷效果的影响 郭蒙蒙, 王鹏飞, 侯泽英, 曹晶, 储昭升, 杨永哲 (669)

3种吸附剂对污水磷污染去除性能与机制比较 吴露, 刘锋, 龙睿, 罗沛, 肖润林, 陈向, 吴金水 (677)

硝酸纤维素膜降解水中对硝基苯酚的机制 代志峰, 赵同谦, 阴永光, 余加平, 武俐, 郅超, 孙静阳, 罗玉俊 (685)

ZnTiO₂-TiO₂ 复合光催化剂的制备及光催化降解有机污染物机制分析 张文海, 吉庆华, 兰华春, 李静 (693)

高指数晶面 TiO₂ 对铬的吸附及光催化去除 钟德健, 张建峰, 李尧, 谢晓丹 (701)

Fe⁰/海藻酸钙微球还原-Fenton 氧化协同降解酸性红 B 张环, 李爽爽, 魏俊富, 傅敏, 李雪曦, 丁琦, 白蓉 (708)

不同滤料滤池启动期内对铁锰离子的去除机制 蔡言安, 毕学军, 张嘉凝, 何静, 董杨, 王海港 (717)

SGO 改性复合纳滤膜的制备及分盐性能 张彦君, 张少峰, 赵长伟, 王军 (724)

一体式铝盐絮体-超滤膜净水效能与机制 薛文清, 李文江, 刘娟, 马百文 (730)

臭氧-CNT 膜改性联用工艺通量及膜污染分析 王凯伦, 刘芳, 关羽琪, 祝学东, 董丹, 薛小雷, 马燕林, 栾桂荣, 郭瑾 (738)

多环芳烃及其衍生物在 SBR/MBBR 工艺中的分布与去除 刘淑惠, 田伟君, 周建仁, 赵婧, 王喆 (747)

微气泡曝气生物膜反应器处理低 C/N 比废水脱氮过程 刘春, 王聪聪, 陈晓轩, 张静, 张瑞娜, 张磊 (754)

从枝菌根强化型生态浮床处理煤化工模拟含盐废水 袁文清, 何皓, 宋文萍, 王曙光, 戴东伟 (761)

夏季高温下污水处理厂生物处理系统的硝化性能及强化方法 宋天伟, 盛晓琳, 王家德, 刘锐, 陈吕军 (768)

硝化包埋菌颗粒氨吸附性能及动力学特性 于德爽, 吕廷廷, 陈光辉, 王晓霞, 唐鹏, 黄硕, 刘诚诚, 杜世明 (774)

乙酸钠作为碳源不同污泥源短程反硝化过程亚硝酸盐积累特性 毕春雪, 于德爽, 杜世明, 王晓霞, 陈光辉, 王钧, 巩秀珍, 都叶奇 (783)

DPR-SNED 系统处理低 C/N 城市污水与硝酸盐废水的运行特性 杜世明, 于德爽, 毕春雪, 王晓霞, 陈光辉, 袁梦飞, 甄建园, 张帆, 吕廷廷 (791)

间歇曝气连续流反应器同步硝化反硝化除磷 赵智超, 黄剑明, 李健, 张为堂, 张力航, 吴雪晴, 陈永志 (799)

ABR-MBR 反硝化除磷工艺的启动及稳定运行 韦佳敏, 蒋志云, 程诚, 朱琳, 刘文如, 沈耀良 (808)

进水 C/N 对 SNEDPR 系统脱氮除磷的影响 都叶奇, 于德爽, 甄建园, 王晓霞, 陈光辉, 唐鹏, 王钧, 毕春雪, 巩秀珍, 黄硕, 刘诚诚 (816)

ABR 除碳-CANON 耦合工艺除碳脱氮特性 李田, 印雯, 王昕竹, 沈耀良, 吴鹏, 宋吟玲 (823)

不同曝气密度对 CANON 工艺启动的影响 李冬, 高雪健, 张杰, 曹正美, 郭跃洲, 李帅 (829)

调控温度和沉降时间实现 ANAMMOX 颗粒快速启动及其稳定运行 李海玲, 李冬, 张杰, 刘博, 李帅 (837)

C/N 和污泥浓度对以 pH 值调控的亚硝化系统影响 张敏, 韦佳敏, 黄慧敏, 姜滢, 郭萌蕾, 陈重军, 沈耀良 (845)

基于活性微生物特征的供水管壁生物膜生长特性 王杨, 朱斌, 董俊, 白晓慧 (853)

黄山土壤细菌群落和酶活性海拔分布特征 姚兰, 胡立煌, 张焕朝, 方炎明, 王良梅 (859)

基于高通量测序分析的生物修复石油污染土壤菌群结构变化 祁燕云, 吴蔓莉, 祝长成, 叶茜琼, 徐会宁 (869)

硝化作用对盐碱湿地 N₂O 排放的影响及其环境因子分析 杨曲, 高伟峰, 刘凤琴, 王文锋, 马建华, 徐卓, 梁红, 高大文 (876)

长期定位施用牛粪对夏玉米-冬小麦体系农田 N₂O 和 NO 排放的影响 聂皇华, 张家升, 和周明, 安梅, 杨学云, 顾江新 (885)

地膜覆盖和施肥对菜地 N₂O 排放的影响 倪雪, 郝庆菊, 陈世杰, 李晓茜, 石孝均, 江长胜 (893)

双季稻品种根际特征与甲烷排放差异及其关系 肖志祥, 傅志强, 徐华勤, 苏姗, 郭昱, 张浪, 唐剑武 (904)

多年施用生物炭对河南烤烟种植区土壤呼吸的影响 李亚森, 丁松爽, 殷金玉, 李佳轶, 周迪, 刘国顺 (915)

桂林毛村不同土地利用方式下土壤呼吸空间变异特征 丁梦凯, 胡晓农, 曹建华, 吴夏, 黄芬, 王奇岗, 闵佳 (924)

工业发达城市土壤重金属时空变异与源解析 李锋, 刘思源, 李艳, 史舟 (934)

膨润土对不同类型农田土壤重金属形态及生物有效性的影响 林海, 靳晓娜, 董颖博, 罗明科, 赵一鸣 (945)

缙云山不同林分下土壤有机碳及矿化特征 陈仕奇, 吕盛, 高明, 黄容 (953)

复杂地形条件下根系对土壤有机碳的贡献 张彦军, 郭胜利 (961)

不同水平外源碳在稻田土壤转化与分配的微生物响应特征 王季斐, 童瑶瑶, 祝贞科, 陈珊, 邓悟悟, 葛东达, 吴金水 (970)

宝鸡市植被叶子重金属分布规律及生态风险评估 张俊辉, 林青, 姜珊, 刘滨, 李东兴, 王彦虎 (978)

生物炭对污泥堆肥及其利用过程重金属有效态的影响 周楫, 余亚伟, 蒋越, 杨雨滢, 张成 (987)

污泥停留时间对餐厨垃圾与剩余污泥中温厌氧混合发酵系统的影响 袁宏林, 马静, 邢保山, 温俊伟, 韩宇乐, 李倩, 王晓昌 (994)

热碱-分步酶水解-厌氧消化工艺处理秸秆畜粪混合物料及其甲烷高值化条件 卞爱琴, 远野, 张璐璐, 付强, 陈天明, 何磊, 丁成, 王爱杰 (1003)

《环境科学》征订启事(547) 《环境科学》征稿简则(828) 信息(581, 933, 952)

长期定位施用牛粪对夏玉米-冬小麦体系农田 N_2O 和NO排放的影响

聂皇华, 张家升, 和周明, 安梅, 杨学云, 顾江新*

(西北农林科技大学资源环境学院, 杨凌 712100)

摘要: 利用静态暗箱法对关中平原 27 a 长期定位施肥农田氧化亚氮(N_2O)和一氧化氮(NO)排放通量进行周年(2017年6月到2018年6月)观测, 目的是阐明 N_2O 和NO的排放特征及其影响因子, 定量评估施用牛粪对气体排放的影响. 田间试验采用随机区组试验设计, 设置3种处理. 对照(CK)处理全年不施肥. 全化肥(NPK)和化肥加牛粪(NPKM)处理全年施氮(N)量为 $353\text{ kg}\cdot\text{hm}^{-2}$, 其中夏玉米季为 $188\text{ kg}\cdot\text{hm}^{-2}$, 均为尿素N; 冬小麦季为 $165\text{ kg}\cdot\text{hm}^{-2}$, NPK处理全部为尿素N, 而NPKM处理尿素N与牛粪N的比例为3:7. 结果表明, CK处理气体排放通量较低且无明显季节变化, NPK和NPKM处理气体排放高峰主要与施肥和灌溉有关, N_2O 和NO排放最高峰值分别为 $103.0\text{ g}\cdot(\text{hm}^2\cdot\text{d})^{-1}$ 和 $71.0\text{ g}\cdot(\text{hm}^2\cdot\text{d})^{-1}$, 均出现在NPKM处理玉米季. 当土壤温度高于 20°C 时, NPK和NPKM中NO/ N_2O 比均与土壤充水孔隙度呈显著负相关关系($P < 0.01$), 说明土壤温度和水分含量共同影响气体排放. 各处理 N_2O 年排放量分别为0.21、2.32和 $2.15\text{ kg}\cdot\text{hm}^{-2}$, NPK与NPKM处理间差异不显著($P = 0.74$); NO年排放量分别为0.23、0.80和 $1.46\text{ kg}\cdot\text{hm}^{-2}$, NPK和NPKM处理间差异显著($P < 0.05$). 说明长期施用牛粪对 N_2O 排放无影响, 但可显著增加NO排放.

关键词: 氧化亚氮; 一氧化氮; 牛粪; 长期定位施肥; 土壤水分含量; 关中平原

中图分类号: X144; X16 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2019)02-0885-08 DOI: 10.13227/j.hjxx.201807086

Effect of Long-term Dairy Manure Amendment on N_2O and NO Emissions from Summer Maize-Winter Wheat Cropping Systems

NIE Huang-hua, ZHANG Jia-sheng, HE Zhou-ming, AN Mei, YANG Xue-yun, GU Jiang-xin*

(College of Natural Resources and Environment, Northwest Agricultural and Forest University, Yangling 712100, China)

Abstract: Annual nitrous oxide (N_2O) and nitric oxide (NO) emissions were measured within a 27 year fertilization experiment in Guanzhong Plain. Gas samples were collected using static chambers from June 2017 to June 2018. The primary objectives of this study were to quantify the variations in N_2O and NO emissions and evaluate the effect of manure amendment on gas losses. Three treatments were set up in the field using a completely random block design. The control treatment (CK) remained unfertilized throughout the year. The synthetic fertilizers (NPK) and NPK plus dairy manure (NPKM) treatments received an annual nitrogen (N) input at a rate of $353\text{ kg}\cdot\text{hm}^{-2}$. In the summer maize season, the NPK and NPKM treatments received urea as a N source at $188\text{ kg}\cdot\text{hm}^{-2}$. In the winter wheat season, the NPK treatments received urea at $165\text{ kg}\cdot\text{hm}^{-2}$. The NPKM treatment received the same amount of N as the NPK treatment but with 30% from urea and 70% from dairy manure. The results showed that N_2O and NO emissions from the CK treatment were consistently low during the experimental period. Large emission peaks were captured in the NPK and NPKM treatments, mostly responding to fertilizer application and irrigation. The largest N_2O and NO peaks were up to $103.0\text{ g}\cdot(\text{hm}^2\cdot\text{d})^{-1}$ and $71.0\text{ g}\cdot(\text{hm}^2\cdot\text{d})^{-1}$, respectively, and both occurred in the NPKM treatment during the summer maize season. The NO/ N_2O ratio was negatively related to soil water-filled pore space ($P < 0.01$) at soil temperatures above 20°C for the NPK and NPKM treatments, indicating the regulatory effect of soil temperature and water content on gas fluxes. Annual N_2O emissions from the CK, NPK, and NPKM treatments were $0.21\text{ kg}\cdot\text{hm}^{-2}$, $2.32\text{ kg}\cdot\text{hm}^{-2}$, and $2.15\text{ kg}\cdot\text{hm}^{-2}$, respectively, with a non-significant difference between the NPK and NPKM treatments ($P = 0.74$). Annual NO emissions from the CK, NPK, and NPKM treatments were $0.23\text{ kg}\cdot\text{hm}^{-2}$, $0.80\text{ kg}\cdot\text{hm}^{-2}$, and $1.46\text{ kg}\cdot\text{hm}^{-2}$, respectively, with a significant difference between the NPK and NPKM treatments ($P < 0.05$). We concluded that long-term dairy manure amendment did not influence N_2O emissions but increased NO emissions.

Key words: N_2O ; NO; dairy manure; long-term fertilization; soil water content; Guanzhong Plain

氧化亚氮(N_2O)不仅是重要的温室气体, 还是破坏平流层臭氧的首要反应物^[1]. 目前, 大气 N_2O 浓度较工业革命前增加约20%, 并以每年0.26%的速率持续增长^[2]. 一氧化氮(NO)是具有高度光化学活性的痕量气体, 与光化学烟雾、细粒子气溶胶和酸雨等大气污染密切相关^[3]. 农田土壤是 N_2O 和NO重要的人为排放源, 全球农田年排放量[以

氮(N)计]分别为3.3 Tg和1.4 Tg^[4].

土壤释放的 N_2O 和NO主要由微生物硝化及反硝化作用产生^[5]. 硝化过程是微生物在有氧条件下

收稿日期: 2018-07-12; 修订日期: 2018-08-20

基金项目: 国家自然科学基金项目(41475128); 陕西省自然科学基金研究计划项目(2018JM4012)

作者简介: 聂皇华(1994~), 男, 硕士研究生, 主要研究方向为农田痕量气体排放, E-mail: niehuanghua@163.com

* 通信作者, E-mail: gujiangxin@nwsuaf.edu.cn

将铵态氮($\text{NH}_4^+ \text{-N}$)氧化成硝态氮($\text{NO}_3^- \text{-N}$)的过程, N_2O 和 NO 是副产品;反硝化过程是微生物在厌氧条件下将 $\text{NO}_3^- \text{-N}$ 逐步还原为氮气(N_2)的过程, N_2O 和 NO 是中间产物. 阐明两种气体的排放特征有助于定量分析土壤 N 元素生物地球化学循环过程. 影响 N_2O 和 NO 排放的因素包括 N 底物浓度、氧化还原状态、土壤有机碳(SOC)含量、温度和湿度等^[6~9]. 农田管理措施可改变土壤条件进而强烈影响 N_2O 和 NO 排放,如施用化肥在土壤中引入丰富的 N 底物,是造成气体排放量大幅增加的主要原因^[10]. 反之,合理的 N 肥管理则具有较高的减排潜力^[11]. 由于粮食作物的 N 肥利用率仅为 30% ~ 50%^[12],直接减少化肥用量在理论和技术上是可行的,但却可能引发社会公众对粮食生产和食品安全的担忧^[13].

与此相比,施用粪肥能够在保障粮食生产的前提下全部或部分替代化肥,在现代农业生产中得到广泛关注^[14]. 粪肥可增加 SOC 含量,改善土壤通气状况,促进微生物和作物生长^[15,16]. 已有的研究显示施用粪肥对 N_2O 和 NO 排放的影响十分复杂. 在欧洲南部进行的试验表明,施用猪粪尿能够降低 N_2O 和 NO 排放,主要是因为黏性土壤中施用液体粪肥有利于反硝化作用,促进了 N_2O 和 NO 还原为 N_2 ^[17]. 在日本进行的试验表明,施用鸡粪分别提高和降低了 N_2O 和 NO 排放量,主要是由于添加有机碳(C)促进了反硝化过程中 NO 还原为 N_2O ^[18]. 在我国西南地区进行的研究表明,长期施用猪粪肥显著提高了 N_2O 和 NO 排放量,主要是因为猪粪肥 C/N 比较低,在土壤中更易分解,为硝化和反硝化作用提供较丰富的 C、N 底物^[19]. 这些不同甚至相反的结论主要与硝化和反硝化作用在气体产生过程中的相对重要性有关,而硝化和反硝化过程又受到粪肥性质和施入量、天气条件、土壤类型等因素的综合影响. 因此,定量研究特定区域内施用粪肥对 N_2O 和 NO 排放的影响十分必要.

关中平原是西北地区重要的粮食产区,夏玉米-冬小麦体系农田年均施 N 量达到 211 ~ 734 $\text{kg}\cdot\text{hm}^{-2}$, N_2O 和 NO 排放存在较高风险^[20]. 该地区针对单一气体的排放已有部分研究,主要表现为施

用粪肥提高了 N_2O 和 NO 排放,但仅对 NO 排放有显著影响^[21,22]. 目前,对两种气体综合排放的认识仍然不足. 本研究对长期定位施用牛粪农田 N_2O 和 NO 排放通量同时观测,目的是阐明 N_2O 和 NO 的排放特征及其影响因子,定量评估施用牛粪对气体综合排放的影响.

1 材料与方 法

1.1 试验地概况

本研究依托“国家黄土肥力与肥料效益监测基地”,田间试验位于陕西省杨陵区五泉镇($34^\circ17'51''\text{N}$, $108^\circ00'48''\text{E}$, 海拔 516 m). 该地区属暖温带大陆性季风气候,多年平均气温 13°C , 年均降水量 550 mm,降水主要集中在 7 ~ 10 月,对西北半湿润区有很好的代表性. 供试农田土壤为旱耕土垫人为土,黄土母质.

1.2 试验设计

长期定位施肥试验开始于 1990 年,耕作制度为夏玉米-冬小麦一年两熟制. 采用随机区组试验设计,设置对照(CK)、全化肥(NPK)和化肥加牛粪(NPKM)这 3 个处理,每个处理小区面积为 $14\text{ m} \times 14\text{ m}$. 其中 CK 处理全年不施肥. 夏玉米季, NPK 和 NPKM 处理均施入化肥,分别为尿素 ($188\text{ kg}\cdot\text{hm}^{-2}$)、过磷酸钙 ($25\text{ kg}\cdot\text{hm}^{-2}$) 和硫酸钾 ($78\text{ kg}\cdot\text{hm}^{-2}$),施肥方式为穴施. 冬小麦季, NPK 和 NPKM 处理施 N 量均为 $165\text{ kg}\cdot\text{hm}^{-2}$,其中 NPK 处理全部为尿素 N,而 NPKM 处理尿素 N 与牛粪 N 的比例为 3 : 7; 两种处理均施入过磷酸钙 ($58\text{ kg}\cdot\text{hm}^{-2}$) 和硫酸钾 ($68\text{ kg}\cdot\text{hm}^{-2}$),由牛粪引入的磷、钾未计入. 施肥方式为撒施,后由旋耕机翻入土壤中(约 20 cm). 两季作物均无秸秆还田.

本试验观测期为 2017 年 6 月至 2018 年 6 月,夏玉米于 2017 年 6 月 13 日翻耕、播种,品种为郑丹 958,7 月 19 日施肥,10 月 16 日收获;冬小麦于 10 月 22 日施肥、翻耕和播种,品种为小偃 22,2018 年 6 月 11 日收获. 两季作物均有灌溉,灌溉次数和灌溉量视天气和作物长势而定,灌溉方式为地下水漫灌. 2017 年试验开始前表层土壤(0 ~ 20 cm)理化性质列于表 1.

表 1 2017 年各处理表层土壤(0 ~ 20 cm)的理化性状

Table 1 Soil properties (0 - 20 cm layer) in 2017

处理	容重/ $\text{g}\cdot\text{cm}^{-3}$	有机碳/ $\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$	全氮/ $\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$	全磷/ $\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$
CK	1.48	7.3	0.9	0.8
NPK	1.49	10.2	1.2	1.1
NPKM	1.41	15.9	1.8	1.5

1.3 气体采集与分析

气体样品收集采用静态暗箱法。采样装置由基座(50 cm × 50 cm × 10 cm)、中段箱(50 cm × 50 cm × 50 cm)和顶箱(50 cm × 50 cm × 50 cm)组成,均为不锈钢材质,中段箱和顶箱包覆绝热反光膜。顶箱侧面打孔设置采样管,采样管连接三通接口。采样管和三通接口均使用黑色胶带缠绕以避光。顶箱上部留有1个直径为2 cm的圆孔以平衡气压。中段箱仅在植株高度超过50 cm后使用。采样点附近铺设木质栈道,供采样人员进出。

每个处理随机设置3个基座,埋入土壤约10 cm。通常情况下,每周采样1次;施肥或灌溉后每天采样1次,直至气体排放通量降至背景值。采样一般在08:00~11:00进行。采样时将顶箱放在基座上,向水槽注水达到密封效果。即刻用真空泵(N86KNDC, KNF Neuberger GmbH, Freiburg, Germany)将采样箱周围的气体(约2.5 L)抽入采样袋(5 L, 大连普莱特气体包装有限公司),之后使用注射器采集箱内气体(约40 mL)4次,每次间隔时间为10~15 min,最后再次使用真空泵将箱内气体(约2.5 L)抽入采样袋,准确记录采集时间。

注射器和采样袋保存的样品分别用于检测 N_2O 和 NO 浓度,检测设备分别为气相色谱仪(7890B, Agilent Technologies Inc., USA)和 $NO-NO_2-NO_x$ 分析仪(Model 42i, Thermo Environmental Instruments Inc., USA)。

1.4 辅助观测

气体采集的同时测量土壤水分含量和温度。使用土壤水分速测仪(ML3, Delta-T Devices, UK)测量体积含水率(0~5 cm),每个处理随机测定9次。使用数字温度计(JM624, 天津今明仪器有限公司)测量土壤温度(0~10 cm),每个处理随机测定4次。

每2周采集1次表层土壤样品(0~20 cm),每个处理随机取3个混合样品,鲜土经氯化钾溶液($1 \text{ mol} \cdot \text{L}^{-1}$)浸提后,使用流动分析仪(AA3, SEAL Analytical, Germany)检测 NH_4^+ -N和 NO_3^- -N含量。

1.5 数据处理和统计分析

气体排放通量(F , [$\text{g} \cdot (\text{hm}^2 \cdot \text{d})^{-1}$])的计算公式为:

$$F = k \times \frac{P}{P_0} \times \frac{T_0}{T} \times H \times \rho \times \frac{dc}{dt} \quad (1)$$

式中, P 和 T 分别为采样时的气压(kPa)和温度(K); H 为采样箱高度(m); ρ 为标准状况下($T_0 = 273 \text{ K}$, $P_0 = 101.3 \text{ kPa}$)目标气体的密度($\text{g} \cdot \text{L}^{-1}$); dc/dt 为目标气体浓度随时间的变化率,其中 N_2O 浓

度随时间的变化率由4个注射器中样品的浓度确定,而 NO 浓度随时间的变化率由2个采样袋中样品的浓度确定; k 为单位换算系数。

以相邻观测日的排放通量为基准,采用线性内插法估算未观测日的排放通量。将日排放通量累加得到周期内排放总量。

排放系数(EFd)的计算公式为:

$$\text{EFd} = \frac{F_N - F_{ck}}{N} \times 100\% \quad (2)$$

式中, F_N 和 F_{ck} 分别为施肥和不施肥处理气体年排放量($\text{kg} \cdot \text{hm}^{-2}$); N 为施氮总量($\text{kg} \cdot \text{hm}^{-2}$),包括化肥和粪肥。

土壤充水孔隙度(WFPS)的计算公式为:

$$\text{WFPS} = \frac{\text{VSWC}}{1 - (\text{BD}/2.65)} \quad (3)$$

式中,VSWC为体积含水率,BD为土壤容重($\text{g} \cdot \text{cm}^{-3}$);假定土壤密度为 $2.65 \text{ g} \cdot \text{cm}^{-3}$ 。

利用SYSTAT 12.0 (Systat Software Inc., USA)对气体排放量及环境因子进行单因素方差分析(ANOVA),检验不同处理间的差异及显著性。利用线性或非线性回归分析拟合气体排放通量与环境因子的相关关系并检验其显著性。

2 结果与分析

2.1 土壤温度和水分含量变化

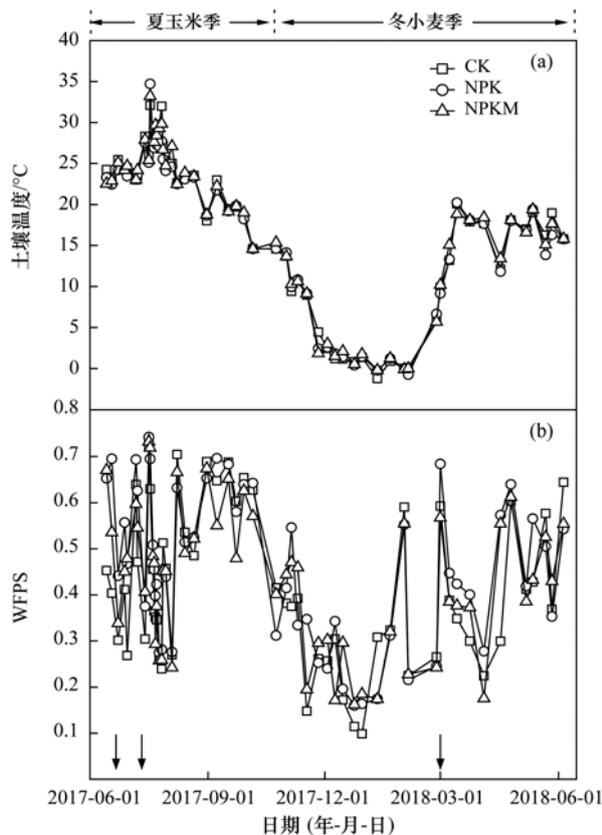
土壤温度变化范围为 $-1.3 \sim 34.7^\circ\text{C}$,夏玉米季和冬小麦季平均值分别为 24.4°C 和 9.8°C ,各处理变化趋势一致且无显著差异[图1(a)]。土壤WFPS变化范围在0.09~0.77之间,主要与降水和灌溉有关,各处理变化趋势一致且无显著差异[图1(b)]。夏玉米季和冬小麦季WFPS平均值分别为0.51和0.37。

2.2 土壤 NH_4^+ -N和 NO_3^- -N含量变化

各处理土壤 NH_4^+ -N含量较低且无显著差异,全年平均值为 $1.9 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$ [图2(a)]。CK处理 NO_3^- -N含量较低,全年平均值为 $8.3 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$ [图2(b)];NPK和NPKM处理的 NO_3^- -N含量有明显季节变化,全年平均值分别为 $30.1 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$ 和 $26.0 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$,显著高于CK处理($P < 0.01$)。与 NH_4^+ -N含量相比,NPK和NPKM处理的 NO_3^- -N含量存在较高的空间异质性。

2.3 气体排放的季节变化

CK处理 N_2O 排放通量全年处于较低水平,平均值为 $0.8 \text{ g} \cdot (\text{hm}^2 \cdot \text{d})^{-1}$ [图3(a)]。NPK和NPKM处理 N_2O 排放变化趋势基本一致:夏玉米季 N_2O 多次出现排放峰,最高值出现在NPKM处理,达到



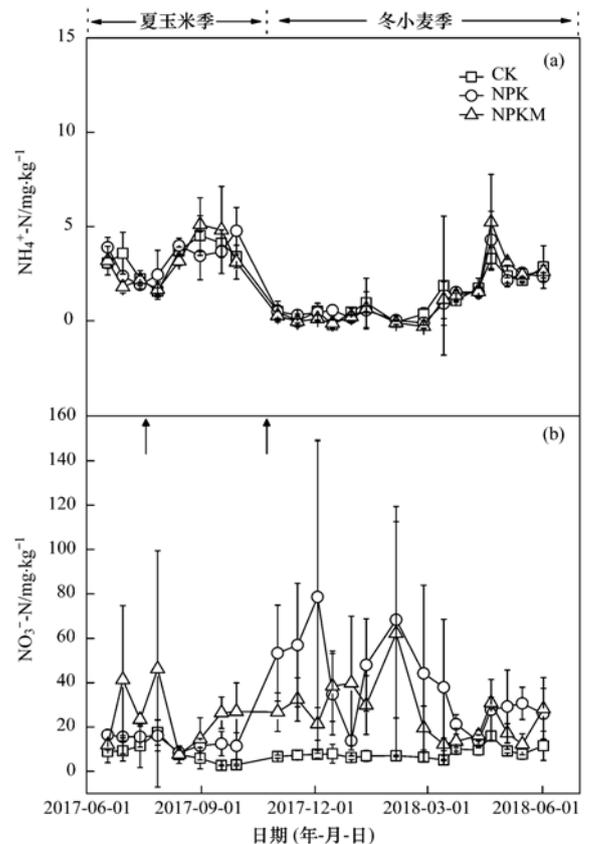
箭头向下表示灌溉,下同

图1 各处理土壤温度(10 cm)和土壤充水孔隙度(WFPS, 5 cm)的季节动态

Fig. 1 Seasonal variations in soil temperature (10 cm depth) and water-filled pore space (5 cm depth) across three treatments

$103.0 \text{ g} \cdot (\text{hm}^2 \cdot \text{d})^{-1}$; 冬小麦季仅在施肥和返青季灌溉后出现排放峰,最高值出现在 NPK 处理,达到 $66.5 \text{ g} \cdot (\text{hm}^2 \cdot \text{d})^{-1}$. 绝大多数时间内排放通量低于 $10.0 \text{ g} \cdot (\text{hm}^2 \cdot \text{d})^{-1}$.

CK 处理 NO 排放通量全年处于较低水平,平均值为 $1.1 \text{ g} \cdot (\text{hm}^2 \cdot \text{d})^{-1}$ [图 3(b)]. 夏玉米季施肥后, NPK 和 NPKM 处理 NO 排放通量多次出现排放峰,最高值出现在 NPKM 处理,达到 $71.0 \text{ g} \cdot (\text{hm}^2 \cdot \text{d})^{-1}$; 冬小麦季, NPK 和 NPKM 处理仅在施肥后出现较弱的排放峰. 绝大多数时间内排放通量低于 $2.0 \text{ g} \cdot (\text{hm}^2 \cdot \text{d})^{-1}$.



箭头向上表示施肥,下同

图2 各处理表层土壤(0~20 cm)铵态氮(NH_4^+-N)、硝态氮(NO_3^--N)含量的季节动态

Fig. 2 Seasonal variations in soil ammonium and nitrate nitrogen contents (0-20 cm layer) across three treatments

2.4 排放总量和排放系数

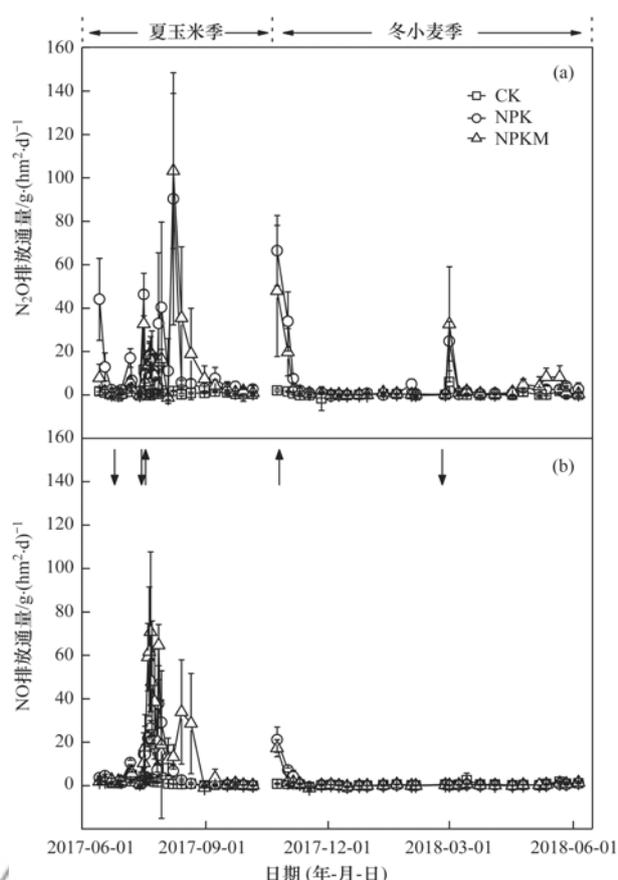
CK 处理 N_2O 年排放总量仅为 $0.21 \text{ kg} \cdot \text{hm}^{-2}$ (表 2), 远低于农田平均背景值 ($1.35 \text{ kg} \cdot \text{hm}^{-2}$)^[23]. NPK 和 NPKM 处理的年排放总量分别为 $2.32 \text{ kg} \cdot \text{hm}^{-2}$ 和 $2.15 \text{ kg} \cdot \text{hm}^{-2}$, 显著高于 CK 处理 ($P < 0.05$); NPKM 处理排放较 NPK 处理减少 7%, 差异不显著 ($P = 0.74$). NPK 和 NPKM 处理年排放系数分别为 0.60% 和 0.55%, 低于全球平均值 1%^[4]. 夏玉米季 3 个处理 N_2O 排放总量为 $0.12 \sim 1.44 \text{ kg} \cdot \text{hm}^{-2}$, 占全年排放总量的 60% ~ 64%. 冬小麦

表2 不同施肥处理 N_2O 的排放总量¹⁾

Table 2 Cumulative N_2O emissions across three treatments

观测期	处理	N_2O 排放总量/ $\text{kg} \cdot \text{hm}^{-2}$		
		夏玉米季	冬小麦季	全年
2014 ~ 2015 年 ^[21]	CK	0.0 ± 0.0c	0.1 ± 0.0b	0.1 ± 0.0b
	NPK	2.0 ± 0.1b	0.6 ± 0.2a	2.6 ± 0.1a
	NPKM	2.5 ± 0.3a	0.4 ± 0.0b	2.9 ± 0.3a
2017 ~ 2018 年	CK	0.12 ± 0.0b	0.08 ± 0.0b	0.21 ± 0.0b
	NPK	1.44 ± 0.6a	0.88 ± 0.1a	2.32 ± 0.4a
	NPKM	1.37 ± 0.4a	0.78 ± 0.3a	2.15 ± 0.7a

1) 同列数据不同字母表示同一观测期不同处理间差异显著 ($P < 0.05$), 下同

图3 各处理 N_2O 和 NO 排放通量的季节变化Fig. 3 Seasonal variations in N_2O and NO fluxes across three treatments表3 不同施肥处理 NO 的排放总量Table 3 Cumulative NO emissions across three treatments

观测期	处理	NO 排放总量/ $kg \cdot hm^{-2}$		
		夏玉米季	冬小麦季	全年
2016 ~ 2017 年 ^[22]	CK	0.09 ± 0.0b	0.04 ± 0.0b	0.13 ± 0.0c
	NPK	0.12 ± 0.0b	0.22 ± 0.1a	0.34 ± 0.1b
	NPKM	0.47 ± 0.1a	0.09 ± 0.0b	0.57 ± 0.2a
2017 ~ 2018 年	CK	0.14 ± 0.0c	0.09 ± 0.0b	0.23 ± 0.0c
	NPK	0.61 ± 0.1b	0.20 ± 0.1a	0.80 ± 0.1b
	NPKM	1.31 ± 0.3a	0.15 ± 0.0ab	1.46 ± 0.4a

长^[25,26]. 但在本研究中, 各处理 N_2O 和 NO 排放通量与土壤 N 底物浓度均未呈现显著相关关系. 仅 N_2O 年排放总量与 $NO_3^- - N$ 含量年平均均值呈显著正相关关系($r^2 = 0.99$, $P < 0.05$), 说明在长时间尺度上 N 底物浓度对气体排放有促进作用. CK处理 N_2O 和 NO 排放通量较低且无明显季节变化(图3), 主要由于 $NH_4^+ - N$ 和 $NO_3^- - N$ 含量较低(图2), 限制了微生物硝化和反硝化过程. 因此, 本研究将重点讨论土壤条件对NPK和NPKM处理气体排放的影响.

土壤水分含量主要通过影响土壤通气状况、氧化还原状态和微生物活性进而影响 N_2O 和 NO 的产生与排放. 在本研究中, 土壤WFPS小于0.25时,

季3个处理 N_2O 排放总量为 $0.08 \sim 0.88 kg \cdot hm^{-2}$. 两季作物均有施肥处理排放总量显著高于CK处理($P < 0.05$), 但NPK和NPKM处理排放总量差异不显著($P > 0.25$).

CK处理 NO 年排放总量为 $0.23 kg \cdot hm^{-2}$ (表3), 低于华北地区观测值($0.40 kg \cdot hm^{-2}$)^[24]. 而NPK和NPKM处理的年排放总量分别为 $0.80 kg \cdot hm^{-2}$ 和 $1.46 kg \cdot hm^{-2}$, 显著高于CK处理($P < 0.05$); NPKM处理排放较NPK处理增加82%, 差异显著($P < 0.05$). NPK和NPKM处理年排放系数分别为0.16%和0.35%, 低于全球平均值1.16%^[25]. 玉米季3个处理 NO 排放总量为 $0.14 \sim 1.31 kg \cdot hm^{-2}$, 占全年排放总量的61%~90%, 施肥处理排放总量显著高于CK处理($P < 0.05$), 且NPKM排放总量显著高于NPK处理($P < 0.05$). 冬小麦季3个处理 NO 排放总量为 $0.09 \sim 0.20 kg \cdot hm^{-2}$, 仅有NPK处理排放总量显著高于CK($P < 0.05$).

3 讨论

3.1 土壤条件对气体排放的影响

土壤 $NH_4^+ - N$ 和 $NO_3^- - N$ 是微生物硝化和反硝化的反应底物, 大量研究显示 N_2O 和 NO 的排放通量随 $NH_4^+ - N$ 和 $NO_3^- - N$ 含量增加呈线性或非线性增

N_2O 及 NO 排放通量均低于 $6.0 g \cdot (hm^2 \cdot d)^{-1}$, 较低的水分含量不仅抑制微生物活性, 还会限制 N 底物在土壤介质中的迁移^[27]; 当WFPS小于0.60时, N_2O 与 NO 排放高值[排放通量 $> 15.0 g \cdot (hm^2 \cdot d)^{-1}$, 由施肥处理 N_2O 、 NO 平均排放通量之和确定]存在较好重合性(图4), 最高值均出现在WFPS为0.30左右, 说明两种气体主要来自于硝化过程, 这与袁梦轩等^[22]的研究结果一致; 而当WFPS > 0.60 时, 仅 N_2O 排放出现高值, 最高值出现在WFPS为0.70左右, 说明 N_2O 主要来自于反硝化过程, 一方面较高的土壤水分含量限制了硝化过程, 不利于 NO 的产生, 另一方面, 较严格的厌氧

环境促进了反硝化过程中 NO 还原为 N_2O ^[3]. 因此, 硝化过程是本研究 NO 排放高峰的主要来源, 而硝化和反硝化过程对 N_2O 排放高峰均有贡献.

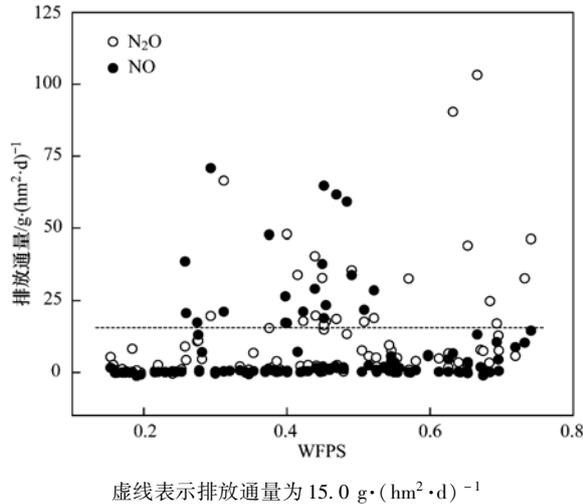


图4 NPK 和 NPKM 处理气体排放通量与 WFPS 的关系

Fig. 4 Relationship between fluxes and WFPS for NPK and NPKM treatments

NO 与 N_2O 的通量摩尔比 (NO/N_2O) 是衡量微生物硝化和反硝化作用相对重要性的指标之一^[28]. 大量研究数据显示 NO/N_2O 比随土壤水分含量增加而降低^[25,26], 说明反硝化过程逐渐占据主导地位. 但在本研究 NPK 和 NPKM 处理中, NO/N_2O 比与 WFPS 均无显著相关关系 ($P > 0.30$). 当土壤温度低于 $20^\circ C$ 时, NO/N_2O 比随 WFPS 升高无明显变化, 可能是由于较低的温度不利于微生物活动; 而当土壤温度高于 $20^\circ C$ 时, 两处理 NO/N_2O 比和 WFPS 均呈现极显著负相关关系 ($r^2 > 0.50$, $P < 0.01$; 图 5), 说明 NO/N_2O 比受到土壤水分含量和温度的共同影响. 同时, NPKM 处理 NO/N_2O 比对水分含量的变化更敏感(斜率的绝对值更大; 图 5), 可能与该处理较高的 SOC 含量有关(表 1). SOC 是反硝化过程的电子供体, 同时为异养反硝化细菌提供能量^[5], 因而有利于反硝化过程中 NO 还原为 N_2O , NO/N_2O 比随之降低. 另外, 当 WFPS 低于 0.40 时, NPK 和 NPKM 处理均出现部分 NO/N_2O 比为负值的情况, 通常表现为土壤吸收 NO, 这可能是由于特定情况下硝化细菌反硝化作用导致 NO 的消耗^[29]. 但土壤作为 NO 的汇, 其强度在全年尺度上几乎可以忽略不计[图 3(b)].

3.2 施用牛粪对气体排放的影响

本研究中, NPKM 处理 N_2O 年排放量略低于 NPK 处理(表 2), 但差异不显著 ($P = 0.74$). 而相同处理 2014 ~ 2015 年的观测结果则显示 NPKM 处理 N_2O 年排放量略高于 NPK 处理^[21]. N_2O 排放年际

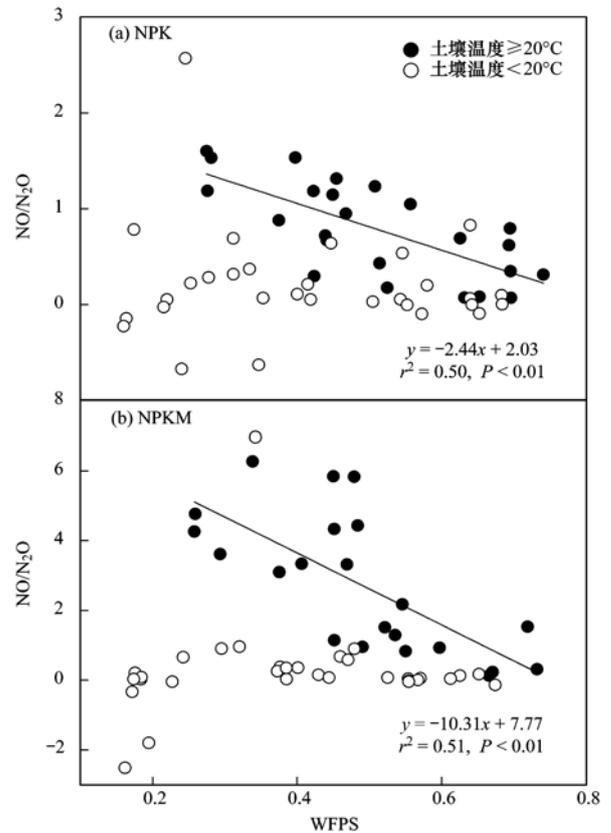


图5 NPK 和 NPKM 处理 NO/N_2O 比与 WFPS 的关系

Fig. 5 Relationship between NO/N_2O and WFPS for NPK and NPKM treatments

间差异主要发生在玉米季, 这可能与土壤状况有关. 如 2015 年玉米季土壤 WFPS 平均值为 0.57, 最高值为 0.99^[21], 较高的土壤水分含量有利于反硝化过程, 因此, SOC 含量更高的 NPKM 处理释放的 N_2O 显著高于 NPK 处理(分别为 $2.5 \text{ kg}\cdot\text{hm}^{-2}$ 和 $2.0 \text{ kg}\cdot\text{hm}^{-2}$; 表 2); 而在本研究中玉米季土壤 WFPS 平均值为 0.51, 最高值仅为 0.77(图 1), 较低的土壤水分含量导致 NPKM 和 NPK 处理 N_2O 排放无显著差异(分别为 $1.37 \text{ kg}\cdot\text{hm}^{-2}$ 和 $1.44 \text{ kg}\cdot\text{hm}^{-2}$; 表 2). 其它原因可能还包括作物生长状况以及施肥、灌溉等管理措施与天气条件的配合等. 如 2015 年玉米季在施肥 1 周后进行灌溉, 大量尿素经水解、硝化后以 NO_3^- -N 形态累积, 灌溉后则通过反硝化作用产生 N_2O 排放高峰, 最高峰值达到 $495.0 \text{ g}\cdot(\text{hm}^2\cdot\text{d})^{-1}$ ^[21]; 而本研究玉米季在施肥前进行灌溉, N_2O 排放最高峰值仅为 $103.0 \text{ g}\cdot(\text{hm}^2\cdot\text{d})^{-1}$, 季节总量也较 2015 年玉米季偏低. 总之, 两个观测周期的数据均显示, 长期施用牛粪对 N_2O 年排放量无显著影响. 侯苗苗等^[30]的研究结果显示粪肥对 N_2O 排放的影响可能与粪肥替代化肥的比例有关.

本研究中, NPKM 处理 NO 年排放量较 NPK 处

理增加 82% ($P < 0.05$, 表 3), 与相同处理 2016 ~ 2017 年的观测结果一致^[22], 表明长期施用牛粪促进了 NO 排放. 两个冬小麦季中 NPKM 处理 NO 排放量均低于 NPK 处理(表 3), 说明施用牛粪降低了当季 NO 排放, 主要原因有: ①牛粪部分替代尿素降低了引入土壤中速效 N 的浓度; ②牛粪 C/N 比较高, 分解过程中微生物吸收土壤 N 底物, 进而限制了硝化和反硝化过程的 N 底物供给. 两个夏玉米季 NPKM 处理 NO 排放量均显著高于 NPK 处理(表 3), 可能与玉米季仅施用化肥及 NPKM 处理较高的 SOC 含量有关^[22]. 本研究 NPKM 和 NPK 处理 NO 排放量较 2016 ~ 2017 年的观测结果偏高 136% ~ 156%, 年际间差异主要发生在玉米季(表 3), 这可能与玉米季的土壤水分状况有关. 本研究中玉米季土壤 WFPS 相对较低, 因而有利于硝化过程和 NO 的产生. 但粪肥替代化肥的比例是否对 NO 排放有影响尚需进一步研究.

NPK 处理 N_2O 和 NO 气体年综合排放量为 $3.13 \text{ kg} \cdot \text{hm}^{-2}$, NPKM 为 $3.62 \text{ kg} \cdot \text{hm}^{-2}$, 差异不显著 ($P = 0.51$). 两处理气体综合排放系数分别为 0.76% 和 0.90%, 远低于全球平均水平(2.58%)^[25]. 由于气体排放存在较大的年际间差异, 准确评估施用粪肥对关中平原夏玉米-冬小麦体系农田 N_2O 和 NO 排放的影响还需要连续多年的观测.

4 结论

(1) 对照、全化肥和化肥加牛粪处理的 N_2O 年排放总量分别为 0.21、2.32 和 2.15 $\text{kg} \cdot \text{hm}^{-2}$; NO 年排放总量分别为 0.23、0.80 和 1.46 $\text{kg} \cdot \text{hm}^{-2}$. 全化肥和化肥加牛粪处理的 N_2O 年排放系数分别为 0.60% 和 0.55%; NO 年排放系数分别为 0.16% 和 0.35%. 长期定位施用牛粪对 N_2O 排放无显著影响, 对 NO 排放有显著的促进作用.

(2) 土壤充水孔隙度在 0.30 和 0.70 时均出现 N_2O 排放高峰, 说明 N_2O 排放与硝化和反硝化过程有关; 而 NO 排放高峰仅出现在土壤充水孔隙度在 0.30 时, 说明 NO 排放仅与硝化过程有关.

(3) 土壤温度高于 20℃ 时, 施肥处理 NO/ N_2O 比和土壤充水孔隙度呈现极显著负相关关系, 说明温度和土壤水分含量可调节硝化、反硝化作用的相对重要性.

参考文献:

- [1] Ravishankara A R, Daniel J S, Portmann R W. Nitrous oxide (N_2O): the dominant ozone-depleting substance emitted in the 21st century[J]. *Science*, 2009, **326**(5949): 123-125.
- [2] Davidson E A. The contribution of manure and fertilizer nitrogen to atmospheric nitrous oxide since 1860[J]. *Nature Geoscience*, 2009, **2**(9): 659-662.
- [3] Pilegaard K. Processes regulating nitric oxide emissions from soils [J]. *Philosophical Transactions of the Royal Society B: Biological Sciences*, 2013, **368**(1621): 20130126.
- [4] Stehfest E, Bouwman L. N_2O and NO emission from agricultural fields and soils under natural vegetation: summarizing available measurement data and modeling of global annual emissions[J]. *Nutrient Cycling in Agroecosystems*, 2006, **74**(3): 207-228.
- [5] Firestone M K, Davidson E A. Microbiological basis of NO and N_2O production and consumption in soil[A]. In: Andreae M O, Schimel D S (Eds.). *Exchange of trace Gases Between Terrestrial Ecosystems and the Atmosphere* [M]. Chichester: John Wiley and Sons, Inc., 1989. 7-21.
- [6] Leitner S, Homyak P M, Blankinship J C, et al. Linking NO and N_2O emission pulses with the mobilization of mineral and organic N upon rewetting dry soils [J]. *Soil Biology and Biochemistry*, 2017, **115**: 461-466.
- [7] Cheng Y, Wang J, Wang S Q, et al. Effects of temperature change and tree species composition on N_2O and NO emissions in acidic forest soils of subtropical China [J]. *Journal of Environmental Sciences*, 2014, **26**(3): 617-625.
- [8] Wu X, Liu H F, Fu B J, et al. Effects of land-use change and fertilization on N_2O and NO fluxes, the abundance of nitrifying and denitrifying microbial communities in a hilly red soil region of southern China [J]. *Applied Soil Ecology*, 2017, **120**: 111-120.
- [9] Loick N, Dixon E, Abalos D, et al. "Hot spots" of N and C impact nitric oxide, nitrous oxide and nitrogen gas emissions from a UK grassland soil [J]. *Geoderma*, 2017, **305**: 336-345.
- [10] Yao Z S, Zheng X H, Wang R, et al. Greenhouse gas fluxes and NO release from a Chinese subtropical rice-winter wheat rotation system under nitrogen fertilizer management [J]. *Journal of Geophysical Research Biogeosciences*, 2013, **118**(2): 623-638.
- [11] Smith P, Martino D, Cai Z, et al. Greenhouse gas mitigation in agriculture [J]. *Philosophical Transactions of the Royal Society B: Biological Sciences*, 2008, **363**(1492): 789-813.
- [12] Tilman D, Cassman K G, Matson P A, et al. Agricultural sustainability and intensive production practices [J]. *Nature*, 2002, **418**(6898): 671-677.
- [13] Zhang W F, Dou Z X, He P, et al. New technologies reduce greenhouse gas emissions from nitrogenous fertilizer in China [J]. *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America*, 2013, **110**(21): 8375-8380.
- [14] Gai X P, Liu H B, Liu J, et al. Long-term benefits of combining chemical fertilizer and manure applications on crop yields and soil carbon and nitrogen stocks in North China Plain [J]. *Agricultural Water Management*, 2018, **208**: 384-392.
- [15] Zhou P, Sheng H, Li Y, et al. Lower C sequestration and N use efficiency by straw incorporation than manure amendment on paddy soils [J]. *Agriculture, Ecosystems & Environment*, 2016, **219**: 93-100.
- [16] Gu J X, Yuan M X, Liu J X, et al. Trade-off between soil organic carbon sequestration and nitrous oxide emissions from winter wheat-summer maize rotations: implications of a 25-year fertilization experiment in Northwestern China [J]. *Science of the Total Environment*, 2017, **595**: 371-379.
- [17] Vallejo A, Skiba U M, García-Torres L, et al. Nitrogen oxides emission from soils bearing a potato crop as influenced by fertilization with treated pig slurries and composts [J]. *Soil Biology and Biochemistry*, 2006, **38**(9): 2782-2793.
- [18] Hayakawa A, Akiyama H, Sudo S, et al. N_2O and NO emissions

- from an Andisol field as influenced by pelleted poultry manure [J]. *Soil Biology and Biochemistry*, 2009, **41** (3): 521-529.
- [19] 肖乾颖, 黄有胜, 胡廷旭, 等. 施肥方式对紫色土农田生态系统 N_2O 和 NO 排放的影响[J]. *中国生态农业学报*, 2018, **26**(2): 203-213.
Xiao Q Y, Huang S Y, Hu T X, *et al.* Effects of fertilization regimes on N_2O and NO emissions from agro-ecosystem of purplish soil [J]. *Chinese Journal of Eco-Agriculture*, 2018, **26** (2): 203-213.
- [20] Lu Y L, Chen Z J, Kang T T, *et al.* Land-use changes from arable crop to kiwi-orchard increased nutrient surpluses and accumulation in soils [J]. *Agriculture, Ecosystems & Environment*, 2016, **223**: 270-277.
- [21] 郝耀旭, 刘继璇, 袁梦轩, 等. 长期定位有机物料还田对关中平原冬小麦-玉米轮作土壤 N_2O 排放的影响[J]. *环境科学*, 2017, **38**(6): 2586-2593.
Hao Y X, Liu J X, Yuan M X, *et al.* Effects of long-term organic amendments on soil N_2O emissions from winter wheat-maize cropping systems in the Guanzhong Plain [J]. *Environmental Science*, 2017, **38**(6): 2586-2593.
- [22] 袁梦轩, 王晋峰, 谭跃慧, 等. 长期定位有机物料还田对关中平原夏玉米-冬小麦轮作土壤 NO 排放的影响[J]. *环境科学*, 2018, **39**(6): 2819-2826.
Yuan M X, Wang J F, Tan Y H, *et al.* Effect of long-term organic amendments on nitric oxide emissions from the summer maize-winter wheat cropping system in Guanzhong Plain [J]. *Environmental Science*, 2018, **39**(6): 2819-2826.
- [23] Gu J X, Zheng X H, Wang Y H, *et al.* Regulatory effects of soil properties on background N_2O emissions from agricultural soils in China [J]. *Plant and Soil*, 2007, **295** (1-2): 53-65.
- [24] Gui F, Yan G X, Zhou Z X, *et al.* Annual emissions of nitrous oxide and nitric oxide from a wheat-maize cropping system on a silt loam calcareous soil in the North China Plain [J]. *Soil Biology and Biochemistry*, 2012, **48**: 10-19.
- [25] Liu S W, Lin F, Wu S, *et al.* A meta-analysis of fertilizer-induced soil NO and combined $NO-N_2O$ emissions [J]. *Global Change Biology*, 2017, **23**(6): 2520-2532.
- [26] Davidson E A, Verchot L V. Testing the hole-in-the-pipe model of nitric and nitrous oxide emissions from soils using the TRAGNET database [J]. *Global Biogeochemical Cycles*, 2000, **14**(4): 1035-1043.
- [27] 刘显, 费良军, 王佳, 等. 土壤初始含水率对涌泉根灌土壤水分及氮素运移特性的影响[J]. *水土保持学报*, 2017, **31** (4): 118-126.
Liu X, Fei L J, Wang J, *et al.* Transport characteristics of water and nitrogen under bubbled-root irrigation with soil initial water content [J]. *Journal of Soil and Water Conservation*, 2017, **31** (4): 118-126.
- [28] Cheng Y, Xie W, Huang R, *et al.* Extremely high N_2O but unexpectedly low NO emissions from a highly organic and chemical fertilized peach orchard system in China [J]. *Agriculture, Ecosystems & Environment*, 2017, **246**: 202-209.
- [29] Wrage-Mönnig N, Horn M A, Well R, *et al.* The role of nitrifier denitrification in the production of nitrous oxide revisited [J]. *Soil Biology and Biochemistry*, 2018, **123**: A3-A16.
- [30] 侯苗苗, 吕凤莲, 张弘弢, 等. 有机氮替代比例对冬小麦/夏玉米轮作体系作物产量及 N_2O 排放的影响[J]. *环境科学*, 2018, **39**(1): 321-330.
Hou M M, Lü F L, Zhang H T, *et al.* Effect of organic manure substitution of synthetic nitrogen on crop yield and N_2O emission in the winter wheat-summer maize rotation system [J]. *Environmental Science*, 2018, **39**(1): 321-330.

CONTENTS

Influence of Mountain Valley Breeze and Sea Land Breeze in Winter on Distribution of Air Pollutants in Beijing-Tianjin-Hebei Region	LI Qing-chun, LI Ju, ZHENG Zuo-fang, <i>et al.</i> (513)
A Method of Aerosol Particle Number Size Distribution Inversed by PM _{2.5} Mass Concentration in PRD	LI Fei, TAN Hao-bo, DENG Xue-jiao, <i>et al.</i> (525)
Light Absorption and Fluorescence Characteristics of Atmospheric Water-soluble Organic Compounds and Humic-like Substances During the Winter Season in Guangzhou	FAN Xing-jun, YU Xu-fang, CAO Tao, <i>et al.</i> (532)
Source Apportionment and Health Risk Quantification of Heavy Metals in PM _{2.5} in Yangzhou, China	DONG Shi-hao, XIE Yang, HUANGFU Yan-qi, <i>et al.</i> (540)
Pollution Characteristics and Source Analysis of <i>n</i> -alkanes and Saccharides in PM _{2.5} During the Winter in Liaocheng City	LIU Xiao-di, MENG Jing-jing, HOU Zhan-fang, <i>et al.</i> (548)
Pollution Characteristics, Dry Deposition Fluxes, and Sources for Atmospheric Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in the Bosten Lake Watershed	SONG Shi-jie, HUANG Tao, ZHAO Liu-yuan, <i>et al.</i> (558)
Distribution Characteristics of Antibiotic Resistance Genes in PM _{2.5} of a Concentrated Broiler Feeding Operation	LIU Fei, XU Xia, TU Bo-wen, <i>et al.</i> (567)
Effects of Water Vapor Source and Local Evaporation on the Stable Hydrogen and Oxygen Isotopic Compositions of Precipitation	HU Yong-bo, XIAO Wei, QIAN Yu-fei, <i>et al.</i> (573)
Characteristics of Nitrogen and Phosphorus Formation in Atmospheric Deposition in Dianchi Lake and Their Contributions to Lake Loading	REN Jia-guo, JIA Hai-bin, JIAO Li-xin, <i>et al.</i> (582)
Temporal-spatial Distribution of Nitrogen and Phosphorus Nutrients in Lake Taihu Based on Geostatistical Analysis	LÜ Wei-wei, YAO Xin, ZHANG Bao-hua, <i>et al.</i> (590)
Effects of Cyanobacterial Blooms in Eutrophic Lakes on Water Quality of Connected Rivers	YU Mao-lei, HONG Guo-xi, XU Hai, <i>et al.</i> (603)
Contamination and Potential Ecological Risk Assessment of Heavy Metals in the Sediments of Yilong Lake, Southwest China	LI Xiao-lin, LIU En-feng, YU Zhen-zhen, <i>et al.</i> (614)
Temporal and Spatial Characteristics of Heavy Metals in Suspended Particulate Matter in Pearl River Estuary and Its Influencing Factors	DU Jia, WANG Yong-hong, HUANG Qing-hui, <i>et al.</i> (625)
Pollution Characteristics and Health Risk Assessment of Microorganism Pollutions in the Beiyun River	CHEN Lei, LI Lei-fang, ZHI Xiao-sha, <i>et al.</i> (633)
Speciation and Transformation of Phosphorus in Sediments During the Redox Cycle	HAO Wen-chao, WANG Cong-feng, YANG Zheng-jian, <i>et al.</i> (640)
Effect of Magnetic Zirconium/Iron-Modified Bentonite Addition on Phosphorus Mobilization and Species Transformation in River Sediments	WANG Yan, LIN Jian-wei, ZHAN Yan-hui, <i>et al.</i> (649)
Influence of Calcium Ion Pre-treatment on Phosphate Adsorption onto Magnetic Zirconium/Iron-modified Bentonite	ZHAO Yu-ying, LIN Jian-wei, ZHANG Hong-hua, <i>et al.</i> (658)
Effect of Nitrogen on Magnesium Modified Biochar Adsorption to Phosphorus	ZHI Meng-meng, WANG Peng-fei, HOU Ze-ying, <i>et al.</i> (669)
Removal Performance and Mechanism for Treating Phosphorus in Agricultural Wastewater by Three Adsorbents	WU Lu, LIU Feng, LONG Rui, <i>et al.</i> (677)
Photolysis Mechanism of <i>p</i> -Nitrophenol by Nitrocellulose Membrane in Aqueous Solution	DAI Zhi-feng, ZHAO Tong-qian, YIN Yong-guang, <i>et al.</i> (685)
Preparation of ZnTiO ₃ /TiO ₂ Photocatalyst and Its Mechanism on Photocatalytic Degradation of Organic Pollutants	ZHANG Wen-hai, JI Qing-hua, LAN Hua-chun, <i>et al.</i> (693)
Adsorption and Photocatalytic Removal of Chromium on High-index TiO ₂ Facet	ZHONG De-jian, ZHANG Jian-feng, LI Yao, <i>et al.</i> (701)
Reduction Cooperated Fenton Oxidation of Zero-valent Iron (ZVI) Immobilized in Alginate Microsphere for Degradation of Acid Red B	ZHANG Huan, LI Shuang-shuang, WEI Jun-fu, <i>et al.</i> (708)
Mechanism of Removing Iron and Manganese from Drinking Water Using Manganese Ore Sand and Quartz Sand as Filtering Material	CAI Yan-an, BI Xue-jun, ZHANG Jia-ning, <i>et al.</i> (717)
Preparation of Sulfonated Graphene Oxide Modified Composite Nanofiltration Membrane and Application in Salts Separation	ZHANG Yan-jun, ZHANG Shao-feng, ZHAO Chang-wei, <i>et al.</i> (724)
Purification Efficiency and Mechanism of Integrated Al Salt Flocculation-ultrafiltration Membrane Process	XUE Wen-jing, LI Wen-jiang, LIU Jian, <i>et al.</i> (730)
Threshold Flux and Membrane Fouling Analysis of the Hybrid Pre-ozonation and CNTs Membrane Modification Process	WANG Kai-lun, LIU Fang, GUAN Yu-qi, <i>et al.</i> (738)
Distribution and Removal of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons and Their Derivatives in SBR/MBBR Process	LIU Shu-hui, TIAN Wei-jun, ZHOU Jian-ren, <i>et al.</i> (747)
Biological Nitrogen Removal Process in a Microbubble-aerated Biofilm Reactor Treating Low C/N Wastewater	LIU Chun, WANG Cong-cong, CHEN Xiao-xuan, <i>et al.</i> (754)
Treatment of Simulated Saline Wastewater from the Coal Chemical Industry Using Ecological Floating Beds Enhanced with Arbuscular Mycorrhiza	DOU Wen-qing, HE Hao, SONG Wen-ping, <i>et al.</i> (761)
Nitrification and Bioaugmentation of Biological Treatment System of Sewage Treatment Plant at High Temperature in Summer	SONG Tian-wei, SHENG Xiao-lin, WANG Jia-de, <i>et al.</i> (768)
Characteristics of Ammonia Adsorption and Kinetics by Nitrifying Sludge Immobilized Pellets	YU De-shuang, LÜ Ting-ting, CHEN Guang-hui, <i>et al.</i> (774)
Nitrite Accumulation Characteristics of Partial Denitrification in Different Sludge Sources Using Sodium Acetate as Carbon Source	BI Chun-xue, YU De-shuang, DU Shi-ming, <i>et al.</i> (783)
Operating Characteristics of a DPR-SNED System Treating Low C/N Municipal Wastewater and Nitrate-containing Sewage	DU Shi-ming, YU De-shuang, BI Chun-xue, <i>et al.</i> (791)
Simultaneous Nitrification and Denitrifying Phosphorus Removal in Continuous Flow Reactor with Intermittent Aeration	ZHAO Zhi-chao, HUANG Jian-ming, LI Jian, <i>et al.</i> (799)
Start-up and Stable Operation of ABR-MBR Denitrifying Phosphorus Removal Process	WEI Jia-min, JIANG Zhi-yun, CHENG Cheng, <i>et al.</i> (808)
Effect of Influent C/N Ratio on the Nutrient Removal Characteristics of SNEDPR Systems	DU Ye-qi, YU De-shuang, ZHEN Jian-yuan, <i>et al.</i> (816)
Carbon and Nitrogen Removal Characteristics of ABR Decarbonization-CANON Coupling Process	LI Tian, YIN Wen, WANG Xin-zhu, <i>et al.</i> (823)
Effect of Aeration Density on Start-up of CANON Process	LI Dong, GAO Xue-jian, ZHANG Jie, <i>et al.</i> (829)
Adjusting Temperature and Settling Time to Achieve ANAMMOX Particles Rapid Start-up and Stable Operation	LI Hai-ling, LI Dong, ZHANG Jie, <i>et al.</i> (837)
Effect of C/N and Sludge Concentration on the pH-Regulated Nitrosation System	ZHANG Min, WEI Jia-min, HUANG Hui-min, <i>et al.</i> (845)
Growth Features of Water Supply Pipeline Biofilms Based on Active Microorganisms	WANG Yang, ZHU Bin, TONG Jun, <i>et al.</i> (853)
Elevational Distribution Characteristics of Soil Bacterial Community and Enzyme Activities in Mount Huangshan	YAO Lan, HU Li-huang, ZHANG Huan-chao, <i>et al.</i> (859)
Microbial Community Structure Shift during Bioremediation of Petroleum Contaminated Soil Using High Throughput Sequencing	QI Yan-yun, WU Man-li, ZHU Chang-cheng, <i>et al.</i> (869)
Effect of Nitrification on N ₂ O Emissions and Their Environmental Factors in Saline-alkali Wetlands	YANG Qu, GAO Wei-feng, LIU Feng-qin, <i>et al.</i> (876)
Effect of Long-term Dairy Manure Amendment on N ₂ O and NO Emissions from Summer Maize-Winter Wheat Cropping Systems	NIE Huang-hua, ZHANG Jia-sheng, HE Zhou-ming, <i>et al.</i> (885)
Effects of Plastic Film Mulching and Nitrogen Fertilizer Application on N ₂ O Emissions from a Vegetable Field	NI Xue, HAO Qing-ju, CHEN Shi-jie, <i>et al.</i> (893)
Differences and Relationship Between Rhizosphere Characteristics and Methane Emissions of Double-cropping Rice Variety	XIAO Zhi-xiang, FU Zhi-qiang, XU Hua-qin, <i>et al.</i> (904)
Effect of Long-Term Biochar Application on Soil Respiration in Flue-Cured Tobacco Planting Fields in Henan Province	LI Ya-sen, DING Song-shuang, YIN Quan-yu, <i>et al.</i> (915)
Spatial Variability in Soil Respiration Under Different Land Use Patterns in Maocun Village, Guilin	DING Meng-kai, HU Xiao-nong, CAO Jian-hua, <i>et al.</i> (924)
Spatiotemporal Variability and Source Apportionment of Soil Heavy Metals in a Industrially Developed City	LI Feng, LIU Si-yuan, LI Yan, <i>et al.</i> (934)
Effects of Bentonite on Chemical Forms and Bioavailability of Heavy Metals in Different Types of Farmland Soils	LIN Hai, JIN Xiao-na, DONG Ying-bo, <i>et al.</i> (945)
Characteristics of Soil Organic Carbon and Mineralization with Different Stands in Jinyun Mountain	CHEN Shi-qi, LÜ Sheng, GAO Ming, <i>et al.</i> (953)
Contribution of Root Biomass to Soil Organic Carbon Under Complex Landforms Conditions	ZHANG Yan-jun, GUO Sheng-li (961)
Transformation and Distribution of Soil Organic Carbon and the Microbial Characteristics in Response to Different Exogenous Carbon Input Levels in Paddy Soil	WANG Ji-fei, TONG Yao-yao, ZHU Zhen-ke, <i>et al.</i> (970)
Analysis of Heavy Metal Pollution and Ecological Risk Assessment on Vegetation Leaves in Baoji City	ZHANG Jun-hui, LIN Qing, JIANG Shan, <i>et al.</i> (978)
Effect of Biochar on Available Heavy Metals During Sewage Sludge Composting and Land Application of Compost	ZHOU Ji, YU Ya-wei, JIANG Yue, <i>et al.</i> (987)
Influence of Sludge Retention Time on the Performance and Stability of Mesophilic Anaerobic Co-digestion of Food Waste with Waste Activated Sludge	YUAN Hong-lin, MA Jing, XING Bao-shan, <i>et al.</i> (994)
Performance of Treating Straw and Animal Manure Mixture by an Integrated Process of Thermo-alkali-bi-enzyme Hydrolysis-anaerobic Digestion and Conditions of High Methane Yield	BIAN Ai-qin, YUAN Ye, ZHANG Lu-lu, <i>et al.</i> (1003)