

巢湖流域河流沉积物 N_2O 释放对水体溶存 N_2O 贡献研究

杨丽标^{1,2}, 王芳¹, 晏维金^{1*}

(1.中国科学院地理科学与资源研究所, 北京 100101; 2.中国环境科学研究院河流与海岸带环境创新基地, 北京 100012)

摘要:2010年11月在巢湖支流丰乐河与杭埠河采用现场培养和实测方法研究了沉积物 N_2O 释放对水体(水柱)溶存 N_2O 的影响,并采用 NO_3^- 削减法估算了沉积物的反硝化速率。研究表明,丰乐河与杭埠河 N_2O 平均溶存浓度分别为 $0.26 \pm 0.10(\text{SD}) \mu\text{g N}-\text{N}_2\text{O} \cdot \text{L}^{-1}$ 和 $0.18 \pm 0.04(\text{SD}) \mu\text{g N}-\text{N}_2\text{O} \cdot \text{L}^{-1}$, 饱和度分别为 186% 和 151%, 表明两条河流为大气 N_2O 的潜在释放源。丰乐河与杭埠河沉积物-水界面 N_2O 平均释放通量分别为 0.39 ± 0.44 、 $0.15 \pm 0.16 \mu\text{g N}-\text{N}_2\text{O} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{h}^{-1}$, 由此可分别贡献水体中约 89% 和 45% 的溶存 N_2O 。对河流沉积物的反硝化速率估算结果表明,丰乐河与杭埠河沉积物反硝化速率分别为 0.12 ± 0.07 、 $0.10 \pm 0.05 \text{ mg N} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{h}^{-1}$, 与已有的沉积物反硝化速率报道相比较低。

关键词:沉积物;溶存 N_2O ;释放通量;反硝化速率

中图分类号:X511 文献标志码:A 文章编号:1672-2043(2013)04-0771-07 doi:10.11654/jaes.2013.04.017

N_2O Flux Across Sediments-water Interface and Its Contribution to Dissolved N_2O in the Chao Lake Tributaries, China

YANG Li-biao^{1,2}, WANG Fang¹, YAN Wei-jin^{1*}

(1. Institute of Geographic Sciences and Natural Resources Research, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100101, China; 2. River and Coastal Environment Research Center, Chinese Research Academy of Environmental Sciences, Beijing 100012, China)

Abstract: An in situ incubation and measurement was conducted in November 2010 in Fengle River and Hangbu River, two major tributaries of Chao Lake, to investigate the impact of sediment on dissolved N_2O in water column and the denitrification rate of sediments. Results showed that Fengle River and Hangbu River were both supersaturated with N_2O with a mean concentration of $0.26 \pm 0.10 \mu\text{g N}-\text{N}_2\text{O} \cdot \text{L}^{-1}$ (186 in percent saturation) and $0.18 \pm 0.04(\text{SD})$ (151 in percent saturation) $\mu\text{g N}-\text{N}_2\text{O} \cdot \text{L}^{-1}$, respectively. This suggested the studied rivers were potential sources of atmospheric N_2O . The mean N_2O flux across sediment-water interface was $0.39 \pm 0.44(\text{SD}) \mu\text{g N}-\text{N}_2\text{O} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{h}^{-1}$ in Fengle River and $0.15 \pm 0.16(\text{SD}) \mu\text{g N}-\text{N}_2\text{O} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{h}^{-1}$ in Hangbu River. It was estimated that about 89% of the dissolved N_2O in Fengle River and 45% of the dissolved N_2O in Hangbu River was contributed by river sediments. Denitrification rate in sediments was estimated through the reduction of nitrate over incubation time. The mean denitrification rate in sediments was $0.12 \pm 0.07 \text{ mg N} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{h}^{-1}$ in Fengle River and $0.10 \pm 0.05 \text{ mg N} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{h}^{-1}$ in Hangbu River, which is relatively low than values previously reported for different aquatic ecosystems.

Keywords: sediment; dissolved N_2O ; release flux; denitrification rate

N_2O 是一种重要的温室气体,增温潜势约为 CO_2 的 300 倍,是“京都协议书”中明确削减的温室气体之一^[1]。 N_2O 的产生及释放与氮素的生物地球化学过程紧密相关^[2]。在全球河流氮负荷增加的背景下,世界上

很多河流溶存 N_2O 已经处于过饱和状态,成为大气 N_2O 的潜在释放源^[3]。估算表明,到 2050 年大气中约有 25% 的 N_2O 来源于河流释放^[4]。因此,河流系统对全球 N_2O 的收支平衡发挥着重要作用^[5]。

河流生态系统 N_2O 的产生及释放涉及不同的界面和过程,目前国内外的研究主要集中于 N_2O 的产生及水-气界面释放两个方面, N_2O 的主要生成过程及不同水环境条件下的主要驱动因子已基本明确^[6-8]。有关水-气界面 N_2O 释放,无论是在测定方法还是在释放通量的时空变化、释放与环境因子的响应机制都取

收稿日期:2012-05-10

基金项目:国家自然科学基金“河流溶存 N_2O 及其在水气界面的交换过程”(20777073);国家自然科学基金“河流沉积物对水体溶存 N_2O 贡献及其不同反硝化过程 N_2O 产生速率研究”(41203080)

作者简介:杨丽标(1981—),男,博士后,河北保定人,研究方向为氮素的环境与生物地球化学过程。E-mail: lbyang123@126.com

* 通信作者:晏维金 E-mail: yanwj@igsnrr.ac.cn

得了较为丰富的研究成果^[9-10]。河流沉积物氮素水平较高,其硝化或反硝化过程产生的 N_2O 显著影响着 N_2O 溶存浓度及水气通量^[11],水体在低氧条件下也可能发生反硝化作用并释放 N_2O 。然而,水体中多大比例的溶存 N_2O 来源于沉积物释放仍缺乏定量的研究报告。不少研究采用室内培养方法报道了沉积物水界面 N_2O 释放通量及反硝化速率,但这种方法往往对某些影响因素进行限制,研究结论具有较大局限性^[6]。因此,如何设计可靠的研究方案,加强野外实测研究对于了解河流沉积物对水体溶存 N_2O 贡献显得非常必要。

本文于 2010 年 11 月采用现场实测方法,以巢湖流域的丰乐河与杭埠河为例,对沉积物-水界面 N_2O 释放通量进行了测定,并定量分析了沉积物对河流溶存 N_2O 的影响;同时本文对河流沉积物的反硝化速率进行了估算。

1 材料与方法

1.1 研究区域

研究以巢湖流域两条支流丰乐河与杭埠河为研究对象,在两条河流下游分别布置一个采样点。采样点基本信息及样点位置如表 1 和图 1 所示。

1.2 研究方法与样品采集

将 4 根 PVC 管(内径 11 cm)插入河流沉积物 20 cm 深处后加以固定(固定方法:用木板紧贴管外壁插入沉积物中,将木板和 PVC 管捆绑固定),连续采样测定管内水体溶存 N_2O 、 NO_3^- 、 NH_4^+ 、溶解氧(DO)浓

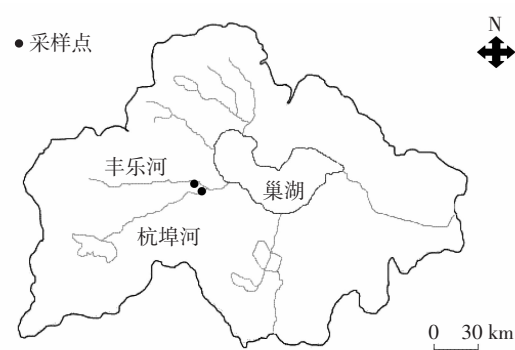


图 1 研究样点布置示意图

Figure 1 Map of sampling sites

度。另用 4 根封住底口的 PVC 管(在侧面打孔,孔径 2 cm)放入采样点沉积物表层后固定;待管内自然注入河水后用涂有胶水的橡胶塞紧紧堵住侧孔,同样测定水体溶存 N_2O 、 NO_3^- 、 NH_4^+ 、DO 浓度。研究方法示意及实测图见图 2。

为了保证试验过程中 PVC 管内水体与外部水体不发生交换,研究前期,作者对方案的可行性进行了验证。首先按上述方法将 PVC 管布置于采样点,然后向有孔管内水体加入足够量红色墨水。30 min 内,外部水体并未显现红色墨水迹象,证明了本方案的可行性。另外,试验过程中两种处理 PVC 管顶部均不封闭,以避免 PVC 管顶空 N_2O 累积对水体溶存 N_2O 浓度的影响。整个过程中观测断面的风速均 $<1.5 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ (测定高度距河面 2 m,风速仪型号 AK-03),没有降水,降低了外源因素对研究结果的干扰。

为了保证取样过程中样品有昼夜的重复及沉积物系统 N_2O 的自然产生过程充分发生,本研究采样时间设为 46 h(共 7 次取样,每次取样两次重复)。到试验结束,每个水柱共取水样约 2 L,而每个水柱内水的体积均 $>60 \text{ L}$,因此柱内水体减少对 N_2O 溶存浓度的影响较小。本文中含沉积物和不含沉积物水体 N_2O

表 1 采样点基本信息

Table 1 Basic information of the sampling sites

采样点	采样时间	水深/m	河宽/m	流速/ $\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$	流量/ $\text{m}^3\cdot\text{s}^{-1}$
丰乐河	2010.11.1—3	1.5	90	0.5	70
杭埠河	2010.11.5—7	1.7	110	0.7	135

注:流速、流量值为年均值,数据来源于安徽省水文局。

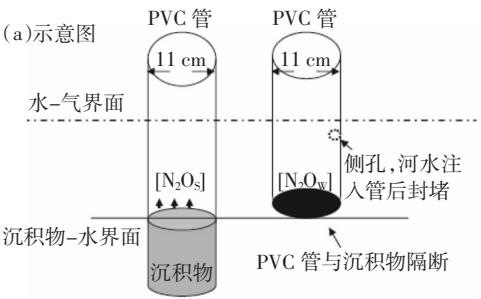


图 2 现场测定示意图及实测图

Figure 2 Plotted and in situ measurement maps

溶存浓度分别用 N₂O_s 和 N₂O_w 表示。研究认为 N₂O_s 一部分来自于河流水体一部分来自于河流沉积物释放,而 N₂O_w 全部来自于河流水体的产生过程,二者的差值 ΔN₂O(N₂O_s-N₂O_w)或比例(N₂O_s/N₂O_w)反映了沉积物对水体溶存 N₂O 的贡献。

研究用 60 mL 血清瓶采集水样,用于测定水体 N₂O 溶存浓度,样品采集(抽取)过程中尽量避免对水体的扰动。为了避免滴加 KOH 溶液对水样溶存 N₂O 浓度造成影响,本研究在水样采集完毕后向采样瓶中添加固体 KOH,并使其最终浓度保持在 0.1 mol·L⁻¹ 左右,以抑制水体微生物活动。同时,保证采样瓶密封后没有气泡,否则重新进行样品采集。研究另用 50 mL 塑料瓶采集水样并现场过滤(0.45 μm 滤膜)用于测定 NO₃⁻和 NH₄⁺(样品加入三氯甲烷试剂现场固定,并冷冻保存于附近农户冰箱直至测定)。DO 浓度及水温用便携仪器(型号 HQ30D)现场测定。

1.3 室内分析

NO₃⁻和 NH₄⁺运回实验室用连续流动分析仪进行测定(QuAatro)。水样中 N₂O 溶存浓度采用“顶空平衡法”测定^[12],测定仪器为气象色谱(HP5890II)。气象色谱测定的血清瓶中顶空 N₂O 浓度的单位为体积浓度(ppbv),由体积浓度换算成水样 N₂O 溶存浓度参考 Johnson 的计算方法^[13]。

溶存 N₂O 饱和度(%)=水样 N₂O 测定浓度/现场水温下 N₂O 平衡浓度×100%。

其中,现场水温下 N₂O 平衡浓度由亨利公式计算得到。亨利公式的表达式为:

$$P=k_{N_2O}x$$

式中:P 为现场水温下水体中溶存 N₂O 分压,并最终根据河流溶存 N₂O 分压换算为溶存浓度;k_{N₂O} 为亨利常数,根据现场水温下《化工物性算图手册》查表得

到^[15];x 为水体溶存 N₂O 的物质质量分数。

2 结果与讨论

2.1 溶存 N₂O 浓度及其影响因素分析

连续 46 h 内,丰乐河 N₂O_s 与 N₂O_w 的变化范围分别为 0.14~0.41 μg N-N₂O·L⁻¹ 和 0.14~0.24 μg N-N₂O·L⁻¹(均值 0.26±0.10,SD)(图 3a),且随观测时间的延长 N₂O 累积溶存浓度逐渐升高。杭埠河 N₂O_s 与 N₂O_w 的变化范围分别为 0.12~0.25 μg N-N₂O·L⁻¹ 和 0.12~0.18 μg N-N₂O·L⁻¹(均值 0.18±0.04,SD)(图 3b)。观测时间内丰乐河与杭埠河水体 N₂O 饱和度变化范围分别为 104%~289%、102%~216%,整体平均值分别为 186% 和 151%(表 2),表明两条河流溶存 N₂O 均处过饱和状态,为大气 N₂O 的潜在释放源。

表 2 观测时间内丰乐河与杭埠河不同处理水柱 N₂O 饱和度
Table 2 Percentage saturation of N₂O in water column with different treatments during study period

测定时刻	丰乐河		杭埠河	
	含沉积物水柱	无沉积物水柱	含沉积物水柱	无沉积物水柱
10:00	104%	104%	102%	102%
14:00	241%	108%	168%	110%
18:00	244%	129%	174%	124%
8:00	257%	133%	182%	127%
14:00	261%	144%	191%	129%
18:00	268%	155%	198%	149%
8:00	289%	168%	216%	152%
均值(±SD)	238±62%	134±24%	176±36%	127±18%

研究同步测定了水体中 DO、NO₃⁻、NH₄⁺浓度。结果表明,杭埠河 DO、NO₃⁻、NH₄⁺浓度变化范围分别为 7.18~8.21、0.83~1.24、0.07~0.26 mg·L⁻¹(图 4a、图 4b),

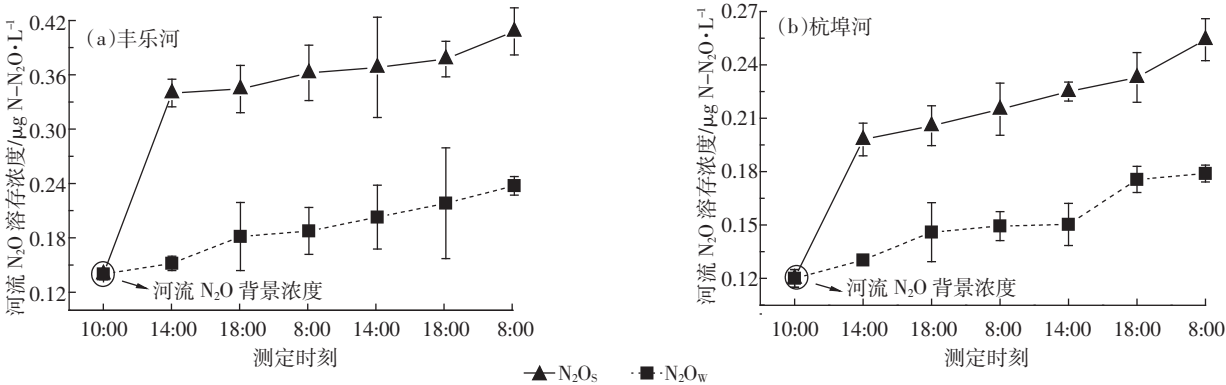


图 3 丰乐河与杭埠河不同处理溶存 N₂O 浓度

Figure 3 Dissolved N₂O concentrations in Fengle and Hangbu Rivers with different treatments

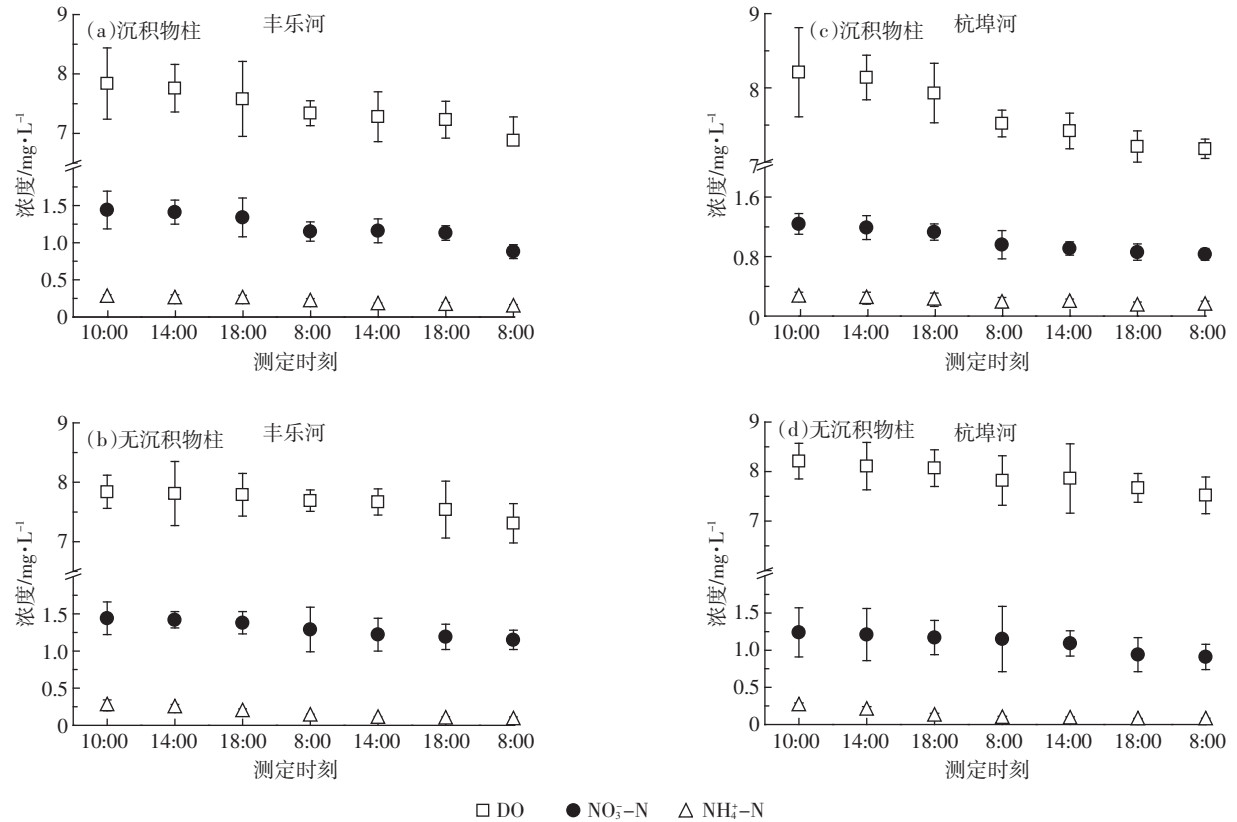


图 4 丰乐河与杭埠河不同处理水体中 DO、NO₃⁻、NH₄⁺ 浓度
Figure 4 Concentrations of DO, NO₃⁻, and NH₄⁺ in Fengle and Hangbu Rivers with different treatments

丰乐河变化范围分别为 6.88~7.84、0.88~1.44、0.08~0.27 mg·L⁻¹(图 4c、图 4d)。Pearson(2-tailed)相关分析表明,丰乐河含沉积物水体处理中 N₂O 溶存浓度与 DO、NO₃⁻、NH₄⁺ 浓度弱相关,而其他处理中溶存 N₂O 与 DO、NO₃⁻、NH₄⁺ 浓度均显著相关(表 3),这与他人的研究结果较为一致^[13,15]。

河流 N₂O 的产生机理较为复杂,不同水环境条件下 N₂O 的主要生成过程也有所差异。已有的研究表明,河流 N₂O 的产生机理有反硝化、硝化、硝态氮异化及藻类对氮素的吸收固定等过程^[2,6,14,17],河流沉积物中的反硝化过程又主要由耦合与非耦合硝化-反硝化过程两种。耦合硝化-反硝化过程消耗的 NO₃⁻ 来源于沉积物的硝化作用,而非耦合硝化-反硝化过程消耗的 NO₃⁻ 主要来源于上覆水体扩散^[17]。本研究中,测定初始至结束时刻两条河流含沉积物处理水体中 NO₃⁻ 浓度削减比例(丰乐河为 30%,杭埠河为 23%)明显高于不含沉积物水体(丰乐河 13%,杭埠河 12%),并伴随 N₂O 溶存浓度逐步上升。这可能是由于水体 NO₃⁻ 扩散进入沉积物界面发生反硝化作用,产生的 N₂O 释放进入水体所致。当然,NO₃⁻ 的削减除反硝化作用外,

表 3 溶存 N ₂ O 与 DO、NO ₃ ⁻ 、NH ₄ ⁺ 浓度相关分析 (Pearson, 2-tailed)					
Table 3 Correlation analysis between dissolved N ₂ O, DO, NO ₃ ⁻ , and NH ₄ ⁺ (Pearson, 2-tailed)					
河流	处理	溶存 N ₂ O	影响因子	R ²	P
丰乐河	沉积物柱	溶存 N ₂ O	DO	0.77	0.06
			NO ₃ ⁻	0.86	0.07
			NH ₄ ⁺	0.72	0.06
	无沉积物柱		DO	0.92	0.003**
			NO ₃ ⁻	0.92	<0.001**
			NH ₄ ⁺	0.77	<0.001**
杭埠河	沉积物柱	溶存 N ₂ O	DO	0.50	0.008**
			NO ₃ ⁻	0.49	0.002**
			NH ₄ ⁺	0.53	0.01**
	无沉积物柱		DO	0.89	<0.001**
			NO ₃ ⁻	0.94	<0.001**
			NH ₄ ⁺	0.93	0.008**

注:** 表示在 0.01 统计水平上显著相关。

其他生物化学过程可能同样消耗水体 NO₃⁻。若以不含沉积物水柱作为对照,则两种处理中 NO₃⁻ 的浓度差能同样反映沉积物反硝化作用对 NO₃⁻ 的消耗。不含沉积

物处理水体中 N_2O 溶存浓度逐步升高,伴随对应测定时刻 NH_4^+ 浓度降低,表明硝化作用为水体 N_2O 的主要产生机理,这可由水体中较高的 DO 含量 ($>7 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$) 进一步佐证。然而,不含沉积物水体中 NH_4^+ 浓度降低并未支持 NO_3^- 浓度增加,表明水体中其他生物化学过程 NO_3^- 的消耗量大于硝化过程产生 NO_3^- 的产生量,这种现象还有待于进一步的研究讨论。另外,由于本文缺少沉积物间隙水 NO_3^- 和 NH_4^+ 浓度数据,为判断河流 N_2O 的具体生成机理带来障碍,这也为以后的相关工作提供了建议。测定周期内,丰乐河与杭埠河水温的昼夜变化范围都介于 $15.8 \sim 20.7^\circ\text{C}$ 之间。整体上,水温与河流 N_2O 累积溶存浓度不相关 ($P=0.64$)。这可能是因为实验体系为封闭系统, N_2O 溶存浓度逐渐累积,掩盖了温度对 N_2O 产生过程的影响。

2.2 沉积物-水界面 N_2O 释放通量

测定时间内, 丰乐河 $\Delta \text{N}_2\text{O}$ 均值为 $0.17 \text{ } \mu\text{g N} - \text{N}_2\text{O} \cdot \text{L}^{-1}$, $\text{N}_2\text{O}_s/\text{N}_2\text{O}_w$ 均值为 189%; 杭埠河 $\Delta \text{N}_2\text{O}$ 均值为 $0.07 \text{ } \mu\text{g N} - \text{N}_2\text{O} \cdot \text{L}^{-1}$, $\text{N}_2\text{O}_s/\text{N}_2\text{O}_w$ 均值为 145%。这表明河流沉积物对水体溶存 N_2O 具有较大影响。如果对此种影响进行定量描述,则丰乐河与杭埠河水体中溶存 N_2O 分别约 89% 和 45% 来源于沉积物系统。当然,这种描述把沉积物与水体作为割裂的系统进行分析,忽略了沉积物对水体 N_2O 生成过程的影响。然而,目前的研究并未指出沉积物的存在如何影响或改变水体 N_2O 的产生机理和方式,而是把这种现象作为一种泥水界面过程进行解释^[2]。基于这种概念,本文计算了河流沉积物-水界面 N_2O 的累积释放通量,计算公式如下:

$$F = \Delta \text{N}_2\text{O} / (A \times \Delta T)$$

式中: F 为沉积物-水界面 N_2O 累积释放通量 ($\mu\text{g N} - \text{N}_2\text{O} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{h}^{-1}$); A 为柱体底面积 (0.038 m^2); ΔT 为试验初始时刻至取样时刻经历时间 (h)。

结果表明,丰乐河、杭埠河沉积物-水界面 N_2O 释放通量变化范围分别为 $0.10 \sim 1.24$ 、 $0.04 \sim 0.45 \text{ } \mu\text{g N} - \text{N}_2\text{O} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{h}^{-1}$ 。回归分析显示,沉积物-水界面 N_2O 释放通量与释放时间呈显著的指数相关,且随着时间的延长累积释放通量逐渐降低(图 5)。本研究的取样时间设为 46 h,保证了样品的昼夜重复性;且研究初始的第 4 h 至 22 h N_2O 的累积释放通量较高,随后趋于恒定。但作者认为这种结论不具有普遍意义,这可能与水体体积、沉积物理化性状及其他水环境条件有关^[18],不同的试验体系, N_2O 累积释放通量达到恒定的过程可能不同,这些问题还有待于进一步的探索研究。

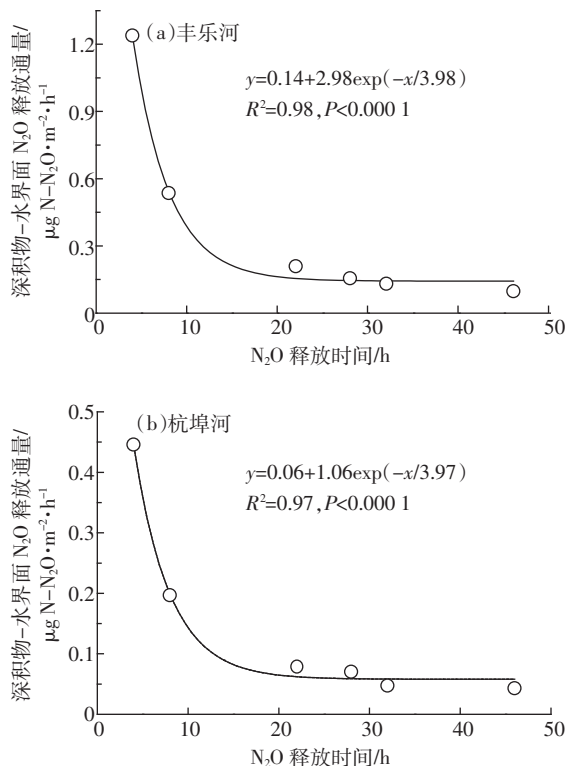


图 5 沉积物-水界面 N_2O 累积释放通量

Figure 5 Cumulative emission rate of N_2O across sediment-water interface

2.3 沉积物反硝化速率估算

大量研究表明沉积物中反硝化过程为 N_2O 的主要生成机理^[7,18]。本研究中,除初始测定时刻外,其他对应时刻含沉积物水体 NO_3^- (SNO_3^-) 浓度低于不含沉积物水体 NO_3^- 浓度 (WNO_3^-) (图 4)。如果以不含沉积物水体处理作为对照,则两种处理中丰乐河与杭埠河的 NO_3^- 浓度差 (ΔNO_3^- , $\text{WNO}_3^- - \text{SNO}_3^-$) 的变化范围分别介于 $0.01 \sim 0.27 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 和 $0.02 \sim 0.17 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ (图 6)。本研究中 N_2O_s 溶存浓度高于 N_2O_w , 且整体上 $\Delta \text{N}_2\text{O}$ 与 ΔNO_3^- 显著相关 ($P < 0.05$) 因此,造成两种处理水体 NO_3^- 浓度差的主要原因可能是由沉积物的反硝化作用对 NO_3^- 的消耗所致。

目前有关河流反硝化速率研究多采用室内培养通过乙炔抑制法测定 N_2O 产生量,或者直接测定反硝化作用最终产物 N_2 的方法进行计算^[19];另外,也有研究采用通过测定 NO_3^- 消耗量对其进行估算^[20-21]。本文根据两种处理水体中 NO_3^- 的浓度差估算了沉积物的反硝化速率,计算公式如下:

$$D_e = \Delta \text{NO}_3^- / (A \times \Delta T)$$

式中: D_e 为反硝化速率 ($\text{mg N} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{h}^{-1}$); ΔNO_3^- 为同一测定时刻 WNO_3^- 与 SNO_3^- 浓度差 ($\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$); A 为柱体底

面积(0.038 m^2); ΔT 为试验初始至测定时刻经历时间(h)。

由上式计算得到丰乐河与杭埠河沉积物反硝化速率分别为 $0.05\sim 0.17 \text{ mg N}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{h}^{-1}$ (均值 0.12 ± 0.07 , SD)和 $0.04\sim 0.20$ (均值 0.10 ± 0.05 , SD) $\text{mg N}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{h}^{-1}$ (图6),且两条河流的沉积物反硝化速率无显著差异($P=0.75$)。由于沉积物中其他生物化学过程会同样消耗水体 NO_3^- ,本文可能高估了两条河流沉积物的实际反硝化速率。白洁等对不同水生生态系统沉积物的反硝化速率进行了总结,结果表明不同水生态系统沉积物反硝化速率大致介于 $0\sim 46 \text{ mg N}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{h}^{-1}$ 之间^[23]。本研究中两条河流沉积物反硝化速率处于此范围的低值区,这可能是由于研究中两条河流水体中较高的 DO 浓度($>7 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$)抑制了泥水界面的反硝化过程。另外,不少研究专门对河流反硝化速率的昼夜变化规律进行过研究报道,并指出水环境条件不同反硝化速率的昼夜变化规律也有所差异^[23]。本研究中两条河流沉积物的反硝化速率夜间高于白天(图6),可能是由于白天较高的光照强度增加了水体溶解氧向沉积物的渗透能力,使得沉积物厌氧层下移,抑制了沉积物的反硝化速率^[24]。

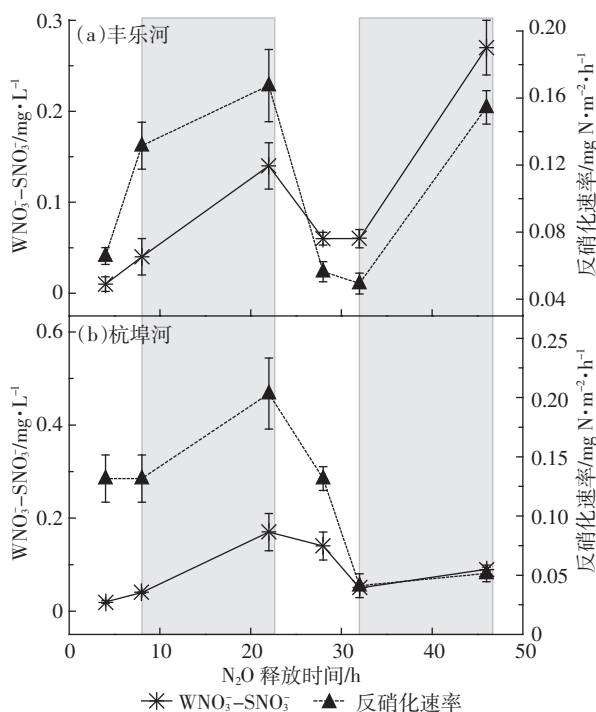


图6 沉积物反硝化速率(灰色部分表示夜间样品数据)

Figure 6 Denitrification rates of sediments(gray stripes in the figure indicate the data observed at night)

3 结论

枯水期丰乐河与杭埠河水体 N_2O 饱和度分别为186%和151%,均处于过饱和状态,为大气 N_2O 的潜在释放源。本研究中,丰乐河与杭埠河沉积物-水界面 N_2O 平均累积释放通量分别为 $0.39\pm 0.44 \mu\text{g N}-\text{N}_2\text{O}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{h}^{-1}$ 和 $0.15\pm 0.16 \mu\text{g N}-\text{N}_2\text{O}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{h}^{-1}$,由此可贡献水体中约89%和45%的溶存 N_2O ,表明沉积物 N_2O 释放显著影响水体 N_2O 溶存浓度。现场条件下,丰乐河与杭埠河沉积物平均反硝化速率分别为 $0.12\pm 0.07 \text{ mg N}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{h}^{-1}$ 和 $0.10\pm 0.05 \text{ mg N}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{h}^{-1}$,与其他已有的研究报道相比较低。另外,本研究在河流布设单点,探讨了沉积物 N_2O 释放对河流 N_2O 溶存浓度影响的现场实测方法,而并未对其时空变化及其影响因素进行深入探讨,这为以后的研究提供了建议。

参考文献:

- [1] 王洪君,王为东,卢金伟,等. 湖滨带温室气体氧化亚氮(N_2O)排放研究[J]. 生态环境, 2006, 15(2):270-275.
WANG Hong-jun, WANG Wei-dong, LU Jin-wei, et al. N_2O emissions from the littoral zone[J]. *Ecology and Environment*, 2006, 15(2):270-275.
- [2] 晏维金,王 蓓,李新艳,等. 河流溶存 N_2O 的环境化学过程及其在水-气界面交换过程的研究[J]. 农业环境科学学报, 2008, 27(1):15-22.
YAN Wei-jin, WANG Bei, LI Xin-yan, et al. Summary of studies on environmental chemical process of dissolved N_2O in rivers and the exchange flux between water-air interface[J]. *Journal of Agro-Environment Science*, 2008, 27(1):15-22.
- [3] Kumar W B. Nitrous oxide emission from two rivers meandering through Imphal city, Manipur, India[J]. *Global Journal of Environmental Research*, 2011 5(3):106-111.
- [4] Seitzinger S P, Kroeze C. Global distribution of nitrous oxide production and N inputs in freshwater and coastal marine ecosystems[J]. *Global Biogeochemical Cycles*, 1998, 12:93-113.
- [5] Jacinthe P A, Bills J S, Tedesco L P, et al. Nitrous oxide emission from riparian buffers in relation to vegetation and flood frequency[J]. *Journal of Environmental Quality*, 2012, 41(1):95-105.
- [6] Silvennoinen H, Liikanen A, Torssonen J, et al. Denitrification and nitrous oxide effluxes in boreal, eutrophic river sediments under increasing nitrate load: A laboratory microcosm study[J]. *Biogeochemistry*, 2008, 91(2-3):105-116.
- [7] Beaulieu J J, Shuster W D, Rebbholz J A. Nitrous oxide emissions from a large, impounded river: The Ohio River[J]. *Environ Sci Technol*, 2010, 44(19):7527-7533.
- [8] Clough T J, Bertram J E, Sherlock R R, et al. Comparison of measured and EF5-r-derived N_2O fluxes from a spring-fed river[J]. *Global*

- Change Biology*, 2006, 12:477–488.
- [9] Cole J J, Caraco N F. Emissions of nitrous oxide(N_2O) from a tidal, fresh-water river, the Hudson River, New York[J]. *Environ Sci Technol*, 2001, 35:991–996.
- [10] Zappa C J, McGillis W R, Raymond P A, et al. Environmental turbulent mixing controls on air–water gas exchange in marine and aquatic systems[J]. *J Geophys Res*, 2007, 34:L10601.
- [11] Garca–Ruiz R, Pattinson S N, Whitton B A. Denitrification and nitrous oxide production in sediments of the Wiske, a lowland eutrophic river [J]. *The Science of the Total Environment*, 1998, 210/211:307–320.
- [12] Yang L B, Yan W J, Ma P, et al. Seasonal and diurnal variations in N_2O concentrations and fluxes from three eutrophic rivers in Southeast China[J]. *J Geogr Sci*, 2011, 21(5):820–832.
- [13] Johnson K M, Hughes J E, Donaghay P L, et al. Bottle–calibration static head space method for the determination of methane dissolved in seawater[J]. *Anal Chem*, 1990, 62(21):2408–2412.
- [14] Beaulieu J J, Arango C P, Hamilton S K, et al. The production and emission of nitrous oxide from headwater streams in the Midwestern United States[J]. *Global Change Biology*, 2008, 14:878–894.
- [15] 刘光启, 马连湘, 邢志有. 化工物性算图手册[M]. 北京: 化学工业出版社, 2002:270.
- [16] Clough T J, Buckthought L E, Kelliher F M, et al. Diurnal fluctuations of dissolved nitrous oxide(N_2O) concentrations and estimates of N_2O emissions from a spring–fed river: Implications for IPCC methodology[J]. *Global Change Biol*, 2007, 13:1016–1027.
- [17] 徐 徽, 张 路, 商井阁, 等. 太湖梅梁湾水土界面反硝化和厌氧氨氧化[J]. 湖泊科学, 2009, 21(6):775–781.
- XU Hui, ZHANG Lu, SHANG Jing–ge, et al. Denitrification and anammox on the sediment–water interface in the Meiliang Bay of Lake Taihu [J]. *J Lake Sci*, 2009, 21(6):775–781.
- [18] Beaulieu J J, Tank J L, Hamilton S K, et al. Nitrous oxide emission from denitrification in stream and river networks[J]. *Proc Natl Acad Sci U S A*, 2011, 108(1):214–219.
- [19] 陈能汪, 吴杰忠, 段恒轶, 等. N_2 : Ar 法直接测定水体反硝化产物溶解 N_2 [J]. 环境科学学报, 2010, 30(12):2479–2483.
- CHEN Neng–wang, WU Jie–zhong, Duan Heng–yi, et al. N_2 : Ar method for direct measurement of denitrification product (dissolved N_2) using membrane inlet mass spectrometry (MIMS)[J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 2010, 30(12):2479–2483.
- [20] Wang D Q, Chen Z L, Wang J, et al. Summer–time denitrification and nitrous oxide exchange in the intertidal zone of the Yangtze Estuary[J]. *Estuarine, Coastal and Shelf Science*, 2007, 73(1/2):43–53.
- [21] Scott J T, McCarthy M J, Gardner W S, et al. Denitrification, dissimilatory nitrate reduction to ammonium, and nitrogen fixation along a nitrate concentration gradient in a created freshwater wetland[J]. *Biogeochemistry*, 2008, 87:99–111.
- [22] 白 洁, 王晓东, 李佳霖, 等. 北黄海沉积物–水界面反硝化速率及影响因素研究[J]. 中国海洋大学学报, 2007, 37(4):653–656.
- BAI Jie, WANG Xiao–dong, LI Jia–lin, et al. A study of the denitrification rate and its influence factors at the sediment–water interface in summer in the North Yellow Sea[J]. *Periodical of Ocean University of China*, 2007, 37(4):653–656.
- [23] Laursen A E, Seitzinger S P. Diurnal patterns of denitrification, oxygen consumption and nitrous oxide production in rivers measured at the whole–reach scale[J]. *Freshwater Biology*, 2004, 49:1448–1458.
- [24] Lorenzen J, Larsen L H, Kjaer T, et al. Biosensor determination of the microscale distribution of nitrate, nitrate assimilation, nitrification, and denitrification in a diatom–inhabited freshwater sediment[J]. *Applied and Environmental Microbiology*, 1998, 64:3264–3269.