

环境因子对密云水库消落带沉积物-水界面氮交换通量的影响研究

刘亚贺, 王晓燕, 许康丽

引用本文:

刘亚贺, 王晓燕, 许康丽. 环境因子对密云水库消落带沉积物-水界面氮交换通量的影响研究[J]. 农业环境科学学报, 2022, 41(4): 849-856.

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.11654/jaes.2021-1053>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

三峡支流消落带表层沉积物氮矿化动力学参数估算

刘丹, 张帅, 唐玉姣, 尹静, 谭兴伶, 陈茜, 于志国, 林俊杰

农业环境科学学报. 2018, 37(4): 766-773 <https://doi.org/10.11654/jaes.2017-1482>

九龙江河口养虾塘氧化亚氮排放通量及影响因素

金宝石, 谢建国, 闫鸿远, 杨平, 曾从盛

农业环境科学学报. 2021, 40(9): 2031-2038 <https://doi.org/10.11654/jaes.2021-0248>

洱海北部表流人工湿地氮截留的长效性及影响因子

梁启斌, 侯磊, 李能发, 陈鑫, 王克勤

农业环境科学学报. 2020, 39(7): 1585-1593 <https://doi.org/10.11654/jaes.2019-1324>

封闭型内陆湖泊夏季氮素赋存特征——以达里诺尔湖为例

杨旭, 李畅游, 李文宝, 史小红, 赵胜男, 王旭阳

农业环境科学学报. 2018, 37(10): 2262-2269 <https://doi.org/10.11654/jaes.2018-0004>

生物炭折流湿地对生活污水的净化效果

王若凡, 汪文飞, 王煜钧, 孙鹤洲, 刘傲展

农业环境科学学报. 2020, 39(9): 2001-2007 <https://doi.org/10.11654/jaes.2020-0258>



关注微信公众号, 获得更多资讯信息

刘亚贺, 王晓燕, 许康丽. 环境因子对密云水库消落带沉积物-水界面氮交换通量的影响研究[J]. 农业环境科学学报, 2022, 41(4): 849–856.

LIU Y H, WANG X Y, XU K L. Effects of environmental factors on nitrogen exchange flux at the sediment-water interface in the water level fluctuation zone of Miyun reservoir[J]. *Journal of Agro-Environment Science*, 2022, 41(4): 849–856.



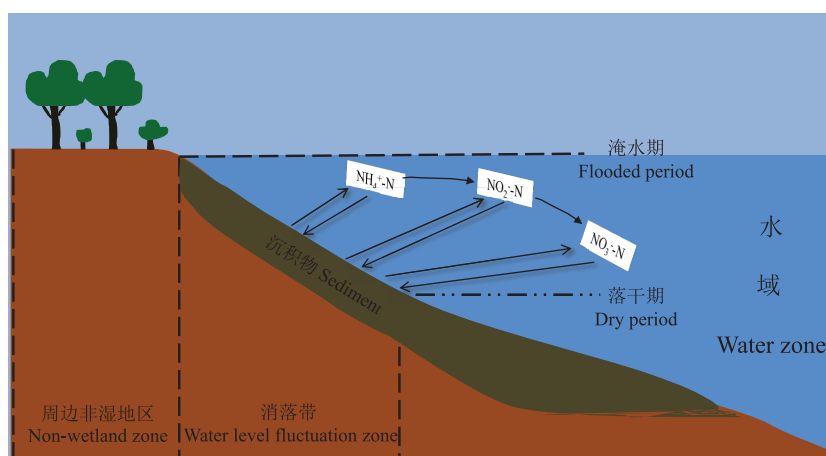
开放科学 OSID

环境因子对密云水库消落带沉积物-水界面氮交换通量的影响研究

刘亚贺¹, 王晓燕^{1,2*}, 许康丽¹

(1. 首都师范大学资源环境与旅游学院, 北京 100048; 2. 首都师范大学首都圈水环境研究中心, 北京 100048)

摘要:为探究不同环境因子对水库消落带沉积物中氮迁移释放的影响,以密云水库消落带为研究对象,采用原状泥柱静态培养实验,并通过单一影响因素法,开展了温度、上覆水pH、溶解氧对沉积物-水界面氮交换通量的影响研究。结果表明:消落带上覆水和沉积物中无机氮含量在夏季(落干期)和秋季(淹水期)存在明显的差异,其中沉积物中 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 含量变化最大,秋季较夏季下降80.4%, $\text{NO}_3^+\text{-N}$ 含量下降59.7%,淹水期间三态氮($\text{NH}_4^+\text{-N}$ 、 $\text{NO}_2^+\text{-N}$ 、 $\text{NO}_3^+\text{-N}$)由沉积物释放到水中。温度、pH和溶解氧对消落带沉积物-水界面氮的迁移转化作用存在差异,升温促进 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 释放并抑制 $\text{NO}_3^+\text{-N}$ 释放,偏酸和偏碱条件会促进 $\text{NH}_4^+\text{-N}$



的释放,有氧条件会加剧沉积物-水界面三态氮的交换,促进三态氮的释放。密云水库消落带沉积物C/N为7.51~9.35,其表层水体中的有机质主要来源于水体内部生物残体。因此,未来应关注密云水库消落带沉积物内源释放风险,同时完善消落带湿地建设,减少消落带氮流失对水体的污染。

关键词:消落带;沉积物-水界面;环境因子;氮交换通量

中图分类号:X524 文献标志码:A 文章编号:1672-2043(2022)04-0849-08 doi:10.11654/jaes.2021-1053

Effects of environmental factors on nitrogen exchange flux at the sediment-water interface in the water level fluctuation zone of Miyun reservoir

LIU Yahe¹, WANG Xiaoyan^{1,2*}, XU Kangli¹

(1. College of Resources, Environment and Tourism, Capital Normal University, Beijing 100048, China; 2. Research Center of Aquatic Environment in the Capital Region, Capital Normal University, Beijing 100048, China)

Abstract: To investigate the response of nitrogen at the sediment-water interface in the water level fluctuation zone under different

收稿日期:2021-09-13 录用日期:2021-12-06

作者简介:刘亚贺(1996—),女,河北张家口人,硕士研究生,从事水库消落带面源污染研究。E-mail:651524076@qq.com

*通信作者:王晓燕 E-mail:wangxy@cnu.edu.cn

基金项目:北京市自然科学基金委员会-北京市教育委员会联合资助重点项目(KZ201810028047);国家自然科学基金项目(21377168,41271495)

Project supported: The Natural Science Foundation of Beijing, China – Beijing Municipal Education Commission (KZ201810028047); The National Natural Science Foundation of China(21377168,41271495)

environmental conditions (e.g., temperature, pH, and dissolved oxygen), a static culture experiment was conducted in an undisturbed mud column using sediment and water samples collected from the Miyun reservoir. The results were as follows: the inorganic nitrogen content of the sediment and overlying water in the fluctuation zone was significantly different in summer (dry period) and autumn (flooded period). Among them, the NH_4^+-N content of the sediment showed the greatest change, decreasing by 80.4% in autumn compared with summer, while the NO_3^--N content decreased by 59.7% in autumn. Tri-state nitrogen (NH_4^+-N , NO_2^--N , NO_3^--N) was released into the water from the sediment during flooding. Temperature, pH, and dissolved oxygen had different effects on the migration and transformation of nitrogen at the sediment-water interface in the fluctuation zone. Increasing the temperature promoted the release of NH_4^+-N and inhibited the release of NO_3^--N . Acidic and alkaline conditions promoted the release of NH_4^+-N . Aerobic conditions intensified the exchange of tri-state nitrogen at the sediment-water interface and aggravated the release of three-state nitrogen. The C/N ratio (7.51~9.35) of sediment indicates that organic matter in the surface water is mainly derived from biological residues in the water. Therefore, attention should be paid to the risk of endogenous release by sediments in the fluctuation zone of the Miyun reservoir in the future, and the construction of wetlands should be improved to reduce the pollution caused by nitrogen loss in the fluctuation zone.

Keywords: fluctuation zone; sediment-water interface; environmental factor; exchange flux

消落带是河流和湖库特有的一种现象,是连接水陆两界的物质交换枢纽,也是水陆生态系统间物质能量转换最活跃、最重要的区域,具有明显的边际效应^[1]。消落带沉积物是消落带处土壤被淹后,经过长时间的物理、化学、生物及水面传输等作用形成的底泥,而沉积物-水界面的氮释放是水体中污染物的重要来源之一,是导致水体富营养化的潜在因素^[2-3]。污染物质在沉积物-水界面处的迁移转化过程十分复杂,在外界环境条件如温度、pH、溶解氧等因素的作用下,氮浓度会发生显著变化,进而影响其在沉积物-水界面的交换通量^[4]。受不同环境因子的影响,沉积物有吸收上覆水中氮的潜力或向上覆水释放氮的风险^[5-6]。

国内外对于氮在沉积物-水界面间的迁移转化进行了大量的研究,欧美等国家从早期的间隙水浓度梯度培养到后期的现场培养和实验室培养,逐步完善了研究方法,并在不同区域展开了探索,发现氮的界面扩散通量与环境因子之间呈现良好的相关性^[7]。我国对沉积物-水界面氮交换通量的研究起步较晚,但发展很快,现已探索了渤海、黄海、东海和南山群岛等海域的交换通量,而关于氮在水库消落带沉积物-水界面的交换通量研究则主要集中在三峡水库^[1,8-10]。已有研究表明,三峡水库消落带在好氧条件下的总氮释放通量是厌氧条件下的1.2~1.4倍^[11],其中 NH_4^+-N 释放通量与温度呈显著正相关, NO_3^--N 释放通量与温度呈显著负相关^[12],而消落带周期性淹水促使土壤矿化,加剧沉积物与上覆水间的无机氮交换,使得大量氮随有机质进入水体,对水体产生污染^[13]。目前关于沉积物-水界面具有显著物理、化学和生物差异的不

同类型水体仍是研究污染物发生迁移扩散和生化反应的“热区”,而我国在开展多种水体类型(如深水/浅水湖泊、湖滨带等)、多维度或多因素相结合的污染物迁移转化研究方面还存在较大的缺失。

近年来我国水库的环境问题凸显,保障水源型水库的水质安全、维护水生态系统稳定性、控制富营养化水平以及改善水质已经成为水库污染控制的共识。密云水库是北京市唯一的地表饮用水源地,受降雨、人为调控水量等因素的影响,库区水位出现季节性波动。自2014年密云水库接受“南水”以来,水位持续上升,库区水位累积上升15 m^[14],造成消落带土壤被不同程度淹没。监测数据显示,南水北调后水体中氮含量呈上升趋势^[15],被淹土壤的氮释放会对水库水质安全造成一定的风险,因此,有必要研究密云水库消落带的氮释放。沉积物-水界面作为生化反应的场所,更是氮迁移扩散的重要来源。本文以密云水库消落带为研究对象,通过原状泥柱静态培养实验模拟真实水体环境,并控制温度、上覆水pH和溶解氧3个变量,分析不同环境因子下密云水库消落带沉积物-水界面三态氮的释放规律,旨在阐明消落带淹水后沉积物中氮释放的问题,对于丰富密云水库消落带氮的迁移和转化等基本理论、保障库区水质安全等具有重要意义。

1 材料与方法

1.1 研究区概况

密云水库位于北京市东北部密云区(116°07'~117°30'E, 40°14'~41°05'N),是北京市唯一饮用水源供应地,对于北京水资源战略储备的意义不言而喻。

密云水库控制流域面积 15 788 km²,主要有两大入库河流,分别是潮河和白河。水库库容为 4.0×10⁹ m³,多年蓄水量为 6.5×10⁸~1.2×10⁹ m³,历年水位为 131~137 m。自南水北调入库以来,密云水库平均每年形成 1~4 m 的消落带,消落带水位高差达 10 m^[12]。近年来氮、磷等营养元素浓度呈上升趋势,目前内湖水体为中营养状态,以总氮和总磷的污染风险最高,且总氮的污染风险大于总磷^[16-17]。该地区属于暖温带半湿润季风气候,年平均气温 10 ℃,多年平均降雨量 665 mm,降水主要集中在汛期。流域内主要土壤类型有褐土(60%)、棕壤(36%)、草甸土(2%)和栗钙土(2%),上游流域以耕地和林地为主^[18-20]。

1.2 样品采集与处理

采样点位于密云水库库东后八家庄,采样点示意图见图 1。于夏季落干期(7 月,采样点为 S₁)和秋季淹水期(11 月,采样点为 S₂)各采集一次样品,用以分析沉积物与上覆水在不同季节和淹水状态下的理化性质差异。用柱状采样器(内径 6 cm、长度 100 cm)采集位于水下 30 cm、表层 8~10 cm 厚的沉积物柱状样,采样过程中应尽量不破坏沉积物的自然状态,依照原样封好避免氧化,放入保温箱中,当日运回实验室,并立刻于 4 ℃ 下恒温培养;用有机玻璃采样器采集原位上覆水 20 L 置于聚乙烯瓶中,并迅速运回实验室保存。

1.3 指标测定

使用多参数水质仪(HYDROLABMS5, HACH, 美国)现场测定基本水质指标(温度、pH、溶解氧);使用连续流动注射分析仪(FIASTAR 5000, FOSS, 丹麦)测定上覆水及沉积物中 NH₄⁺-N、NO₂⁻-N、NO₃⁻-N 的含量;使用元素分析仪(Multi EA 4000, Analytikjena, 德国)测定总氮(TN)和总碳(TC)的含量。

1.4 模拟实验

为研究密云水库不同环境因素对氮交换通量的影响,根据实际情况和实验室条件,采用秋季(淹水期)沉积物和上覆水样品进行影响因素的模拟实验,通过单一影响因素法,选择温度、pH、溶解氧(DO)3 个因素,分不同批次独立进行模拟实验。为模拟水底环境,将采回的沉积物样品在不打乱沉积物层间结构的情况下迅速转移至有机玻璃培养柱中,调节沉积物样品高度在 25 cm 左右。采用虹吸法将上覆水缓慢加到有机玻璃培养柱中,上覆水的高度约为沉积物表层以上 30 cm^[21]。将有机玻璃柱放置在恒温培养箱中进行黑暗 12 h/光照 12 h 的交替培养,不另外设置光强,在恒温培养箱正常透光时模拟光照条件,对恒温培养箱遮光处理来模拟黑暗条件,交替进行两次,共计 48 h,每组实验设置 3 个平行样品和一个空白样品。

温度影响实验:如表 1 所示,两期样品温度范围为 11.30~27.10 ℃,接近真实温差范围。将样品分别置于 10、20、30 ℃ 的培养箱中进行避光培养,将 pH 调节为 7.5,敞口放置。

pH 影响实验:如表 1 所示,两期样品 pH 范围为 7.65~8.30,整体偏中性至微碱性。考虑到误差范围,设置微酸性、中性和微碱性 3 个 pH 条件并包含实测范围,分别使用 1 mol·L⁻¹ 的 HCl 和 0.5 mol·L⁻¹ 的 Na₂CO₃ 将柱状培养用的上覆水 pH 调节至 5.5、7.5 和 9.5,温度调节为室温(25 ℃),敞口放置。

溶解氧影响实验:向一个培养柱中充一定体积的氮气来制造贫氧环境(DO 小于 1 mg·L⁻¹),向另一个培养柱中充等体积的空气来制造富氧环境(DO 大于 5 mg·L⁻¹),温度调节为室温(25 ℃),pH 调节为 7.5。

实验过程中,每隔 2 h 在距沉积物 2 cm 处用移液管移取 150 mL 上覆水,同时添加等体积的已调节好实

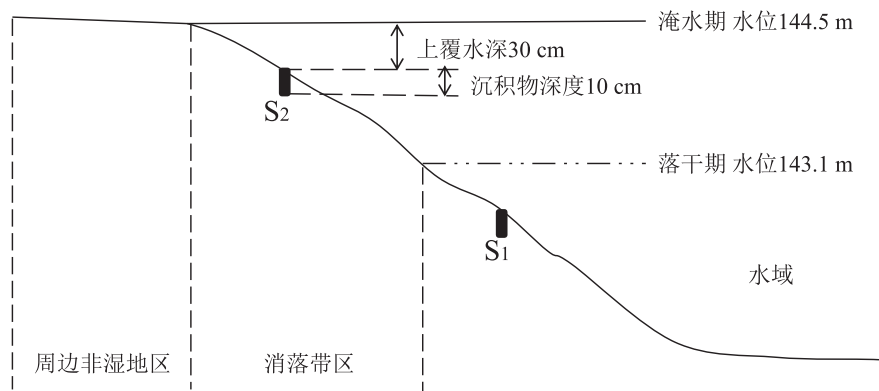


图1 采样点示意图

Figure 1 Setting of sampling sites

表1 消落带上覆水及沉积物理化指标

Table 1 The physical and chemical properties of overlying water and sediments in the water level fluctuation zone

样品 Sample	季节 Season	温度 $T/^{\circ}\text{C}$	pH	溶解氧 $\text{DO}/(\text{mg}\cdot\text{L}^{-1})$	$\text{NH}_4^+-\text{N}/(\text{mg}\cdot\text{L}^{-1})$	$\text{NO}_2^--\text{N}/(\text{mg}\cdot\text{L}^{-1})$	$\text{NO}_3^--\text{N}/(\text{mg}\cdot\text{L}^{-1})$	C/N
上覆水	夏季	27.10	8.30	6.69	1.64	0.18	0.32	—
	秋季	11.30	7.65	8.74	1.57	0.18	0.19	—
沉积物	夏季	—	—	—	6.99	0.34	2.76	7.51
	秋季	—	—	—	1.37	0.31	0.94	9.35

验条件的原上覆水,培养时间为48 h。每一次取样完成后,将上覆水样经过 $0.45\ \mu\text{m}$ 滤膜过滤,测定滤液中 NH_4^+-N 、 NO_2^--N 、 NO_3^--N 的含量。

1.5 交换通量的计算方法

根据培养过程中每次取样间隔上覆水中营养盐浓度的净变化速率的平均值计算沉积物-水界面的氮交换通量,计算公式为^[22]:

$$F_{\text{DM}} = M_t \times A^{-1} \times t^{-1} \quad (1)$$

$$M_t = V \times [C_t - D_{t-1}] \quad (2)$$

$$D_{t-1} = [(V - V_0) \times C_{t-1} + V_0 \times C_0] / V \quad (3)$$

式中: F_{DM} 为某时间段沉积物-水界面营养盐的交换通量, $\text{mg}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{h}^{-1}$; M_t 为 t 时间段内营养盐的质量变化量, mg ; A 为沉积物与上覆水进行交换的表面积, m^2 ; V 为培养柱中上覆水的总体积, L ; C_t 为在 t 时刻上覆水中营养盐的浓度, $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$; D_{t-1} 为在 $t-1$ 时刻上覆水中实际的营养盐浓度, $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$; V_0 为每次取样时所取的上覆水体积, L ; C_0 为原始上覆水中营养盐的浓度, $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 。 F_{DM} 为正值表示营养盐由沉积物向上覆水释放,为负值表示营养盐被沉积物吸收。

2 结果与讨论

2.1 上覆水及表层沉积物的基本理化特征

夏季和秋季样品的上覆水及沉积物的基本理化指标见表1。密云水库2017年7—11月的水位为143.1~144.5 m,库区水位上升 $1.4\ \text{m}^{[23]}$ 。实验数据显示,落干期和淹水期的上覆水理化参数有明显的变化。其中,落干期pH为8.30,淹水期pH为7.65,pH偏中性至弱碱性;DO表现为淹水期高于落干期。采样点处上覆水中无机氮含量较高,夏季为 $2.14\ \text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$,秋季为 $1.94\ \text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$,且以 NH_4^+-N 为主,其在夏季占比为76.6%,秋季占比为80.9%; NO_2^--N 和 NO_3^--N 含量在秋季下降了26.0%。夏季水温较高,微生物活性增强,耗氧量增大,有机质降解速率加快,因此DO含量降低,氧化还原电位降低。淹水状态的不同使得密云水库消落带水环境发生了变化^[24-26]。

沉积物中无机氮的含量均高于上覆水,夏季沉积

物中无机氮的含量较上覆水高 $7.95\ \text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$,秋季高 $0.68\ \text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$,且淹水期无机氮含量较落干期减少 $7.47\ \text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$,密云水库消落带沉积物具有较大的氮释放潜能。研究表明,淹水不利于氮素的累积,其会使得一部分易释放形态的氮进入水体中^[12]。高天赐等^[27]研究发现,夏季消落带沉积物-水界面的反硝化作用强烈,沉积物间隙水中会产生更高浓度的 NH_4^+ ,从而加剧了其向上覆水的释放。秦丽欢等^[28]对密云水库消落带不同高程营养盐分布的研究发现, NH_4^+-N 和 NO_3^--N 含量总体表现为随高程的增加而增大,这与水位的消长及氮的累积和矿化有着密不可分的关系。干湿循环加速了消落带氮矿化动力学过程,增加了被淹沉积物中氮素进入水体的风险^[29]。

由于不同有机质类型中氮释放和转化的稳定性不同,通常用沉积物中的C/N来分析有机质的来源^[6]。沉积物中C/N较高时,其水体中有机质的来源一般为陆源有机质,C/N较低时,其来源一般为水体自身有机质。已有研究表明,浮游动植物的C/N为6~13,藻类的C/N为5~14^[30],湖库沉积物的C/N一般为6~14^[31],而密云水库夏季消落带沉积物C/N为7.51,秋季为9.35,整体偏低,表明该消落带表层水体中有机质主要来源于内部水生生物残体。

2.2 温度对三态氮交换通量的影响

由图2和表2可知,温度对 NH_4^+-N 交换通量变化无显著影响($P>0.05$),但升温使 NH_4^+-N 的迁移方向有所变化^[32]。30℃时 NH_4^+-N 交换通量最高,当由20℃升温至30℃时, NH_4^+-N 由吸附变为释放,释放速率提高172.6%。这是因为升温使氨化细菌的活性增强,矿化速率加快, NH_4^+-N 释放量增大,且温度较高时沉积物对 NH_4^+-N 的吸附作用减弱^[33],更多的 NH_4^+-N 释放进入上覆水。有研究表明, NH_4^+-N 的释放通量和温度呈正相关关系^[34],而本研究发现,即使在较低温度(10℃)下 NH_4^+-N 也表现为较强的释放作用,仅比30℃时低0.8%,这可能是因为密云水库消落带沉积物中氮的含量和微生物种类不同,造成微生物最适温度范围不同^[24]。已有研究表明,密云水库消落带的水位波动

对氨氧化微生物的丰度和多样性存在一定影响^[35]。

升温对 $\text{NO}_2\text{-N}$ 、 $\text{NO}_3\text{-N}$ 交换通量变化存在显著影响($P<0.05$),但其迁移方向整体不变。在不同温度条件下, $\text{NO}_2\text{-N}$ 表现为沉积, $\text{NO}_3\text{-N}$ 表现为释放和沉积交替进行。 $20\text{ }^\circ\text{C}$ 时 $\text{NO}_2\text{-N}$ 交换通量最高,分别较 $10\text{ }^\circ\text{C}$ 和 $30\text{ }^\circ\text{C}$ 提高了403.7%、42.6%;而 $\text{NO}_3\text{-N}$ 在 $10\text{ }^\circ\text{C}$ 下的交换通量最高, $20\text{ }^\circ\text{C}$ 和 $30\text{ }^\circ\text{C}$ 下的交换通量分别较 $10\text{ }^\circ\text{C}$ 时降低了94.9%和93.6%。升温降低水中的DO浓度,沉积物-水界面由氧化环境逐渐变为还原环境,亚硝化菌反应速率变慢^[36]。此外,升温促进 $\text{NO}_3\text{-N}$ 异化还原成为 $\text{NH}_4\text{-N}$,沉积物-水界面 $\text{NO}_3\text{-N}$ 浓度降低,促进 $\text{NO}_3\text{-N}$ 向沉积物迁移;而水温较低时DO渗透深度增加,硝化作用增强,反硝化速率降低,沉积物释放出更多的 $\text{NO}_3\text{-N}$ ^[37]。有研究发现,硝化细菌活性随温度的降低而减弱,当温度低至 $0\text{ }^\circ\text{C}$ 时,硝化细菌和反硝化细菌的活性极低,此时交换过程主要通过初始浓度差完成无机氮的扩散^[38]。

2.3 pH对三态氮交换通量的影响

由图3和表2可见,在本实验中,pH对 $\text{NH}_4\text{-N}$ 交

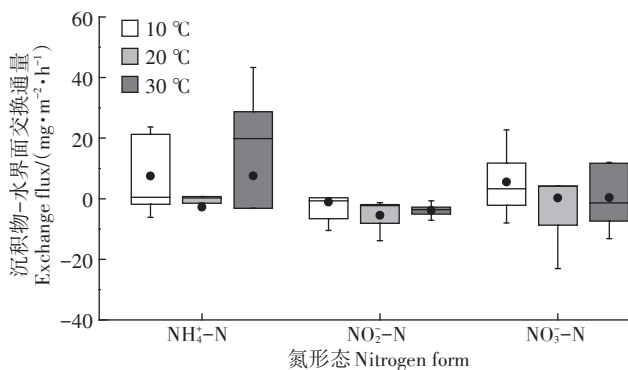


图2 不同温度下三态氮的交换通量

Figure 2 The exchange fluxes of tri-state nitrogen under different temperature

表2 环境因子对三态氮交换通量的影响

Table 2 Effect of environmental factors on the exchange fluxes of tri-state nitrogen from sediment

环境因子 Environmental factor	处理 Treatment	交换通量 Exchange flux/($\text{mg}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{h}^{-1}$)		
		$\text{NH}_4\text{-N}$	$\text{NO}_2\text{-N}$	$\text{NO}_3\text{-N}$
T	$10\text{ }^\circ\text{C}$	7.48	-1.09	5.53
	$20\text{ }^\circ\text{C}$	-2.76	-5.49	0.28
	$30\text{ }^\circ\text{C}$	7.54	-3.85	0.35
pH	5.5	4.29	-8.19	-0.89
	7.5	-2.75	-5.50	4.49
	9.5	9.16	-10.43	-0.32
DO	O_2	37.09	17.48	1.72
	N_2	4.46	-2.77	0.28

换通量的变化无显著影响($P>0.05$),但pH改变使 $\text{NH}_4\text{-N}$ 的迁移方向有较为明显的变化,在偏酸性和偏碱性条件下, $\text{NH}_4\text{-N}$ 表现为沉积和释放交替进行,中性条件下表现为向沉积物沉积,且在偏酸和偏碱性环境中的交换通量均大于中性环境。pH为5.5和9.5时, $\text{NH}_4\text{-N}$ 平均交换通量分别较pH为7.5时提高了56.0%和233.1%,表明偏酸性和偏碱性条件均有利于 $\text{NH}_4\text{-N}$ 的释放^[39]。当上覆水偏酸性时, H^+ 浓度增大,与 NH_4^+ 争夺沉积物上的吸附位,使 NH_4^+ 脱离吸附位释放至上覆水;当上覆水偏碱性时,氨氧化反应活跃,与上覆水交换速率较快,且随着pH的升高,反硝化活性增强,生成的 NH_4^+ 与水中的 OH^- 结合产生 NH_3 溢出^[40],上覆水中 NH_4^+ 的浓度降低,界面 NH_4^+ 浓度增大,促使沉积物中的 NH_4^+ 向上覆水释放。同时,由于水库的横向水流较大,水面扰动在一定程度上促进了消落带表层沉积物中 $\text{NH}_4\text{-N}$ 的释放和 NH_3 的溢出,因此 $\text{NH}_4\text{-N}$ 的实际释放通量可能较实验室模拟培养的实验结果高^[21]。

pH对 $\text{NO}_2\text{-N}$ 和 $\text{NO}_3\text{-N}$ 交换通量的影响较为显著($P<0.05$),但pH变化并未改变其迁移方向。 $\text{NO}_2\text{-N}$ 在不同pH下均表现为向沉积物沉积,而 $\text{NO}_3\text{-N}$ 则表现为吸附和沉积交替进行。随pH的增大, $\text{NO}_2\text{-N}$ 和 $\text{NO}_3\text{-N}$ 的交换通量变化均呈“倒U形”曲线。 $\text{NO}_2\text{-N}$ 在偏酸和偏碱条件下的吸附速率更快,分别比中性条件下提高了48.9%和89.6%;而 $\text{NO}_3\text{-N}$ 在中性条件下释放通量最大,偏酸和偏碱性条件分别较中性条件下的交换通量降低了80.2%和92.9%。大多数细菌的最适pH为中性至微碱性^[41],在本研究中,当pH为5.5和9.5时,硝化作用受到抑制,水中的溶解态有机氮通过氨化作用转化成 NH_3 溢出, $\text{NO}_3\text{-N}$ 的释放通量减少;同时反硝化细菌的活性在碱性条件下随pH的升高而

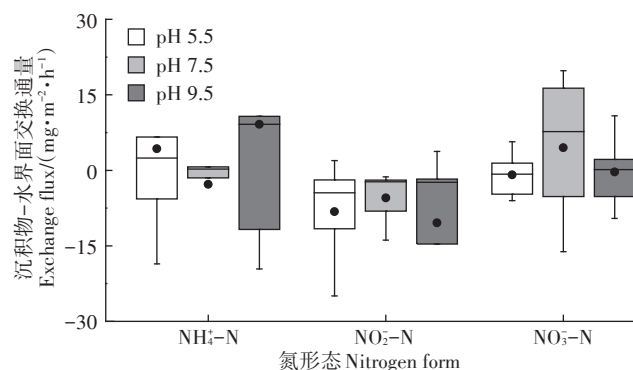


图3 不同pH下三态氮的交换通量

Figure 3 The exchange fluxes of tri-state nitrogen under different pH

增强^[39],促使沉积物中的 NO_3^- -N被消耗,释放量减少。由于pH的变化会改变沉积物-水界面的阴阳离子平衡,而沉积物中含有的大量碳酸盐、硅酸盐和腐殖质等,对于水体中的酸碱具有一定的缓冲作用^[42],因此在自然水体中,pH对氮释放的影响较小。

2.4 溶解氧对三态氮交换通量的影响

水体DO是衡量水体污染状态的一个重要指标,同时也影响沉积物氮素的释放。水体中的DO是硝化及反硝化速率的重要影响因子,DO通过改变沉积物-水界面的氧化还原电位来影响氮在该界面处的迁移转化^[43]。

一段时间内的曝气能够改善沉积物-水界面环境,并能对水体产生良好的修复效果,同时,沉积物-水界面的DO浓度越高,沉积物中氮的去除效率越高,水体中的氮含量积累速率越快^[44-45]。DO对三态氮交换通量无显著影响($P>0.05$),但DO浓度变化使三态氮的迁移方向发生改变。如图4所示, NH_4^+ -N在 O_2 条件下表现为释放,而在 N_2 条件下表现为沉积和释放交替进行^[46]; NO_2^- -N在 O_2 条件下表现为释放,在 N_2 条件下表现为沉积; NO_3^- -N在不同DO条件下均表现为释放和沉积交替进行,但 N_2 条件下沉积物对 NO_3^- -N的吸附量更大。实验表明,沉积物释放 NH_4^+ -N的量远大于释放 NO_2^- -N和 NO_3^- -N的量,这与吴群河等^[32]对珠江的研究结果一致。 NH_4^+ -N在 N_2 条件下的交换通量较 O_2 条件下降低了88.0%,表明缺氧条件下 NH_4^+ -N向 NO_3^- -N的转化受限, NH_4^+ -N易被沉积物吸附,不易流失^[47],氧化还原环境对沉积物释放 NH_4^+ -N的速率有很大影响^[32]。 NO_2^- -N、 NO_3^- -N在 N_2 条件下的交换通量分别较 O_2 条件下减少了84.2%和83.7%,这是因为硝化细菌是好氧菌,随着DO水平的提高,硝化细菌的活性逐渐增强;同时,好氧条件能够抑制

NO_3^- 异化还原为 NH_4^+ ,促进硝化作用^[47],故 NO_3^- -N释放量增加。

3 结论

(1)密云水库消落带表层沉积物中三态氮含量在淹水后显著下降,一部分易释放形态的氮淹水后进入水体。沉积物中C/N为7.51~9.35,表明消落带表层水体中的有机质主要来源于内部水生生物残体,因此应加强密云水库消落带浅层沉积物内源释放的风险防控。

(2)在不同环境条件下,密云水库消落带表层沉积物中的 NH_4^+ -N和 NO_3^- -N以释放作用为主, NO_2^- -N以吸附作用为主,消落带淹水后表层沉积物中的 NH_4^+ -N和 NO_3^- -N存在较强的释放风险。

(3)升温促进 NH_4^+ -N释放并抑制 NO_3^- -N释放,但 NH_4^+ -N在较低温度($T=10^\circ\text{C}$)和富氧条件下仍表现出较强的释放作用。上覆水在酸性(pH 5.5)和碱性(pH 9.5)条件下会促进 NH_4^+ -N释放,消落带淹水后上覆水处于富氧状态,会加剧表层沉积物中三态氮的释放。

(4)受南水北调的影响,密云水库消落带面积不断扩大,水位不断抬升,现有的消落带之后将可能转变为深水区。未来关于密云水库消落带沉积物-水界面氮交换通量的研究应当延长监测时间,并引入淹水深度这一关键因素,同时采用多因素交叉实验进行分析,以丰富和完善消落带氮交换的基本理论。

参考文献:

- [1] 李姗泽, 邓玥, 施凤宁, 等. 水库消落带研究进展[J]. 湿地科学, 2019, 17(6): 689-696. LI S Z, DENG Y, SHI F N, et al. Research progress on water-level-fluctuation zones of reservoirs: A review[J]. *Wetland Science*, 2019, 17(6): 689-696.
- [2] LIU C, ZHONG J C, WANG J J, et al. Fifteen-year study of environmental dredging effect on variation of nitrogen and phosphorus exchange across the sediment-water interface of an urban lake[J]. *Environmental Pollution*, 2016, 21(9): 639-648.
- [3] 韩宁, 郝卓, 徐亚娟, 等. 江西香溪流域干湿季交替下底泥氮释放机制及其对流域氮输出的贡献[J]. 环境科学, 2016, 37(2): 534-541. HAN N, HAO Z, XU Y J, et al. Nitrogen release from sediment under dry and rainy season alternation and its contribution to N export from Xiangxi watershed in Jiangxi Province[J]. *Environmental Science*, 2016, 37(2): 534-541.
- [4] 雷沛, 张洪, 王超, 等. 沉积物-水界面污染物迁移扩散的研究进展[J]. 湖泊科学, 2018, 30(6): 1489-1508. LEI P, ZHANG H, WANG C, et al. Migration and diffusion for pollutants across the sediment-water interface in lakes: A review[J]. *Journal of Lake Science*, 2018, 30(6): 1489-1508.
- [5] ZHU Y Y, JIN X, TANG W Z, et al. Comprehensive analysis of nitro-

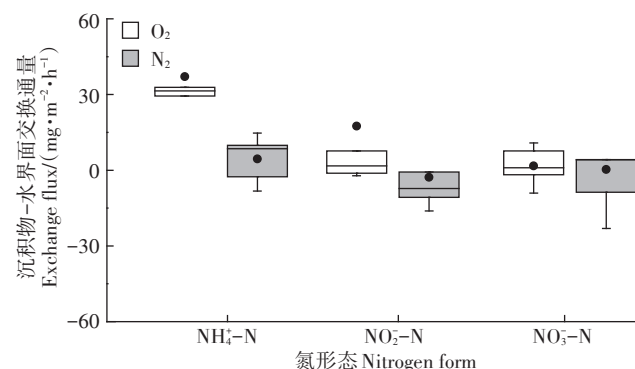


图4 不同DO状态下三态氮的交换通量

Figure 4 The exchange fluxes of tri-state nitrogen under different DO condition

- gen distributions and ammonia nitrogen release fluxes in the sediments of Baiyangdian Lake, China[J]. *Journal of Environmental Sciences*, 2019, 7(6):319-328.
- [6] 邱祖凯, 胡小贞, 姚程, 等. 山美水库沉积物氮磷和有机质污染特征及评价[J]. *环境科学*, 2016, 37(4):1389-1396. QIU Z K, HU X Z, YAO C, et al. Pollution characteristics and evaluation of nitrogen, phosphorus and organic matter in sediments of Shanmei reservoir[J]. *Environmental Science*, 2016, 37(4):1389-1396.
- [7] CLAVERO V, IZQUIERDO J J, FERNÁNDEZ J A, et al. Seasonal fluxes of phosphate and ammonium across the sediment-water interface in a shallow small estuary (Palmones River, southern Spain) [J]. *Marine Ecology Progress Series*, 2000, 19(8):51-60.
- [8] 宋金明, 李鹏程. 南沙群岛海域沉积物-海水界面间营养物质的扩散通量[J]. *海洋科学*, 1996(5):43-50. SONG J M, LI P C. Studies on characteristics of nutrient diffusion fluxes across sediment-water interface in the district of Nansha Islands, South China Sea[J]. *Marine Sciences*, 1996(5):43-50.
- [9] 刘素美, 张经, 于志刚. 渤海莱州湾沉积物-水界面溶解无机氮的扩散通量[J]. *环境科学*, 1999, 20(2):12-16. LIU S M, ZHANG J, YU Z G. Benthic fluxes of dissolved inorganic nitrogen in the Laizhou Bay, Bohai Sea[J]. *Environmental Science*, 1999, 20(2):12-16.
- [10] 戚晓红, 刘素美, 张经. 东、黄海沉积物-水界面营养盐交换速率的研究[J]. *海洋科学*, 2006, 30(3):9-15. QI X H, LIU S M, ZHANG J. Sediment-water fluxes of nutrient in the Yellow Sea and the East China Sea[J]. *Marine Sciences*, 2006, 30(3):9-15.
- [11] 詹艳慧, 王里奥, 焦艳静. 三峡库区消落带土壤氮素吸附释放规律[J]. *重庆大学学报(自然科学版)*, 2006, 29(8):10-13. ZHAN Y H, WANG L A, JIAO Y J. Adsorption & release of nitrogen of soils in Three Gorges reservoir[J]. *Journal of Chongqing University (Natural Science Edition)*, 2006, 29(8):10-13.
- [12] 张彬. 三峡水库消落带土壤有机质、氮、磷分布特征及通量研究[D]. 重庆:重庆大学, 2013:92-95. ZHANG B. Study on distribution characteristics and flux of soil organic matter, nitrogen and phosphorus in the soil of WLFZ of Three Gorges reservoir[D]. Chongqing: Chongqing University, 2013:92-95.
- [13] 李晓晴, 王伟, 操瑜, 等. 水库消落带碳氮输移转化研究进展[J]. *土壤*, 2021, 53(5):881-889. LI X Q, WANG W, CAO Y, et al. Research advances in transport and transformation of carbon and nitrogen in water-level fluctuating zone (WLFZ) of reservoir[J]. *Soils*, 2021, 53(5):881-889.
- [14] 吴敬东, 程金花, 胡晓静, 等. 南水北调来水对密云水库库滨带生态影响研究[J]. *北京水务*, 2018(6):6-8, 62. WU J D, CHENG J H, HU X J, et al. Ecological impact of the south-to-north water diversion on the buffer zone of Miyun reservoir[J]. *Beijing Water*, 2018(6):6-8, 62.
- [15] 吴晓辉, 吴钢, 潘轲旻, 等. 南水北调来水对密云水库水质和水生生物影响的预测分析[J]. *北京水务*, 2015(6):4-6. WU X H, WU G, PAN K M, et al. Predicting analysis on impact of incoming water from south-to-north water transfer project on water quality and aquatic organisms in Miyun reservoir[J]. *Beijing Water*, 2015(6):4-6.
- [16] 赵洋, 饶良懿, 周紫璇. 中国水库消落带生物治理研究综述[J]. *环境科学与技术*, 2016, 39(12):71-79. ZHAO Y, RAO L Y, ZHOU Z X. Review on the bioremediation practices of reservoir water level fluctuating zone in China[J]. *Environmental Science & Technology*, 2016, 39(12):71-79.
- [17] 李亚楠. 密云水库内湖水水质状况及动态变化趋势分析[J]. *北京水务*, 2020(增刊1):36-40. LI Y N. Analysis on water quality and dynamic change trend of inner area of Miyun reservoir[J]. *Beijing Water*, 2020(Suppl 1):36-40.
- [18] 和继军, 蔡强国, 路炳军, 等. 密云水库上游石匣小流域水土流失综合治理措施研究[J]. *自然资源学报*, 2008, 23(3):375-382. HE J J, CAI Q G, LU B J, et al. Study on comprehensive control measures of soil erosion about Shixia small watersheds in the upper Miyun reservoir[J]. *Journal of Natural Resources*, 2008, 23(3):375-382.
- [19] 许尔琪, 张红旗. 密云水库上游流域土地利用与地表径流营养物的关系[J]. *应用生态学报*, 2018, 29(9):2869-2878. XU E Q, ZHANG H Q. Relationship between land use and nutrients in surface runoff in upper catchment of Miyun reservoir, China[J]. *Chinese Journal of Applied Ecology*, 2018, 29(9):2869-2878.
- [20] 张敏, 李令军, 赵文慧, 等. 密云水库上游河流水质空间异质性及其成因分析[J]. *环境科学学报*, 2019, 39(6):1852-1859. ZHANG M, LI L J, ZHAO W H, et al. Spatial heterogeneity and cause analysis of water quality in the upper streams of Miyun reservoir[J]. *Journal of Environmental Science*, 2019, 39(6):1852-1859.
- [21] 陈朱虹, 陈能汪, 吴殷琪, 等. 河流库区沉积物-水界面营养盐及气态氮的释放过程和通量[J]. *环境科学*, 2014, 35(9):3325-3335. CHEN Z H, CHEN N W, WU Y Q, et al. Sediment-water flux and processes of nutrients and gaseous nitrogen release in a China river reservoir[J]. *Environmental Science*, 2014, 35(9):3325-3335.
- [22] 姜鲁青. 感潮河段沉积物-水界面营养盐交换行为研究——以青岛李村河为例[D]. 青岛:中国海洋大学, 2011:54-55. JIANG L Q. Studies of exchange behavior of nutrient on the sediment-water interface in the tidal reach: Take Licun River in Qingdao as an example [D]. Qingdao: Ocean University of China, 2011:54-55.
- [23] 北京市水务局[EB/OL].[2017-11-30]. <http://nsbd.swj.beijing.gov.cn/dzxsksq.html>. Beijing Municipal Bureau of water affairs[EB/OL].[2017-11-30]. <http://nsbd.swj.beijing.gov.cn/dzxsksq.html>.
- [24] 林俊杰, 刘丹, 张帅, 等. 淹水-落干与季节性温度升高耦合过程对消落带沉积物氮矿化影响[J]. *环境科学*, 2017, 38(2):555-562. LIN J J, LIU D, ZHANG S, et al. Effect of coupling process of wetting-drying cycles and seasonal temperature increasing on sediment nitrogen mineralization in the water level fluctuating zone[J]. *Environmental Science*, 2017, 38(2):555-562.
- [25] 常超, 谢宗强, 熊高明. 三峡水库蓄水对消落带土壤理化性质的影响[J]. *自然资源学报*, 2011, 26(7):1236-1244. CHANG C, XIE Z Q, XIONG G M. The effect of flooding on soil physical and chemical properties of riparian zone in the Three Gorges reservoir[J]. *Journal of Natural Resources*, 2011, 26(7):1236-1244.
- [26] 王娟娟, 李晓敏, 曲克明, 等. 乳山湾底质中硫化物和氧化-还原电位的分布与变化[J]. *渔业科学进展*, 2006(6):64-70. WANG J J, LI X M, QU K M, et al. The distributions and variations of sulfide and redox potential in the sediments of Rushan Bay[J]. *Progress in Fishery Sciences*, 2006(6):64-70.
- [27] 高天赐, 高学鲁, 邢前国, 等. 秋季牟平海洋牧场及其邻近海域沉积物-水界面营养盐交换通量[J]. *海洋环境科学*, 2020, 39(3):387-392. GAO T C, GAO X L, XING Q G, et al. Exchange fluxes of nutrients across sediment-water interface in the Muping marine ranch and its adjacent waters in autumn[J]. *Marine Environmental Science*,

- 2020, 39(3):387-392.
- [28] 秦丽欢, 曾庆慧, 李叙勇, 等. 北京密云水库内湖消落带有机质、营养盐(氮/磷)含量分布特征[J]. 湖泊科学, 2016, 28(4):794-801. QIN L H, ZENG Q H, LI X Y, et al. Distribution of organic matter and nutrient content in water-level-fluctuating zone of Miyun reservoir inner lake, Beijing[J]. *Journal of Environmental Sciences*, 2016, 28(4):794-801.
- [29] 刘丹, 张帅, 唐玉姣, 等. 三峡支流消落带表层沉积物氮矿化动力学参数估算[J]. 农业环境科学学报, 2018, 37(4):766-773. LIU D, ZHANG S, TANG Y J, et al. Parameter estimates of sediment nitrogen mineralization kinetics in the water level fluctuation zone of a Three Gorges reservoir tributary[J]. *Journal of Agro-Environment Science*, 2018, 37(4):766-773.
- [30] 王妙, 王胜, 唐鹄辉, 等. 粤西三座重要供水水库沉积物营养盐负荷与重金属污染特征[J]. 生态环境学报, 2014, 23(5):834-841. WANG M, WANG S, TANG Q H, et al. Characteristics of sediment Nutrients loading and heavy metals pollution in three important reservoirs from the west coast of Guangdong Province, south China[J]. *Ecology and Environmental Sciences*, 2014, 23(5):834-841.
- [31] THORNTON S F, MCMANUS J. Application of organic carbon and nitrogen stable isotope and C/N ratios as source indicators of organic matter provenance in estuarine systems: Evidence from the Tay Estuary, Scotland[J]. *Estuarine Coastal & Shelf Science*, 1994, 38(3):219-233.
- [32] 吴群河, 曾学云, 黄钊. 河流底泥中DO和有机质对三氮释放的影响[J]. 环境科学研究, 2005, 18(5):34-39. WU Q H, ZENG X Y, HUANG Y. Influence of DO and organic matter on nitrogen (NH_4^+-N , NO_2^--N and NO_3^--N) releasing in the sediment of river[J]. *Research of Environmental Sciences*, 2005, 18(5):34-39.
- [33] 刘春颖, 贡江琛, 田野, 等. 典型生态系统氮氧化物释放通量研究进展[J]. 中国海洋大学学报(自然科学版), 2020, 50(8):94-101. LIU C Y, GONG J C, TIAN Y, et al. Research progress of nitrogen oxides emission fluxes in typical ecosystems[J]. *Periodical of Ocean University of China*, 2020, 50(8):94-101.
- [34] 张茜. 漳泽水库沉积物和上覆水污染特征及氮磷释放规律研究[D]. 西安:西安理工大学, 2019:58-59. ZHANG X. Study on pollution characteristics and nitrogen and phosphorus release of sediment and overlying water in Zhangze reservoir[D]. Xi'an: Xi'an University of Technology, 2019:58-59.
- [35] 钢迪嘎, 齐维晓, 刘会娟, 等. 水位变化对消落带氨氧化微生物丰度和多样性的影响[J]. 环境科学学报, 2017, 37(5):1615-1622. GANG D G, QI W X, LIU H J, et al. The impact of water level change on the abundance and diversity of ammonia oxidizing bacteria (AOB) and ammonia oxidizing archaea (AOB) in water-fluctuation zone[J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 2017, 37(5):1615-1622.
- [36] LIU J, CHEN Z L, XU S Y, et al. Experimental research on the impact of *Corbicula fluminea* on DIN exchange at a tidal flat sediment-water interface[J]. *Chinese Journal of Oceanology and Limnology*, 2007, 25(4):434-443.
- [37] JANTTI H, HIETANEN S. The effects of hypoxia on sediment nitrogen cycling in the Baltic Sea[J]. *Ambio*, 2012, 41(2):161-169.
- [38] 董慧, 郑西来, 张健. 污染河口区沉积物-水界面营养盐交换通量的实验研究[J]. 海洋环境科学, 2012, 31(3):423-428. DONG H, ZHENG X L, ZHANG J. Experimental study on exchange flux of nutrients in sediment-water interface in polluted estuary area[J]. *Marine Environmental Science*, 2012, 31(3):423-428.
- [39] 龚云辉, 刘云根, 王妍, 等. pH对高原山地农村沟渠底泥氮形态及氨氮释放通量影响模拟研究[J]. 生态与农村环境学报, 2021, 37(3):378-386. GONG Y H, LIU Y G, WANG Y, et al. Effect of pH on nitrogen forms and ammonia nitrogen release flux in the bottom muddy of plateau rural ditches[J]. *Journal of Ecology and Rural Environment*, 2021, 37(3):378-386.
- [40] 张文斌, 董昭皆, 徐书童, 等. 微生物和藻类分解对荣成天鹅湖沉积物氮磷释放的影响[J]. 海洋环境科学, 2019, 38(4):561-567. ZHANG W B, DONG Z J, XU S T, et al. Effects of microorganism and algal decomposition on nitrogen and phosphorus release from the sediments in Rongcheng Swan Lake[J]. *Marine Environmental Science*, 2019, 38(4):561-567.
- [41] 范成新, 张路, 秦伯强, 等. 太湖沉积物-水界面生源要素迁移机制及量化-1. 铵态氮释放速率的空间差异及源-汇通量[J]. 湖泊科学, 2004, 16(1):10-20. FAN C X, ZHANG L, QIN B Q, et al. Migration mechanism of biogenic elements and their quantification on the sediment-water interface of Lake Taihu: I. Spatial variation of the ammonium release rates and its source and sink fluxes[J]. *Journal of Lake Sciences*, 2004, 16(1):10-20.
- [42] 熊蕾. 东江干流惠州段沉积物-水界面无机氮交换通量及影响因素研究[D]. 吉首:吉首大学, 2016:36-37. XIONG L. Studying on the exchange flux of inorganic nitrogen and the influence factors at sediment-water interface in Dongjiang main stream Huizhou section [D]. Jishou: Jishou University, 2016:36-37.
- [43] YU J H, FAN C X, ZHONG J C, et al. Evaluation of in situ simulated dredging to reduce internal nitrogen flux across the sediment-water interface in Lake Taihu, China[J]. *Environmental pollution*, 2016, 21(4):866-877.
- [44] 燕琛. 泥水界面氧含量对沉积物/水体净化效能与机制研究[D]. 哈尔滨:哈尔滨工业大学, 2019:23-24. YAN C. Study on the efficiency and mechanism of sediment/water purification by interfacial oxygen content in muddy water[D]. Harbin: Harbin Institute of Technology, 2019:23-24.
- [45] WEN S L, GONG W Q, WU T, et al. Distribution characteristics and fluxes of nitrogen and phosphorus at the sediment-water interface of Yuqiao reservoir[J]. *Environmental Science*, 2018, 39(5):2154-2164.
- [46] 赵双菊. 密云水库水位变幅带土壤中营养元素释放的模拟研究[D]. 天津:河北工业大学, 2018:30-32. ZHAO S J. Simulation study of nutrient release from water fluctuation zone of Miyun reservoir [D]. Tianjin: Hebei University of Technology, 2018:30-32.
- [47] 刘思儒, 赵继东, 肖尚斌, 等. 洱海藻类水华高风险期沉积物氮磷释放通量时空变化[J]. 环境科学, 2020, 41(2):734-742. LIU S R, ZHAO J D, XIAO S B, et al. Spatio-temporal variation of release flux of sediment nitrogen and phosphorus in high-risk period of algal bloom in Lake Erhai[J]. *Environmental Science*, 2020, 41(2):734-742.

(责任编辑:宋潇)