

自然水体中悬浮物对反硝化影响的研究进展^{*}

张 鹏^{1,2}, 夏永秋^{2**}, 刘雪梅^{1**}, 颜晓元², 胡 琳³

(1:华东交通大学土木建筑学院,南昌 330013)

(2:中国科学院南京土壤研究所,江苏常熟农田生态系统野外观测研究站,南京 210018)

(3:上饶市婺源生态环境局,上饶 334099)

摘要: 悬浮物在自然水体(池塘、河流、湖泊等)中普遍存在,相较于上覆水,是微生物更为倾向的附着载体。相较于沉积物,更易获取硝酸盐,是水体反硝化发生的热点微区。悬浮物在水体中经历一系列碰撞、絮凝、溶解、离子交换、吸附解吸等物理化学过程,从而会引起颗粒物粒径、营养盐浓度等发生变化;悬浮物的沉降和再悬浮过程也会引起上覆水和沉积物之间的物质交换,并在好氧-缺氧过渡过程中对氮转化造成影响,从而直接或者间接影响水体反硝化速率。本文概括了国内外关于悬浮物影响水体反硝化的研究进展和热点,总结了不同浓度、粒径、组成和种类的悬浮物对反硝化作用的影响,从溶解氧、功能微生物、无机氮、有机碳等环境因素重点归纳了悬浮物影响反硝化的过程,比较和分析了悬浮物反硝化的测定方法。结合当前悬浮物反硝化研究现状,建议未来可以从新兴污染物悬浮物、机理模型、测定方法等方面展开深入研究。

关键词: 悬浮物; 反硝化; 影响因素; 机理; 测定方法

Effects of suspended particles on denitrification in natural water: A review^{*}

Zhang Li^{1,2}, Xia Yongqiu^{2**}, Liu Xuemei^{1**}, Yan Xiaoyuan² & Hu Lin³

(1: School of Civil Engineering and Architecture, East China Jiaotong University, Nanchang 330013, P.R.China)

(2: Changshu Agro-ecological National Field Scientific Observation and Research Station, Institute of Soil Science, Chinese Academy of Sciences, Nanjing 210018, P.R.China)

(3: Shangrao Wuyuan Ecological Environment Bureau, Shangrao 334099, P.R.China)

Abstract: Suspended particles (SPS) are ubiquitous in natural water bodies (ponds, rivers, lakes, etc.) and usually hot spots for denitrification, which tend to adsorb more microorganisms than overlying water and obtain more nitrates than sediments. SPS undergo a series of physical and chemical processes in water bodies, such as collision, flocculation, dissolution, ion exchange, adsorption, and desorption, which would result in changes in particle size and nutrient contents. The sedimentation and resuspension processes of SPS would cause material exchanges between overlying water and sediments, affect nitrogen transformation in the process of aerobic-anoxic transition, and correspondingly affect the denitrification rates of the whole water body directly and/or indirectly. This paper reviews and summarizes (the overseas and domestic) research advances and progresses in SPS' effects on water denitrification with focuses on the factors including concentrations, particle sizes, compositions, and types of SPS. The mechanism of SPS to denitrification through different environmental factors, including dissolved oxygen, functional microorganisms, inorganic nitrogen and organic carbon, has been analyzed. The measurement methods of denitrification with SPS have been compared. Based on the current progress of the research, we suggest that future research should extend into the field of understanding of denitrification with SPS through emerging suspended particles of pollutants, mechanism models, and measurement methods.

Keywords: Suspended particles; denitrification; influencing factors; mechanism; measurement method

随着农业生产集约化程度的提高和工业化、城市化进程的加快,高强度的人类活动加重了氮污染的程

* 2022-02-22 收稿;2022-04-30 收修改稿。

国家自然科学基金项目(U19A2050,42177401,41867020)资助。

** 通信作者;yqxia@issas.ac.cn, 15797832052@163.com。

度^[1-2],水体中的氮浓度不断升高^[3],活性氮污染正引发新一轮的环境危机^[4]。过量的活性氮会造成水体富营养化、水生生境破坏、生物多样性减少等一系列问题^[5-7]。反硝化作用是在缺氧或厌氧条件下,微生物将硝酸盐及亚硝酸盐还原成氮氧化物和氮气的过程^[8]。在水生生态系统中,反硝化作用能够有效去除水体中的硝态氮,消除因硝酸积累对生物的毒害作用,防止水体富营养化,平衡生物固氮输入通量^[9-12]。反硝化过程是去除活性氮的主要途径^[13],据估算,在全球范围内输入河流的总氮约有50%被反硝化作用去除^[14]。随着对水生生态系统活性氮污染问题的重视,水体反硝化过程的研究得到了极大的发展。

在水生生态系统中,反硝化过程主要发生在上覆水、沉积物以及沉积物—水界面^[15-18]。目前,针对水体反硝化过程开展了大量的研究^[19-24]。但是这些研究主要集中在沉积物界面,很少关注到上覆水系统的反硝化,尤其是上覆水中悬浮物参与的反硝化过程。通常,悬浮物粒径小于1 mm,是一种非理想球状复杂的非均质有机—无机复合体。悬浮物的组成如图1所示,有机组分主要包括浮游动植物、微生物、营养物(氮、磷等)、有机碎屑(生物体残骸、粪便等代谢物质)、有机微污染物(农药化合物、多环芳烃类、激素以及内分泌感染物等)^[25];无机组分包括泥沙、矿物碎屑(铁锰氧化物、硅酸盐、碳酸盐等自生矿物以及生物过程中生成的硅骨架碎屑)等;其他(高分子化合物、微塑料、纳米材料等新兴污染物物)^[26])。由于悬浮物中存在厌氧环境,微生物附着在悬浮物上可以发生直接反硝化或耦合硝化反硝化^[27]。此外,悬浮物的碰撞、絮凝、溶解、沉降、再悬浮、离子交换、吸附解吸等一系列物理化学过程是造成营养物质、溶解氧等在上覆水、沉积物中迁移转化的重要原因^[28-29],间接影响到水体中的反硝化速率。在不同水体中悬浮物的浓度、粒径、组成和种类存在差异,加之水动力扰动的影响,使得悬浮物对反硝化作用的影响存在许多不确定因素。水体悬浮物反硝化是深入和系统了解水生生态系统氮素循环过程机理,乃至水体活化氮输入、输出和动态响应的切入点之一^[30-31]。

本文将根据水体悬浮物影响反硝化的国内外研究成果,梳理悬浮物在水体反硝化中的作用与贡献,总结不同浓度、粒径、组成和种类的悬浮物对反硝化的影响,阐述水体悬浮物对反硝化影响机理,回顾悬浮物反硝化速率测定方法。据此,提出现阶段水体悬浮物反硝化研究的不足,以期为后续研究提供参考。

1 自然水体中悬浮物影响反硝化研究概述

自1986年Caron等^[32]观察到细菌更喜欢附着于水体中悬浮物以来,水体反硝化的关注点逐渐从沉积物、上覆水过渡到悬浮物上。1987年Plummer等^[33]提出水体中的悬浮物可以增强反硝化细菌活性,人们开始意识到悬浮物与需要反硝化细菌参与的反硝化作用可能存在一定的关系,陆续开展了一系列悬浮物与反硝化关系的研究。研究大致可以分为两个阶段:2010年之前的探索阶段,该阶段由于方法和认知的不成熟,研究主题大多以现象和影响因素为主。如1997年Michotey等^[34]在海洋研究中发现吸附在悬浮物上的细菌直接参与了反硝化过程,证明了悬浮物上能够进行反硝化作用,这为后续进一步深化悬浮物反硝化研究奠定了基础。1998年van der Perk^[35]利用动态水质模型校准和可识别性分析相结合的方法,分析了水体流速、水体中悬浮物浓度快速变化对水质模型中反硝化消纳过程的影响,为后期利用模型来评估悬浮物对反硝化的影响提供了参考。2010年之后水体中悬浮物反硝化研究步入快速发展阶段,该时期通过室内模拟实验和野外观测实验相结合的方法,逐步向理论和模型方面深化。例如,Klawonn等^[36]提出了悬浮藻类颗粒脱氮过程的理论模式,即悬浮物内部处于厌氧环境,扩散进来的硝酸盐发生反硝化作用生成氮气,并用¹⁵N示踪方法证实了悬浮藻类颗粒内部确实存在复杂的生物地球化学过程。该理论是耦合硝化—反硝化过程的雏



图1 水体悬浮物的组成(绿色表示有机;蓝色表示无机;棕色表示其他)

Fig.1 Composition of suspended matter in water

形。在该阶段,研究还针对不同悬浮物种类(悬浮泥沙、藻类),探究悬浮物浓度、粒径对反硝化过程的影响,以及悬浮物参与的直接反硝化和耦合硝化-反硝化过程等方面。

国家自然科学基金委员会对该主题十分重视,如针对黄河水少沙多、含有大量污染物(耗氧有机污染物、氮、有毒有机污染物)的特点,在2002年布置联合基金重点项目“黄河典型污染物迁移转化规律”,2015年开展了“黄河长江源区河水含氮化合物的来源及水-沙界面过程”重大研究计划,研究水沙条件对反硝化过程的影响。为进一步探讨水体中悬浮泥沙等对反硝化作用机制及生物地球化学过程的影响,2020年开展了“河流水沙条件变异对氮转化的影响机制及环境效应”等重点项目。此外,悬浮物在水体反硝化中的作用也是国际研究的热点。2004年举办的“澳大利亚热带河流可持续未来会议”中就强调农牧业对河流悬浮泥沙和颗粒营养物的影响,以及物质和能量循环对水体悬浮物浓度增加的响应。2005年举行的“大型浅水湖泊富营养化过程与控制”国际学术研讨会,进一步探讨了沉积物再悬浮、水华形成与聚集等与大型浅水湖泊富营养化过程与恢复途径。国际上水环境研究机构也逐步增加对悬浮物的研究。如加州大学戴维斯中心每年都会对Tahoe湖泊和周边河流的营养和悬浮物状况进行通报^[37]。悬浮物对水体反硝化影响的研究逐渐成为国内外水环境领域的热点问题之一。

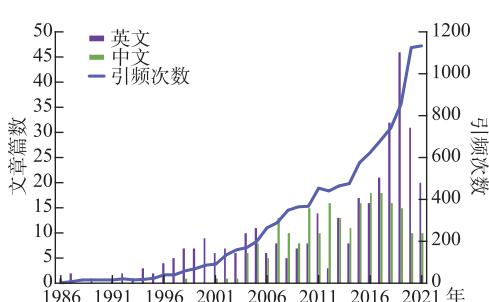


图2 发表的有关“水体悬浮物反硝化”的中、英文文献与引频次数统计

Fig.2 Published literature and citation frequency statistics on denitrification of suspended particles in the water body

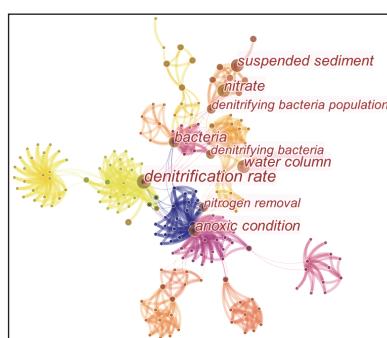


图3 悬浮物反硝化研究主题词聚类图谱

Fig.3 Cluster map of keywords in the suspended particles denitrification research

的影响。

2.1 悬浮物浓度的影响

自然界中水体悬浮物浓度存在显著差异,我国黄河水体中悬浮物浓度最高,平均为22 g/L,长江河口的

为全面掌握国内外悬浮物反硝化研究进展,分别选择国际上Web of Science核心合集数据库(以下简称WOS数据库)和中国知网数据库(以下简称CNKI数据库)中的文献进行检索,文献检索时间跨度为1900年1月1日—2021年12月31日。通过设定WOS数据库的检索式“TS = ((denitrification) AND (suspended sediment OR suspended particles))”,设定CNKI检索主题“悬浮物”和“反硝化”,共检索到215篇中文和519篇英文(图2)。筛选出自然水体的研究文献后,在CiteSpace中进行共词分析构建主题词知识图谱(图3),用以刻画悬浮物反硝化领域的研究主题。通过对比把握了中外水体悬浮物反硝化研究的特点和规律,为该领域后续研究提供借鉴。

主题词共现网络得到的节点较多。从出现频次来看,有6个主题词占据前列:“denitrification rate”“suspended sediment”“bacteria”、“nitrate”“water column”“anoxic condition”,即“反硝化速率”“悬浮泥沙”“细菌”“硝酸盐”“水柱”“缺氧条件”。这些词能侧重反映出悬浮物反硝化研究的综合特征,表明影响因素和沉积物再悬浮是悬浮物反硝化研究的主要内容。

2 悬浮物特性对水体反硝化的影响

由于悬浮物存在好氧-缺氧的微环境,往往成为水体反硝化的热点微区。了解悬浮物对水体反硝化的影响对于更准确地认识水体中氮素循环十分重要。由于悬浮物自身特征与性质的差异,悬浮物对水体反硝化影响有很强的时空变异。在已有的研究中,主要从悬浮物的浓度、粒径和组成等特性方面来解释悬浮物对反硝化

悬浮物浓度在 0.1~26 g/L 之间^[38]。世界第 4 大河流密西西比河的悬浮物浓度为 5.1 g/L^[39]。已有研究表明,悬浮物浓度与水体反硝化速率呈正相关关系。Liu 等^[40]比较了 5 种不同悬浮物浓度的水体反硝化速率,实验发现反硝化速率随着悬浮物浓度的增加而增加。Xia 等^[27]通过将悬浮物浓度分别为 1 与 8 g/L 时的反硝化速率进行比较,发现高浓度悬浮物的反硝化速率更大。Yao 等^[41]通过模拟实验证明出悬浮物浓度是鄱阳湖反硝化速率的主控因素。悬浮物浓度影响反硝化是因为随着水体中悬浮物浓度的增加,悬浮物上低氧微区增加,供反硝化菌附着的空间增多。且随着悬浮物浓度的增加,悬浮物与水体接触面积增大,水体中硝酸盐供给几率升高,反硝化菌利用率增加,从而反硝化速率升高。

2.2 悬浮物粒径的影响

同样的悬浮物浓度下,悬浮物的粒径大小也会对反硝化速率产生显著影响。Drummond 等^[42]发现微生物的代谢和再活化都更依赖于细颗粒,细颗粒可以为反硝化细菌提供更多的吸附面积和更完全的厌氧条件,从而提高反硝化细菌的代谢率。为了进一步了解悬浮物粒径影响反硝化的机制,Yao 等^[41]以 4 和 63 μm 为界限将悬浮物粒径分为 3 组进行实验,结果证实了粒径较小的悬浮物可以提供更多的反硝化菌和厌氧微环境。而后 Xia 等^[27]从硝化细菌、反硝化细菌丰度与悬浮物粒径的关系着手,将悬浮物粒径大小分为 5 组进行模拟实验,探究悬浮物粒径与反硝化速率的关系。研究结果表明,悬浮物粒径越小,悬浮物内氧含量越低,可以为反硝化提供更多的厌氧微环境,从而诱导更强的耦合硝化—反硝化过程。

2.3 悬浮物组成的影响

悬浮物的种类和组成多样,含有水体中难以凸现的环境和地球化学信息^[43]。一般而言,江河湖泊中的悬浮物与水体表层沉积物具有同源和同质性,组成成分以泥沙黏土颗粒为主。受暴雨冲刷、汇水流人、航运、疏浚采矿活动等影响,悬浮物具有很大的时空变异性。如鄱阳湖水体在疏浚和采矿活动的影响下,砂性悬浮物浓度可高达 3 g/L^[44]。此外,还有一些水体受人类活动干扰出现富营养化问题,易致使藻类暴发,悬浮物以藻类居多^[45],如太湖叶绿素 a 浓度最高可达 132 μg/L^[46]。悬浮物组成不同,对反硝化的影响也会存在差异。如富营养化水体中以藻类为主的悬浮物,其对反硝化的影响显著区别于以泥沙为主的悬浮物。刘志迎等^[47]研究发现蓝藻越多反硝化作用越强。这归因于蓝藻在生长期将活性氮转变为有机氮,在衰亡期又能通过降解矿化释放大量的铵态氮,继而转化为硝态氮,为反硝化作用提供大量的底物。而 Zhu 等^[48]则认为藻类密度与反硝化并不是线性相关,而是存在一个先升高后降低的过程。研究结果显示随着藻类生物量增加,反硝化速率先升高后降低。研究认为,当藻类密度较低时,藻类腐烂可以提供有机碳并消耗氧气,有利于反硝化过程进行,反硝化速率随藻类密度增加逐渐升高。但是藻类过多时,藻类衰亡会耗尽氧气,抑制硝化作用,导致硝酸盐供应受限,耦合硝化—反硝化过程断裂,从而限制了反硝化速率。

除了悬浮泥沙和藻类外,水体中还有以重金属、高分子化合物、纳米材料等新兴污染物^[49]为主的悬浮物。新兴污染物来源广泛,且与人类生活息息相关,可通过污水排放、污水溢流、雨水、农田径流、地表径流、大气沉降、地下水补给等多种方式进入到自然水体中,加大水体污染的风险。像纳米材料又能成为其他污染物的载体并产生生物富集,其化学特性及毒理效应都会改变。微塑料这种悬浮载体也有污染物复合行为。目前研究认为,这些悬浮物会对微生物产生毒害作用,从而影响水体反硝化过程。如重金属富集而成的悬浮物对细胞有生物毒性,会损坏细胞并干扰和抑制其代谢过程^[50],从而抑制反硝化过程。但也有一些反硝化菌可以对重金属产生抗性^[51]。微塑料等高分子化合物、纳米银等纳米材料累积而成的悬浮物也会对反硝化产生抑制作用^[52-54]。目前,关于新兴污染物为主的悬浮物对反硝化影响也逐步受到关注。

总之,悬浮物的组成复杂,来源多样,对反硝化的影响受其自身特性和环境条件综合控制。开展不同特性的悬浮物反硝化研究,明确不同组成对反硝化的影响,对于深入认识水体悬浮物反硝化的机制至关重要。

3 水体悬浮物反硝化的影响因素

悬浮物通过直接或间接作用影响水体反硝化过程。一方面,悬浮物与水接触的薄层上,以及被溶解氧渗透的浅表层和悬浮物的孔隙中存在好氧微环境,可以与悬浮物内部的缺氧微环境形成好氧—缺氧条件,附着在悬浮物上的微生物可以发生直接反硝化或耦合硝化—反硝化。另一方面,悬浮物在水体流动过程中发生碰撞、絮凝、溶解等使自身粒径改变。粒径越小其比表面积就越大,吸附作用越强烈。悬浮物通过表面吸

附和解吸作用使得其表面或内部携带的营养物、有机质等含量发生变化,通过离子交换过程会导致其携带的营养盐、重金属等在上覆水、沉积物中转化^[55-57]。而悬浮物的沉降、再悬浮会使其孔隙水中的氨氮等迅速释放到水中加速氮转化,也会使有机氮暴露于水体有氧环境中,加速有机氮矿化从而向水体中释放氨氮。此外,有机氮矿化时经常伴随着微生物对有机碳的分解,分解有机碳会消耗水体中的溶解氧,产生低氧环境从而有利于反硝化作用^[58]。这些都会间接影响到水体中的反硝化速率。悬浮物上反硝化作用概念模型如图4所示。综合近年来的研究,悬浮物对水体反硝化的影响主要通过以下因素实现(图4)。

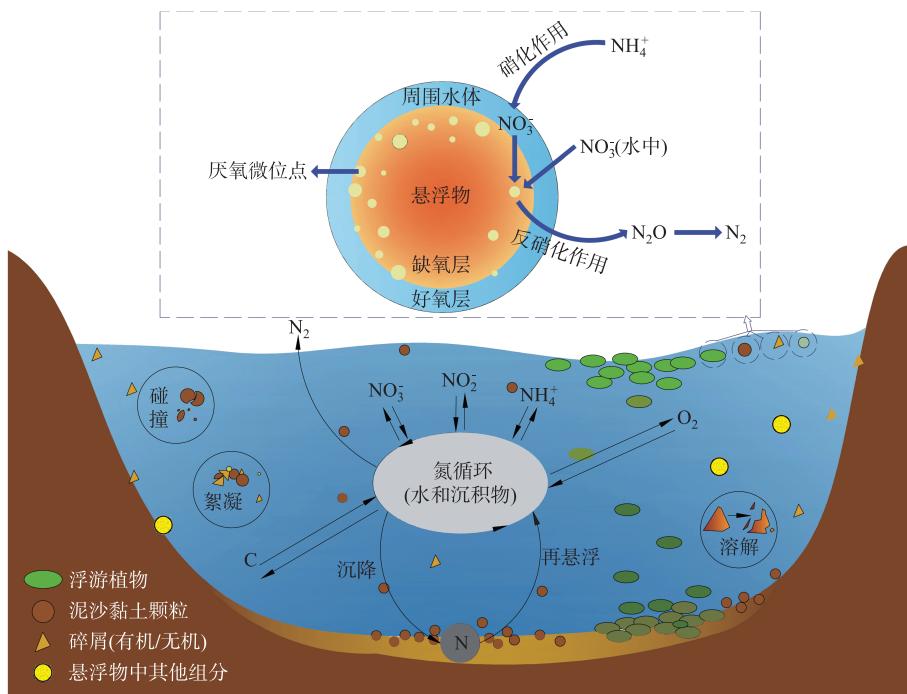


图4 悬浮物上反硝化作用概念模型

Fig.4 Conceptual model of denitrification on suspended particles

3.1 溶解氧

反硝化过程为: $\text{NO}_3^- \rightarrow \text{NO}_2^- \rightarrow \text{NO} \rightarrow \text{N}_2\text{O} \rightarrow \text{N}_2$, 每一步中酶的合成及活性都受到氧气的制约, 所以溶解氧直接影响着反硝化作用^[9]。在富氧水体中, 悬浮物上吸附的硝化细菌利用周围的氧气发生硝化作用, 将水体中的铵态氮转化成硝态氮, 为反硝化过程提供底物。而悬浮物内部存在利于反硝化进行的厌氧环境, 反硝化菌利用悬浮物表面渗透的硝态氮作为底物直接进行反硝化作用, 最终转化为 N_2O 和 N_2 从水中排出^[59]。悬浮物自身内外这种溶解氧浓度差异, 即好氧—厌氧的微环境是能够发生直接反硝化作用或耦合硝化—反硝化作用的先决条件。因此, 水体环境中的溶解氧浓度影响着悬浮物反硝化作用。Xia 等^[27]测定了悬浮物周围的溶解氧浓度, 实验发现从悬浮物外部到内部氧气浓度呈下降趋势, 并且粒径越小, 悬浮物周围溶解氧浓度下降越快。这说明悬浮物自外向内溶解氧浓度逐渐降低, 确实存在好氧—厌氧的微位点。刘志迎等^[47]开展了蓝藻对水体反硝化影响的模拟实验, 结果发现藻团上也存在有氧环境, 而在藻团内部形成了厌氧环境, 再次证明了悬浮物中好氧—厌氧这种溶解氧梯度是反硝化过程的关键条件。一般情况下, 悬浮物低氧微位点形成主要有3种成因:附着在悬浮物上的微生物分解有机物消耗氧气、悬浮物吸附被还原的无机物进行氧化消耗氧气^[60]、悬浮物之间的黏结和碰撞导致氧分布不均匀。由此可知, 悬浮物形成类似好氧—厌氧微界面, 从而驱动水体耦合硝化—反硝化过程。

3.2 功能微生物

反硝化过程涉及诸多功能微生物, 如矿化细菌、硝化细菌、反硝化细菌等。水体悬浮物表面附着的硝化

细菌、反硝化细菌是耦合硝化—反硝化过程的直接参与者,它们的丰度、数量、活性等因素都会对耦合硝化—反硝化过程的发生及其速率产生影响。然而细菌又受到环境条件的影响,如悬浮物上供其吸附的位点多少、发生反应时所需能量源的强弱、生存环境中溶解氧浓度是否适宜等。Xia 等^[27]对水体悬浮物上耦合硝化—反硝化过程的研究发现,反硝化速率与硝化菌和反硝化菌数量呈正相关。且反硝化菌的数量随着悬浮物粒径的增加而减少,硝化菌、反硝化菌还与悬浮物中的总有机碳浓度呈正相关。之后 Zhu 等^[61]在研究悬浮物介导的耦合硝化—反硝化过程时发现,悬浮物浓度会影响水体中硝化菌、反硝化菌群落的组成和丰度。悬浮物的粒径、浓度、有机成分影响着反硝化细菌,进而影响反硝化作用。悬浮物的粒径越小则比表面积越大,悬浮物浓度越高,所供给给细菌的吸附位点就越多。而反硝化细菌作为一种异养微生物,合成需要有机碳作为能量源^[62],有机碳的分解会消耗溶解氧,有利于形成低氧微环境。此外,其他一些微生物也会对反硝化产生影响。如矿化作用时通常会伴随异养微生物对有机碳的分解,消耗水体的溶解氧,创造低氧环境,从而有利于反硝化过程^[63]。

3.3 无机氮

反硝化作用受铵态氮、亚硝态氮、硝态氮 3 种无机氮的影响。其中,硝态氮和亚硝酸氮作为反硝化过程的底物,它们的浓度会直接影响反硝化速率。而硝态氮浓度变化受铵态氮硝化作用产生的硝酸盐和反硝化还原的硝酸盐的影响^[64]。水体中的悬浮物可以既作为氮的载体使氮在悬浮物和水体间进行交换,又可以作为氮的源、汇或缓冲因子影响上覆水和沉积物中氮的含量。悬浮物对无机氮的吸附与解吸是一个复杂的动态过程,随着水体环境不断变化,悬浮物各个组分对无机氮的吸附机理各不相同。黏土矿物吸附无机氮属于化学吸附,有机物质和表层生物膜组成成分较为复杂,对水体中无机氮吸附属于生物吸收和表面吸附^[65]。此外,悬浮物的沉降和再悬浮过程也会使悬浮物自身和水体中的无机氮浓度发生改变。悬浮物表面吸附的或水体可提供的硝态氮浓度越高,即供给反硝化的底物也越多,越有利于反硝化作用。而铵态氮作为硝化作用的底物影响着悬浮物中耦合硝化—反硝化过程^[47]。

3.4 有机碳

反硝化过程需要反硝化细菌的参与,反硝化细菌大部分是异养菌,其活性受有机质电子供应的影响^[66-67]。除此之外,有机碳还是反硝化菌合成的能量源,吸附在悬浮物上的反硝化菌利用悬浮物中有机碳或者水体中的有机碳作为能源参与反硝化作用。所以反硝化菌的数量会随着总有机碳浓度的增加而增加^[68-69]。Zeng 等^[70]研究了溶解性和颗粒态有机碳对水体反硝化的影响,发现水体中颗粒态有机碳对反硝化潜势贡献超过 70%,而颗粒态有机碳和悬浮物一起对反硝化潜势的贡献高达 80%,反硝化菌优先利用颗粒态有机碳而不是溶解性有机碳。悬浮物可以通过吸附作用获得有机碳,或者某些悬浮物本身就是有机碳颗粒或内部含有有机碳,如水生动植物残骸。藻类衰亡分解也会使水中有机碳浓度增加。朱为静^[71]在研究杭州湾河口悬浮物介导的硝化反硝化耦合机理时,发现颗粒性有机碳的浓度随悬浮物浓度增加而显著降低,表明反硝化作用的增强消耗了更多的有机碳。

综上,悬浮物会影响溶解氧、功能微生物、无机氮、有机碳等多种因素,从而对水体反硝化作用产生影响,目前关于悬浮物影响水体反硝化过程的因子方面研究已取得了一定进展。然而,复杂环境条件下各因子之间相互作用不明确,今后应加强环境因素、人为要素、水力因素等综合环境条件下悬浮物对水体反硝化作用的影响规律及其调控机制研究。

4 测定方法

悬浮物对水体反硝化的影响过程非常复杂,定量悬浮物对水体反硝化的贡献是评估水生系统中氮素收支和刻画水体氮素循环的重要研究内容。而悬浮物反硝化速率的准确测定是定量其对水体反硝化贡献的基础。

水体反硝化的测定方法有很多,包括乙炔抑制法、¹⁵N 同位素示踪法、膜进样质谱法(MIMS)和 N₂:Ar 法、氮素质量平衡法、化学计量法等,表 1 比较了水体反硝化作用不同测定方法的原理和主要优缺点、适用性^[14]。这些方法可以测定水体(包括沉积物、沉积物—水界面、悬浮物、上覆水)总体的反硝化,如需进一步量化悬浮物对反硝化的贡献,可以在上述水体反硝化速率测定的基础上,设计悬浮物梯度控制实验,间接实

表 1 水体反硝化速率不同测定方法的比较
Tab.1 Comparison of measurement methods of denitrification rate in water body

方法	原理	优点	缺点	适用性
乙炔抑制法 ^[74-75]	乙炔抑制法基于高浓度乙炔能够抑制 N_2O 还原成 N_2 的原理, 向培养系统中加入一定浓度的乙炔抑制剂, 从而使反硝化过程停留在 N_2O 阶段, 再由测得的 N_2O 产量推算出反硝化速率。	成本低、操作简便、可以同时测定大批量样品。	乙炔中含杂质气体(如丙酮)时, 影响反硝化细菌的活性, 使反硝化速率测定结果误差较大, 硝化作用同步受到抑制, 从而低估反硝化作用。	该方法最好用在氮素浓度较高的生态系统中。
^{15}N 同位素示踪法 ^[76]	^{15}N 同位素示踪法是将 ^{15}N 标记的硝酸盐加入样品中, 然后测定产生的 N_2 和 N_2O 中的 ^{15}N 丰度来量化反硝化速率。	灵敏度高、 ^{15}N 的丰度可准确测定。	^{15}N 标记物的加入可能增加 N 的有效性; ^{15}N 标记物在样品中扩散不均匀; ^{15}N 标记物受环境影响较大(气体扩散受阻、微生物扰动和同位素分馏); 所获取的结果只能定性解释氮的去向, 而不能准确定量各种氮通量。	该方法最好用在氮素浓度较高的生态系统中。
膜进样质谱法 (MIMS) 和 $N_2:Ar$ 法 ^[73,77,78]	Ar 在水体中的溶解度主要受温度、盐度条件控制, 其浓度非常稳定。因此, 可利用 MIMS 测定水样 $N_2:Ar$ 的增量来计算水样中 N_2 的浓度。	测定速度快、精度高、样品测定所需量少、操作简便、步骤少。	较难确保培养系统的气密性及制备与待测水样环境条件一致的标准水样。	适用于测定淹水环境反硝化速率, 不适合旱地。
硝态氮摄耗法 ^[79]	该方法是向系统中定量添加硝酸盐, 在不同培养阶段取样并测定硝态氮浓度, 计算硝态氮的变化量。反硝化速率用硝态氮的变化量除以时间来计算, 反硝化活性用硝态氮的变化量除以初始量来计算。	同时测定潜在反硝化速率和反硝化活性, 操作简便。	硝态氮除了被反硝化过程摄耗, 还会被还原为氨氮, 也可以被生物吸收或被沉积物固定, 造成反硝化作用被高估; 未考虑硝化反硝化耦合作用而导致对反硝化作用的低估。	广泛用于测定海洋及港湾的反硝化。
氮质量平衡法 ^[80]	该方法假定系统是一个稳定库, 并可定量氮的输入量和输出量, 根据两者之间的差值来估算反硝化脱氮量。	可采用多年的数据提高预测精度。	该方法把系统中所有其它氮素去除到了反硝化结果中, 因此误差都累计到了反硝化结果中, 因此误差很大。	一般应用于大尺度的陆地和水体生态系统氮通量的评估。
化学计量法 ^[79,81]	化学计量学法利用以碳或氧气为基础的氮再矿化量与溶解性无机氮通量之间的差值计算反硝化脱氮量。	水体中有机物质的元素组成稳定时, 对反硝化速率估算较为准确。	在海水中, 由于有机物质可能会与沉积物或者大气发生反应, 导致其分解过程中的化学定量关系存在很大的不确定性。因此估算全球海洋中反硝化的发生程度存在一定的误差。	适用于评估尺度较大的海洋系统反硝化作用。

现水体悬浮物反硝化速率的测定。

Liu 等^[40]设计了上覆水—底泥与上覆水—悬浮物—底泥两个体系,使用同位素示踪法测定两个体系的反硝化速率,最后根据体系之间的差值确定悬浮物反硝化作用的贡献。该方法以相同环境下是否含有悬浮物为对比,通过将模拟实验与反硝化测定相结合,得出了悬浮物在水体反硝化中的贡献。Jia 等^[72]则用¹⁵N 同位素示踪法测定了相同浓度下不同粒径的悬浮物反硝化速率。该方法以悬浮物的粒径为变量,用¹⁵N 同位素示踪法测定悬浮物反硝化速率差,从而确定悬浮物粒径对反硝化影响的目的。Yao 等^[41]将乙炔抑制法与培养实验相结合,将底泥再悬浮后进行了 7 组不同悬浮物浓度(0~5 g/L)的模拟实验,通过不同浓度悬浮物和反硝化速率做线性插值,计算悬浮物对水体反硝化速率的贡献。

由于悬浮物反硝化速率主要通过水体反硝化测定方法间接测定,因此,悬浮物反硝化测定的准确度受限于水体反硝化速率测定的精度。近年来,基于 N₂:Ar 测定原理的 MIMS 快速发展,极大地推动了水体氮转化过程的研究。由于其测定精度高、测定速度快等优点,该方法成为目前最具潜力的反硝化直接测定技术^[73],也是悬浮物反硝化测定的潜在方法。

5 研究展望

1) 加强以新兴污染物为主的悬浮物对水体反硝化影响的研究。随着社会的快速发展,越来越多难降解或有生物毒性的新兴物质通过各种途径进入水体积聚成悬浮物或吸附于悬浮物上对水体反硝化造成影响,这些新兴污染物如微塑料、纳米材料等种类繁多、性质各异,对反硝化造成相关影响的研究有待加强。

2) 推进机理模型研究。由于水体悬浮物反硝化影响因素之间复杂的相互作用,为了深入探索悬浮物对水体反硝化的影响,需要确定出各因素如何直接影响反硝化,以及这些因素如何通过与其他因素的相互作用间接影响反硝化。根据悬浮物各因素对反硝化速率的影响机理,识别悬浮物种类、粒径、浓度等因素对反硝化过程中的限制因素(如溶解氧、营养物质浓度、微生物等)的影响路径,构建悬浮物对水体反硝化影响的机理模型,从而深入探索人为活动和自然因素对水体反硝化的影响,提高水体悬浮物对反硝化脱氮能力的估算精度。

3) 改进悬浮物反硝化测定方法。受测定方法的限制,水中悬浮物影响反硝化的研究工作进展缓慢。近几年,遥感技术凭借其大范围的动态监测的优势,在水质参数反演工作中取得了很大进展。由于悬浮物的光学特性,通过遥感技术实现快速、低成本、大面积获取悬浮物参数已十分方便。找出悬浮物与反硝化之间的关系,再基于遥感获取悬浮物的基本信息,进而实现遥感技术对悬浮物反硝化速率的快速反演,是未来发展的可行方向。

6 参考文献

- [1] Wang JG, Lin S, Li BG. Nitrogen cycling and management strategies in Chinese agriculture. *Scientia Agricultura Sinica*, 2016, **49**(3): 503-517. [王敬国, 林杉, 李保国. 氮循环与中国农业氮管理. 中国农业科学, 2016, **49**(3): 503-517.]
- [2] Gao Q, Yu C. A review of urbanization impact on nitrogen cycle. *Progress in Geography*, 2015, **34**(6): 726-738. [高群, 余成. 城市化进程对氮循环格局及动态的影响研究进展. 地理科学进展, 2015, **34**(6): 726-738.]
- [3] 《中国农业百科全书·农业化学》卷现已出版. 新农村, 1997, (2): 10.
- [4] 中华人民共和国生态环境部. 2020 中国生态环境状况公报. <https://www.mee.gov.cn/hjzl/sthjzk/zghjzkgb/>.
- [5] Galloway JN, Dentener FJ, Capone DG *et al*. Nitrogen cycles: Past, present, and future. *Biogeochemistry*, 2004, **70**(2): 153-226. DOI: 10.1007/s10533-004-0370-0.
- [6] Lu SY, Jin XC, Yu G. Nitrogen removal mechanism of constructed wetland. *Chinese Journal of Plant Ecology*, 2006, **26**(8): 2670-2677. [卢少勇, 金相灿, 余刚. 人工湿地的氮去除机理. 生态学报, 2006, **26**(8): 2670-2677.]
- [7] Yu CQ, Huang X, Chen H *et al*. Managing nitrogen to restore water quality in China. *Nature*, 2019, **567**(7749): 516-520. DOI: 10.1038/s41586-019-1001-1.
- [8] Wu YG. Denitrification in groundwater systems. *Techniques and Equipment for Enviropollcont*, 2002, (3): 27-31. [吴耀国. 地下水环境中反硝化作用. 环境污染治理技术与设备, 2002, (3): 27-31.]
- [9] Xu S, Li YS, Wei JB *et al*. Research progress of riparian soil denitrification. *Ecological Science*, 2021, **40**(4): 229-236. [徐硕, 李玉双, 魏建兵等. 河岸带土壤反硝化作用研究进展. 生态科学, 2021, **40**(4): 229-236.]
- [10] Li WW, Liu RZ, Xu HT *et al*. Detection of denitrifying bacteria functional genes in daliao river estuary and its adjacent areas by real-time

- quantitative PCR. *Research of Environmental Sciences*, 2021, **34**(11): 2625-2635. DOI: 10.13198/j.issn.1001-6929.2021.05.11. [李雯雯, 刘瑞志, 徐慧韬等. 大辽河口及其毗邻区域水体反硝化功能基因的定量研究. 环境科学研究, 2021, **34**(11): 2625-2635.]
- [11] Xiao JJ, Guo P, Huo WJ et al. Application of denitrifying microbes to wastewater denitrification. *Environmental Science & Technology*, 2009, **32**(12): 97-102. [肖晶晶, 郭萍, 霍炜洁等. 反硝化微生物在污水脱氮中的研究及应用进展. 环境科学与技术, 2009, **32**(12): 97-102.]
- [12] Wu YL, Xu H, Yang GJ et al. Progress in nitrogen pollution research in Lake Taihu. *J Lake Sci.*, 2014, **26**(1): 19-28. DOI: 10.18307/2014.0103. [吴雅丽, 许海, 杨桂军等. 太湖水体氮素污染状况研究进展. 湖泊科学, 2014, **26**(1): 19-28.]
- [13] Wang XM, Li YL, Lin X et al. Denitrification in wetland soils and its measurement methods. *Journal of Subtropical Resources and Environment*, 2017, **12**(3): 50-60. [汪旭明, 李亚兰, 林啸等. 湿地土壤反硝化作用及测定方法. 亚热带资源与环境学报, 2017, **12**(3): 50-60.]
- [14] Ma P, Li XY, Wang HX et al. Denitrification and its role in cycling and removal of nitrogen in river. *Journal of Agro-Environment Science*, 2014, **33**(4): 623-633. [马培, 李新艳, 王华新等. 河流反硝化过程及其在河流氮循环与氮去除中的作用. 农业环境科学学报, 2014, **33**(4): 623-633.]
- [15] Christensen PB, Nielsen LP, Revsbech NP et al. Microzonation of denitrification activity in stream sediments as studied with a combined oxygen and nitrous oxide microsensor. *Applied and Environmental Microbiology*, 1989, **55**(5): 1234-1241. DOI: 10.1128/aem.55.5.1234-1241.1989.
- [16] Bruesewitz DA, Hamilton DP, Schipper LA. Denitrification potential in lake sediment increases across a gradient of catchment agriculture. *Ecosystems*, 2011, **14**(3): 341-352. DOI: 10.1007/s10021-011-9413-2.
- [17] Chen NW, Chen ZH, Wu YQ et al. Understanding gaseous nitrogen removal through direct measurement of dissolved N₂ and N₂O in a subtropical river-reservoir system. *Ecological Engineering*, 2014, **70**: 56-67. DOI: 10.1016/j.ecoleng.2014.04.017.
- [18] Jin ZF, Gong JL, Shi YL et al. Nitrate source identification and nitrification-denitrification at the sedimentwater interface. *Environmental Science*, 2017, **38**(4): 1423-1430. DOI: 10.13227/j.hjkx.201606116. [金赞芳, 龚嘉临, 施伊丽等. 沉积物-水界面氮的源解析和硝化反硝化. 环境科学, 2017, **38**(4): 1423-1430.]
- [19] Reisinger AJ, Tank JL, Hoellein TJ et al. Sediment, water column, and open-channel denitrification in rivers measured using membrane-inlet mass spectrometry. *Journal of Geophysical Research: Biogeosciences*, 2016, **121**(5): 1258-1274. DOI: 10.1002/2015jg003261.
- [20] Liu WZ, Yao L, Jiang XL et al. Sediment denitrification in Yangtze lakes is mainly influenced by environmental conditions but not biological communities. *Science of the Total Environment*, 2018, **616/617**: 978-987. DOI: 10.1016/j.scitotenv.2017.10.221.
- [21] Hampton TB, Zarnetske JP, Briggs MA et al. Experimental shifts of hydrologic residence time in a sandy urban stream sediment-water interface alter nitrate removal and nitrous oxide fluxes. *Biogeochemistry*, 2020, **149**(2): 195-219. DOI: 10.1007/s10533-020-00674-7.
- [22] Müller B, Meyer JS, Gächter R. Denitrification and nitrogen burial in Swiss lakes. *Environmental Science & Technology*, 2022, **56**(4): 2794-2802. DOI: 10.1021/acs.est.1c07602.
- [23] Korol AR, Noe GB, Ahn C. Controls of the spatial variability of denitrification potential in nontidal floodplains of the Chesapeake Bay watershed, USA. *Geoderma*, 2019, **338**: 14-29. DOI: 10.1016/j.geoderma.2018.11.015.
- [24] Yang D, Wang DQ, Chen S et al. Denitrification in urban river sediment and the contribution to total nitrogen reduction. *Ecological Indicators*, 2021, **120**: 106960. DOI: 10.1016/j.ecolind.2020.106960.
- [25] 田甜. 中国农村地下水中有害微污染物和金属的浓度分布及健康风险[学位论文]. 大连: 大连理工大学, 2019.
- [26] Shao BQ, Pang RR, Li Y et al. Research progress on interaction between microplastics and other emerging contaminants. *Environmental Science & Technology*, 2021, **44**(7): 214-222. [邵博群, 庞蕊蕊, 李烨等. 微塑料和其他新兴污染物相互作用研究进展. 环境科学与技术, 2021, **44**(7): 214-222.]
- [27] Xia XH, Jia ZM, Liu T et al. Coupled nitrification-denitrification caused by suspended sediment (SPS) in rivers: Importance of SPS size and composition. *Environmental Science & Technology*, 2017, **51**(1): 212-221. DOI: 10.1021/acs.est.6b03886.
- [28] Turner A, Millward GE. Suspended particles: Their role in estuarine biogeochemical cycles. *Estuarine, Coastal and Shelf Science*, 2002, **55**(6): 857-883. DOI: 10.1006/ecss.2002.1033.
- [29] 张健. 河口区悬浮物-水界面营养盐交换行为与动态变化特征[学位论文]. 青岛: 中国海洋大学, 2012.
- [30] Ma Y, Li X, Yan YJ et al. The nitrogen environmental organism-geochemistry quantitative relation and hydraulic environment effect in plain hydrographic net. *Environment and Ecology in the Three Gorges*, 2011, **33**(3): 10-14. DOI: 10.14068/j.ceia.2011.03.002. [马严, 黎晓, 严炎杰等. 平原河网河流氮素的环境生物-地球化学行为定量关系及水环境效应. 三峡环境与生态, 2011, **33**(3): 10-14.]
- [31] Ding RN, Yao XL, Fu DF et al. Spatial and seasonal characteristics of organic nitrogen concentrations in lakes of Eastern China and its influencing factors. *Environmental Science & Technology*, 2021, **44**(6): 35-42. [丁润楠, 姚晓龙, 傅大放等. 中国东部湖泊有机氮浓度时空特征及影响因素. 环境科学与技术, 2021, **44**(6): 35-42.]
- [32] Caron DA, Davis PG, Madin LP et al. Enrichment of microbial populations in macroaggregates (marine snow) from surface waters of the North Atlantic. *Journal of Marine Research*, 1986, **44**(3): 543-565. DOI: 10.1357/002224086788403042.
- [33] Plummer DH, Owens NJP, Herbert RA. Bacteria-particle interactions in turbid estuarine environments. *Continental Shelf Research*, 1987, **7**(11/12): 1429-1433. DOI: 10.1016/0278-4343(87)90050-1.

- [34] Michotey V, Bonin P. Evidence for anaerobic bacterial processes in the water column: Denitrification and dissimilatory nitrate ammonification in the northwestern Mediterranean Sea. *Marine Ecology Progress Series*, 1997, **160**: 47-56. DOI: 10.3354/meps160047.
- [35] van der Perk M. Calibration and identifiability analysis of a water quality model to evaluate the contribution of different processes to the short-term dynamics of suspended sediment and dissolved nutrients in the surface water of a rural catchment. *Hydrological Processes*, 1998, **12**(5) : 683-699.
- [36] Klawonn I, Bonaglia S, Bruchert V et al. Aerobic and anaerobic nitrogen transformation processes in N₂-fixing cyanobacterial aggregates. *ISME Journal*, 2015, **9**(6) : 1456-1466. DOI: 10.1038/ismej.2014.232.
- [37] Tahoe Environmental Research Center. Tahoe:State of the Lake Report 2017. https://tahoe.ucdavis.edu/sites/g/files/dgvnsk4286/files/inline-files/9_nutrients_0.pdf.
- [38] Yang SL, Li H, Ysebaert T et al. Spatial and temporal variations in sediment grain size in tidal wetlands, Yangtze Delta: On the role of physical and biotic controls. *Estuarine, Coastal and Shelf Science*, 2008, **77**(4) : 657-671. DOI: 10.1016/j.ecss.2007.10.024.
- [39] Sivakumar B. A phase-space reconstruction approach to prediction of suspended sediment concentration in rivers. *Journal of Hydrology*, 2002, **258**(1/2/3/4) : 149-162. DOI: 10.1016/S0022-1694(01)00573-X.
- [40] Liu T, Xia XH, Liu SD et al. Acceleration of denitrification in turbid rivers due to denitrification occurring on suspended sediment in oxic waters. *Environmental Science & Technology*, 2013, **47**(9) : 4053-4061. DOI: 10.1021/es304504m.
- [41] Yao XL, Zhang L, Zhang YL et al. Denitrification occurring on suspended sediment in a large, shallow, subtropical lake (Poyang Lake, China). *Environmental Pollution*, 2016, **219** : 501-511. DOI: 10.1016/j.envpol.2016.05.073.
- [42] Drummond JD, Davies-Colley RJ, Stott R et al. Retention and remobilization dynamics of fine particles and microorganisms in pastoral streams. *Water Research*, 2014, **66** : 459-472. DOI: 10.1016/j.watres.2014.08.025.
- [43] Ding TP, Gao JF, Shi GY et al. The contents and mineral and chemical compositions of suspended particulate materials in the Yangtze River, and their geological and environmental implications. *Acta Geologica Sinica*, 2013, **87**(5) : 634-660. [丁悌平, 高建飞, 石国钰等. 长江水中悬浮物含量与矿物和化学组成及其地质环境意义. 地质学报, 2013, **87**(5) : 634-660.]
- [44] Jiang F, Qi SH, Liao FQ et al. Hydrological and sediment effects from sand mining in Poyang Lake during 2001-2010. *Acta Geographica Sinica*, 2015, **70**(5) : 837-845. [江丰, 齐述华, 廖富强等. 2001—2010年鄱阳湖采砂规模及其水文泥沙效应. 地理学报, 2015, **70**(5) : 837-845.]
- [45] 陈小锋. 我国湖泊富营养化区域差异性调查及氮素循环研究[学位论文]. 南京: 南京大学, 2012.
- [46] Song T, Zhou WL, Liu JZ et al. Evaluation on distribution of chlorophyll-a content in surface water of Taihu Lake by hyperspectral inversion models. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 2017, **37**(3) : 888-899. DOI: 10.13671/j.hjkxxb.2016.0438. [宋挺, 周文麟, 刘军志等. 利用高光谱反演模型评估太湖水体叶绿素a浓度分布. 环境科学学报, 2017, **37**(3) : 888-899.]
- [47] Liu ZY, Xu H, Zhan X et al. Influence of cyanobacterial blooms on denitrification rate in shallow Lake Taihu, China. *Environmental Science*, 2019, **40**(3) : 1261-1269. DOI: 10.13227/j.hjkx.201808056. [刘志迎, 许海, 詹旭等. 蓝藻水华对太湖水柱反硝化作用的影响. 环境科学, 2019, **40**(3) : 1261-1269.]
- [48] Zhu L, Shi WQ, van Dam B et al. Algal accumulation decreases sediment nitrogen removal by uncoupling nitrification-denitrification in shallow eutrophic lakes. *Environmental Science & Technology*, 2020, **54**(10) : 6194-6201. DOI: 10.1021/acs.est.9b05549.
- [49] Sun HW, Ying GG. Research on emerging pollutants in the environment. *Environmental Chemistry*, 2018, **37**(8) : 1681-1682. [孙红文, 懿光国. 环境中的新兴污染物研究. 环境化学, 2018, **37**(8) : 1681-1682.]
- [50] Zhu WY, Shi LY, Zhao W et al. Metabolic characteristics of aerobic denitrifiers and their interactions with heavy metals. *Acta Microbiologica Sinica*, 2021, **61**(7) : 1786-1798. [朱婉瑜, 侍浏洋, 赵维等. 好氧反硝化菌代谢机制及其与重金属相互作用的代谢特征. 微生物学报, 2021, **61**(7) : 1786-1798.]
- [51] Chovanec P, Sparacino-Watkins C, Zhang N et al. Microbial reduction of chromate in the presence of nitrate by three nitrate respiring organisms. *Frontiers in Microbiology*, 2012, **3** : 416. DOI: 10.3389/fmicb.2012.00416.
- [52] 伍玲丽. 纳米银对 *Pseudomonas stutzeri* 毒性及土壤反硝化作用的影响[学位论文]. 合肥: 安徽农业大学, 2020.
- [53] Liu SQ, Wang C, Hou J et al. Effects of Ag NPs on denitrification in suspended sediments via inhibiting microbial electron behaviors. *Water Research*, 2020, **171** : 115436. DOI: 10.1016/j.watres.2019.115436.
- [54] Shi WC, Gui MY, Du JY et al. Effects of typical microplastics on the denitrification characteristics and denitrification related genes of aerobic denitrifying bacteria. *Chinese Journal of Environmental Engineering*, 2021, **15**(4) : 1333-1343. [史文超, 桂梦瑶, 杜俊逸等. 典型微塑料对好氧反硝化菌群脱氮特性及反硝化相关基因的影响. 环境工程学报, 2021, **15**(4) : 1333-1343.]
- [55] Wang WJ, Zhang XL, Wang WH et al. Element contents of biofilm and suspended particulate in natural aquatic ecosystem. *Chinese Journal of Applied Ecology*, 2002, **13**(8) : 1001-1006. [王文军, 张学林, 王文华等. 天然水体中生物膜及悬浮颗粒物的元素含量研究. 应用生态学报, 2002, **13**(8) : 1001-1006.]
- [56] Li J, Chen JY. A study on the surface biochemical characteristics of suspended particulate matter in the Yangtze River Estuary. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 2002, **22**(4) : 439-442. DOI: 10.13671/j.hjkxxb.2002.04.005. [李军, 陈吉余. 长江口拦门沙河段悬浮颗粒物表面的生化特性研究. 环境科学学报, 2002, **22**(4) : 439-442.]
- [57] Tian YH, Yu W, Liu ZX. The exchange adsorption mechanism effect of trace metal on suspended particles. *Journal of Guangxi Institute of*

- Technology*, 2004, **15**(2): 73-77. [田玉红, 余炜, 刘正西. 痕量金属在悬浮颗粒物上的吸附交换机理. 广西工学院学报, 2004, **15**(2): 73-77.]
- [58] Xia XH, Wang JF, Zhang L et al. Effects and environmental implications of suspended sediment on the transportation and transformation of nitrogen in the Yellow River. *Journal of Hydraulic Engineering*, 2020, **51**(9): 1138-1148. [夏星辉, 王君峰, 张翎等. 黄河泥沙对氮迁移转化的影响及环境效应. 水利学报, 2020, **51**(9): 1138-1148.]
- [59] Körner H, Zumft WG. Expression of denitrification enzymes in response to the dissolved oxygen level and respiratory substrate in continuous culture of *Pseudomonas stutzeri*. *Applied and Environmental Microbiology*, 1989, **55**(7): 1670-1676. DOI: 10.1128/aem.55.7.1670-1676.1989.
- [60] Xia XH, Yang ZF, Huang GH et al. Nitrification in natural waters with high suspended-solid content—A study for the Yellow River. *Chemosphere*, 2004, **57**(8): 1017-1029. DOI: 10.1016/j.chemosphere.2004.08.027.
- [61] Zhu WJ, Wang C, Hill J et al. A missing link in the estuarine nitrogen cycle? Coupled nitrification-denitrification mediated by suspended particulate matter. *Scientific Reports*, 2018, **8**: 2282. DOI: 10.1038/s41598-018-20688-4.
- [62] Chen L, Liu F, Xiao RL et al. Research advances in microbial ecology for N-removal in constructed wetlands. *Acta Ecologica Sinica*, 2017, **37**(18): 6265-6274. [陈亮, 刘锋, 肖润林等. 人工湿地氮去除关键功能微生物生态学研究进展. 生态学报, 2017, **37**(18): 6265-6274.]
- [63] Moriarty JM, Harris CK, Friedrichs MAM et al. Impact of seabed resuspension on oxygen and nitrogen dynamics in the northern gulf of Mexico: A numerical modeling study. *Journal of Geophysical Research: Oceans*, 2018, **123**(10): 7237-7263. DOI: 10.1029/2018jc013950.
- [64] Klawonn I, Bonaglia S, Brüchert V et al. Aerobic and anaerobic nitrogen transformation processes in N₂-fixing cyanobacterial aggregates. *The ISME Journal*, 2015, **9**(6): 1456-1466. DOI: 10.1038/ismej.2014.232.
- [65] 毕玲玲. 胶州湾悬浮物组成特征及对营养盐的吸附解吸作用研究[学位论文]. 青岛: 中国海洋大学, 2006.
- [66] Pfennig KS, McMahon PB. Effect of nitrate, organic carbon, and temperature on potential denitrification rates in nitrate-rich riverbed sediments. *Journal of Hydrology*, 1997, **187**(3/4): 283-295. DOI: 10.1016/S0022-1694(96)03052-1.
- [67] Hill AR, Devito KJ, Campagnolo S et al. Subsurface denitrification in a forest riparianzone: Interactions between hydrology and supplies of nitrate and organic carbon. *Biogeochemistry*, 2000, **51**(2).
- [68] Costa DD, Gomes AA, Fernandes M et al. Using natural biomass microorganisms for drinking water denitrification. *Journal of Environmental Management*, 2018, **217**: 520-530. DOI: 10.1016/j.jenvman.2018.03.120.
- [69] Seitzinger SP. Denitrification in freshwater and coastal marine ecosystems: Ecological and geochemical significance. *Limnology and Oceanography*, 1988, **33**(4part2): 702-724. DOI: 10.4319/lo.1988.33.4part2.0702.
- [70] Zeng J, Chen M, Guo LD et al. Role of organic components in regulating denitrification in the coastal water of Daya Bay, Southern China. *Environmental Science Processes & Impacts*, 2019, **21**(5): 831-844. DOI: 10.1039/c8em00558e.
- [71] 朱为静. 杭州湾河口悬浮颗粒物介导的硝化-反硝化耦合过程微生物机理研究[学位论文]. 杭州: 浙江大学, 2017.
- [72] Jia ZM, Liu T, Xia XH et al. Effect of particle size and composition of suspended sediment on denitrification in river water. *Science of the Total Environment*, 2016, **541**: 934-940. DOI: 10.1016/j.scitotenv.2015.10.012.
- [73] Laursen A, Seitzinger S. Measurement of denitrification in rivers: An integrated, whole reach approach. *Hydrobiologia*, 2002, **485**: 67-81. DOI: 10.1023/A:1021398431995.
- [74] Zhong JC, Fan CX, Liu GF et al. Seasonal variation of potential denitrification rates of surface sediment from Meiliang Bay, Taihu Lake, China. *Journal of Environmental Sciences*, 2010, **22**(7): 961-967. DOI: 10.1016/S1001-0742(09)60205-9.
- [75] Rudolph J, Frenzel P, Pfennig N. Acetylene inhibition technique underestimates *in situ* denitrification rates in intact cores of freshwater sediment. *FEMS Microbiology Letters*, 1991, **85**(2): 101-106.
- [76] Groffman PM, Altabet MA, Böhlke JK et al. Methods for measuring denitrification: Diverse approaches to a difficult problem. *Ecological Applications*, 2006, **16**(6): 2091-2122. DOI: 10.1890/1051-0761(2006)016[2091:mfmda]2.0.co;2.
- [77] Chen NW, Wu JZ, Duan HY et al. N₂:Ar method for direct measurement of denitrification product (dissolved N₂) using membrane inlet mass spectrometry (MIMS). *Acta Scientiae Circumstantiae*, 2010, **30**(12): 2479-2483. DOI: 10.13671/j.hjkxxb.2010.12.004. [陈能汪, 吴杰忠, 段恒轶等. N₂:Ar法直接测定水体反硝化产物溶解N₂. 环境科学学报, 2010, **30**(12): 2479-2483.]
- [78] Li XB, Xia YQ, Lang M et al. N₂:Ar technique for direct determination of denitrification rate of aquatic ecosystems using membrane inlet mass spectrometry. *Journal of Agro-Environment Science*, 2013, **32**(6): 1284-1288. [李晓波, 夏永秋, 郎漫等. N₂:Ar法直接测定淹水环境反硝化产物N₂的产生速率. 农业环境科学学报, 2013, **32**(6): 1284-1288.]
- [79] Cao HL, Fan DD, Yao MJ et al. Methods for measuring soil denitrification rate. *Chinese Journal of Applied and Environmental Biology*, 2021, **27**(4): 1102-1109. [曹慧丽, 樊丹丹, 姚敏杰等. 土壤反硝化过程速率测定方法. 应用与环境生物学报, 2021, **27**(4): 1102-1109.]
- [80] Allison FE. The enigma of soil nitrogen balance sheets. *Advances in Agronomy*, 1955, **7**: 213-250. DOI: 10.1016/S0065-2113(08)60339-9.
- [81] Lang M, Li P, Cai ZC. The comments on methods for measuring denitrification. *Chinese Journal of Soil Science*, 2012, **43**(4): 1019-1024. [郎漫, 李平, 蔡祖聪. 反硝化测定方法的评述. 土壤通报, 2012, **43**(4): 1019-1024.]