

DOI: 10.20103/j.stxb.202402020292

彭闯, 干牧凡, 车景璐, 张妍, 时鹏. 河流潜流带水交换作用对氮迁移转化过程的影响. 生态学报, 2024, 44(23): 10794-10806.

Peng C, Gan M F, Che J L, Zhang Y, Shi P. Study on the influence of water exchange in river hyporheic zone on nitrogen migration and transformation process. Acta Ecologica Sinica, 2024, 44(23): 10794-10806.

河流潜流带水交换作用对氮迁移转化过程的影响

彭 闯¹, 干牧凡¹, 车景璐¹, 张 妍^{1,*}, 时 鹏²

¹ 西北大学城市与环境学院, 西安 710127

² 西安理工大学西北旱区生态水利国家重点实验室, 西安 710048

摘要: 氮在地球生物化学循环中扮演着重要角色, 河流潜流带是河水与地下水相互作用及污染物迁移的关键通道, 水交换作用是驱动潜流带中物质发生生物化学作用的重要动力, 正确认识河流潜流带不同水交换作用对氮迁移转化过程的影响机制对维持河流生态系统健康和全球水安全至关重要。采集渭河潜流带原状沉积物, 通过室内模拟实验, 研究不同水交换作用模式下潜流带中氮的迁移转化过程。结果表明: 由于河流潜流带中不同的水交换作用导致水流形态和溶解氧 (DO) 浓度的差异, 进而影响氧化还原电位 (Eh) 和微生物群落结构等因素的不同, 从而影响河流潜流带中氮素的迁移和转化过程。在地表水补给地下水过程中, NO_3^- -N 和 NO_2^- -N 的含量沿着水分运移的方向增加, NH_4^+ -N 的含量则沿着水分运移的方向减少, 在地下水补给地表水过程中也表现出相同趋势, 这表明河流潜流带水交换作用过程中 NO_3^- -N 发生了迁移。反硝化作用和异化还原成铵作用 (DNRA) 是河流潜流带水交换作用下 NO_3^- -N 转化的主要途径, 地下水补给地表水过程中主要微生物类型是变形菌门, 反硝化作用强于地表水补给地下水过程; 地表水补给地下水过程中主要微生物类型是厚壁菌门, DNRA 作用更强烈。地表水补给地下水过程和地下水补给地表水过程中河流潜流带沉积物对 NO_3^- -N 的总截留率分别为 97.7% 和 98.2%, 其中, 在地表水补给地下水模式下, 0—15、15—30、30—45 cm 和 45—60 cm 沉积层对 NO_3^- -N 的截留率分别为 34.8%、24.5%、23.5% 和 14.9%, 而在地下水补给地表水模式下, 0—15、15—30、30—45 cm 和 45—60 cm 沉积层对 NO_3^- -N 的截留率分别为 21.6%、24.3%、25.0% 和 27.3%, 两种模式呈现相反的变化趋势, 但都在沉积物—水界面对 NO_3^- -N 的截留率最高。因此, 河流潜流带水交换作用对氮迁移转化过程有显著影响, 本研究对治理河流氮污染和维持河流生态系统健康具有重要意义。

关键词: 河流潜流带; 水交换作用; 氮迁移转化; 微生物群落

Study on the influence of water exchange in river hyporheic zone on nitrogen migration and transformation process

PENG Chuang¹, GAN Mufan¹, CHE Jinglu¹, ZHANG Yan^{1,*}, SHI Peng²

¹ College of Urban and Environmental Science, Northwest University, Xi'an 710127, China

² State Key Laboratory of Eco-hydraulics in Northwest Arid Region, Xi'an, University of Technology, Xi'an 710048, China

Abstract: The importance of nitrogen within the Earth's biochemical cycle cannot be overstated. It is a vital component in numerous ecological processes, particularly crucial within river ecosystems. The hyporheic zone is the key channel for the interaction between river water and groundwater, and the migration of pollutants. There is frequent water exchange between river water and groundwater, driving the migration and transformation of substances as well as biochemical cycling in the hyporheic zone. The correct understand of the mechanism of the influence of different water exchanges on nitrogen migration and transformation processes is crucial to maintaining the health of river ecosystems and global water security. This study

基金项目: 国家自然科学基金面上项目 (42273056)

收稿日期: 2024-02-02; 网络出版日期: 2024-08-29

* 通讯作者 Corresponding author. E-mail: yanz@nwu.edu.cn

collected hyporheic sediments from the Weihe River Basin and conducted simulation experiments to investigate nitrogen migration and transformation processes within the hyporheic zone under various water exchange modes. The findings indicated that different water exchanges in the hyporheic zone of rivers led to differences in water flow morphology and dissolved oxygen (DO) concentration, which in turn affected factors such as Oxidation-reduction potential (Eh) and microbial community structure, thereby affecting the migration and transformation process of nitrogen in the hyporheic zone of rivers. During the process of surface water recharging groundwater, there was a noticeable increase in NO_3^- -N and NO_2^- -N content along the water migration path, while NH_4^+ -N content decreased. Similarly, this trend persisted when groundwater replenished surface water, suggesting NO_3^- -N migration during water exchange in the river's undercurrent zone. Denitrification and dissimilatory reduction to ammonium (DNRA) emerged as the primary pathways for NO_3^- -N conversion during this exchange in the underflow zone of rivers. Proteobacteria dominated during the process of groundwater recharge to surface water, favoring denitrification over surface water recharge. Conversely, Firmicutes prevailed during the process of groundwater replenishing from surface water, enhancing DNRA. In both scenarios of surface water replenishing groundwater and groundwater replenishing surface water, the total interception rates of NO_3^- -N in river underflow zone sediments were high, reaching 97.7% and 98.2%, respectively. Specifically, in the surface water replenishing groundwater mode, the NO_3^- -N interception rates within the 0—15 cm, 15—30 cm, 30—45 cm, and 45—60 cm sedimentary layers were 34.8%, 24.5%, 23.5%, and 14.9%, respectively. Conversely, in the groundwater recharge surface water mode, the interception rates within the same sedimentary layers were 21.6%, 24.3%, 25.0%, and 27.3%, respectively. Despite exhibiting opposite trends, both models demonstrated highest NO_3^- -N interception rates at the sediment-water interface. Consequently, water exchange within the river's hyporheic zone significantly influenced the nitrogen migration and transformation process. This study held considerable importance for managing river nitrogen pollution and sustaining the health of the river ecosystem.

Key Words: river hyporheic zone; water exchange; nitrogen migration and transformation; microbial community

氮作为一种基本物质在生物地球化学循环中发挥着重要作用^[1]。自然界中的无机氮化合物包括硝酸盐(NO_3^-)、亚硝酸盐(NO_2^-)、一氧化氮(NO)和氨(NH_3),它们之间大多可以相互转化。这种相互转化过程(例如 N_2 固定为 NH_3 , NH_3 硝化为 NO_2^- 或者 NO_3^-)能够促进生物地球化学循环,这一过程与碳循环同样重要,并值得深入探究^[2]。然而,人类活动严重影响了由多种自然系统介导的氮循环,造成的氮循环失衡往往伴随着严重的环境问题。例如,生活污水和工业废水大量排放以及农业施用氮肥等行为使河流受到了严重的氮污染,导致水体富营养化,水质下降,严重危害到河流生态系统健康^[3]。在全球范围内,包括中国^[4]、美国^[5]、韩国^[6]、日本^[7]、西班牙^[8]等许多国家的河流中都检测到了 NO_3^- -N、 NO_2^- -N、 NH_4^+ -N等氮污染物,其中 NO_3^- -N污染尤为严重^[9]。

河流潜流带(Hyporheic zone)作为河水与地下水相互作用的关键纽带,不断进行着水分、物质和能量交换^[10]。由于河水和地下水在物理、化学和生物特性上存在差异,导致河流潜流带呈现出特定的分带格局。河水富含氮、磷等营养物质,而地下水含量较低,导致潜流带内水质环境不同,影响生物和化学反应。河水和地下水的流动速度、路径和混合程度也不同,影响溶解物质的输运和转化。此外,潜流带的水文地质特征,如沉积物类型和孔隙结构,也影响它们之间的交换和相互作用。这使得氮素迁移转化过程非常活跃,能够通过生物地球化学作用有效去除一些氮污染物^[11]。国内外许多学者认为潜流带是氮迁移转化的热点区域,进行了大量关于水交换作用下潜流带中氮迁移转化的研究^[12]。 NO_3^- -N排入河流后,会随着河水的补给过程进入地下水,当河流水位低于地下水位时,地下水则会携带还原物质来补给河水^[13]。Shuai^[14]等使用二维溶质运输模型研究河流潜流带氮迁移转化过程,结果表明结构松散的沉积层具有较高的渗透系数,氮交换能力较

强^[15]。河流潜流带的不均匀性导致了潜流带不同的水流路径、径流速度^[16]和水力停留时间^[17],从而影响氮的迁移转化过程。地表水—地下水相互作用下河流潜流带会产生物理化学和生物梯度,导致酸碱度(pH)、DO、有机质含量和微生物群落的差异^[18]。Ronggao等^[19]通过研究潜流带中氮素的迁移和去除规律,发现不同的水交换作用对潜流带中氮的迁移转化具有不同的影响。Severer等^[20]对法国河流潜流带氮迁移转化进行了研究,发现在地下水补给地表水过程中NO₃⁻-N表现出较高的时间变异性。Zhang等^[21]通过室内沙箱实验发现反硝化作用和硝化作用与潜流带地下水水位高度有关。研究表明,反硝化细菌和氨氧化细菌与河流潜流带中的无机氮含量和水化学因素有关^[22]。赵磊^[23]等研究发现,硝态氮主要在河流潜流带较低水平部分的还原区积累,导致该水平的反硝化细菌丰度增加,反硝化作用较强。Stonedahl^[24]等指出河流潜流带中化学成分、DO、Eh、有机质含量等理化性质的变化会使微生物群落结构作出相应的反应。目前研究河流潜流带氮的迁移转化主要集中在野外试验中。然而,野外试验受到自然环境的不可控因素的限制,仅能观测有限范围内氮素的迁移转化过程,无法全面了解潜流带内氮素的动态变化。相比之下,室内模拟实验能够在受控条件下模拟各种物理、化学和生物过程,从而更准确地分析氮的迁移转化机制,排除外界干扰。因此,采用室内模拟实验研究河流潜流带水交换对氮迁移转化的影响具有重要意义。

渭河是黄河流域第一大支流,是陕西关中地区唯一的污水接收和排出通道,接收了沿岸排放的大量污染物^[25],其中氮污染已成为渭河流域地表水和地下水的主要污染物之一,严重威胁着当地居民的饮水安全^[26]。因此,本文选取渭河流域西安段,采集河流潜流带沉积物原状样品,基于地表水补给地下水以及地下水补给地表水两种水交换作用,通过室内模拟实验,探究不同水交换作用下河流潜流带中氮的迁移转化规律以及微生物群落的组成,揭示不同水交换作用下潜流带中氮的迁移转化机制,以期为渭河流域河流氮污染综合治理提供科学依据。

1 材料与方法

1.1 实验材料

1.1.1 河流潜流带沉积物样品

于2023年4月13日采用PVC管采集渭河潜流带沉积物样品,将180 cm的PVC管垂直打入河床沉积物至60 cm处,向PVC管上端注满河水后紧紧盖上橡皮塞,以便隔断PVC管内与大气的接触,拔出PVC管收集整管沉积物样品,装入样品袋中密封。沉积物样品带回实验室放在干燥的塑料薄膜上自然风干,剔除杂质,得到模拟实验沉积物样品,并测定其基本理化性质(表1)。采用环刀法测定沉积物的干容重,采用直接称重法测定沉积物孔隙度,采用筛分法测定沉积物粒径,参照《土壤 氨氮、亚硝酸盐氮、硝酸盐氮的测定 氯化钾溶液提取—分光光度法》(HJ634—2012)测定沉积物中的NO₃⁻-N、NO₂⁻-N、NH₄⁺-N。

表 1 河流潜流带沉积物样品的基本理化性质
Table 1 Basic physical and chemical properties of river sediment samples

指标 Index	粒径 Particle size/%	干容重 Dry bulk density/ (g/kg)	孔隙度 Porarity/%	NO ₃ ⁻ -N /(mg/kg)	NO ₂ ⁻ -N /(mg/kg)	NH ₄ ⁺ -N /(mg/kg)	氧化还原电位 Oxidation- reduction potential/mV	pH
数值 Numerical value	砂粒 85.5 粉粒 14.2	0.71	28.75	0.56	0.06	0.06	176	8.16

1.1.2 模拟液配置

根据研究团队长期对地表水和地下水中NO₃⁻-N含量研究结果^[27],采用KNO₃和蒸馏水混合配制实验所用地表水和地下水模拟液(表2),往模拟液中加入CH₃COONa作为碳源,C/N为2:1,并添加Cl⁻作为示踪剂,采用充氩气除氧的方法使得地下水模拟液的DO浓度在2 mg/L以下^[28—29]。

表 2 实验模拟液组分及其浓度/(mg/L)

Table 2 Experimental simulation liquid components and their concentrations

模拟液 Simulation fluid	组别 Group	Cl ⁻	KNO ₃	CH ₃ COONa	溶解氧 Dissolved oxygen
地表水 Surface water	实验组	200	50	171.43	7—8
	对照组	200	—	171.43	7—8
地下水 Groundwater	实验组	200	50	171.43	<2
	对照组	200	—	171.43	<2

表中“—”表示不添加该组分

1.2 实验方法

1.2.1 实验装置

模拟实验装置采用高为 100 cm,内径为 14 cm,管壁厚度为 0.5 cm 的有机玻璃柱(图 1)(以下称模拟柱),往模拟柱内分层填充 60 cm 河流潜流带沉积物样品。在装柱前,先在模拟柱最底端装上一层筛网,防止填装的沉积物流失,之后柱底装上 1 cm 厚度的石英砂以均匀布水。模拟柱填装结束后,用蒸馏水对其进行饱水处理,以驱除介质中的空隙。模拟柱中潜流带沉积物完全被水浸没,达到水饱和,并发生重力排水。重复饱水和重力排水步骤,直到潜流带沉积物厚度稳定。每根模拟柱共设 4 个不同深度(15、30、45 cm 和 60 cm)沉积物间隙水取样孔,模拟实验通过马氏瓶控制水头,水头控制在 25—30 cm。模拟柱设置溢水装置,地表水补给地下水模拟实验装置(图 1)从上端进水下端溢水模拟地表水补给地下水过程;地下水补给地表水模拟实验装置(图 1)从下端进水上端溢水模拟地下水补给地表水过程。

1.2.2 实验设计

基于不同的水交换作用,即地表水补给地下水以及地下水补给地表水过程设计 2 组实验,同时每组实验分别设置实验组和对照组。从模拟柱上端通入地表水模拟液模拟地表水补给地下水过程,从模拟柱下端通入地下水模拟液模拟地下水补给地表水过程。实验组和对照组的模拟柱填充方式保持一致。为符合自然状态下河流潜流带的环境,模拟柱使用黑色塑料袋进行避光处理,模拟温度控制在 25—30 ℃。为了模拟自然状态

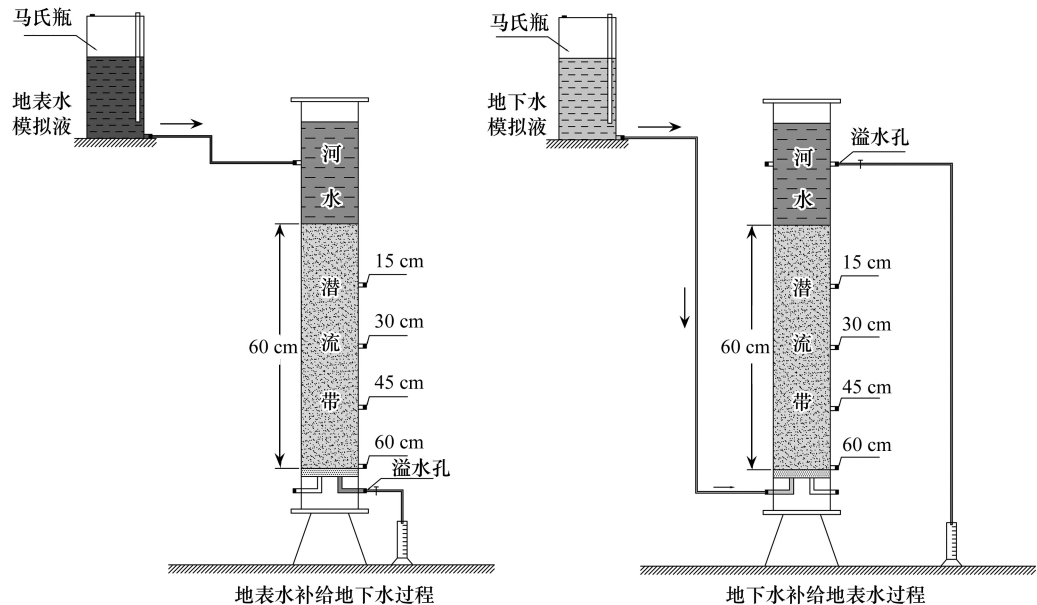


图 1 地表水补给地下水过程和地下水补给地表水过程模拟实验装置

Fig.1 Simulation experimental device for the process of surface water recharge to groundwater and the process of groundwater recharge to surface water

下的水流,进水流量约为情况 500 mL/d^[28-29]。于 2023 年 4 月 27 日开始模拟实验,模拟实验持续 35 d,每 2 d 取一次水样。为防止取样过程中 NO_2^- 被空气中的 O_2 氧化,取样前先将取样瓶充满氩气。取样后及时快速的测定水样中的 pH、Eh 和 DO,避免其与空气接触时间过长产生误差,水样经过 0.22 μm 玻璃纤维滤膜过滤后,分析有关指标。

1.3 测试指标

水样测试指标主要包括 DO、pH、DO、 Cl^- 、 NO_3^- -N、 NO_2^- -N、 NH_4^+ -N 等,其中 DO、pH、Eh 采用 AZ86031 多功能水质检测仪测定, NO_3^- -N、 NO_2^- -N、 NH_4^+ -N 采用离子色谱仪测定。实验结束后分层取出沉积物样品,测定沉积物中的 NO_3^- -N、 NO_2^- -N、 NH_4^+ -N 和微生物组成。参照《土壤 氨氮、亚硝酸盐氮、硝酸盐氮的测定 氯化钾溶液提取—分光光度法》(HJ634—2012)测定沉积物中的 NO_3^- -N、 NO_2^- -N、 NH_4^+ -N。微生物群落组成委托温特基因科技(西安)有限公司进行测定。

1.4 数据分析

使用 Origin 2021 软件和 Excel 处理和分析实验数据以及作图。

2 结果与讨论

2.1 河流潜流带水交换作用下氮素含量变化特征

实验前期,两种水交换作用下沉积物间隙水中 Cl^- (其中地表水补给地下水过程为 15 cm 深度,地下水补给地表水过程为 60 cm 深度)和 NO_3^- -N 浓度都呈上升趋势,这是由于模拟液进入沉积物中对孔隙中的水分进行驱替与混合,这段时间 NO_3^- -N 浓度没有明显衰减(图 2)。由图 2 可知,在地表水补给地下水过程中,沉积物间隙水中 Cl^- 浓度在 13 d 达到峰值,0—30 cm 深度沉积物间隙水中 NO_3^- -N 浓度高于 45—60 cm 深度沉积物。与之相反,在地下水补给地表水过程中沉积物间隙水中 Cl^- 浓度在第 15 d 达到稳定峰值,并且深层沉积物间隙水中 NO_3^- -N 浓度高于浅层沉积物(图 2),这可能是因为在地表水补给地下水过程中水流形态为下降流,地表水携带着溶质由浅层沉积物流向深层沉积物,而在地下水补给地表水过程中,由于水流形态为上升流并且水流流速缓慢导致的。随着实验进程,本实验两组水交换模式下 NO_3^- -N 浓度开始衰减(图 2),并且两组实验沉积物间隙水中 NO_2^- -N 浓度整体呈上升趋势(图 2),这一结果表明,在模拟的河流潜流带中,反硝化作用使 NO_3^- 逐渐还原为 NO_2^- 、 N_2O 和 N_2 ,这与 Duan 等人^[28]的研究一致。而在对照组实验中由于模拟液中未添加 KNO_3 ,所以 NO_3^- -N 浓度很低(图 2),导致沉积物间隙水中 NO_2^- -N 浓度很低, NO_3^- -N 浓度过低将导致反硝化作用的减弱或者停止^[30]。两种水交换模式下,实验组中 NH_4^+ -N 的浓度与对照组相比都有所增加(图 3),地表水补给地下水过程中,0—60 cm 深度沉积物间隙水中 NH_4^+ -N 增加量依次为 0.89、2.34、3.27 mg/L 和 3.11 mg/L,地下水补给地表水过程中,0—60 cm 深度沉积物间隙水中 NH_4^+ -N 增加量依次为 0.43、1.39、1.39 mg/L 和 0.83 mg/L。大多数研究认为 NO_3^- -N 的衰减是由于发生了反硝化作用,从而忽略了 DNRA 作用的影响^[31]。DNRA 作用是指在厌氧菌或兼性厌氧菌作用下, NO_3^- -N 被还原为 NH_4^+ -N 的过程,但是 DNRA 作用只能使氮素形态发生变化, NH_4^+ -N 并不能从水中彻底去除^[32],所以在河流氮污染中 DNRA 作用不容忽视。由于对照组实验模拟液中并未添加 NO_3^- -N,假定实验组中有机氮矿化作用和阳离子交换作用与对照组近似,那么可以认为地表水补给地下水和地下水补给地表水过程实验组沉积物间隙水中 NH_4^+ -N 多于对照组的部分来源于 DNRA 作用,结果表明两种水交换作用下都发生了 DNRA 作用生成了 NH_4^+ -N(图 3),地表水补给地下水过程 NH_4^+ -N 的增加量大于地下水补给地表水补给地下水过程,这可能与地下水中 DO 浓度较低有关。在上升流过程中 DO 浓度低,存在更适宜反硝化反应的微生物种群,导致 DNRA 作用相对较弱^[33]。

2.2 河流潜流带水交换作用下沉积物中微生物群落组成

不同的水交换作用可以改变河流潜流带营养物的运输方式,进而影响潜流带沉积物中底物浓度的分布,从而导致微生物群落组成发生变化^[28]。不同水交换作用下河流潜流带微生物群落组成见图 4。优势菌门包

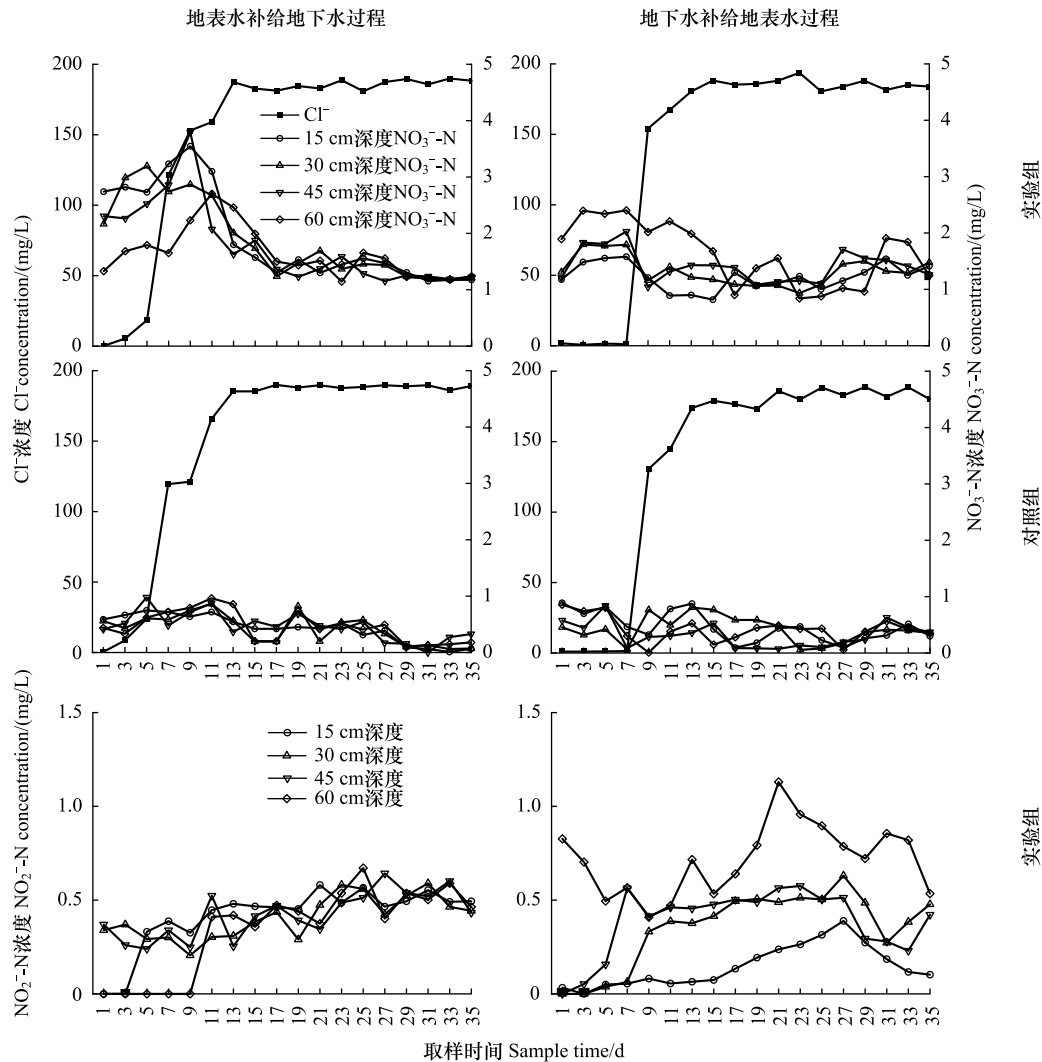


图2 地表水补给地下水和地下水补给地表水过程中不同深度沉积物间隙水 NO_3^- -N 及 NO_2^- -N 浓度变化曲线

Fig.2 Concentration changes of NO_3^- -N and NO_2^- -N in sediment interstitial water at different depths during the process of surface water recharge to groundwater and groundwater recharge to surface water

括变形菌门(Proteobacteria)、酸杆菌门(Acidobacteriota)、厚壁菌门(Firmicutes)、拟杆菌门(Bacteroidota)、绿弯菌门(Chloroflexi)和放线菌门(Actinobacteriota)。在地表水补给地下水作用下为变形菌门(18.95%)、酸杆菌门(10.83%)、厚壁菌门(19.25%)、拟杆菌门(9.16%)、绿弯菌门(5.31%)、放线菌门(7.54%)。在地表水补给地下水作用下为变形菌门(29.11%)、酸杆菌门(15.63%)、厚壁菌门(3.97%)、拟杆菌门(13.48%)、绿弯菌门(5.31%)、放线菌门(7.54%)。两种水交换作用中变形菌门的丰度较高,在中国区的其他河流潜流带中,变形菌门也表现为优势菌门^[34]。不同水交换作用下导致了河流潜流带不同的环境条件,从而导致河流潜流带优势菌门的组成存在差异。由表3可知,地表水补给地下水作用下变形菌门与 NO_3^- -N 含量之间存在负相关,与 DO 含量存在显著负相关($P<0.05$),与 NH_4^+ -N 存在正相关。地下水补给地表水作用下变形菌门与 NO_3^- -N 含量之间存在显著负相关($P<0.01$),与 DO 之间也存在显著负相关($P<0.05$),与 NH_4^+ -N 存在正相关,与地表水补给地下水作用研究结果一致。研究表明变形菌门中的反硝化菌在潜流带脱氮过程中存在重要作用,能够有效去除水中的 NO_3^- -N^[35],并且河流潜流带中 NH_4^+ -N 含量越高,变形菌门的丰度越高^[36]。结合图4可知,地下水补给地表水作用下变形菌门丰度高于地表水补给地下水作用,DO 浓度较高会抑制反硝化作用,结果表

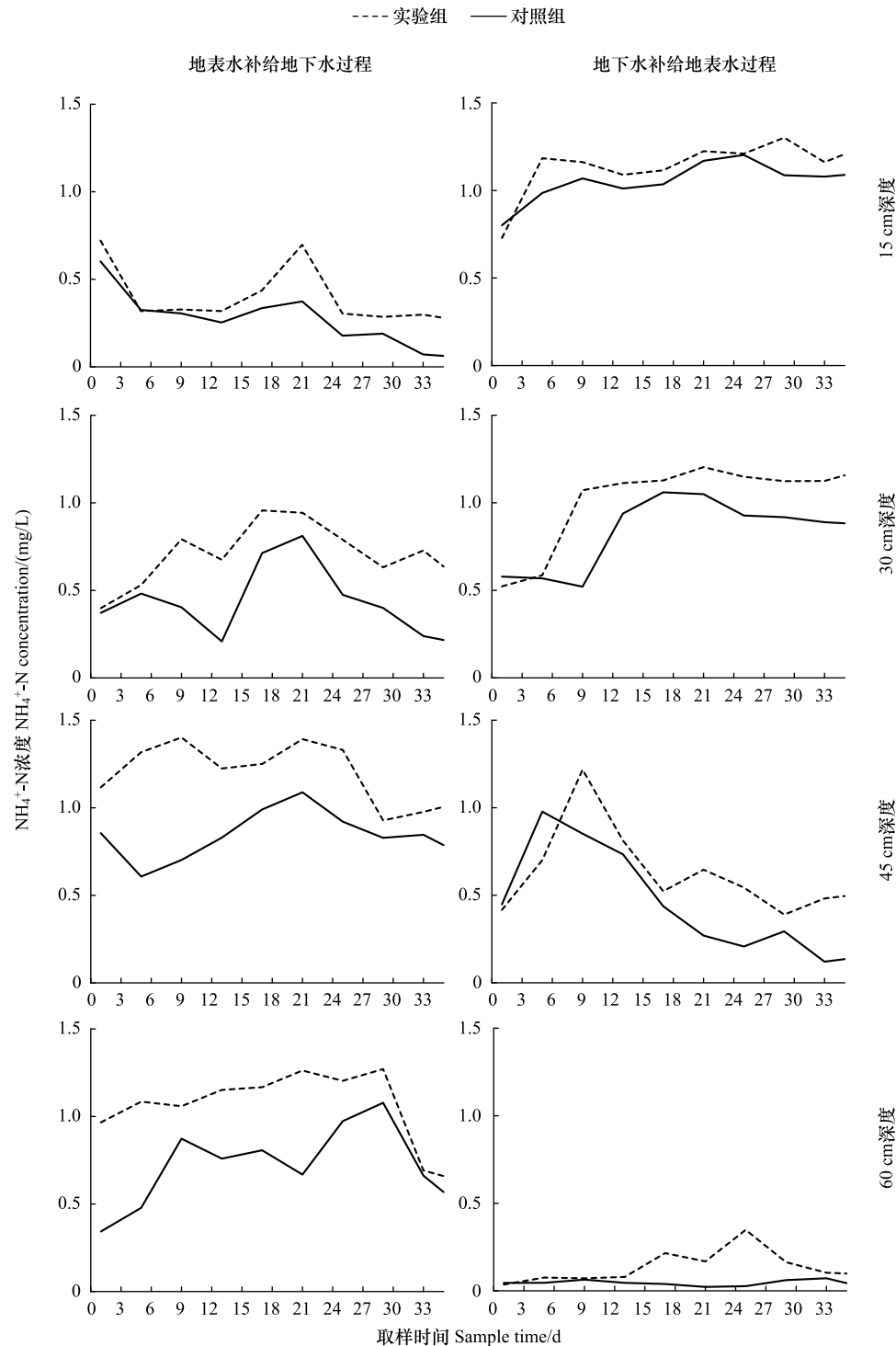


图 3 地表水补给地下水和地下水补给地表水过程中不同深度沉积物间隙水 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 浓度变化曲线

Fig.3 Concentration changes of $\text{NH}_4^+\text{-N}$ in sediment interstitial water at different depths during the process of surface water recharge to groundwater and groundwater recharge to surface water

明 DO 浓度越低,变形菌门的丰度越高,反硝化作用越强。研究表明厚壁菌门中的芽孢杆菌属具有 DNRA 效应^[37],本研究中,地表水补给地下水作用下厚壁菌门与 DO 存在显著正相关($P<0.05$),在地下水补给地表水过程中也存在显著正相关($P<0.01$),这与 Zhang^[21]等研究结果一致。由表 3 可知,地表水补给地下水作用下厚

壁菌门与 NO_3^- -N 之间存在正相关,与 NH_4^+ -N 之间存在显著负相关($P<0.05$),在地下水补给地表水作用下厚壁菌门与 NO_3^- -N 之间存在正相关,与 NH_4^+ -N 之间存在显著负相关($P<0.05$),两组实验研究结果一致。结果表明河流潜流带 DO 浓度的不同会使河流潜流带微生物群落组成作出相应的改变,从而影响潜流带氮素相关反应。

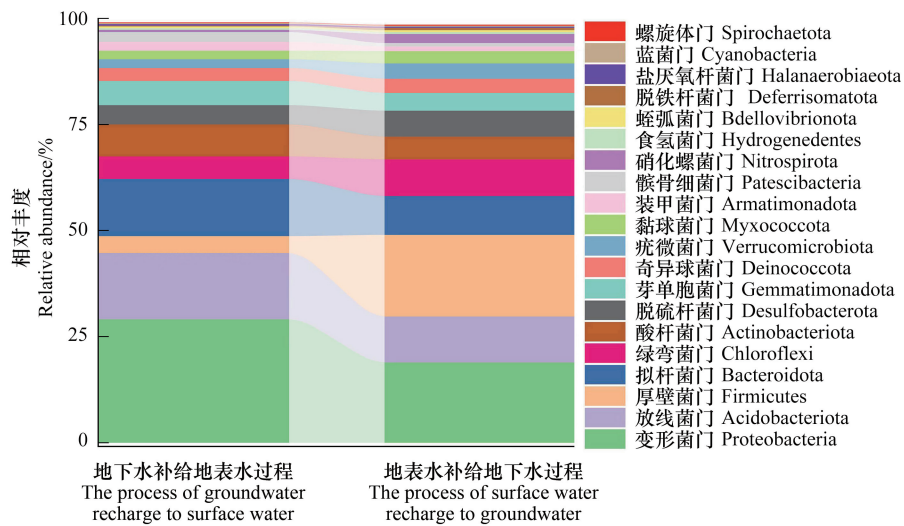


图 4 不同水交换作用下河流潜流带微生物群落组成

Fig.4 Composition of microbial communities in different sediment layers in river hyporheic zones under different water exchanges

表 3 不同水交换作用下河流潜流带微生物群落组成与各化学指标相关性

Table 3 Correlation between microbial community composition and various chemical indicators in the hyporheic zone of rivers under different water exchanges

项目 Project	变形 菌门	酸杆 菌门	厚壁 菌门	拟杆 菌门	绿弯 菌门	放线 菌门	NO_3^- -N	NO_2^- -N	NH_4^+ -N	DO	Eh	pH
变形菌门 Proteobacteria	1	-0.599	-0.992 **	-0.912	0.986 *	-0.585	-0.861	0.727	0.930	-0.972 *	0.014	-0.868
酸杆菌门 Acidobacteriota	-0.181	1	0.652	0.651	0.475	0.985 *	0.874	0.979 *	-0.769	0.769	0.141	0.884
厚壁菌门 Firmicutes	-0.894	-0.235	1	0.954 *	0.961 *	0.620	0.911	0.759	-0.968 *	0.982 *	-0.101	0.914
拟杆菌门 Bacteroidota	-0.905	-0.192	0.999 **	1	-0.852	0.570	0.938	0.710	0.982 *	0.917	-0.370	0.928
绿弯菌门 Chloroflexi	-0.585	0.783	0.161	0.186	1	-0.476	-0.766	-0.627	0.861	-0.926	-0.033	-0.775
放线菌门 Actinobacteriota	-0.628	-0.127	0.806	0.821	-0.116	1	0.816	0.981 *	-0.710	0.754	0.311	0.833
NO_3^- -N	-0.996 **	0.152	0.884	0.892	0.601	0.566	1	0.903	-0.981 *	0.941	-0.166	0.998 **
NO_2^- -N	-0.948 *	0.071	0.829	0.829	0.613	0.399	0.974 *	1	-0.828	0.865	0.222	0.918
NH_4^+ -N	0.933	0.024	-0.972 *	-0.983 *	-0.282	-0.857	-0.907	-0.814	1	0.966 *	0.218	-0.978 *
DO	-0.945 *	-0.119	0.991 **	0.994 **	0.291	0.769	0.937	0.885	-0.982 *	1	0.030	0.950 *
Eh	-0.599	-0.573	0.736	0.705	0.045	0.230	0.653	0.759	-0.574	0.715	1	-0.122
pH	-0.967 *	0.346	0.830	0.853	0.607	0.701	0.941	0.843	-0.923	0.888	0.384	1

左下角为地下水补给地表水作用,右上角为地表水补给地下水作用;“*”表示在 0.05 级别(双侧)相关性显著;“**”表示在 0.01 级别(双侧)相关性显著

2.3 河流水交换作用对氮素迁移转化的影响机制

由图 5 可知,实验进行 35 d 后,不同水交换作用下河流潜流带不同深度沉积层中 NO_3^- -N 含量均有增加,说明河流潜流带水交换作用有利于截留水中 NO_3^- -N 污染物。在地表水补给地下水和地下水补给地表水过程中沉积物对 NO_3^- -N 的总截留率分别高达 97.7% 和 98.2%。在地表水补给地下水作用下,不同深度沉积层对

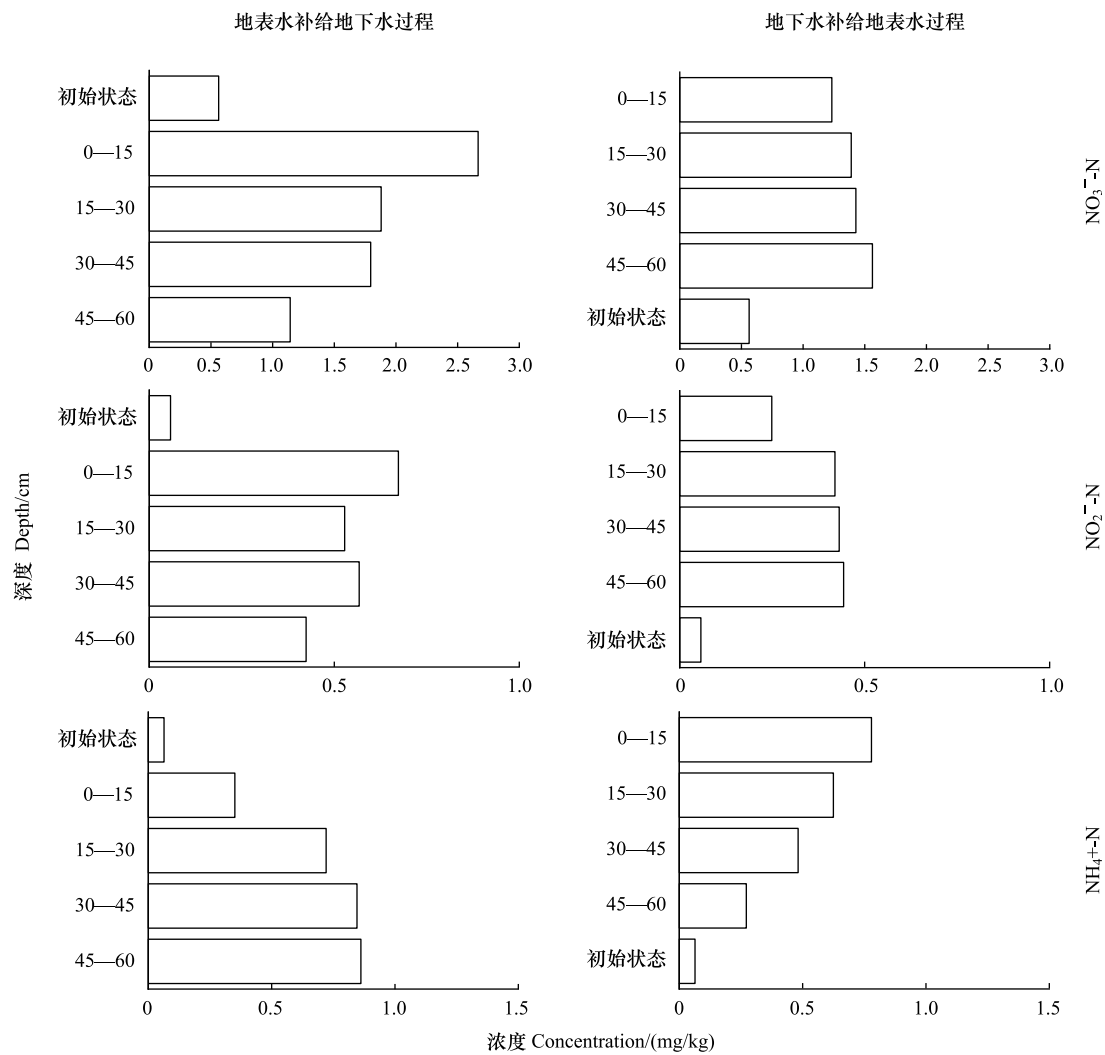


图5 地表水补给地下水和地下水补给地表水过程不同深度沉积层氮素含量

Fig.5 Nitrogen content in sedimentary layers at different depths during the process of surface water recharge to groundwater and groundwater recharge to surface water

$\text{NO}_3^- \text{-N}$ 的截留率分别为 34.8%、24.5%、23.5% 和 14.9%，在地下水补给地表水作用下，相同深度的沉积层对 $\text{NO}_3^- \text{-N}$ 的截留率分别为 21.6%、24.3%、25.0% 和 27.3%，结果显示，不同深度的沉积层对 $\text{NO}_3^- \text{-N}$ 的截留率存在差异，这可能与地表水—地下水相互作用方式有关。在地表水补给地下水作用下，0—15 cm 沉积层截留率最大，而在地下水补给地表水作用下，45—60 cm 沉积层截留率最大，两种水交换作用都表现出沉积物—水界面对 $\text{NO}_3^- \text{-N}$ 的截留效果最好，这可能与沉积物—水界面反应底物浓度，微生物群落丰度以及有机质含量有关。河流潜流带沉积物—水界面通常富含反应底物、有机质和微生物，可以通过反硝化作用将 $\text{NO}_3^- \text{-N}$ 还原为氮气或氮气氧化物^[38]。地表水补给地下水作用下 $\text{NO}_3^- \text{-N}$ 的含量增加了 7.48 mg/kg，而地下水补给地表水作用下为 5.52 mg/kg，地表水补给地下水作用下河流潜流带对 $\text{NO}_3^- \text{-N}$ 的吸收更多，这可能是由于上升流水流速度较慢，水中的有更多的机会与沉积物接触，从而增加了被沉积物吸附和截留的可能^[39]。地表水补给地下水过程中 $\text{NH}_4^+ \text{-N}$ 的含量增加了 2.78 mg/kg，地下水补给地表水过程中 $\text{NH}_4^+ \text{-N}$ 的含量增加了 2.16 mg/kg，其原因可能是地表水补给地下水作用下 DNRA 作用显著，介质中易吸附阳离子的颗粒聚集并吸附阳离子。地表水补给地下水作用下河流潜流带沉积层中 $\text{NO}_3^- \text{-N}$ 随着深度递减（图 5）， $\text{NH}_4^+ \text{-N}$ 含量随着深度递增（图 5），地下水补给地表水作用则相反（图 5），这与 Pretty 等^[40] 研究水交换作用下潜流带不同沉积层中氮素含量变化结果一致。

两组水交换作用下 NO_3^- -N 浓度都在衰减(图 2), 因为 NO_2^- -N 是反硝化作用的中间产物, 表明两组实验可能都发生了反硝化作用。对比两种水交换作用, 发现地表水补给地下水过程中沉积物间隙水 NO_2^- -N 浓度始终低于 0.75 mg/L (图 2), 并且在地下水补给地表水过程中, 沉积物间隙水 NO_3^- -N 浓度较高, 这可能是因为地下水补给地表水时 DO 浓度较高。研究表明 DO 浓度大于 4 mg/L 时, 反硝化速率降低, 反硝化作用对 NO_3^- -N 衰减的贡献率为 4% ^[41]。当水环境中 DO 浓度为 $2.5\text{—}5 \text{ mg/L}$ 时, O_2 可以通过抑制 N_2 还原酶基因的表达来抑制酶的活性, 从而间接影响潜流带中反硝化作用的速率^[42]。在地表水补给地下水过程中, 本研究沉积物间隙水 DO 浓度在 5.5 mg/L 左右(图 6), 地下水补给地表水过程中为 2 mg/L 左右(图 6), DO 浓度较高导致反硝

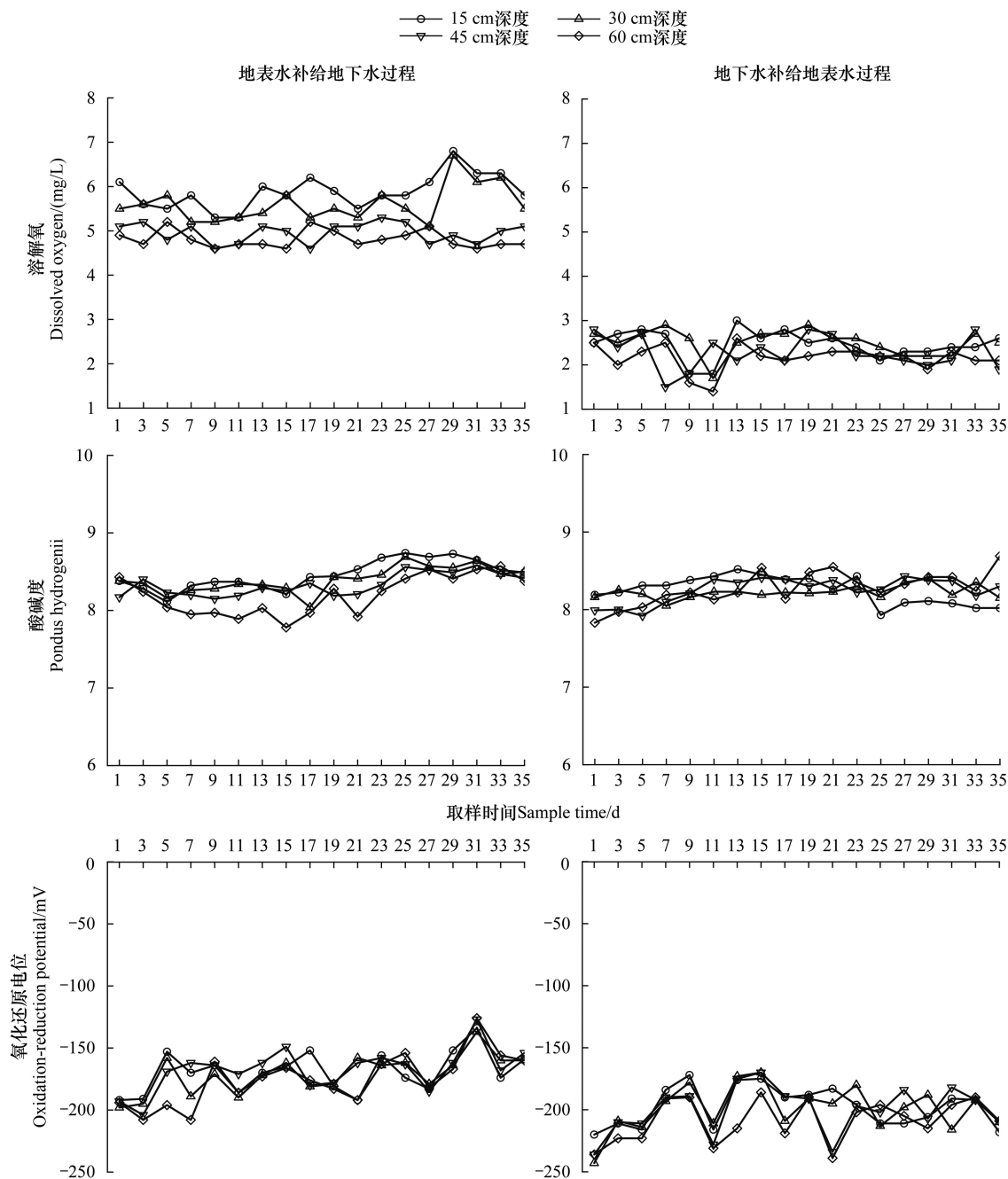


图 6 地表水补给地下水和地下水补给地表水过程中不同深度沉积物间隙水 DO、pH 及 Eh 浓度变化曲线

Fig.6 Change curves of DO, pH and Eh concentration of sediment interstitial water at different depths during the process of surface water recharge to groundwater and groundwater recharge to surface water

化速度降低。因此,地表水补给地下水过程中反硝化作用较微弱,地下水补给地表水过程中反硝化作用更强烈。同时由于反硝化作用受到抑制,所以地表水补给地下水过程中不同深度沉积物反硝化作用无明显差异。而在地下水补给地表水过程中,由于深层沉积物中 NO_3^- -N 浓度更高(图 2),所以深层沉积物间隙水中 NO_2^- -N 浓度更高(图 2),反硝化作用更强烈。在地下水补给地表水过程中,有时会明显出现沉积物间隙水中 NO_3^- -N 浓度升高(图 2)和 NO_2^- -N 浓度降低(图 2)。这是因为反硝化作用是分步进行的,反硝化作用中 NO_3^- -N 首先在硝酸盐还原酶(*Nar*)作用下生成 NO_2^- -N, NO_2^- -N 不稳定在亚硝酸盐还原酶(*Nir*)的作用下分解,生成 N_2O 或者 N_2 ^[43],同时反硝化作用中, NO_3^- -N 的还原比 NO_2^- -N 的还原释放更多的自由能,硝酸盐还原酶的合成要早于亚硝酸盐还原酶^[44], NO_3^- -N 的还原优先发生, NO_2^- -N 的积累暂时发生。

河流潜流带不同水交换作用由于水流方向以及 DO 浓度存在差异,导致河流潜流带中底物浓度和氧化还原条件发生变化,影响河流潜流带中微生物群落组成。地表水补给地下水过程中,由于水流由浅层沉积物流向深层沉积物,导致 NO_3^- -N 含量随着深度递减,并且更深层的沉积物 DO 浓度更低,导致深层沉积物中反硝化作用更强烈。地下水补给地表水过程中,由于水流由深层沉积物流向浅层沉积物,越深层的沉积物中反硝化作用越弱。反硝化作用和 DNRA 作用中,细菌都以 NO_3^- -N 为电子受体,两者之间存在竞争关系^[45],细菌从反硝化作用能获得更多的能量,因此在河流潜流带沉积物中细菌会优先发生反硝化作用^[46]。并且反硝化作用对 DO 含量更加敏感^[47],地表水补给地下水过程中 DO 浓度较高,反硝化作用被抑制,所以 DNRA 作用占主导地位,生成更多的 NH_4^+ -N,而地下水补给地表水过程中 DO 浓度低,反硝化作用更剧烈,会消耗更多的 NO_3^- -N。

3 结论

通过室内模拟实验,本文系统地研究了不同水交换作用下河流潜流带中氮的迁移转化过程。结果表明,河流潜流带水交换作用对潜流带中氮的迁移转化过程有显著影响,但不同水交换作用下的氮素含量及形态变化存在差异。首先,氮素的迁移与河流潜流带水交换作用有关,不同水交换作用下 NO_3^- -N 和 NO_2^- -N 的含量沿着水分运移的方向增加, NH_4^+ -N 的含量则与水分运移的方向减少。此外,反硝化作用和 DNRA 作用是不同水交换作用下河流潜流带中 NO_3^- -N 转化的主要途径,DO 含量是影响河流潜流带氮迁移转化的主要影响因素。地表水补给地表水作用下,DO 含量较高抑制了反硝化作用;地下水补给地表水作用下,低 DO 含量则有利于反硝化作用的进行。河流潜流带不同水交换作用下水流方向和 DO 含量的差异导致沉积物底物浓度和氧化还原条件发生变化,进而影响河流潜流带中微生物群落组成及氮素相关反应。两种水交换作用下河流潜流带均能有效地截留水中 NO_3^- -N,地表水补给地下水过程和地下水补给地表水过程对 NO_3^- -N 的总截留率分别高达 97.7% 和 98.2%,其中沉积物—水界面处的截留效果最佳。然而, DNRA 作用无法彻底去除氮素,并且被潜流带沉积物截留的 NO_3^- -N 等氮污染物可能再次成为水体氮污染的源头。为进一步解决河流潜流带氮污染问题,后续研究应深入探讨如何通过河流潜流带有效去除河流氮污染的具体措施和方法。

参考文献(References):

- [1] 陈琳, 曾冀, 李华, 刘士玲, 雷丽群, 刘世荣. 全球降水格局变化下土壤氮循环研究进展. 生态学报, 2020, 40(20): 7543-7551.
- [2] Liang J, Liu Q, Ali Alshehri A, Sun X P. Recent advances in nanostructured heterogeneous catalysts for N-cycle electrocatalysis. Nano Research Energy, 2022, 1: e9120010.
- [3] 张妍, 毕直磊, 张鑫, 宋进喜, 李楠. 土地利用类型对渭河流域关中段地表水硝酸盐污染的影响. 生态学报, 2019, 39(12): 4319-4327.
- [4] Zhang X, Zhang Y, Shi P, Bi Z L, Shan Z X, Ren L J. The deep challenge of nitrate pollution in river water of China. The Science of the Total Environment, 2021, 770: 144674.
- [5] Bijay-Singh, Craswell E. Fertilizers and nitrate pollution of surface and ground water: an increasingly pervasive global problem. SN Applied Sciences, 2021, 3(4): 518.
- [6] Lee C M, Hamm S Y, Cheong J Y, Kim K, Yoon H, Kim M, Kim J. Contribution of nitrate-nitrogen concentration in groundwater to stream water in an agricultural head watershed. Environmental Research, 2020, 184: 109313.

- [7] Chiwa M. Long-term changes in atmospheric nitrogen deposition and stream water nitrate leaching from forested watersheds in western Japan. *Environmental Pollution*, 2021, 287: 117634.
- [8] Postigo C, Ginebreda A, Barbieri M V, Barceló D, Martín-Alonso J, de la Cal A, Boleda M R, Otero N, Carrey R, Solà V, Queral E, Isla E, Casanovas A, Frances G, López de Alda M. Investigative monitoring of pesticide and nitrogen pollution sources in a complex multi-stressed catchment: the lower Llobregat River Basin case study (Barcelona, Spain). *The Science of the Total Environment*, 2021, 755(Pt 1): 142377.
- [9] Sun R K, Dong J W, Li Y, Li P W, Liu Y N, Liu Y, Feng J H. The influence research on nitrogen transport and reaction in the hyporheic zone with an In-stream structure. *International Journal of Environmental Research and Public Health*, 2022, 19(19): 12695.
- [10] Liang D, Song J X, Xia J, Chang J B, Kong F H, Sun H T, Wu Q, Cheng D D, Zhang Y X. Effects of heavy metals and hyporheic exchange on microbial community structure and functions in hyporheic zone. *Journal of Environmental Management*, 2022, 303: 114201.
- [11] 王文林, 刘波, 韩睿明, 范嫫, 王国祥. 沉水植物茎叶微界面及其对水体氮循环影响研究进展. *生态学报*, 2014, 34(22): 6409-6416.
- [12] 于宗民, 武桂芝, 黄明翔, 李利霞. 地表水-地下水交互下傍河土壤硝酸盐氮迁移规律试验研究. *水土保持研究*, 2021, 28(2): 67-73.
- [13] Zhao Y J, Deng Y R, Lu H J, Lv M C, Cheng Z. Migration and transformation of three nitrogen in groundwater and antipollution effect of aquitard in North China Plain typical area. *IOP Conference Series: Earth and Environmental Science*, 2021, 760(1): 012038.
- [14] Marzadri A, Tonina D, McKean J A, Tiedemann M G, Benjankar R M. Multi-scale streambed topographic and discharge effects on hyporheic exchange at the stream network scale in confined streams. *Journal of Hydrology*, 2014, 519: 1997-2011.
- [15] Shuai P, Cardenas M B, Knappett P S K, Bennett P C, Neilson B T. Denitrification in the banks of fluctuating rivers: the effects of river stage amplitude, sediment hydraulic conductivity and dispersivity, and ambient groundwater flow. *Water Resources Research*, 2017, 53(9): 7951-7967.
- [16] Wang Y, Lin J J, Wang F F, Tian Q, Zheng Y, Chen N W. Hydrological connectivity affects nitrogen migration and retention in the land-river continuum. *Journal of Environmental Management*, 2023, 326(Pt B): 116816.
- [17] Xia X L, Yue W F, Zhai Y Z, Teng Y G. DOM accumulation in the hyporheic zone promotes geogenic Fe mobility: a laboratory column study. *The Science of the Total Environment*, 2023, 896: 165140.
- [18] Zhu Y H, Dai H, Yuan S H. The competition between heterotrophic denitrification and DNRA pathways in hyporheic zone and its impact on the fate of nitrate. *Journal of Hydrology*, 2023, 626: 130175.
- [19] Qin R G, Chen X S, Cao G Z, Li J R, Qiang Y, Lu Y F. Water Exchange and Solute Transport in the Hyporheic Zone on the West Side of Erhai Lake. *Environmental Science and Technology*, 2023, 46(6): p16
- [20] Severe E, Errigo I M, Proteau M, Sayedi S S, Kolbe T, Marçais J, Thomas Z, Petton C, Rouault F, Vautier C, de Dreuz J R, Moatar F, Aquilina L, Wood R L, LaBasque T, Lécuyer C, Pinay G, Abbott B W. Deep denitrification: stream and groundwater biogeochemistry reveal contrasted but connected worlds above and below. *The Science of the Total Environment*, 2023, 880: 163178.
- [21] Zhang D, Cui R Y, Fu B, Yang Y X, Wang P L, Mao Y T, Chen A Q, Lei B K. Shallow groundwater table fluctuations affect bacterial communities and nitrogen functional genes along the soil profile in a vegetable field. *Applied Soil Ecology*, 2020, 146: 103368.
- [22] Repert D A, Underwood J C, Smith R L, Song B K. Nitrogen cycling processes and microbial community composition in bed sediments in the Yukon River at Pilot Station. *Journal of Geophysical Research: Biogeosciences*, 2015, 119(12): 2328-2344.
- [23] 赵磊, 刘慧. 江汉油田波动带土壤氮循环功能菌群分析. *环境科学与技术*, 2018, 41(11): 49-53.
- [24] Stonedahl S H, Sawyer A H, Stonedahl F, Reiter C, Gibson C. Effect of heterogeneous sediment distributions on hyporheic flow in physical and numerical models. *Ground Water*, 2018, 56(6): 934-946.
- [25] 赵耿楠, 潘保柱, 丁一桐, 张磊, 朱朋辉, 何浩然. 渭河干流和秦岭北麓典型支流浮游植物功能群特征及水质评价. *生态学报*, 2021, 41(8): 3226-3237.
- [26] Bi Z L, Zhang Y, Shi P, Zhang X, Shan Z X, Ren L J. The impact of land use and socio-economic factors on ammonia nitrogen pollution in Weihe River watershed, China. *Environmental Science and Pollution Research International*, 2021, 28(14): 17659-17674.
- [27] 张文芮, 张妍, 石雯敏, 张成前. 渭河流域关中段地下水硝态氮来源解析. *中国环境科学*, 2022, 42(10): 4758-4767.
- [28] Duan L, Fan J H, Wang Y K, Wu Y K, Xie C C, Ye F, Lv J J, Mao M, Sun Y Q. Interaction mechanism between nitrogen conversion and the microbial community in the hydrodynamic heterogeneous interaction zone. *Environmental Science and Pollution Research*, 2023, 30(3): 5799-5814.
- [29] 闫雅妮, 马腾, 张俊文, 廖曼, 王智真. 地下水与地表水相互作用下硝态氮的迁移转化实验. *地球科学*, 2017, 42(5): 783-792.
- [30] Ahmad A, Ijaz S S, He Z L. Effects of zeolitic urea on nitrogen leaching ($\text{NH}_4\text{-N}$ and $\text{NO}_3\text{-N}$) and volatilization (NH_3) in spodosols and alfisols. *Water*, 2021, 13(14): 1921.
- [31] Heppell C, Louise Heathwaite A, Binley A, Byrne P, Ullah S, Lansdown K, Keenan P, Trimmer M, Zhang H. Interpreting spatial patterns in redox and coupled water-nitrogen fluxes in the streambed of a Gaining River reach. *Biogeochemistry*, 2014, 117(2): 491-509.
- [32] Yan A L, Guo X Y, Hu D H, Chen X Y. Reactive transport of NH_4^+ in the hyporheic zone from the ground water to the surface water. *Water*, 2022,

- 14(8): 1237.
- [33] Verónica M, Lucy B, Levipan Héctor A, Salvador R F, Cristóbal A, Alexander G, Ivonne M, Osvaldo U. Spatiotemporal distribution of key pelagic microbes in a seasonal oxygen-deficient coastal upwelling system of the eastern South Pacific Ocean. *Frontiers in Marine Science*, 2020, 7: 561597.
- [34] 黄备, 邵君波, 母清林. 黄海西部海域沉积物细菌群落及其对环境因子的响应. *生态环境学报*, 2019, 28(7): 1423-1433.
- [35] Ming H X, Fan J F, Chen Q R, Su J, Song J X, Yuan J, Shi T T, Li B C. Diversity and abundance of denitrifying bacteria in the sediment of a eutrophic estuary. *Geomicrobiology Journal*, 2021, 38(3): 199-209.
- [36] Marchant H K, Ahmerkamp S, Lavik G, Tegetmeyer H E, Graf J, Klatt J M, Holtappels M, Walpersdorf E, Kuypers M M M. Denitrifying community in coastal sediments performs aerobic and anaerobic respiration simultaneously. *The ISME Journal*, 2017, 11(8): 1799-1812.
- [37] 陶怡乐, 温东辉. 细菌硝酸盐异化还原成铵过程及其在河口生态系统中的潜在地位与影响. *微生物学通报*, 2016, 43(1): 172-181.
- [38] Wang L F, Wang Y T, Li Y, Wang L Q, Zhu J X, Zhang W L, Zhang H J, Niu L H, Wu J. Effect of water chemistry on nitrogen transformation, dissolved organic matter composition and microbial community structure in hyporheic zone sediment columns. *Environmental Research*, 2022, 215 (Pt 1): 114246.
- [39] Howard B C, Baker I, Blackmore M. Restoring the Liver of the River: Actionable Research Insights to Guide the Restoration of the Hyporheic Zone for the Improvement of Water Quality. *Ecohydrological Interfaces*, 2024: 355-390.
- [40] Pretty J L, Hildrew A G, Trimmer M. Nutrient dynamics in relation to surface-subsurface hydrological exchange in a groundwater fed chalk stream. *Journal of Hydrology*, 2006, 330(1/2): 84-100.
- [41] Shao L, Xu Z X, Yin H L, Chu H Q. Rice husk as carbon source and biofilm carrier for water denitrification. *Journal of Biotechnology*, 2008, 136: S662.
- [42] Wild L M, Mayer B, Einsiedl F. Decadal delays in groundwater recovery from nitrate contamination caused by low O₂ reduction rates. *Water Resources Research*, 2018, 54(12): 9996-10012.
- [43] Glass C, Silverstein J. Denitrification kinetics of high nitrate concentration water: pH effect on inhibition and nitrite accumulation. *Water Research*, 1998, 32(3): 831-839.
- [44] Ge S J, Peng Y Z, Wang S Y, Lu C C, Cao X, Zhu Y P. Nitrite accumulation under constant temperature in anoxic denitrification process: the effects of carbon sources and COD/NO(3)-N. *Bioresource Technology*, 2012, 114: 137-143.
- [45] Carrey R, Rodríguez-Escales P, Otero N, Ayora C, Soler A, Gómez-Alday J J. Nitrate attenuation potential of hypersaline lake sediments in central Spain: flow-through and batch experiments. *Journal of Contaminant Hydrology*, 2014, 164: 323-337.
- [46] 黄瑞华, 吴耀国, 李云峰, 杨炳超. 硝态氮在河床垂向渗滤系统中环境行为的模拟实验. *地球科学与环境学报*, 2006, 28(3): 92-96.
- [47] 杨杉, 吴胜军, 蔡延江, 周文佐, 朱同彬, 王雨, 黄平. 硝态氮异化还原机制及其主导因素研究进展. *生态学报*, 2016, 36(5): 1224-1232.