

方知库  
Eco-Environmental  
Knowledge Web

# 环境科学

ENVIRONMENTAL SCIENCE

ISSN 0250-3301 CODEN HCKHDV

HUANJING KEXUE

基于碳减排目标与排放标准约束情景的火电大气污染物减排潜力

李辉, 孙雪丽, 庞博, 朱法华, 王圣, 晏培



■ 主办 中国科学院生态环境研究中心

■ 出版 科学出版社



2021年12月

第42卷 第12期

Vol.42 No.12

目次(卷终)

基于碳减排目标与排放标准约束情景的火电大气污染物减排潜力 ..... 李辉, 孙雪丽, 庞博, 朱法华, 王圣, 晏培(5563)

汽修行业挥发性有机物排放与控制现状及对策 ..... 王海林, 杨涛, 聂磊, 方莉, 张中申, 郝郑平(5574)

西宁市生物质燃烧源大气污染物排放清单 ..... 高玉宗, 姬亚芹, 林孜, 林宇, 杨益(5585)

新冠疫情期间四川盆地空气质量及影响因素分析 ..... 陈军辉, 冯小球, 李媛, 王书肖(5594)

基于 iLME + Geoi-RF 模型的四川省 PM<sub>2.5</sub> 浓度估算 ..... 吴宇宏, 杜宁, 王莉, 蔡宏, 周彬, 吴磊, 敖迪(5602)

《大气污染防治行动计划》后期成都大气 PM<sub>2.5</sub> 中水溶性无机离子特征 ..... 李佳琪, 张军科, 董贵明, 邓嘉琳, 刘子锐, 王跃思(5616)

洛阳市大气细颗粒物化学组分特征及溯源分析 ..... 孙佳侯, 董喆, 李利萍, 刘洋, 陈红阳, 张瑞芹(5624)

北京市黑碳气溶胶浓度特征及其主要影响因素 ..... 曹阳, 安欣欣, 刘保献, 景宽, 王琴, 罗霄旭(5633)

天津市郊夏季 VOCs 化学特征及其时间精细化的来源解析 ..... 王艺璇, 刘保双, 吴建会, 张裕芬, 冯银厂(5644)

沈阳市挥发性有机物污染特征及反应活性 ..... 杜寒冰, 王男, 任万辉, 苏枞枞, 胡建林, 于兴娜(5656)

典型化工集中区环境空气 SVOCs 污染特征及来源解析 ..... 葛祥, 吴健, 高松, 冯加良, 陈俊伟, 张舒惟, 焦正(5663)

南京毒性挥发性有机化合物夏冬季源解析及健康风险评估 ..... 张子金, 林煜棋, 张煜烟, 曹梦瑶, 章炎麟(5673)

基于排放清单和实地测试的工业 VOCs 排放特征:以郑州市高新区为例 ..... 任何, 卢轩, 刘洋, 尹沙沙, 胡鹤霄(5687)

我国水性建筑涂料 VOCs 排放特征及其环境影响 ..... 高美平, 王海林, 刘文文, 聂磊, 李国昊, 安小拴(5698)

VOCs 源强不确定性对臭氧生成及污染防治影响的模拟分析 ..... 王峰, 汪健伟, 杨宁, 翟菁, 侯灿(5713)

山东省 O<sub>3</sub> 时空分布及影响因素分析 ..... 张森, 丁椿, 李彦, 王桂霞, 林晶晶, 孟赫, 许杨(5723)

2020 年成都市典型臭氧污染过程特征及敏感性 ..... 钱骏, 徐晨曦, 陈军辉, 姜涛, 韩丽, 王成辉, 李英杰, 王波, 刘政(5736)

基于高分辨率在线测量的轻型汽油车含氧挥发性有机物排放模型构建 ..... 郝钰琦, 袁自冰, 王梦雷, 沙青娥, 杜新悦, 刘元向, 刘学辉, 段乐君, 袁斌, 郑君瑜, 邵敏, 闫宇(5747)

三重属性的承载力约束下中国水资源利用效率动态演进特征分析 ..... 张凯, 吴凤平, 成长春(5757)

长江流域总氮排放量预测 ..... 丁肇慰, 郑华(5768)

1980~2015 年长江流域净人为氮输入与河流氮输出动态特征 ..... 姚梦雅, 胡敏娟, 陈丁江(5777)

黄河水环境特征与氮磷负荷时空分布 ..... 韩语, 潘保柱, 陈越, 刘亚平, 侯易明(5786)

基于氮氧同位素解析不同降雨条件下硝酸盐污染源 ..... 邢子康, 余钟波, 衣鹏, 钱睿智, 王嘉毅(5796)

水源水库真核微生物种群结构季相演替特征 ..... 张海涵, 黄鑫, 黄廷林, 刘凯文, 马曼丽, 刘祥, 苗雨甜, 宗容容(5804)

达里湖表层水体浮游细菌群落结构的夏-冬季节差异 ..... 李文宝, 郭鑫, 张博亮, 杜蕾, 田雅楠(5814)

尾水排放对受纳水体底栖生物膜细菌群落和水溶性有机质的影响机制 ..... 王钰涛, 范晨阳, 朱金鑫, 李轶, 王龙飞(5826)

武汉典型饮用水水源中典型 POPs 污染特征与健康风险评估 ..... 张坤锋, 付青, 涂响, 昌盛, 樊月婷, 孙兴滨, 王山军(5836)

上海沙田湖养殖区及周边水体中氟喹诺酮类抗性基因的分布特征及其与环境因子关系 ..... 徐慕, 李世豪, 马巾, 王丽卿, 张玮(5848)

曝气人工湿地脱除低污染水中氮的影响因素 ..... 李琳琳, 李荣涛, 孔维静, 杨苹果, 杜志超, 毕斌, 卢少勇(5857)

水平潜流人工湿地对畜禽养殖废水中特征污染物的去除 ..... 赵伟, 范增增, 杨新萍(5865)

木屑生物炭对填料土的氮磷吸附及雨水滞留改良影响 ..... 孟依柯, 王媛, 汪传跃, 王报(5876)

黑臭河道中聚乙烯醇/海藻酸钠固定微米沸石粉去除氨氮 ..... 魏超, 陈涛, 江桥, 王姝, 邱伟建, 成小英(5884)

玉米秸秆生物炭对灰钙土吸附金霉素的影响 ..... 南志江, 蒋煜峰, 毛欢欢, 梁新茹, 邓雪儒(5896)

饮用水砂滤池中微生物对微量污染物的降解潜力与途径 ..... 周洁, 王东麟, 林慧, 柏耀辉(5905)

污水分析方法监测城市毒品滥用长期趋势 ..... 曹禹, 董小棠, 邵雪婷, 刘琳, 王德高(5912)

阿奇霉素和铜对活性污泥古菌群落和 ARGs 的胁迫影响及后效应 ..... 高玉玺, 李星, 赵君如, 张忠兴, 樊晓燕(5921)

典型冶炼行业场地土壤重金属空间分布特征及来源解析 ..... 李强, 曹莹, 何连生, 王耀锋, 龚成, 何书涵(5930)

我国焦化场地多环芳烃和重金属分布情况及生态风险评价 ..... 王耀锋, 何连生, 姜登岭, 曹莹, 李强, 官健(5938)

浙江省香榧主产区土壤重金属空间异质性及其生态风险 ..... 王敏, 董佳琦, 白龙龙, 张勇, 蒋仲龙, 姜霓雯, 吴家森, 张璐瑶, 方嘉, 傅伟军(5949)

北方农田镉污染土壤玉米生产阈值及产区划分初探 ..... 管伟豆, 郭堤, 王萍, 张增强, 李荣华(5958)

典型铅锌矿区耕地土壤团聚体重金属含量与农作物含量相关性及其风险评价 ..... 强瑛, 李英菊, 罗谦, 陈美凤, 李海燕, 黄先飞, 秦樊鑫(5967)

雄安新区企业周边农田土壤-作物系统重金属污染风险及累积效应 ..... 周亚龙, 王乔林, 王成文, 刘飞, 宋云涛, 郭志娟, 杨志斌(5977)

铜仁土壤-水稻重金属累积效应与安全种植区划 ..... 朱亮亮, 吴勇, 周浪, 唐乐斌, 宋波(5988)

干湿交替对铈镉改性生物炭固定红壤 As 的影响 ..... 黄晓雅, 李莲芳, 朱昌雄, 黄金丽, 吴翠霞, 叶婧(5997)

铵态氮肥和腐殖酸协同促进孔雀草对土壤中 Cd 的去除 ..... 王冰清, 阳琴, 李虹颖, 熊启中, 徐刚, 孙瑞波, 田达, 李军利, 郜红建, 叶新新(6006)

稻田灌溉河流 CH<sub>4</sub> 和 N<sub>2</sub>O 排放特征及影响因素 ..... 吴双, 杨蔚桐, 盛扬悦, 方贤滔, 张天睿, 胡靖, 刘树伟, 邹建文(6014)

节水灌溉和控释肥施用耦合措施对单季稻田 CH<sub>4</sub> 和 N<sub>2</sub>O 排放的影响 ..... 王永明, 徐永记, 纪洋, 冯彦房(6025)

有机无机配施下西北旱区麦田土壤 N<sub>2</sub>O 的排放特征及微生物特性 ..... 王楷, 史雷, 马龙, 王书婷, 张然, 郑伟, 李紫燕, 翟丙年(6038)

不同秸秆还田方式对旱地红壤细菌群落、有机碳矿化及玉米产量的影响 ..... 孔培君, 郑洁, 栾璐, 陈紫云, 薛敬荣, 孙波, 蒋瑞霖(6047)

氮磷添加对盐渍化草地土壤微生物特征的影响 ..... 杨建强, 刁华杰, 胡姝姝, 陈晓鹏, 王常慧(6058)

化肥和有机肥配施生物炭对紫色土壤养分及磷赋存形态的影响 ..... 向书江, 余砾, 熊子怡, 罗东海, 王莹燕, 邓正昕, 王子芳, 高明(6067)

浒苔生物炭与木醋液复配改良碱化土壤效果及提高油菜产量 ..... 王正, 孙兆军, Sameh El-Sawy, 王珍, 何俊, 韩磊, 邹本涛(6078)

《环境科学》第42卷(2021年)总目录 ..... (6091)

《环境科学》征订启事(5593) 《环境科学》征稿简则(5623) 信息(5643, 5835, 5883)

# 稻田灌溉河流 CH<sub>4</sub> 和 N<sub>2</sub>O 排放特征及影响因素

吴双<sup>1,2</sup>, 杨蔚桐<sup>1</sup>, 盛扬悦<sup>1</sup>, 方贤滔<sup>1</sup>, 张天睿<sup>1</sup>, 胡靖<sup>1</sup>, 刘树伟<sup>1,2\*</sup>, 邹建文<sup>1,2</sup>

(1. 南京农业大学资源与环境科学学院, 南京 210095; 2. 江苏省低碳农业与温室气体减排重点实验室, 南京 210095)

**摘要:** 随着农业氮肥大量施用, 大量碳氮营养物质以淋溶或径流形式进入周边灌溉水体, 使其成为甲烷(CH<sub>4</sub>)和氧化亚氮(N<sub>2</sub>O)的重要排放源. 以我国东南部地区典型稻田灌溉河流为研究对象, 于2014年9月至2016年9月连续两年原位观测表层水体CH<sub>4</sub>和N<sub>2</sub>O溶存浓度及其排放通量, 旨在明确稻田灌溉河流CH<sub>4</sub>和N<sub>2</sub>O的排放特征、排放强度及其主要驱动因子. 结果表明, 观测期内c(CH<sub>4</sub>溶存)的年平均值为(390.57 ± 43.95) nmol·L<sup>-1</sup> (92.80 ~ 1577.54 nmol·L<sup>-1</sup>), c(N<sub>2</sub>O溶存)的年平均值为(40.23 ± 3.20) nmol·L<sup>-1</sup> (10.05 ~ 75.40 nmol·L<sup>-1</sup>). CH<sub>4</sub>和N<sub>2</sub>O的排放通量(年平均)分别为(20.73 ± 6.08) mg·(m<sup>2</sup>·h)<sup>-1</sup>和(34.30 ± 7.12) μg·(m<sup>2</sup>·h)<sup>-1</sup>. CH<sub>4</sub>和N<sub>2</sub>O溶存浓度和排放通量整体上均呈现出春夏排放高, 秋冬排放低的季节变化趋势. 两年CH<sub>4</sub>累计排放总量为(3876.30 ± 1153.96) kg·hm<sup>-2</sup>, N<sub>2</sub>O累计排放总量为(5.74 ± 0.98) kg·hm<sup>-2</sup>. 两者持续性全球增温潜势(SGWP, 以CO<sub>2</sub>-eq计)平均为(87.99 ± 15.73) t·(hm<sup>2</sup>·a)<sup>-1</sup>. CH<sub>4</sub>排放通量与水温、底泥可溶性有机碳(DOC)显著正相关, 而与水体溶解氧(DO)显著负相关; N<sub>2</sub>O排放通量与水温、水中铵态氮(NH<sub>4</sub><sup>+</sup>-N)和硝态氮(NO<sub>3</sub><sup>-</sup>-N)显著正相关, 而与水体DO显著负相关. 该研究可为科学估算我国农业灌溉流域CH<sub>4</sub>和N<sub>2</sub>O排放总量提供数据支撑和重要参考.

**关键词:** 甲烷(CH<sub>4</sub>); 氧化亚氮(N<sub>2</sub>O); 溶存浓度; 通量; 灌溉河流; 影响因素

中图分类号: X16 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2021)12-6014-11 DOI: 10.13227/j.hjkk.202104100

## Characteristics and Influencing Factors of the Dissolved Methane and Nitrous Oxide Concentrations and Emissions from a Rice Paddy Drainage River in China

WU Shuang<sup>1,2</sup>, YANG Wei-tong<sup>1</sup>, SHENG Yang-yue<sup>1</sup>, FANG Xian-tao<sup>1</sup>, ZHANG Tian-rui<sup>1</sup>, HU Jing<sup>1</sup>, LIU Shu-wei<sup>1,2\*</sup>, ZOU Jian-wen<sup>1,2</sup>

(1. College of Resources and Environmental Sciences, Nanjing Agricultural University, Nanjing 210095, China; 2. Jiangsu Key Laboratory of Low Carbon Agriculture and GHGs Mitigation, Nanjing 210095, China)

**Abstract:** With the increase in fertilizer application, a large amount of carbon and nitrogen enters the irrigation water around farmland through leaching and runoff, which makes it become an important source of methane (CH<sub>4</sub>) and nitrous oxide (N<sub>2</sub>O) emissions. In this study, the dynamic characteristics of dissolved CH<sub>4</sub> and N<sub>2</sub>O concentrations and emissions were observed from Sept. 2014-Sept. 2016. The purpose of this study was to investigate the inventory and the influencing factors of CH<sub>4</sub> and N<sub>2</sub>O fluxes from a rice-paddy drainage river. The results showed that the dissolved c(CH<sub>4</sub>) in the rice-paddy drainage river ranged from 92.80 to 1577.54 nmol·L<sup>-1</sup>, with an annual mean value of (390.57 ± 43.95) nmol·L<sup>-1</sup>. The dissolved c(N<sub>2</sub>O) in the rice-paddy drainage river ranged from 10.05 to 75.40 nmol·L<sup>-1</sup>, with an annual mean value of (40.23 ± 3.20) nmol·L<sup>-1</sup>. The annual mean fluxes of CH<sub>4</sub> and N<sub>2</sub>O were (20.73 ± 6.08) mg·(m<sup>2</sup>·h)<sup>-1</sup> and (34.30 ± 7.12) μg·(m<sup>2</sup>·h)<sup>-1</sup>, respectively. The seasonal variations in dissolved CH<sub>4</sub> and N<sub>2</sub>O concentrations and fluxes were similar with higher concentrations, and fluxes appeared in spring and summer; lower concentrations and fluxes appeared in fall and winter. The two-year total annual emissions of CH<sub>4</sub> and N<sub>2</sub>O were (3876.30 ± 1153.96) kg·hm<sup>-2</sup> and (5.74 ± 0.98) kg·hm<sup>-2</sup>, respectively. The annual mean value of the sustained-flux global warming potential (SGWP<sub>100a</sub>, CO<sub>2</sub>-eq) over the time span of 100 years was (87.99 ± 15.73) t·(hm<sup>2</sup>·a)<sup>-1</sup>. The CH<sub>4</sub> fluxes were positively correlated with water temperature and sediment-dissolved organic carbon (DOC), while negatively correlated with water dissolved oxygen (DO) concentration in the rice-paddy drainage river. Meanwhile, the N<sub>2</sub>O fluxes were positively correlated with water temperature, ammonium nitrogen (NH<sub>4</sub><sup>+</sup>-N), and nitrate nitrogen (NO<sub>3</sub><sup>-</sup>-N), while negatively correlated with water dissolved oxygen (DO) concentration. This study may provide important reference for further understanding of total CH<sub>4</sub> and N<sub>2</sub>O emissions of agricultural irrigation watersheds.

**Key words:** methane (CH<sub>4</sub>); nitrous oxide (N<sub>2</sub>O); dissolved concentrations; emissions; drainage river; influencing factor

淡水水生生态系统是甲烷(CH<sub>4</sub>)和氧化亚氮(N<sub>2</sub>O)的重要排放源. 河流作为连接陆地与海洋物质能量交换和传输的重要通道, 从陆地生态系统进入河流的碳、氮物质经过一系列生物、化学变化之后, 最终以CH<sub>4</sub>和N<sub>2</sub>O形式进入大气, 成为大气温室气体重要天然排放源<sup>[1,2]</sup>. 在全球尺度上, 由河流所排放的CH<sub>4</sub>在大气中所占比例达到50%<sup>[3]</sup>, 而全球河流排放的N<sub>2</sub>O通量占人为排放源释放总量的15%左右<sup>[2]</sup>. 全球河流CH<sub>4</sub>(以C计)和N<sub>2</sub>O(以N计)的年排放量为1.5 Tg和32.2 Gg<sup>[4-6]</sup>, 对全球变

暖的贡献十分巨大. 因此, 在由于人类活动所导致的全球变化日益严峻背景下, 河流生态系统CH<sub>4</sub>和N<sub>2</sub>O排放已经引起了学者们广泛的关注并成为研究的热点领域.

近年来, 针对河流生态系统CH<sub>4</sub>和N<sub>2</sub>O溶存浓

收稿日期: 2021-04-12; 修订日期: 2021-05-31

基金项目: 国家自然科学基金青年科学基金项目(41907072); 中央高校基本科研业务费专项(KJQN202021); 国家自然科学基金项目(42077080)

作者简介: 吴双(1990~), 女, 博士, 主要研究方向为农业流域碳氮气体交换与全球变化, E-mail: wushuang@njau.edu.cn

\* 通信作者, E-mail: swlu@njau.edu.cn

度、排放通量、时空分布特征以及影响因素进行了大量研究,并取得了一定的成果<sup>[7-9]</sup>.然而,绝大多数研究主要集中在欧美地区,在亚洲区域存在明显匮乏的情况<sup>[2,10]</sup>,相关研究主要集中在天然河流生态系统,而对于一些受人为扰动较大的半自然河流生态系统,如农业流域中的灌溉河流则关注较少.已有研究表明,农业灌溉水体是CH<sub>4</sub>和N<sub>2</sub>O的巨大排放源.Beaulieu等<sup>[11]</sup>在美国对一个用于农业灌溉的水库的研究中发现了巨大的CH<sub>4</sub>排放,其全年CH<sub>4</sub>平均排放通量(以C计)为176 mg·(m<sup>2</sup>·d)<sup>-1</sup>.而在一些其他农业流域水体的研究中,也发现了大量的CH<sub>4</sub>排放<sup>[12,13]</sup>.Harrison等<sup>[14]</sup>在对墨西哥农业灌溉水域的研究中对N<sub>2</sub>O排放通量进行了估算,发现其平均排放通量(以N计)为165 μg·(m<sup>2</sup>·h)<sup>-1</sup>.Laini等<sup>[15]</sup>对意大利北部受农业影响水域研究发现N<sub>2</sub>O排放量为0.646 g·(m<sup>2</sup>·d)<sup>-1</sup>,其排放量之大在该地区其他水体中是前所未有的.

中国是农业大国,灌溉水是农业中被广泛利用的一种淡水资源.近年来受农业发展等人类活动的影响,农药化肥的施入导致大量碳、氮通过淋溶径流的形式进入农田周边灌溉河流,从而引发灌溉河流中的CH<sub>4</sub>和N<sub>2</sub>O排放量在不断增加,导致灌溉河流成为CH<sub>4</sub>和N<sub>2</sub>O的重要排放源<sup>[16]</sup>.据模型估算,在中国因农业灌溉所产生的温室气体排放总量(以CO<sub>2</sub>-eq计)约为36.72~54.16 Tg·a<sup>-1</sup>(100年尺度,IPCC 2013)<sup>[17]</sup>.而长江以南地区是我国的典型农业自流灌溉渠区及主要的粮食生产基地.江苏省作为南方重要省份,其种植区域属于典型的传统农业种植区域,种植模式以稻-麦轮作为主.据统计,江苏省灌溉农业用水量为251亿m<sup>3</sup>,其占比为江苏省总体农业用水量的91.3%,其中用于稻田灌溉水量又占灌溉农业总用水量的88.1%<sup>[18]</sup>.然而该地区稻田灌溉河流CH<sub>4</sub>和N<sub>2</sub>O溶存浓度和排放通量的全年动态变化特征尚不明确,影响其排放动态的环境驱动因子也不甚清楚.因此,本文以江苏省兴化市一条典型稻田灌溉河流为研究对象,对其CH<sub>4</sub>和N<sub>2</sub>O溶存浓度和排放通量的时空变化特征及影响因素进行分析,通过进一步了解我国农业流域温室气体排放强度及合理评估其温室气体排放差异,以期探究温室气体减排措施提供理论和数据支撑.

## 1 材料与方法

### 1.1 试验点概况

试验地点位于江苏省兴化市新舍村(32°52'N, 119°50'E).该地区主要气候类型为亚热带湿润季风气候,平均气温和年降水量分别为14.8℃和1 090

mm.研究区域河道纵横交错,水资源丰富,农业灌溉水域面积广阔.本研究选取研究区域一条周围农田以稻-麦轮作体系为主的典型稻田灌溉河流,作为我国东南部区域灌溉河流的代表.河道自上至下包含采样点在内全长300 m,河道宽约为8 m,平均水深为2.5 m.本试验观测周期长达2 a,采样频率为每周一次,采样时间为09:00~11:00时间段内.自2014年9月15日到2016年9月16日包含了两个完整的水稻-小麦季,稻田灌溉河流及采样点布置情况见图1.

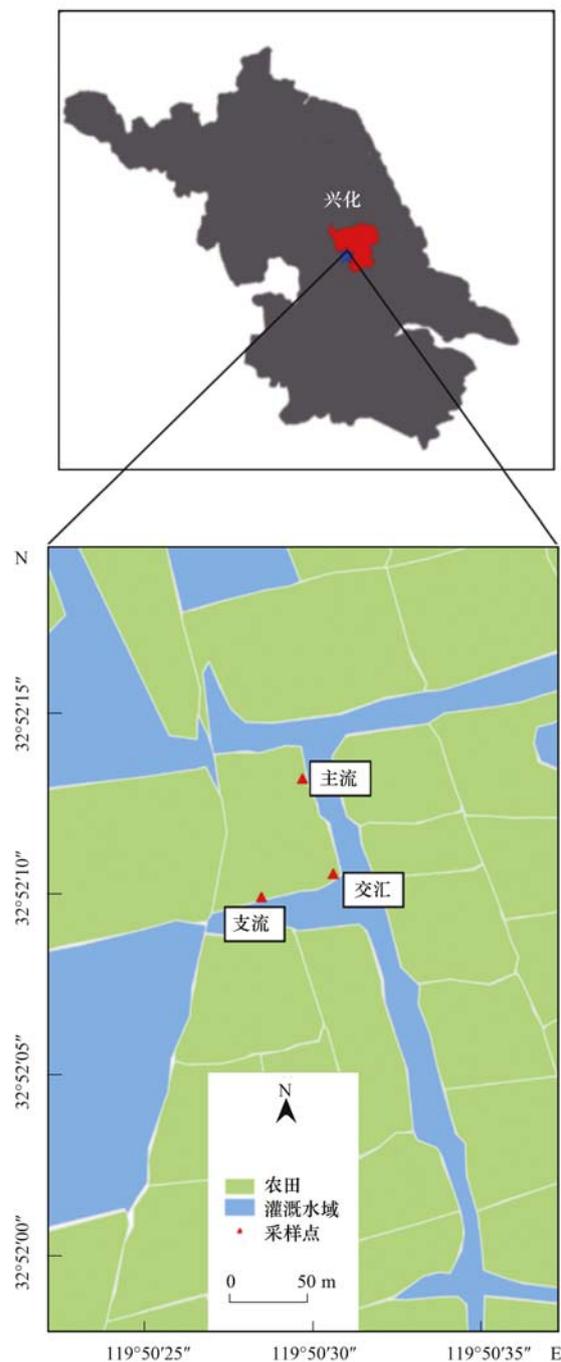


图1 稻田灌溉河流位置及采样点示意

Fig. 1 Location and sampling map of the rice-paddy drainage river

### 1.2 气体采集与分析

采用漂浮箱法观测稻田灌溉河流CH<sub>4</sub>和N<sub>2</sub>O的

排放通量. 沿着灌溉河流的水流方向, 自上游至下游分别在河道的主流、主流支流交汇处以及支流分别布设了3个采样点, 每个采样点设置3个重复. 为了减少采样过程中产生的人为扰动, 在每个采样点搭设了栈桥. 温室气体采集所使用的漂浮箱规格: 直径和高均为30 cm的圆柱体, 采样箱外部均采用1 cm厚的海绵和锡箔纸包裹, 避免因太阳直射所导致的箱体内外温差过大从而影响测定结果. 采样箱顶部开有两个圆形小孔, 分别连接采样气泵的导管和水银温度计. 采样前, 将箱体于通风处倒置确保箱内气体充分均匀, 然后将箱体放置于泡沫板的卡槽中使其漂浮于水体表面并使箱体底部进入水面下方3 cm, 随后用配有三通阀与导管连接的采样泵采集气样, 采样过程中位于同一个采样点的3个箱体在同一时间开始采样, 每次采集的气样储存在1.5 L的气袋中(大连德林, 中国), 在气体采集后尽快将样品运回实验室, 使用安捷伦气相色谱仪(Agilent 7890A)完成采集气体的溶存浓度测定.

在各采样点采集水深30 cm处的水样, 用250 mL聚乙烯瓶盛装水样, 及时运回实验室, 以备测定水样中CH<sub>4</sub>和N<sub>2</sub>O的溶存浓度所需. 本研究采用气室平衡法测定水中CH<sub>4</sub>和N<sub>2</sub>O溶存浓度<sup>[19]</sup>, 用100 mL规格的医用塑料注射器作为平衡器, 抽取50 mL水样和50 mL高纯氮气, 使其水样上方形成气室. 接着在室温下将注射器水平放置在摇床中振荡10 min, 使溶解的CH<sub>4</sub>和N<sub>2</sub>O析出进入注射器上端. 静置10 min, 达到气相和液相平衡后<sup>[20]</sup>, 将气体部分注射进入气相色谱仪中分析其CH<sub>4</sub>和N<sub>2</sub>O溶存浓度.

### 1.3 CH<sub>4</sub>和N<sub>2</sub>O溶存浓度和排放通量的计算

采集的水样中CH<sub>4</sub>和N<sub>2</sub>O溶存浓度的计算公式为:

$$c_{\text{obs}} = c_0 \left[ (\beta RT/22.4) + (V_0/V_1) \right] \quad (1)$$

式中,  $c_{\text{obs}}$  为采集的水样中CH<sub>4</sub>或N<sub>2</sub>O的溶存浓度( $\mu\text{mol}\cdot\text{L}^{-1}$ );  $c_0$  为平衡器气液平衡时气相中CH<sub>4</sub>或N<sub>2</sub>O溶存浓度( $\mu\text{mol}\cdot\text{L}^{-1}$ );  $T$  为平衡过程中的水体的温度(K);  $R$  为理想气体状态常数, 一般  $R$  的值取  $8.314 [\text{J}\cdot(\text{mol}\cdot\text{K})^{-1}]$ ;  $V_0$  为平衡器中气体的体积(mL),  $V_1$  为平衡器中水体的体积(mL);  $\beta$  为在1个标准大气压的条件下, 用体积分数表示的CH<sub>4</sub>或N<sub>2</sub>O的气体溶解度,  $\beta$ 值的计算公式为:

$$\beta = 22.4 \times 10^{-6} K_{\text{H}} p_{\text{g}} \quad (2)$$

式中,  $p_{\text{g}}$  为CH<sub>4</sub>或N<sub>2</sub>O的标准大气压, 即101 325 Pa;  $K_{\text{H}}$  为采样时的水温和1个标准大气压条件下的CH<sub>4</sub>或N<sub>2</sub>O的Henry常数( $\mu\text{mol}\cdot\text{L}^{-1}$ ), 其计算公式为:

$$K_{\text{H}} = K_{\text{H}}^0 \exp K_{\text{T}} \left( \frac{1}{T} - \frac{1}{T^0} \right) \quad (3)$$

式中,  $K_{\text{H}}^0$  为在298 K和1个标准大气压条件下的Henry常数, CH<sub>4</sub>取  $1\,308 \mu\text{mol}\cdot\text{L}^{-1}$ , N<sub>2</sub>O取  $24\,714 \mu\text{mol}\cdot\text{L}^{-1}$ ;  $K_{\text{T}}$  表征Henry常数随温度变化的参数, CH<sub>4</sub>的取值为1 750, N<sub>2</sub>O的取值为2 675;  $T$  为水样的实际绝对温度(K),  $T^0 = 298 \text{ K}$ .

利用漂浮箱法测定CH<sub>4</sub>或N<sub>2</sub>O排放通量的计算公式如下:

$$F = M \times (dP/dt) \times (V/ART) \times 1\,000 \quad (4)$$

式中,  $F$  为CH<sub>4</sub>或N<sub>2</sub>O的水-气交换通量 [ $\mu\text{g}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{h})^{-1}$ ];  $M$  为CH<sub>4</sub>或N<sub>2</sub>O的摩尔质量 ( $\text{g}\cdot\text{mol}^{-1}$ );  $dP/dt$  为气室内CH<sub>4</sub>或N<sub>2</sub>O气体的初始浓度变化率 [ $\mu\text{L}\cdot(\text{L}\cdot\text{min})^{-1}$ ];  $V$  为采样箱气室容积( $\text{m}^3$ );  $A$  为箱体与水面的接触面积( $\text{m}^2$ );  $R$  为通用气体常数 [ $8.314 \text{ J}\cdot(\text{mol}\cdot\text{K})^{-1}$ ];  $T$  为采样箱气室内的温度(K).

### 1.4 相关环境因子的测定

在2 a的野外观测试验中, 每次在采集气体样品的同时利用便携式温度、溶解氧测量仪(HI9146, 德国HANNA)同步测定水体10~20 cm水层处的水温和溶解氧(DO)含量. 此外, 每周采集灌溉河水样用于测定其水体的pH、电导率(EC)、铵态氮(NH<sub>4</sub><sup>+</sup>-N)和硝态氮(NO<sub>3</sub><sup>-</sup>-N)含量. 水样pH通过pH计(pH610, 德国)测定. EC通过电导率仪(DDS-307, 上海)测定. NH<sub>4</sub><sup>+</sup>-N和NO<sub>3</sub><sup>-</sup>-N含量采用连续流动化学分析仪(Skalar San<sup>++</sup>, 荷兰)分析. 水体可溶性有机碳(DOC)浓度使用Multi N/C3000分析仪测定. 每间隔两周采集一次稻田灌溉河流的表层底泥用于动态监测底泥DOC含量. 底泥DOC含量的测定方法: 称取约10 g左右(误差不超过 $\pm 0.1$ )的风干底泥按照土:水比为1:5的比例混匀, 密封好后在  $600 \text{ r}\cdot\text{min}^{-1}$  的摇床上振荡1 h, 经过10 min离心, 最后用Multi N/C3000分析仪测定<sup>[21,22]</sup>.

### 1.5 数据分析与统计方法

本研究运用Excel 2007软件进行数据计算和图表制作, 用SPSS 19.0软件进行统计分析包括显著性检验、相关性分析, 显著性差异水平为  $P < 0.05$ , 数据结果以  $\text{Mean} \pm \text{SD}$  表示,  $n = 3$ .

## 2 结果与分析

### 2.1 稻田灌溉河流CH<sub>4</sub>和N<sub>2</sub>O溶存浓度的年际变化特征

#### 2.1.1 CH<sub>4</sub>溶存浓度的年际变化特征

试验观测期内, 稻田灌溉河流  $c(\text{CH}_4 \text{ 溶存})$  总

体上呈现出明显的夏季高、冬季低的变化趋势. 图 2(a) 是观测期内 CH<sub>4</sub> 溶存浓度的月平均变化情况, 结果显示, 稻田灌溉河流  $c(\text{CH}_4 \text{ 溶存})$  年平均值为  $(390.57 \pm 43.95) \text{ nmol} \cdot \text{L}^{-1}$ , 其中, 第一年观测期内  $c(\text{CH}_4 \text{ 溶存})$  变化范围为  $92.80 \sim 1577.54 \text{ nmol} \cdot \text{L}^{-1}$ , 平均值  $(300.82 \pm 35.41) \text{ nmol} \cdot \text{L}^{-1}$ , 排放峰值出现在夏季(8月); 第二年观测期内  $c(\text{CH}_4 \text{ 溶存})$  变化范围为  $174.05 \sim 1276.09$

$\text{nmol} \cdot \text{L}^{-1}$ , 平均值为  $(487.80 \pm 53.21) \text{ nmol} \cdot \text{L}^{-1}$ , 排放峰值也出现在夏季(7月). 2 a 观测期内 3 个采样点之间  $c(\text{CH}_4 \text{ 溶存})$  不存在显著差异, 支流、主流支流交汇处以及主流的  $c(\text{CH}_4 \text{ 溶存})$  年平均值分别为  $(371.75 \pm 44.26)$ 、 $(374.22 \pm 39.88)$  和  $(425.74 \pm 47.72) \text{ nmol} \cdot \text{L}^{-1}$ , 其变化范围分别为  $107.02 \sim 1207.68$ 、 $97.08 \sim 1266.87$  和  $92.80 \sim 1577.54 \text{ nmol} \cdot \text{L}^{-1}$ .

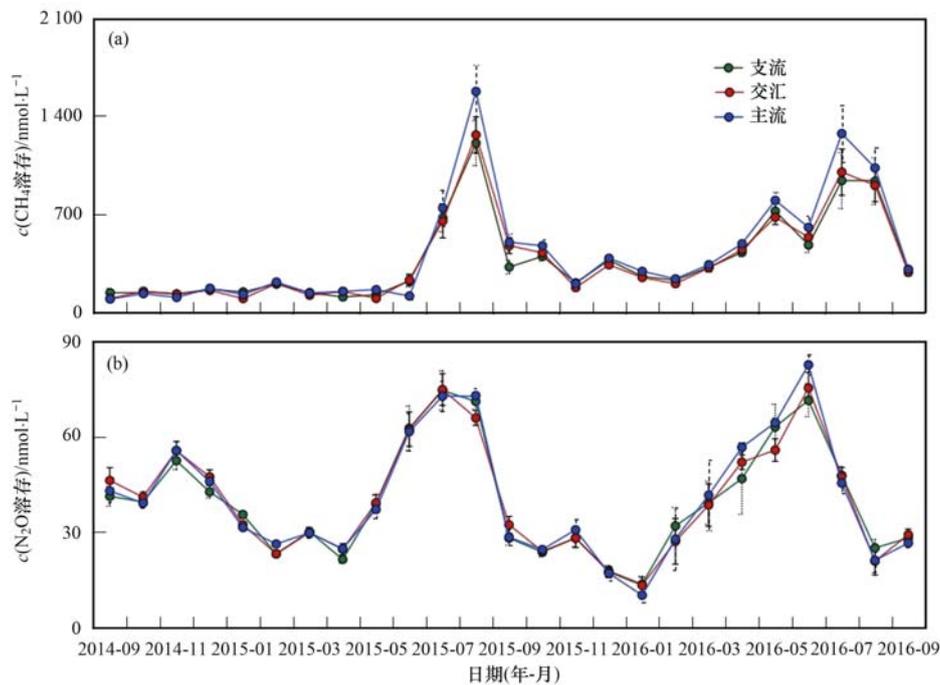


图 2 稻田灌溉河流 CH<sub>4</sub> 和 N<sub>2</sub>O 溶存浓度的月变化 (平均值 ± 标准差)

Fig. 2 Monthly changes of dissolved CH<sub>4</sub> and N<sub>2</sub>O concentrations from a rice-paddy drainage river (mean ± SD)

### 2.1.2 N<sub>2</sub>O 溶存浓度的年际变化特征

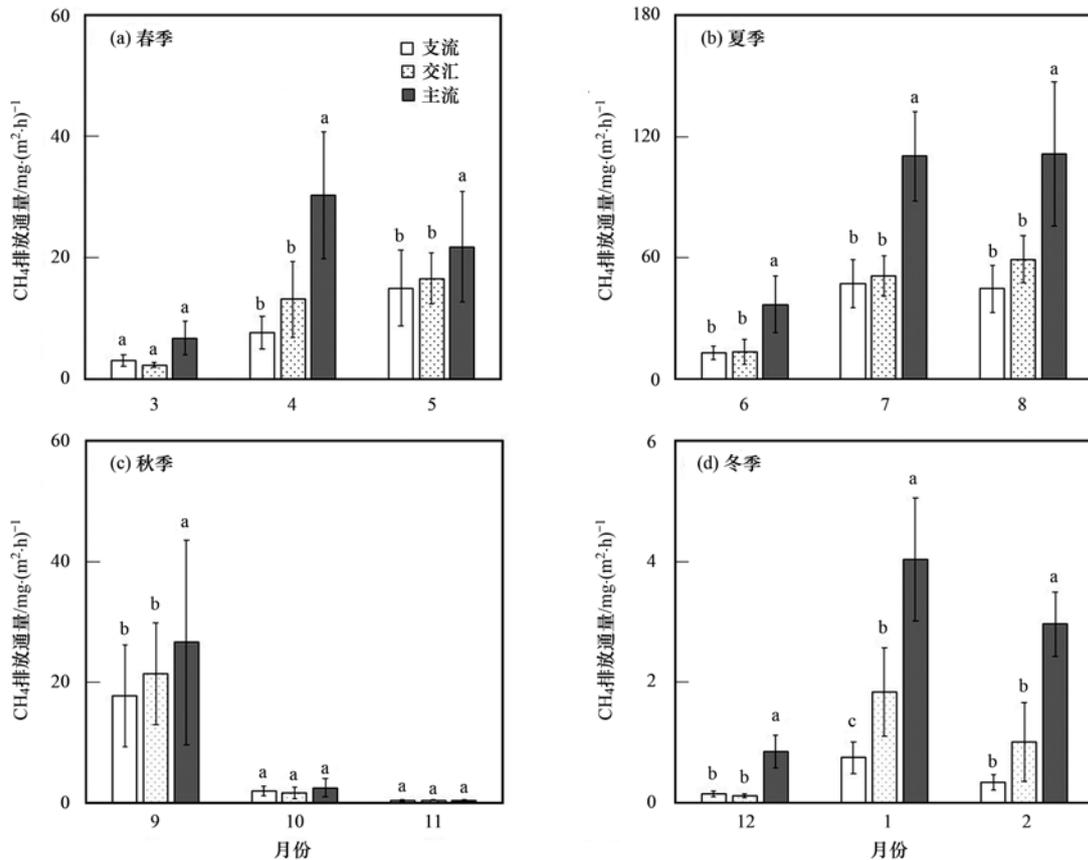
稻田灌溉河流  $c(\text{N}_2\text{O} \text{ 溶存})$  的年际变化趋势与 CH<sub>4</sub> 相一致, 呈现出夏高冬低的变化趋势, 与此同时, 其第一年和第二年观测期的变化规律也相对较为统一, 均为秋季减少冬季最低, 春季上升至夏季到达峰值. 图 2(b) 表示的是观测期内  $c(\text{N}_2\text{O} \text{ 溶存})$  的月平均变化情况, 结果显示, 稻田灌溉河流  $c(\text{N}_2\text{O} \text{ 溶存})$  年平均值为  $(40.23 \pm 3.20) \text{ nmol} \cdot \text{L}^{-1}$ , 其中, 第一年观测期内  $c(\text{N}_2\text{O} \text{ 溶存})$  变化范围为  $21.34 \sim 74.88 \text{ nmol} \cdot \text{L}^{-1}$ , 平均值  $(43.70 \pm 2.58) \text{ nmol} \cdot \text{L}^{-1}$ , 排放峰值出现在夏季(7月); 第二年观测期内  $c(\text{N}_2\text{O} \text{ 溶存})$  变化范围为  $10.05 \sim 75.40 \text{ nmol} \cdot \text{L}^{-1}$ , 平均值  $(36.48 \pm 3.87) \text{ nmol} \cdot \text{L}^{-1}$ , 其排放峰值出现在初夏(6月). 2 a 观测期内 3 个采样点之间  $c(\text{N}_2\text{O} \text{ 溶存})$  也不存在显著差异, 支流、主流支流交汇处以及主流的  $c(\text{N}_2\text{O} \text{ 溶存})$  年平均值分别为  $(39.90 \pm 3.43)$ 、 $(40.13 \pm 3.03)$  和  $(40.68 \pm 3.13) \text{ nmol} \cdot \text{L}^{-1}$ , 其变化范围分别为  $17.68 \sim 74.62$ 、 $13.17 \sim 75.40$

和  $10.05 \sim 82.68 \text{ nmol} \cdot \text{L}^{-1}$ .

### 2.2 稻田灌溉河流 CH<sub>4</sub> 和 N<sub>2</sub>O 排放通量的季节变化特征

#### 2.2.1 CH<sub>4</sub> 排放通量的季节变化特征

稻田灌溉河流 CH<sub>4</sub> 不同季节排放通量在 2 a 观测期内的变化如图 3 所示. 从中可知, 总体而言, 4 个季节中稻田灌溉河流 CH<sub>4</sub> 排放通量均值最大的为夏季, 其排放通量为  $(54.04 \pm 14.06) \text{ mg} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{h})^{-1}$ , 最小的为冬季, 其排放通量为  $(1.34 \pm 0.41) \text{ mg} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{h})^{-1}$ . 春季和秋季的 CH<sub>4</sub> 排放通量均值分别为  $(12.93 \pm 4.79) \text{ mg} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{h})^{-1}$  和  $(8.08 \pm 4.14) \text{ mg} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{h})^{-1}$ . 支流、主流支流交汇处和主流这 3 个采样点 2 a 周期排放通量均值最大的是主流, 其年排放均值为  $(29.52 \pm 9.52) \text{ mg} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{h})^{-1}$ , 变化范围  $0.37 \sim 111.34 \text{ mg} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{h})^{-1}$ ; 其次为主流支流交汇处, 其年排放均值为  $(15.16 \pm 4.14) \text{ mg} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{h})^{-1}$ , 变化范围为  $0.12 \sim 159.22 \text{ mg} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{h})^{-1}$ ; 最小为支流, 其年排放均值为  $(12.61 \pm 3.89) \text{ mg} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{h})^{-1}$ , 变化范围



相同小写字母表示该两者间差异性不显著 ( $P > 0.05$ ), 不同小写字母表示差异性达到显著水平 ( $P < 0.05$ )

图3 稻田灌溉河流 CH<sub>4</sub> 排放通量的季节变化 (平均值 ± 标准差)

Fig. 3 Seasonal variations in CH<sub>4</sub> emission fluxes from a rice-paddy drainage river (means ± SD)

为  $0.14 \sim 47.09 \text{ mg} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{h})^{-1}$ . 春、夏、秋、冬四季稻田灌溉河流 CH<sub>4</sub> 排放通量最大的均为主流, 其春、夏、秋、冬四季 CH<sub>4</sub> 排放通量均值分别为  $(19.59 \pm 7.43)$ 、 $(86.08 \pm 23.89)$ 、 $(9.80 \pm 2.16)$  和  $(2.61 \pm 0.61) \text{ mg} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{h})^{-1}$ . 方差分析结果表明, 主流与支流以及交汇处的采样点的 CH<sub>4</sub> 排放通量在整个夏季 (6~8 月) 和冬季 (12 月~次年 2 月) 以及春季 (4 月和 5 月) 和秋季 (9 月) 有显著的差异 ( $P < 0.05$ ), 而在春季 (3 月) 和秋季 (10 月和 11 月) 3 个采样点的 CH<sub>4</sub> 排放通量并无明显差异.

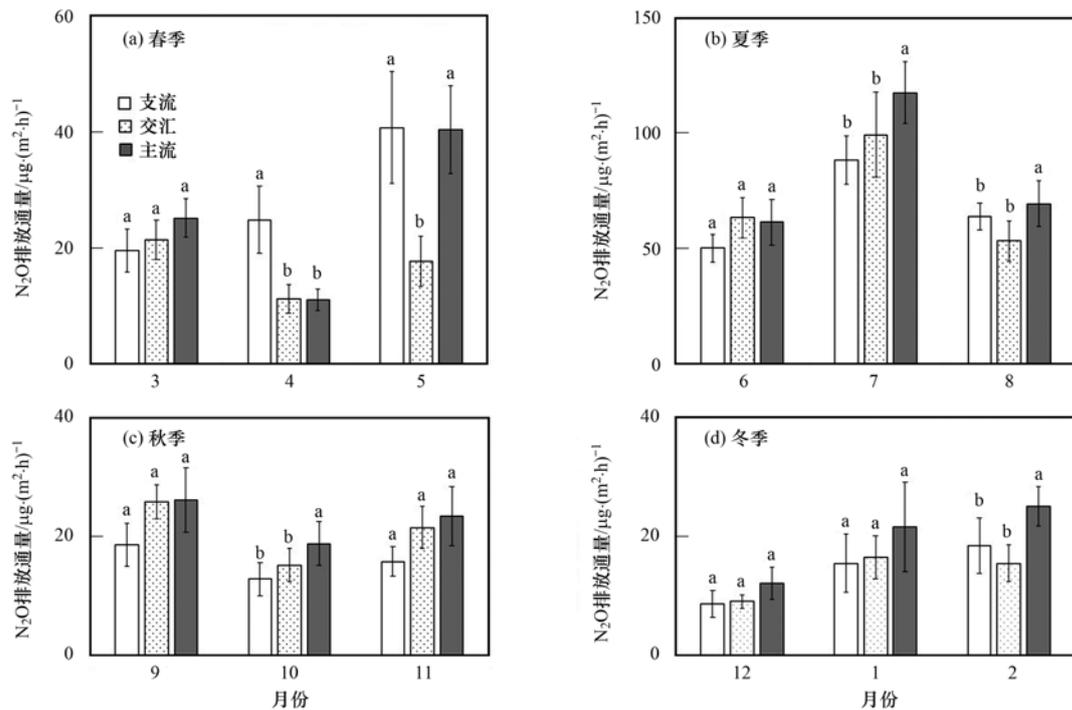
### 2.2.2 N<sub>2</sub>O 排放通量的季节变化特征

稻田灌溉河流 N<sub>2</sub>O 不同季节排放通量在 2 a 观测期内的变化如图 4 所示. 从中可知, 总体而言, 4 个季节中稻田灌溉河流 N<sub>2</sub>O 排放通量均值最大的为夏季, 其排放通量为  $(74.07 \pm 10.17) \mu\text{g} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{h})^{-1}$ , 最小的为冬季, 其排放通量为  $(15.83 \pm 3.70) \mu\text{g} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{h})^{-1}$ . 春季和秋季的 N<sub>2</sub>O 排放通量均值分别为  $(23.47 \pm 4.68) \mu\text{g} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{h})^{-1}$  和  $(19.79 \pm 3.57) \mu\text{g} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{h})^{-1}$ . 支流、主流支流交汇处和主流这 3 个采样点 2 a 周期排放通量均值最大的是主流, 其年排放均值为  $(37.66 \pm 6.13) \mu\text{g} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{h})^{-1}$ ,

变化范围  $10.91 \sim 117.58 \mu\text{g} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{h})^{-1}$ ; 其次是支流, 其年排放均值为  $(31.40 \pm 5.20) \mu\text{g} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{h})^{-1}$ , 变化范围为  $8.59 \sim 88.24 \mu\text{g} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{h})^{-1}$ ; 最小为主、支流交汇处, 其年排放均值为  $(30.81 \pm 5.25) \mu\text{g} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{h})^{-1}$ , 变化范围为  $9.07 \sim 99.37 \mu\text{g} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{h})^{-1}$ . 春季稻田灌溉河流 N<sub>2</sub>O 排放通量最大的为支流, 其 N<sub>2</sub>O 排放均值为  $(28.30 \pm 6.40) \mu\text{g} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{h})^{-1}$ ; 夏季、秋季和冬季 N<sub>2</sub>O 排放通量最大的均为主流, 其 N<sub>2</sub>O 排放通量均值分别为  $(82.81 \pm 11.05)$ 、 $(22.79 \pm 4.699)$  和  $(19.62 \pm 4.55) \mu\text{g} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{h})^{-1}$ . 方差分析结果表明, 主流与支流以及交汇处的采样点的 N<sub>2</sub>O 排放通量在春季 (4 月和 5 月)、夏季 (7 月和 8 月)、秋季 (10 月和 11 月) 和冬季 (2 月) 有显著的差异 ( $P < 0.05$ ), 而在 1、3、6、9 和 12 月 3 个采样点的 N<sub>2</sub>O 排放通量并无明显差异.

### 2.3 稻田灌溉河流 CH<sub>4</sub> 和 N<sub>2</sub>O 累计排放量和可持续性全球增温潜势 (SGWP<sub>100a</sub>)

稻田灌溉河流 CH<sub>4</sub> 和 N<sub>2</sub>O 在 2 a 观测期内的累计排放量以及 100 a 尺度的可持续性全球增温潜势 (SGWP<sub>100a</sub>) 如表 1 所示. 在时间上, 2 a 的 CH<sub>4</sub> 累计排放总量为  $(3876.30 \pm 1153.96) \text{ kg} \cdot \text{hm}^{-2}$ , 年平均



相同小写字母表示该两者间差异性不显著 ( $P > 0.05$ ), 不同小写字母表示差异性达到显著水平 ( $P < 0.05$ )

图4 稻田灌溉河流N<sub>2</sub>O排放通量的季节变化(平均值 ± 标准差)

Fig. 4 Seasonal variations in N<sub>2</sub>O emission fluxes from a rice-paddy drainage river (means ± SD)

值为  $(1\,938.15 \pm 576.98) \text{ kg} \cdot \text{hm}^{-2}$ , 第一年的 CH<sub>4</sub> 累计排放量低于第二年的 CH<sub>4</sub> 累计排放量, 占第二年 CH<sub>4</sub> 累计排放量的 70%. 在空间上, 2 a 主流的 CH<sub>4</sub> 累计排放量最高, 均值为  $(2\,961.73 \pm 1\,047.51) \text{ kg} \cdot \text{hm}^{-2}$ , 其次是主流支流交汇处, 均值为  $(1\,561.19 \pm 368.35) \text{ kg} \cdot \text{hm}^{-2}$ , 支流的年累计排放量最低, 均值为  $(1\,291.53 \pm 314.90) \text{ kg} \cdot \text{hm}^{-2}$ . 对于 N<sub>2</sub>O 而言, 在时间尺度上, N<sub>2</sub>O 累计排放总量为  $(5.74 \pm 0.98) \text{ kg} \cdot \text{hm}^{-2}$ , 年平均值为  $(2.87 \pm 0.49) \text{ kg} \cdot \text{hm}^{-2}$ , 第一年的 N<sub>2</sub>O 累计排放量低于第二年的 N<sub>2</sub>O 累计排放量, 占第二年 N<sub>2</sub>O 累计排放量的 77%. 在空间上, 2 a 主流的 N<sub>2</sub>O 累计排放量最高, 均值为  $(3.30 \pm 0.57)$

$\text{kg} \cdot \text{hm}^{-2}$ , 其次是主流支流交汇处, 均值为  $(2.67 \pm 0.47) \text{ kg} \cdot \text{hm}^{-2}$ , 支流的年累计排放量最低, 均值为  $(2.65 \pm 0.44) \text{ kg} \cdot \text{hm}^{-2}$ .

可持续性全球增温潜势 (SGWP<sub>100a</sub>, 以 CO<sub>2</sub>-eq 计) 的平均值为  $(87.99 \pm 15.73) \text{ t} \cdot (\text{hm}^2 \cdot \text{a})^{-1}$ , 第二年的 SGWP<sub>100a</sub> 平均值比第一年高 42%. 2 a 观测期 3 个采样点的 SGWP<sub>100a</sub> 均值排序均为: 主流  $[(134.17 \pm 19.69) \text{ t} \cdot (\text{hm}^2 \cdot \text{a})^{-1}] >$  主流支流交汇  $[(70.98 \pm 14.30) \text{ t} \cdot (\text{hm}^2 \cdot \text{a})^{-1}] >$  支流  $[(58.84 \pm 13.22) \text{ t} \cdot (\text{hm}^2 \cdot \text{a})^{-1}]$ , 其中主流 SGWP<sub>100a</sub> 比主流支流交汇处高 1.9 倍, 比支流高 2.3 倍.

表1 稻田灌溉 CH<sub>4</sub> 和 N<sub>2</sub>O 年排放总量与 100 年尺度的可持续性全球增温潜势 (SGWP<sub>100a</sub>) (平均值 ± 标准差)

Table 1 Total annual emission of CH<sub>4</sub> and N<sub>2</sub>O and sustained-flux global warming potential (SGWP) over the time span of 100 years in a rice-paddy drainage river (means ± SD)

时间	采样点	CH <sub>4</sub> /kg·hm <sup>-2</sup>	N <sub>2</sub> O /kg·hm <sup>-2</sup>	SGWP <sub>100a</sub> (以 CO <sub>2</sub> -eq 计算) <sup>1)</sup> /t·(hm <sup>2</sup> ·a) <sup>-1</sup>
第一年	支流	1 196.46 ± 250.32	2.29 ± 0.30	54.46 ± 9.22
	交汇	1 469.01 ± 314.58	2.40 ± 0.33	66.75 ± 10.29
	主流	2 139.00 ± 696.79	2.82 ± 0.44	97.02 ± 14.55
	平均值	1 601.49 ± 420.21	2.50 ± 0.36	72.74 ± 11.35
第二年	支流	1 386.60 ± 379.47	3.01 ± 0.57	63.21 ± 17.21
	交汇	1 653.37 ± 422.11	2.94 ± 0.61	75.20 ± 18.30
	主流	3 784.46 ± 1 398.23	3.78 ± 0.69	171.32 ± 24.82
	平均值	2 274.81 ± 733.75	3.24 ± 0.62	103.24 ± 20.11

1) SGWP<sub>100a</sub> (以 CO<sub>2</sub>-eq 计算) 的公式为: SGWP<sub>100a</sub> = CH<sub>4</sub> × 45 + N<sub>2</sub>O × 270

## 2.4 稻田灌溉河流环境因子动态变化及 CH<sub>4</sub> 和 N<sub>2</sub>O 排放通量对环境因子的响应

本研究中在对稻田灌溉河流 3 个采样点 CH<sub>4</sub> 和 N<sub>2</sub>O 排放通量进行观测的同时,同步监测了水体理化性质(图 5). 2 a 观测期内,水温变化范围为 5.3 ~ 35.4 °C,平均水温为 (19.4 ± 1.24) °C [图 5 (a)]. 水体中的溶解氧(DO)的变化范围为 0.34 ~ 30.67 mg·L<sup>-1</sup>,平均值为 (13.11 ± 2.68) mg·L<sup>-1</sup> [图 5(b)]. 水体矿物质氮(NH<sub>4</sub><sup>+</sup>-N 和 NO<sub>3</sub><sup>-</sup>-N) 和底泥中可溶性有机碳(DOC)的季节变化趋势基本一致,且均与水温的变化趋势相近[图 5(c) ~ 5(e)]. 其中,ρ(NH<sub>4</sub><sup>+</sup>-N) 的变化范围为 2.09 ~ 11.89 mg·L<sup>-1</sup>,平均值为 (5.16 ± 1.15) mg·L<sup>-1</sup>,主流[均值(5.87 ± 1.69) mg·L<sup>-1</sup>]的ρ(NH<sub>4</sub><sup>+</sup>-N)显著高于支流[均值(4.97 ± 1.35) mg·L<sup>-1</sup>]与交汇处[均值(4.63 ± 1.09) mg·L<sup>-1</sup>]; ρ(NO<sub>3</sub><sup>-</sup>-N) 的变化范围为 0.59 ~ 10.65 mg·L<sup>-1</sup>,2 a 观测期年平均值为 (3.26 ± 1.27) mg·L<sup>-1</sup>,主流、支流和交汇处这 3 个点 ρ(NO<sub>3</sub><sup>-</sup>-N) 的年平均值分别为 (3.65 ± 2.29)、(3.21 ± 1.05) 和 (3.31 ± 1.62) mg·L<sup>-1</sup>. 稻田灌溉河流底泥的 ω(DOC) 的变化范围为 17.26 ~ 283.63 mg·kg<sup>-1</sup>,2 a 观测期年平均值为 (85.21 ± 8.62) mg·kg<sup>-1</sup>,主流、支流和交汇处这 3 个点 ω(DOC) 的年平均值分别为 (167.24 ± 57.22)、(132.05 ± 36.69) 和 (113.05 ± 28.27) mg·kg<sup>-1</sup>.

表 2 为稻田灌溉河流 CH<sub>4</sub> 和 N<sub>2</sub>O 排放通量与各环境因子的相关性分析,结果显示:在众多环境变量中,CH<sub>4</sub> 排放通量与水温、底泥 DOC 显著正相关( $P < 0.01$ ),而与水体 DO 显著负相关( $P < 0.01$ ); N<sub>2</sub>O 排放通量与水温、水中 NH<sub>4</sub><sup>+</sup>-N 和 NO<sub>3</sub><sup>-</sup>-N 显著正相关( $P < 0.01$ ),而与水体 DO 显著负相关( $P <$

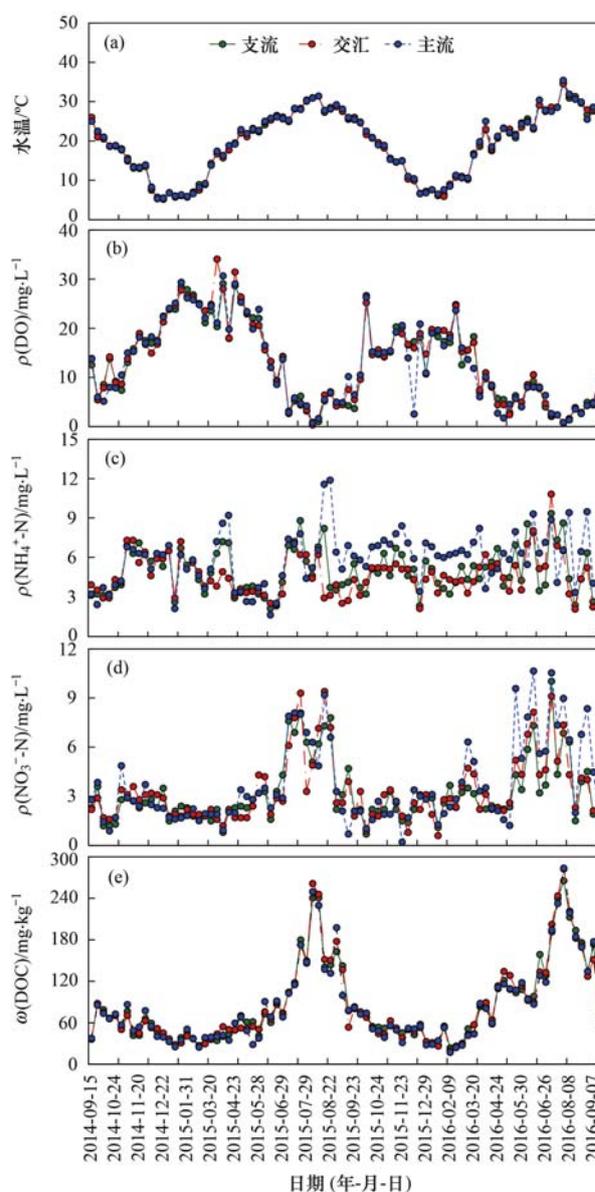


图 5 稻田灌溉河流水体及底泥理化性质的月动态变化(平均值)  
Fig. 5 Monthly dynamic changes in water and sediment parameters from a rice-paddy drainage river (mean)

表 2 CH<sub>4</sub> 和 N<sub>2</sub>O 排放通量与水体和底泥理化指标相关性分析<sup>1)</sup>

Table 2 Correlation analysis of CH<sub>4</sub> and N<sub>2</sub>O fluxes and physicochemical indexes of water

	水温	水体 pH	水体 DO	水体 EC	水体 NH <sub>4</sub> <sup>+</sup> -N	水体 NO <sub>3</sub> <sup>-</sup> -N	底泥 DOC
CH <sub>4</sub>	0.717 **	0.375	-0.748 **	0.534	0.457	0.561	0.967 **
N <sub>2</sub> O	0.525 **	0.487	-0.574 **	0.647	0.596 **	0.590 **	0.606

1) \* 表示在  $P < 0.05$  水平上相关性显著, \*\* 表示在  $P < 0.01$  水平上相关性显著

0.01). CH<sub>4</sub> 和 N<sub>2</sub>O 排放通量不受水体 pH 和 EC 含量的影响.

## 3 讨论

### 3.1 与国内外河流 CH<sub>4</sub> 和 N<sub>2</sub>O 排放的比较

本研究观测的稻田灌溉河流 2 a 观测期 CH<sub>4</sub> 溶存浓度和排放通量(年平均)分别为: (390.57 ± 43.95) nmol·L<sup>-1</sup> 和 (20.73 ± 6.08) mg·(m<sup>2</sup>·h)<sup>-1</sup>;

N<sub>2</sub>O 溶存浓度和排放通量(年平均)分别为 (40.23 ± 3.20) nmol·L<sup>-1</sup> 和 (34.30 ± 7.12) μg·(m<sup>2</sup>·h)<sup>-1</sup>. 在与国内外其他河流比较中(表 3),发现本研究的稻田灌溉河流 CH<sub>4</sub> 溶存浓度与黄河上游接近;但是高于我国黑水滩河和雅鲁藏布江以及非洲的 Oubangui River、美国的 Mid-Columbia River、巴西的 Amazon River 以及刚果的 Savannah River; 低于脱甲河小流域以及天津河网,与此同时,远低于法国的

Sinnamary River 和印度的 Adyar River. 稻田灌溉河流N<sub>2</sub>O溶存浓度大小接近于中国的天津河网以及印度的 Adyar River, 低于脱甲河小流域, 但高于表3 中国内外其他河流. 稻田灌溉河流 CH<sub>4</sub> 排放通量大小与中国的新安江大坝上游接近, 低于法国的 Sinnamary River, 但远高于表3 中国内外其他河流. 稻田灌溉河流N<sub>2</sub>O排放通量大小与国内的脱甲河小流域以及美国的 Ohio River 相近, 在国内的河流中处于中间水平, 但明显低于西班牙的 Guadalete River、英国的 Ottery River 和美国的 San Joaquin River. 总体而言, 稻田灌溉河流的 CH<sub>4</sub> 和 N<sub>2</sub>O溶存浓度以及N<sub>2</sub>O排放通量与国内其他河

流相比处于中下排放水平, 但 CH<sub>4</sub> 排放通量处于较高排放水平, 说明河流 CH<sub>4</sub> 和 N<sub>2</sub>O的排放存在地区性差异, 产生这种差异的原因可能是由于河流性质, 自然河流、城市河流与农业河流其性质具有明显差异, 自然河流如非洲的 Oubangui River, 由于其人为源碳氮输入较少, 其 CH<sub>4</sub> 和 N<sub>2</sub>O溶存浓度和排放通量均处于较低水平; 城市河流如天津河网主要为排污河流, 其溶存浓度较高, 但排放通量与本研究差异并不明显; 农业河流即本研究所关注的河流类型, 由于受人干扰较大且碳氮摄入量很高, 因此为了更准确评估农业河流 CH<sub>4</sub> 和 N<sub>2</sub>O排放, 需要更多的周年监测数据.

表3 国内外部分河流 CH<sub>4</sub> 和 N<sub>2</sub>O溶存浓度和排放通量对比

Table 3 Comparison of CH<sub>4</sub> and N<sub>2</sub>O fluxes with other international and domestic rivers

类型	研究区域	c(CH <sub>4</sub> 溶存) /nmol·L <sup>-1</sup>	c(N <sub>2</sub> O溶存) /nmol·L <sup>-1</sup>	CH <sub>4</sub> 排放通量 /mg·(m <sup>2</sup> ·h) <sup>-1</sup>	N <sub>2</sub> O排放通量 /μg·(m <sup>2</sup> ·h) <sup>-1</sup>
	稻田灌溉河流(本研究)	390.57 ± 43.95	40.23 ± 3.20	20.73 ± 6.08	34.30 ± 7.12
	脱甲河小流域 <sup>[23,24]</sup>	610	150	0.084	31.53
	天津河网 <sup>[25]</sup>	1350	47.88	1.13	81.85
国内	新安江大坝上游 <sup>[26,27]</sup>	—	—	22.62	50.00
	黑水滩河 <sup>[28]</sup>	115.10	32.01	0.33	41.33
	雅鲁藏布江 <sup>[29]</sup>	192.80	14.5	0.24 ~ 0.62	10.48 ~ 24.23
	黄河上游 <sup>[30]</sup>	349.10	10.6	2.68	22.26
国外	Oubangui River, 非洲 <sup>[31]</sup>	130	7.72	0.07	4.79
	Sinnamary River, 法国 <sup>[32]</sup>	22000	—	31.33	—
	Adyar River, 印度 <sup>[33]</sup>	63410	42.57	15.35	57.45
	Mid-Columbia River, 美国 <sup>[34]</sup>	290	—	0.16	—
	Guadalete River, 西班牙 <sup>[35]</sup>	—	—	0.33	170
	Amazon River, 巴西 <sup>[36]</sup>	50	13.40	0.10	11.42
	Savannah River, 刚果 <sup>[37]</sup>	200	8.90	0.60	17.42
	Ohio River, 美国 <sup>[38]</sup>	—	—	—	39.2
	Ottery River, 英国 <sup>[39]</sup>	—	—	1.07	180
	San Joaquin River, 美国 <sup>[40]</sup>	—	20.23	—	201.90

### 3.2 灌溉河流 CH<sub>4</sub> 和 N<sub>2</sub>O排放的时空变异分析

稻田灌溉河流的 CH<sub>4</sub> 和 N<sub>2</sub>O溶存浓度和排放通量的排放峰值均出现在夏季, 整体上均呈现出春夏排放高, 秋冬排放低的变化趋势(图3和图4). 呈现出与温度变化十分密切的关系, 这与我国香溪河<sup>[41]</sup>以及新乡市卫河<sup>[42]</sup>进行的 CH<sub>4</sub> 和 N<sub>2</sub>O排放通量原位观测所得出的结论一致, 同时也与国外的一些河流原位观测所得到的 CH<sub>4</sub> 和 N<sub>2</sub>O的季节变化趋势相一致<sup>[38,43]</sup>. 造成这一结果的原因可能是: 一方面春夏季节温度较为适宜微生物的生长和繁殖, 大大提高了微生物的活性进而刺激 CH<sub>4</sub> 和 N<sub>2</sub>O的产生<sup>[44]</sup>; 另一方面春夏两季是水稻的生长季, 大量的肥料施入农田, 与此同时, 夏季降雨量增加或烤田过程中, 大量碳氮会通过灌溉河流周围农田以淋溶或者径流的形式进入灌溉河道, 进而促使更多的 CH<sub>4</sub> 和 N<sub>2</sub>O从灌溉河流中排放.

此外, 由图3和图4可以看出, 在夏季, 主流观测到的 CH<sub>4</sub> 和 N<sub>2</sub>O排放通量显著高于支流与主流支流交汇处的采样点观测到的 CH<sub>4</sub> 和 N<sub>2</sub>O排放通量. 其原因主要是由于主流附近有一个养猪场, 其排放的一些生活污水以及一些污染物会直接排入灌溉河道中, 因此主流采样点区域底泥中可供微生物利用的底物含量高于另外两个区域, 从而其 CH<sub>4</sub> 和 N<sub>2</sub>O排放量也随之增加. 而在冬季, 虽然主流采样点区域附近仍然含有丰富的促进 CH<sub>4</sub> 和 N<sub>2</sub>O产生的底物, 但整个区域处于低水温高溶解氧的环境, 此时微生物活性不足且对底物利用率不高, 不能为 CH<sub>4</sub> 产生提供有利的厌氧环境<sup>[45]</sup>, 与此同时, 硝化和反硝化速率也大大降低, 因此也进一步影响了 N<sub>2</sub>O的产生<sup>[46]</sup>. 另外周边稻田的排水口处于主流, 夏季稻田烤田排水, 导致大量含有碳氮的水体直接流入主流, 这可能是造成主流排放显著高于支流与交汇点的另一个原因.

### 3.3 环境因子对 CH<sub>4</sub> 和 N<sub>2</sub>O 排放的影响

影响稻田灌溉河流 CH<sub>4</sub> 排放的环境驱动因子主要有水温、DO 和 DOC. CH<sub>4</sub> 排放通量与水温呈显著正相关关系(表 2),由此可见稻田灌溉河流 CH<sub>4</sub> 排放受温度影响很大.水温可以通过直接影响底泥温度进而间接影响产甲烷菌的活性,从而刺激 CH<sub>4</sub> 排放量的增加,此结论与先前在我国一个富营养化的天然湖泊观测结果相一致<sup>[47]</sup>. Beaulieu 等<sup>[11]</sup>在研究美国一条河流中也发现,CH<sub>4</sub> 排放与河流的水热状况紧密相关.此外,水体中 DO 含量对 CH<sub>4</sub> 产生、扩散和氧化过程都会产生巨大的影响,DO 含量的高低决定了甲烷氧化菌的活性,进而影响水中 CH<sub>4</sub> 的排放. Yang 等<sup>[48]</sup>的研究发现,夏季低 DO 含量会抑制甲烷氧化菌的氧化进而促进 CH<sub>4</sub> 排放,与本试验中的 CH<sub>4</sub> 排放与 DO 的表现为负相关关系结论相一致(表 2).底泥中的 DOC 含量也是影响灌溉河流 CH<sub>4</sub> 排放的重要指标.夏季是水稻生长的重要时期,大量含高碳、氮化肥会随降雨或烤田通过淋溶和径流进入到灌溉河流,导致大部分高碳氮沉积物在河道底部大量积累,灌溉河道底泥中 DOC 含量增加,从而促进了 CH<sub>4</sub> 的产生和排放<sup>[49,50]</sup>.

而影响稻田灌溉河流 N<sub>2</sub>O 排放的环境驱动因子主要有水温、DO 和矿物质氮(NH<sub>4</sub><sup>+</sup>-N 和 NO<sub>3</sub><sup>-</sup>-N).稻田灌溉河流 N<sub>2</sub>O 排放通量与水温呈显著正相关关系(表 2).水温可以通过直接或者间接影响好氧硝化作用和厌氧反硝化作用的反应速率,从而影响 N<sub>2</sub>O 产生的物理化学过程.另外,水温可以通过调节 N<sub>2</sub>O 在水中的溶解度,进而影响其在水-气界面的排放<sup>[39]</sup>.氧浓度高的环境中易发生硝化作用,反之氧浓度低的环境中易发生反硝化作用,水体中的 DO 含量通过影响有机物的降解,进一步影响水体中 N<sub>2</sub>O 溶存浓度的大小,最终影响 N<sub>2</sub>O 的排放<sup>[2]</sup>,本研究中稻田灌溉河流 N<sub>2</sub>O 排放通量与 DO 呈显著负相关关系(表 2).水中矿物质氮(NH<sub>4</sub><sup>+</sup>-N 和 NO<sub>3</sub><sup>-</sup>-N)含量也是影响灌溉河流 N<sub>2</sub>O 排放的重要因素. NH<sub>4</sub><sup>+</sup>-N 会通过硝化反应从而释放出 N<sub>2</sub>O<sup>[51]</sup>.而 Murray 等<sup>[52]</sup>通过整合分析 56 个关于河口 N<sub>2</sub>O 排放的研究后,发现水中 NO<sub>3</sub><sup>-</sup>-N 和 NO<sub>2</sub><sup>-</sup>-N 含量较高,反硝化作用会大幅度增强,也会导致 N<sub>2</sub>O 的产生和释放.该结论与本试验中得出的 N<sub>2</sub>O 排放与矿物质氮(NH<sub>4</sub><sup>+</sup>-N 和 NO<sub>3</sub><sup>-</sup>-N)呈现极显著正相关的结论一致.

## 4 结论

(1) 全年的观测期内,稻田灌溉河流 CH<sub>4</sub> 和

N<sub>2</sub>O 溶存浓度的年平均值分别为(390.57 ± 43.95) nmol·L<sup>-1</sup>和(40.23 ± 3.20) nmol·L<sup>-1</sup>, CH<sub>4</sub> 和 N<sub>2</sub>O 的排放通量(年平均)分别为(20.73 ± 6.08) mg·(m<sup>2</sup>·h)<sup>-1</sup>和(34.30 ± 7.12) μg·(m<sup>2</sup>·h)<sup>-1</sup>.稻田灌溉河流的 CH<sub>4</sub> 和 N<sub>2</sub>O 的季节排放特征相似,即春夏高,秋冬低的趋势.

(2) 两年 CH<sub>4</sub> 累计排放量总量为(3 876.30 ± 1 153.96) kg·hm<sup>-2</sup>,年平均值为(1 938.15 ± 576.98) kg·hm<sup>-2</sup>; N<sub>2</sub>O 累计排放量总量为(5.74 ± 0.98) kg·hm<sup>-2</sup>,年平均值为(2.87 ± 0.49) kg·hm<sup>-2</sup>.可持续性全球增温潜势(SGWP<sub>100a</sub>,以 CO<sub>2</sub>-eq 计算)的平均值为(87.99 ± 15.73) t·(hm<sup>2</sup>·a)<sup>-1</sup>.

(3) CH<sub>4</sub> 排放通量与水温、底泥 DOC 显著正相关,而与水体 DO 显著负相关; N<sub>2</sub>O 排放通量与水温、水中铵态氮(NH<sub>4</sub><sup>+</sup>-N)和硝态氮(NO<sub>3</sub><sup>-</sup>-N)显著正相关,而与水体 DO 显著负相关.

致谢:感谢耿亚军、宋黎娜、胡志强、陈杰和孔德雷等在野外采样及室内分析实验中所给予的帮助!

### 参考文献:

- [1] Cole J J, Prairie Y T, Caraco N F, *et al.* Plumbing the global carbon cycle: integrating inland waters into the terrestrial carbon budget[J]. *Ecosystems*, 2007, **10**(1): 172-185.
- [2] Beaulieu J J, Tank J L, Hamilton S K, *et al.* Nitrous oxide emission from denitrification in stream and river networks[J]. *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America*, 2011, **108**(1): 214-219.
- [3] Khalil M A K, Rasmussen R A. Sources, sinks, and seasonal cycles of atmospheric methane[J]. *Journal of Geophysical Research*, 1983, **88**(C9): 5131-5144.
- [4] Bastviken D, Tranvik L J, Downing J A, *et al.* Freshwater methane emissions offset the continental carbon sink[J]. *Science*, 2011, **331**(6013), doi: 10.1126/science.1196808.
- [5] Hu M P, Chen D J, Dahlgren R A. Modeling nitrous oxide emission from rivers: a global assessment[J]. *Global Change Biology*, 2016, **22**(11): 3566-3582.
- [6] Stanley E H, Casson N J, Christel S T, *et al.* The ecology of methane in streams and rivers: patterns, controls, and global significance[J]. *Ecological Monographs*, 2016, **86**(2): 146-171.
- [7] Clough T J, Buckthought L E, Kelliher F M, *et al.* Diurnal fluctuations of dissolved nitrous oxide (N<sub>2</sub>O) concentrations and estimates of N<sub>2</sub>O emissions from a spring-fed river: implications for IPCC methodology[J]. *Global Change Biology*, 2007, **13**(5): 1016-1027.
- [8] Alvim R B, de Mello W Z, Silveira C S, *et al.* Nitrous oxide emissions from unpolluted and polluted rivers of the Paquetae Basin (Teresopolis, Rio de Janeiro)[J]. *Engenharia Sanitaria e Ambiental*, 2014, **19**(4): 471-478.
- [9] He B N, He J T, Wang J, *et al.* Characteristics of GHG flux from water-air interface along a reclaimed water intake area of the Chaobai River in Shunyi, Beijing[J]. *Atmospheric Environment*, 2018, **172**: 102-108.
- [10] Sawakuchi H O, Bastviken D, Sawakuchi A O, *et al.* Methane emissions from Amazonian Rivers and their contribution to the

- global methane budget[J]. *Global Change Biology*, 2014, **20**(9): 2829-2840.
- [11] Beaulieu J J, Smolenski R L, Nietch C T, *et al.* High methane emissions from a midlatitude reservoir draining an agricultural watershed[J]. *Environmental Science & Technology*, 2014, **48**(19): 11100-11108.
- [12] Wilcock R J, Sorrell B K. Emissions of greenhouse gases CH<sub>4</sub> and N<sub>2</sub>O from low gradient streams in Agriculturally developed catchments[J]. *Water, Air, and Soil Pollution*, 2008, **188**(1-4): 155-170.
- [13] Rantakari M, Heiskanen J, Mammarella I, *et al.* Different apparent gas exchange coefficients for CO<sub>2</sub> and CH<sub>4</sub>: Comparing a brown-water and a clear-water lake in the boreal zone during the whole growing season[J]. *Environmental Science & Technology*, 2015, **49**(19): 11388-11394.
- [14] Harrison J, Matson P. Patterns and controls of nitrous oxide emissions from waters draining a subtropical agricultural valley [J]. *Global Biogeochemical Cycles*, 2003, **17**(3), doi: 10.1029/2002GB001991.
- [15] Laimi A, Bartoli M, Castaldi S, *et al.* Greenhouse gases (CO<sub>2</sub>, CH<sub>4</sub> and N<sub>2</sub>O) in lowland springs within an agricultural impacted watershed (Po River plain, northern Italy) [J]. *Chemistry and Ecology*, 2011, **27**(2): 177-187.
- [16] 朱兆良. 农田中氮肥的损失与对策[J]. *土壤与环境*, 2000, **9**(1): 1-6.  
Zhu Z L. Loss of fertilizer N from plants-soil system and the strategies and techniques for its reduction [J]. *Soil and Environmental Sciences*, 2000, **9**(1): 1-6.
- [17] Zou X X, Li Y E, Li K, *et al.* Greenhouse gas emissions from agricultural irrigation in China[J]. *Mitigation and Adaptation Strategies for Global Change*, 2015, **20**(2): 295-315.
- [18] 欧建锋, 杨树滩, 仇锦先. 江苏省灌溉农业节水潜力研究[J]. *灌溉排水学报*, 2005, **24**(6): 22-25.  
Ou J F, Yang S T, Qiu J X. A study on the water saving potential of irrigation agriculture in Jiangsu province[J]. *Journal of Irrigation and Drainage*, 2005, **24**(6): 22-25.
- [19] Minamikawa K, Nishimura S, Sawamoto T, *et al.* Annual emissions of dissolved CO<sub>2</sub>, CH<sub>4</sub>, and N<sub>2</sub>O in the subsurface drainage from three cropping systems [J]. *Global Change Biology*, 2010, **16**(2): 796-809.
- [20] 高洁, 郑循华, 王睿, 等. 漂浮通量箱法和扩散模型法测定内陆水体 CH<sub>4</sub> 和 N<sub>2</sub>O 排放通量的初步比较研究[J]. *气候与环境研究*, 2014, **19**(3): 290-302.  
Gao J, Zheng X H, Wang R, *et al.* Preliminary comparison of the static floating chamber and the diffusion model methods for measuring water-atmosphere exchanges of methane and nitrous oxide from inland water bodies[J]. *Climatic and Environmental Research*, 2014, **19**(3): 290-302.
- [21] Högberg M N, Högberg P. Extramatrical ectomycorrhizal mycelium contributes one-third of microbial biomass and produces, together with associated roots, half the dissolved organic carbon in a forest soil[J]. *New Phytologist*, 2002, **154**(3): 791-795.
- [22] 郝庆菊. 三江平原沼泽土地利用变化对温室气体排放的影响[D]. 北京: 中国科学院大学(中国科学院大气物理研究所), 2005.  
Hao Q J. Effect of land-use change on greenhouse gases emissions in freshwater marshes in the Sanjiang Plain [D]. Beijing: University of Chinese Academy of Sciences (The Institute of Atmospheric Physics, Chinese Academy of Sciences), 2005.
- [23] 张羽, 李悦, 秦晓波, 等. 亚热带农业小流域水系溶存甲烷浓度和扩散通量研究[J]. *中国农业科学*, 2016, **49**(20): 3968-3980.  
Zhang Y, Li Y, Qin X B, *et al.* Dissolved methane concentration and diffusion flux in agricultural watershed of subtropics [J]. *Scientia Agricultura Sinica*, 2016, **49**(20): 3968-3980.
- [24] 张羽, 秦晓波, 廖育林, 等. 亚热带农业小流域水系 N<sub>2</sub>O 扩散通量及其影响因素[J]. *农业工程学报*, 2016, **32**(7): 215-223.  
Zhang Y, Qin X B, Liao Y L, *et al.* Diffusion flux of N<sub>2</sub>O and its influencing factor in agricultural watershed of subtropics [J]. *Transactions of the Chinese Society of Agricultural Engineering*, 2016, **32**(7): 215-223.
- [25] Hu B B, Wang D Q, Zhou J, *et al.* Greenhouse gases emission from the sewage draining rivers [J]. *Science of the Total Environment*, 2017, **612**: 1454-1462.
- [26] Yang L, Li H P, Yue C L, *et al.* Seasonal and spatial variability of methane emissions from a subtropical reservoir in eastern China [J]. *Biogeosciences Discussions*, 2018, doi: 10.5194/BG-2018-195.
- [27] Yang L, Li H P, Wang J. Spatial and temporal variability of nitrous oxide emissions from a large subtropical reservoir in eastern China [J]. *Polish Journal of Environmental Studies*, 2019, **28**(5): 3497-3503.
- [28] 龚小杰, 王晓锋, 袁兴中, 等. 城镇快速发展对河流温室气体溶存及扩散通量的影响——以重庆市黑水滩河流域场镇为例[J]. *生态学报*, 2019, **39**(22): 8425-8441.  
Gong X J, Wang X F, Yuan X Z, *et al.* Effects of field towns development on the dissolved and diffusion fluxes of greenhouse gases in Heishuitan River basin, Chongqing [J]. *Acta Ecologica Sinica*, 2019, **39**(22): 8425-8441.
- [29] 叶润成, 吴起鑫, 赵志琦, 等. 雅鲁藏布江河水中 CH<sub>4</sub> 和 N<sub>2</sub>O 气体浓度及释放特征[J]. *生态学杂志*, 2019, **38**(3): 791-798.  
Ye R C, Wu Q X, Zhao Z Q, *et al.* Concentrations and emissions of dissolved CH<sub>4</sub> and N<sub>2</sub>O in the Yarlung Tsangpo River [J]. *Chinese Journal of Ecology*, 2019, **38**(3): 791-798.
- [30] Qu B, Aho K S, Li C L, *et al.* Greenhouse gases emissions in rivers of the Tibetan Plateau [J]. *Scientific Reports*, 2017, **7**, doi: 10.1038/s41598-017-16552-6.
- [31] Bouillon S, Yambélé A, Spencer R G M, *et al.* Organic matter sources, fluxes and greenhouse gas exchange in the Oubangui River (Congo River basin) [J]. *Biogeosciences Discussions*, 2012, **9**(1): 63-108.
- [32] Guérin F, Abril G, Richard S, *et al.* Methane and carbon dioxide emissions from tropical reservoirs: significance of downstream rivers [J]. *Geophysical Research Letters*, 2006, **33**(21), doi: 10.1029/2006GL027929.
- [33] Nirmal Rajkumar A, Barnes J, Ramesh R, *et al.* Methane and nitrous oxide fluxes in the polluted Adyar River and Estuary, SE India [J]. *Marine Pollution Bulletin*, 2008, **56**(12): 2043-2051.
- [34] Miller B L, Arntzen E V, Goldman A E, *et al.* Methane ebullition in temperate hydropower reservoirs and implications for US policy on greenhouse gas emissions [J]. *Environmental Management*, 2017, **60**(4): 615-629.
- [35] Burgos M, Sierra A, Ortega T, *et al.* Anthropogenic effects on greenhouse gas (CH<sub>4</sub> and N<sub>2</sub>O) emissions in the Guadalete River Estuary (SW Spain) [J]. *Science of the Total Environment*, 2015, **503-504**: 179-189.

- [36] Richey J E, Devol A H, Wofsy S C, *et al.* Biogenic gases and the oxidation and reduction of carbon in Amazon River and floodplain waters [J]. *Limnology and Oceanography*, 1988, **33** (4): 551-561.
- [37] Upstill-Goddard R C, Salter M E, Mann P J, *et al.* The riverine source of CH<sub>4</sub> and N<sub>2</sub>O from the Republic of Congo, western Congo Basin [J]. *Biogeosciences*, 2017, **14** (9): 2267-2281.
- [38] Beaulieu J J, Shuster W D, Rebbholz J A. Nitrous Oxide emissions from a large, impounded river: the Ohio River [J]. *Environmental Science & Technology*, 2010, **44** (19): 7527-7533.
- [39] Bonnett S A F, Blackwell M S A, Leah R, *et al.* Temperature response of denitrification rate and greenhouse gas production in agricultural river marginal wetland soils [J]. *Geobiology*, 2013, **11** (3): 252-267.
- [40] Hinshaw S E, Dahlgren R A. Dissolved nitrous oxide concentrations and fluxes from the eutrophic San Joaquin River, California [J]. *Environmental Science & Technology*, 2013, **47** (3): 1313-1322.
- [41] Huang W M, Bi Y H, Hu Z Y, *et al.* Spatio-temporal variations of GHG emissions from surface water of Xiangxi River in Three Gorges Reservoir region, China [J]. *Ecological Engineering*, 2015, **83**: 28-32.
- [42] 张芳. 新乡市卫河水体N<sub>2</sub>O和CH<sub>4</sub>溶存浓度的时空分布及排放通量研究[D]. 新乡: 河南师范大学, 2016.  
Zhang F. Spatio-temporal dynamics of dissolved concentrations of N<sub>2</sub>O and CH<sub>4</sub> and their emission flux in Weihe River of Xinxiang [D]. Xinxiang: Henan Normal University, 2016.
- [43] Anthony S E, Prahl F G, Peterson T D. Methane dynamics in the Willamette River, Oregon [J]. *Limnology and Oceanography*, 2012, **57** (5): 1517-1530.
- [44] 彭文杰, 李强, 宋昂, 等. 五里峡水库初级生产力对水气界面二氧化碳和甲烷排放速率时空变化的影响 [J]. *环境科学*, 2018, **39** (6): 2673-2679.
- Peng W J, Li Q, Song A, *et al.* Spatial-temporal variations of CO<sub>2</sub> and CH<sub>4</sub> flux through a water-air interface under the effect of primary productivity in Wulixia Reservoir [J]. *Environmental Science*, 2018, **39** (6): 2673-2679.
- [45] Bodelier P L E, Laanbroek H J. Nitrogen as a regulatory factor of methane oxidation in soils and sediments [J]. *FEMS Microbiology Ecology*, 2004, **47** (3): 265-277.
- [46] Silvennoinen H, Liikanen A, Torssonen J, *et al.* Denitrification and N<sub>2</sub>O effluxes in the Bothnian Bay (northern Baltic Sea) river sediments as affected by temperature under different oxygen concentrations [J]. *Biogeochemistry*, 2008, **88** (1): 63-72.
- [47] Xing Y P, Xie P, Yang H, *et al.* Methane and carbon dioxide fluxes from a shallow hypereutrophic subtropical Lake in China [J]. *Atmospheric Environment*, 2005, **39** (30): 5532-5540.
- [48] Yang S S, Chen I C, Ching-Pao L, *et al.* Carbon dioxide and methane emissions from Tanswei River in Northern Taiwan [J]. *Atmospheric Pollution Research*, 2015, **6** (1): 52-61.
- [49] Chen H, Wu Y Y, Yuan X Z, *et al.* Methane emissions from newly created marshes in the drawdown area of the Three Gorges Reservoir [J]. *Journal of Geophysical Research*, 2009, **114** (D18), doi: 10.1029/2009JD012410.
- [50] Matveev A, Laurion I, Deshpande B N, *et al.* High methane emissions from thermokarst lakes in subarctic peatlands [J]. *Limnology and Oceanography*, 2016, **61** (S1): S150-S164.
- [51] Barnes J, Upstill-Goddard R C. N<sub>2</sub>O seasonal distributions and air-sea exchange in UK estuaries: implications for the tropospheric N<sub>2</sub>O source from European coastal waters [J]. *Journal of Geophysical Research*, 2011, **116** (G1), doi: 10.1029/2009JG001156.
- [52] Murray R H, Erler D V, Eyre B D. Nitrous oxide fluxes in estuarine environments: response to global change [J]. *Global Change Biology*, 2015, **21** (9): 3219-3245.

## CONTENTS

Emission Reduction Potential of Air Pollutants of Thermal Power Industry Based on Carbon Emission Reduction Target and Emission Standard Constraint Scenarios .....	LI Hui, SUN Xue-li, PANG Bo, <i>et al.</i> (5563)
Volatile Organic Compounds in the Vehicle Repairing Industry of China; Emission, Management, Purification, and Policy .....	WANG Hai-lin, YANG Tao, NIE Lei, <i>et al.</i> (5574)
Pollutant Emission Inventory of Biomass Combustion Sources in Xining City .....	GAO Yu-zong, JI Ya-qin, LIN Zi, <i>et al.</i> (5585)
Analysis of Air Quality and Influencing Factors in Sichuan Basin During the COVID-19 Outbreak .....	CHEN Jun-hui, FENG Xiao-qiong, LI Yuan, <i>et al.</i> (5594)
Estimation of PM <sub>2.5</sub> Concentration in Sichuan Province Based on Improved Linear Mixed Effect Model and Geo-intelligent Random Forest .....	WU Yu-hong, DU Ning, WANG Li, <i>et al.</i> (5602)
Characterization of Water-soluble Inorganic Ions in Atmospheric PM <sub>2.5</sub> in Chengdu During the Later Stage of the Air Pollution Prevention and Control Action Plan .....	LI Jia-qi, ZHANG Jun-ke, DONG Gui-ming, <i>et al.</i> (5616)
Characteristics of Chemical Composition and Source Apportionment of Atmospheric Fine Particulate Matter in Luoyang .....	SUN Jia-bin, DONG Zhe, LI Li-ping, <i>et al.</i> (5624)
Characteristics and Main Influencing Factors of Black Carbon Aerosol in Beijing .....	CAO Yang, AN Xin-xin, LIU Bao-xian, <i>et al.</i> (5633)
Chemical Characteristics and Source Apportionment with Temporal Refinement for VOCs in Tianjin Suburb in Summer .....	WANG Yi-xuan, LIU Bao-shuang, WU Jian-hui, <i>et al.</i> (5644)
Pollution Characteristics and Reactivity of Volatile Organic Compounds in Shenyang .....	DU Han-bing, WANG Nan, REN Wan-hui, <i>et al.</i> (5656)
Characteristics and Source Apportionment of Atmospheric SVOCs Around Typical Chemical Industry Zones .....	GE Xiang, WU Jian, GAO Song, <i>et al.</i> (5663)
Source Analysis and Health Risk Assessment of Toxic Volatile Organic Compounds in Nanjing in Summer and Winter .....	ZHANG Zi-jin, LIN Yu-chi, ZHANG Yu-xian, <i>et al.</i> (5673)
Emission Characteristics of Industrial VOCs Based on Emission Inventory and Field Test: A Case Zhengzhou High-tech Zone .....	REN He, LU Xuan, LIU Yang, <i>et al.</i> (5687)
VOCs Emission Characteristics of Water-based Architectural Coatings and the Influence on the Atmospheric Environment in China .....	GAO Mei-ping, WANG Hai-lin, LIU Wen-wen, <i>et al.</i> (5698)
WRF-Chem Simulations of the Impacts of Uncertainty in VOCs Emissions on Ozone Formation and Control Strategies .....	WANG Feng, WANG Jian-wei, YANG Ning, <i>et al.</i> (5713)
Spatial and Temporal Distribution of Ozone and Influencing Factors in Shandong Province .....	ZHANG Miao, DING Chun, LI Yan, <i>et al.</i> (5723)
Chemical Characteristics and Contaminant Sensitivity During the Typical Ozone Pollution Processes of Chengdu in 2020 .....	QIAN Jun, XU Chen-xi, CHEN Jun-hui, <i>et al.</i> (5736)
Development of an Emission Model for Oxygenated Volatile Organic Compounds from Gasoline Vehicles Based on the Online Measurement .....	HAO Yu-qi, YUAN Zi-bing, WANG Meng-lei, <i>et al.</i> (5747)
Dynamic Evolution Characteristics of Water Resources Utilization Efficiency in China Under the Constraint of Triple Attribute Carrying Capacity .....	ZHANG Kai, WU Feng-ping, CHENG Chang-chun (5757)
Prediction of Total Nitrogen Load in Yangtze River Basin .....	DING Zhao-wei, ZHENG Hua (5768)
Dynamic of Net Anthropogenic Nitrogen Inputs and Riverine Nitrogen Export in the Yangtze River Basin in 1980-2015 .....	YAO Meng-ya, HU Min-peng, CHEN Ding-jiang (5777)
Characteristics of Water Environment and Spatial-temporal Distribution of Nitrogen and Phosphorus Load in the Yellow River .....	HAN Xu, PAN Bao-zhu, CHEN Yue, <i>et al.</i> (5786)
Analysis of Nitrate Pollution Sources Under Different Rainfall Conditions Based on $\delta^{15}\text{N}$ and $\delta^{18}\text{O}$ Values .....	XING Zi-kang, YU Zhong-bo, YI Peng, <i>et al.</i> (5796)
Seasonal Variation Characteristics of Eukaryotic Microbial Community Composition in the Source Water Reservoir .....	ZHANG Hai-han, HUANG Xin, HUANG Ting-lin, <i>et al.</i> (5804)
Characteristics of Planktonic Bacteria Community Between Summer and Winter Surface Water in Dali Lake .....	LI Wen-bao, GUO Xin, ZHANG Bo-yao, <i>et al.</i> (5814)
Impacts of Wastewater Effluent Discharge on Bacteria Community and Water-soluble Organic Matter in Benthic Biofilm in Receiving River .....	WANG Yu-tao, FAN Chen-yang, ZHU Jin-xin, <i>et al.</i> (5826)
Pollution Characteristics and Risk Assessment of Typical POPs in Typical Drinking Water Sources in Wuhan .....	ZHANG Kun-feng, FU Qing, TU Xiang, <i>et al.</i> (5836)
Investigation on Fluoroquinolone Resistance Genes in the Intensive Aquaculture Area of Shatianhu Intensive Aquaculture Farm and Surrounding Waterbodies in Shanghai, China .....	XU Mu, LI Shi-hao, MA Jin, <i>et al.</i> (5848)
Influencing Factors of Nitrogen Removal from Low-Pollution Water by Aerated Constructed Wetland .....	LI Lin-lin, LI Rong-tao, KONG Wei-jing, <i>et al.</i> (5857)
Removal of Characteristic Pollutants in Livestock Wastewater by Horizontal Subsurface Flow Constructed Wetlands .....	ZHAO Wei, FAN Zeng-zeng, YANG Xin-ping (5865)
Improvement of Nitrogen and Phosphorus Adsorption and Stormwater Retention Capacity by Hardwood Biochar as an Additive Material in Filler Soil .....	MENG Yi-ke, WANG Yuan, WANG Chuan-yue, <i>et al.</i> (5876)
Removal of Ammonia Nitrogen from Polyvinyl Alcohol/Sodium Alginate Fixed Micron Zeolite Powder in Black and Smelly Rivers .....	WEI Chao, CHEN Tao, JIANG Qiao, <i>et al.</i> (5884)
Effect of Corn Stalk Biochar on the Adsorption of Aureomycin from Sizozem .....	NAN Zhi-jiang, JIANG Yu-feng, MAO Huan-huan, <i>et al.</i> (5896)
Microbial Degradation Potential and Transformation Pathway of Micropollutants in Sand Filters of Drinking Water Treatment Plants .....	ZHOU Jie, WANG Dong-lin, LIN Hui, <i>et al.</i> (5905)
Long-term Trends in Illicit Drugs Abuse in the City Assessed by Wastewater Analysis .....	CAO Yu, DONG Xiao-tang, SHAO Xue-ting, <i>et al.</i> (5912)
Stress and Post Effects of Azithromycin and Copper on Archaeal Community and ARGs in Activated Sludge .....	GAO Yu-xi, LI Xing, ZHAO Jun-ru, <i>et al.</i> (5921)
Spatial Distribution Characteristics and Source Analysis of Soil Heavy Metals at Typical Smelting Industry Sites .....	LI Qiang, CAO Ying, HE Lian-sheng, <i>et al.</i> (5930)
Distribution and Ecological Risk Assessment of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons and Heavy Metals in Coking Sites in China .....	WANG Yao-feng, HE Lian-sheng, JIANG Deng-ling, <i>et al.</i> (5938)
Spatial Variation and Risk Assessment of Heavy Metals in Soils of Main <i>Torreya grandis</i> Plantation Region in Zhejiang Province .....	WANG Min, DONG Jia-qi, BAI Long-long, <i>et al.</i> (5949)
Investigations on the Derivation of Safe Maize-Producing Threshold of Soil Cd Content and on Classification of Cd Contaminated Maize-Producing Areas in Northern China .....	GUAN Wei-dou, GUO Di, WANG Ping, <i>et al.</i> (5958)
Relationship Characteristics and Risk Assessment of Heavy Metal Contents in Soil Aggregates and in Crops Around a Typical Pb-Zn Mining Area .....	QIANG Yu, LI Ying-ju, LUO Qian, <i>et al.</i> (5967)
Heavy Metal Pollution and Cumulative Effect of Soil-crop Systems Around Typical Enterprises in Xiong'an New District .....	ZHOU Ya-long, WANG Qiao-lin, WANG Cheng-wen, <i>et al.</i> (5977)
Heavy Metal Accumulation Effect and Safe Planting Zoning of Soil and Rice in Tongren .....	ZHU Liang-liang, WU Yong, ZHOU Lang, <i>et al.</i> (5988)
Effect of Dry-Wet Alternation on the Immobilization of Arsenic in Red Soil by Cerium Manganese Modified Biochar .....	HUANG Xiao-ya, LI Lian-fang, ZHU Chang-xiong, <i>et al.</i> (5997)
Ammonium Nitrogen Fertilizer and Humic Acid Synergically Promote the Removal of Cd from Soil by <i>Tagetes patula</i> L. ....	WANG Bing-qing, YANG Qin, LI Hong-ying, <i>et al.</i> (6006)
Characteristics and Influencing Factors of the Dissolved Methane and Nitrous Oxide Concentrations and Emissions from a Rice Paddy Drainage River in China .....	WU Shuang, YANG Wei-tong, SHENG Yang-yue, <i>et al.</i> (6014)
Coupling Effects of Water-saving Irrigation and Controlled-release Fertilizer (CRF) Application on CH <sub>4</sub> and N <sub>2</sub> O Emission in Single Cropping Paddy Field .....	WANG Yong-ming, XU Yong-ji, JI Yang, <i>et al.</i> (6025)
Effects of Manure Combined Chemical Fertilizers on Soil N <sub>2</sub> O Emission and Microbial Characteristics of Wheat Crop System in Northwest Arid .....	WANG Kai, SHI Lei, MA Long, <i>et al.</i> (6038)
Effects of Different Types of Straw Returning on the Bacterial Community, Organic Carbon Mineralization and Maize Yield in Upland Red Soil .....	KONG Pei-jun, ZHENG Jie, LUAN Lu, <i>et al.</i> (6047)
Effects of Nitrogen and Phosphorus Additions on Soil Microorganisms in Saline-alkaline Grassland .....	YANG Jian-qiang, DIAO Hua-jie, HU Shu-ya, <i>et al.</i> (6058)
Effects of Combined Application of Biochar with Chemical Fertilizers and Organic Fertilizers on Nutrients and Phosphorus Forms in Purple Soils .....	XIANG Shu-jiang, YU Luo, XIONG Zi-yi, <i>et al.</i> (6067)
Effects of <i>Enteromorpha prolifera</i> Biochar and Wood Vinegar Co-application on Takyric Solonetz Improvement and Yield of Oil Sunflower .....	WANG Zheng, SUN Zhao-jun, Sameh El-Sawy, <i>et al.</i> (6078)