方知库
Eco-Environmental
Knowledge Web

环境科学

ENVIRONMENTAL SCIENCE

ISSN 0250-3301 CODEN HCKHDV

HUANJING KEXUE

大连海岸带夏、秋季大气沉降(微)塑料的赋存特征及其表面生物膜特性

涂晨, 田媛, 刘颖, 张馨宁, 骆永明

■ 主办 中国科学院生态环境研究中心

■ 出版 科学出版社

2022年4月

第43卷 第4期

Vol.43 No.4

目次

2015~2019年河南省PM_{2.5}时空特征与驱动因素分析 葛岂序, 刘岩, 杨洪, 郭恒亮 (1697)

郑州市大气PM_{2.5}中重金属的污染特征、来源及健康风险评估: 基于高分辨数据 曲光辉, 孙俊苹, 王申博, 姜楠, 李利萍, 刘洋, 陈红阳, 马双良 (1706)

宁波市春节期间水溶性离子污染来源和特征分析 杨梦蓉, 潘勇, 黄仲文, 张晶晶, 黄显军, 何萌萌, 肖航 (1716)

上海城区PM_{2.5}中有机组分及硝基芳香化合物分布特征 庄旻, 马英歌, 程玉璜, 周敏, 戴海夏, 黄成, 郁建珍, 朱书慧, 乔利平, 童张法 (1725)

南京北郊大气细粒子硝基苯酚类化合物污染特征与来源 陈美娟, 钱姿合, 顾陈娟, 张书萌, 刘智艺, 王新锋, 盖鑫磊 (1738)

春节与疫情管控期间珠三角VOCs的组成和来源变化 江明, 袁鸾, 温丽容, 张莹, 方洪波, 杨满芽, 李成柳 (1747)

重庆市主要工业源VOCs组分排放清单及其臭氧生成潜势 李陵, 李振亮, 方维凯, 王晓宸, 蒲茜, 汪凌韬, 袁睿, 张卫东, 翟崇治 (1756)

珠三角某石化园区VOCs排放特征及影响评价 张雪驰, 沙青娥, 陆梦华, 王毓铮, 饶思杰, 明桂英, 李勤勤, 吴淑珠, 郑君瑜 (1766)

基于隧道测试的机动车VOCs排放特征及源解析 刘鑫会, 朱仁成, 金博强, 梅慧, 祖雷, 尹沙沙, 张瑞芹, 胡京南 (1777)

基于多通道分布式VOCs在线监测质谱系统精准识别企业污染源 韦啸, 张永杰, 王沛涛, 洪燕, 夏瑞, 高伟 (1788)

基于SOA和O₃生成潜势的杭州市PM_{2.5}和O₃协同控制 林旭, 严仁婧, 金嘉佳, 许凯儿 (1799)

超低排放燃煤电厂中湿式电除尘器对可凝结颗粒物排放特性的影响 王鹏程, 袁勃, 梁胜文, 蒋鹭翔, 成海容, 许睿光, 虞晓晗, 王祖武 (1808)

西安市住宅室内空气污染物实测分析与叠加效应 王秀茹, 樊灏, 范洁, 沈振兴 (1814)

大连海岸带夏、秋季大气沉降(微)塑料的赋存特征及其表面生物膜特性 涂晨, 田媛, 刘颖, 张馨宁, 骆永明 (1821)

基于在线观测本地因子的长三角家禽养殖氨排放时空分布特征 高宗源, 徐昶, 倪远之, 沈根祥, 苗文亮, 王振旗, 付侃, 钱晓雍, 曹国民 (1829)

西宁市农牧源氨排放清单及其分布特征 杨益, 姬亚芹, 高玉宗, 林孜, 林宇, 马妍 (1844)

“三水”统筹视角下京津冀地区城市水生态环境保护策略分析 廖雅, 侯晓姝, 任晓红 (1853)

中国居民饮用水镉暴露非致癌风险的年龄分层权重 秦宁, 阿依博塔·吐尔逊别克, 刘运炜, 侯荣, 徐翔宇, 官家丞, 段小丽 (1863)

新疆博尔塔拉河流域平原区地表水与地下水水化学特征及转化关系 雷米, 周金龙, 张杰, 陈亚鹏, 滕杰, 吴彤, 徐东升, 孙英, 纪媛媛 (1873)

珠江源区小黄泥河流域地表水水化学组成特征及控制因素 涂春霖, 尹林虎, 和成忠, 寸得欣, 马一奇, 令狐昌卫 (1885)

河套灌区浅层地下水NO₃⁻-N时空变化及驱动因素 袁宏颖, 杨树青, 张万锋, 王波, 韩天凯, 丁雪华 (1898)

盐城地区地下水溶质来源及其成因分析 王建, 张华兵, 许君利, 李永山 (1908)

白洋淀不同水体氢氧同位素特征及其指示意义 王雨山, 尹德超, 祁晓凡, 徐蓉桢 (1920)

东部地区大型湖库有色可溶性有机物来源组成及潜在驱动因素 陈丽丽, 肖启涛, 俞晓琴, 陈慧敏, 周蕾, 周永强, 韩龙飞 (1930)

松花湖沉积物溶解性有机质荧光光谱特性 程云轩, 赵可, 张越, 张渝婷, 焦立新 (1941)

区域土地利用类型对水源水中溶解性有机物丰度和荧光组分的影响 高静, 蒲晓, 张玉虎, 程红光, 张瑞宁, 刘训良, 董雪, 许新瑶 (1950)

南水北调东线枢纽湖泊表层水体甲烷释放特征及潜在影响因素 朱俊羽, 彭凯, 李宇阳, 俞晓琴, 陈慧敏, 周蕾, 周永强, 丁艳青 (1958)

千岛湖水体中邻苯二甲酸酯(PAEs)的分布特征及健康风险评估 弥启欣, 国晓春, 卢少勇, 邓义祥, 卢洪斌, 李响, 刘晓贺, 陈金明 (1966)

蓝藻越冬期湖湾沉积物磷吸附特征和释放风险 靳郑海, 涂成琪, 王书航, 陈俊伊, 卢昶雨, 黄威 (1976)

基于植物多样性的北京市湿地生态质量评价 李果, 孙光, 赵梓伊, 刘冬梅, 肖能文, 赵志平, 罗遵兰 (1988)

小清河专项治理对莱州湾环境和浮游植物的影响 张晶晶, 王玉珏, 李凡, 刘珂, 王英, 于洋, 高彦洁, 肖晓彤, 吕振波 (1997)

不同曝气方式对人工湿地细菌多样性、代谢活性及功能的影响 王飞鹏, 黄亚玲, 张瑞瑞, 岳琛, 李飞翔, 张超月, 穆景利 (2007)

南宁市老城区降雨径流溯源及污染特征分析 岳桢钰, 李一平, 周玉璇, 郑可, 于珊, 伍彬 (2018)

老化作用对微塑料吸附镉的影响及其机制 王俊杰, 陈晓晨, 李权达, 金成俊, 黄艺佳, 范露健, 张剑宇, 刘宪华, 徐开钦 (2030)

碳化泡沫负载Co₃O₄活化过硫酸盐降解罗丹明B 王渊源, 阎鑫, 艾涛, 李卓, 牛艳辉 (2039)

低总氮浓度下Fe²⁺促进ANAMMOX生物膜反应器脱氮 郑旭文, 秦嘉富, 汪晓军, 陈浩川, 朱梓静, 陈振国 (2047)

污水管道增强通风作用下氧气气液传质特性 杨洲, 张志强, 杨静, 卢金锁 (2055)

长江经济带工业区土壤重金属污染特征与评价 张义, 周心劝, 曾晓辉, 冯娇, 刘玉荣 (2062)

中国北方典型设施菜地土壤稀土元素分布特征及环境意义 王祖伟, 刘雅明, 王子璐, 苗钰婷 (2071)

贵州省典型铅锌矿区潜在有毒元素(PTEs)物源甄别、生态风险评估及控制因素 张富贵, 彭敏, 贺灵, 马宏宏 (2081)

地质高背景与污染叠加区不同土地利用方式下土壤重金属分布特征 王雪雯, 刘鸿雁, 顾小凤, 涂宇, 于恩江, 吴攀 (2094)

矿区周边农田土壤重金属分布特征及污染评价 王海洋, 韩玲, 谢丹妮, 胡慧娟, 刘志恒, 王祯 (2104)

农田-泥炭藓系统重金属富集特征与生态风险评价 朱迪, 张朝晖, 王智慧 (2115)

安顺市土壤pH空间变异及影响因素分析 陈清霞, 陆晓辉, 涂成龙 (2124)

方解石基组配钝化剂与低积累玉米协同修复效果 任超, 任或仲, 李竞天, 王浩, 朱利文, 肖建辉, 赵瑞, 杜倩倩 (2133)

伯克氏菌Y4对水稻幼苗损伤和镉吸收的影响 张雅荟, 刘月敏, 王常荣, 刘雅萍, 庞杰, 黄永春, 刘仲齐, 张长波 (2142)

我国长江中下游平原典型稻田含碳温室气体通量变化特性 刘硕, 甄晓杰, 刘钢, 冯兆忠 (2151)

地膜覆盖和生物炭添加对菜地N₂O排放的影响 胡剑, 江长胜, 陈鑫童, 熊艳芳, 郝庆菊 (2163)

化肥运筹对稻田CH₄和N₂O排放的影响 郑梅群, 刘娟, 姜培坤, 吴家森, 李永夫, 李松果 (2171)

松花江下游滨岸带典型植被根际土壤细菌群落结构与功能多样性 王露莹, 孙慧珍, 杨雪 (2182)

棉秆还田对咸水滴灌棉田土壤酶活性和细菌群落结构多样性的影响 周永学, 陈静, 李远, 侯振安, 阎伟 (2192)

pH对水稻土全程氨氧化细菌丰度和群落结构组成影响 马瑞, 赵永鹏, 王智慧, 蒋先军 (2204)

生物炭对紫色土坡耕地侵蚀性耕层土壤有机碳的影响 张健乐, 曾小英, 史东梅, 倪书辉, 夏蕊, 王荣浩 (2209)

有机肥替代化肥对旱地黄壤有机碳矿化及活性有机碳的影响 林仕芳, 王小利, 段建军, 皮义均, 郭琴波, 龙大勇, 徐彬, 杨宏伟 (2219)

九龙江河口潮滩湿地土壤有机碳储量、活性组分及稳定性沿淹水梯度的分布特征 黄小清, 全川, 罗敏, 杨洋, 谭凤凤, 潘哲妍, 刘娜, 陈欣, 黄佳芳 (2226)

碳中和战略下煤矿区生态碳汇体系构建及功能提升展望 刘祥宏, 阎永军, 刘伟, 黄占斌 (2237)

《环境科学》征订启事(1929) 《环境科学》征稿简则(1975) 信息(1996, 2029, 2080)

南水北调东线枢纽湖泊表层水体甲烷释放特征及潜在影响因素

朱俊羽^{1,2}, 彭凯^{2,3}, 李宇阳², 俞晓琴², 陈慧敏², 周蕾^{2,3}, 周永强^{2,3}, 丁艳青^{1*}

(1. 中国矿业大学资源与地球科学学院, 徐州 221116; 2. 中国科学院南京地理与湖泊研究所, 湖泊与环境国家重点实验室, 南京 210008; 3. 中国科学院大学, 北京 100049)

摘要: 湖泊是天然有机质生物地球化学循环和甲烷(CH₄)排放的重要场所。观测南水北调东线枢纽湖泊骆马湖表层水体 CH₄ 溶存浓度和通量特征, 并分析影响 CH₄ 释放的潜在因素。结果表明, 骆马湖是 CH₄ 释放的热点区域, 表层水 CH₄ 溶存浓度均值为(0.12 ± 0.09) μmol·L⁻¹, 通量均值为(21.0 ± 18.5) mmol·(m²·d)⁻¹, 总体表现为: 丰水期 > 枯水期 > 平水期 (P < 0.05), 空间上呈现西北高、东南低的趋势, 年内 CH₄ 通量变化受水温和水文条件的协调影响; 外源有机质输入 (DOC 和 CDOM) 为骆马湖 CH₄ 的产生提供了碳源, 平行因子分析法得到水体 4 种荧光组分, 类腐殖质 C1 与 C3、类色氨酸 C2 和类酪氨酸 C4, 其中陆源类腐殖质的输入和累积显著促进了 CH₄ 的生产释放 (P < 0.01), 同时, 叶绿素 a 与 CH₄ 通量无相关性, 意味着藻类降解的有机质并不是影响 CH₄ 释放的直接因素; 骆马湖受人类活动影响深刻, 北部入湖区氮、磷等营养负荷的输入不但提高了水体的生产力, 加剧湖泊富营养化, 还对水体 CH₄ 的产生和释放有调控作用。研究结果显示环境因子、DOM 组成来源和营养水平等均是影响骆马湖水体 CH₄ 释放的重要因素, 还需要进行长期连续观测以便全面评估各类因子对 CH₄ 释放的影响, 进而可以采取相应措施有效减少 CH₄ 等温室气体的排放。

关键词: 骆马湖; 甲烷; 平行因子分析 (PARAFAC); 溶解性有机质 (DOM); 影响因素

中图分类号: X144; X524 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2022)04-1958-08 DOI: 10.13227/j.hjxx.202107052

Emission of Methane from a Key Lake in the Eastern Route of the South-to-North Water Transfer Project and the Corresponding Driving Factors

ZHU Jun-yu^{1,2}, PENG Kai^{2,3}, LI Yu-yang², YU Xiao-qin², CHEN Hui-min², ZHOU Lei^{2,3}, ZHOU Yong-qiang^{2,3}, DING Yan-qing^{1*}

(1. School of Resources and Geosciences, China University of Mining and Technology, Xuzhou 221116, China; 2. State Key Laboratory of Lake Science and Environment, Nanjing Institute of Geography and Limnology, Chinese Academy of Sciences, Nanjing 210008, China; 3. University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China)

Abstract: Lakes play an important role in the biogeochemical cycling of dissolved organic matter (DOM) and the emission of methane (CH₄). We investigated the concentration and effluxes of CH₄ and then analyzed the corresponding driving factors in Lake Luoma, a key lake along the South-to-North Water Transfer Project. Our results indicated that Lake Luoma was a hotspot of CH₄ emissions with an annual mean concentration and efflux of (0.12 ± 0.09) μmol·L⁻¹ and (21.0 ± 18.5) mmol·(m²·d)⁻¹, respectively. We found higher mean CH₄ levels in the wet season than those in the dry season and further higher levels than those in the wet-to-dry transition season. Spatially, the CH₄ efflux was higher in the northwest inflowing regions and lower in the southeast outflow regions. The variability in annual CH₄ efflux was affected by a combination of water temperature and hydrological conditions. Terrestrial input of dissolved organic carbon (DOC) and chromophoric DOM (CDOM) had fueled the production of CH₄ by providing necessary carbon substrates, and four PARAFAC DOM components were identified including a microbial humic-like C1, a tryptophan-like C2, a terrestrial humic-like C3, and a tyrosine-like C4. The CH₄ efflux from the lake was significantly promoted by the input and accumulation of terrestrial humic-like components, and Chl-a had no correlation with CH₄ efflux, suggesting that algal degradation was not directly fueling the emission of CH₄. Lake Luoma had been significantly disturbed by human activities, and terrestrial input of nutrient loading (TN and TP) into the lake not only improved the productivity and trophic level of the water body but also enhanced the production and release of CH₄ from the surface water. We concluded that the CH₄ emissions in Lake Luoma can be influenced by the combination of environmental factors, CDOM composition, and nutrient level. Long-term observation is needed for better evaluation of the driving factors in fueling the emission of CH₄ so as to effectively reduce the emissions of CH₄ and other greenhouse gases by taking corresponding countermeasures.

Key words: Lake Luoma; methane; parallel factor analysis (PARAFAC); dissolved organic matter (DOM); influence factor

内陆水域是大气甲烷(CH₄)的一个重要排放源, 尽管湖库等表面积仅占地球表面积的 3.7%^[1], 却贡献了全球人为和自然来源 CH₄ 排放总量的 53%^[2]. 淡水系统 CH₄ 产生和释放往往受到水温、底质和溶氧水平等多种因素和复杂的生物地球化学过程的影响, 以上影响因素使得水中 CH₄ 释放过程不易被模拟^[3]. 湖泊中微生物产 CH₄ 过程需要利用到 3 种类型细菌: 水解细菌、产氢产乙酸细

菌和产甲烷细菌, 有机碳经各种途径进入湖泊生态系统, 部分有机碳在厌氧状态下被微生物水解为二氧化碳、氢气和乙酸, 产甲烷菌利用氢气或乙酸形成 CH₄^[4,5]. 近年来湖泊富营养化现象日益普遍, 营

收稿日期: 2021-07-06; 修订日期: 2021-09-18

基金项目: 国家自然科学基金项目(41501518)

作者简介: 朱俊羽(1996~), 男, 硕士研究生, 主要研究方向为湖泊温室气体释放, E-mail: zhujunyu6@126.com

* 通信作者, E-mail: yqding7@163.com

养物质的累积协同气候变暖增加了藻华暴发的频率, 初级生产力的提高也会提升湖泊对全球 CH_4 排放的贡献份额^[6].

河流和湖泊等水体是 CH_4 等温室气体释放的热点区域. Bastviken 等^[7] 研究北美及亚欧大陆 73 个湖泊的 CH_4 释放特征, 认为内陆开敞水域 CH_4 排放量一定程度上是可预测的; Davidson 等^[8] 在浅水实验研究中发现 CH_4 扩散通量对温度变化较为敏感, 而 CH_4 冒泡则受水体营养水平与温度差异的协同作用; DelSontro 等^[3] 的研究发现温度与系统生产力的相互作用能够调节湖泊 CH_4 扩散通量; Günthel 等^[9] 的研究证实了 CH_4 可以发生在有氧水体环境中, 这可能与水体有机质的生物可利用水平有关, 推测未来全球 CH_4 预算评估和气候变化有必要进一步区分有氧源和厌氧源 CH_4 的相对贡献率.

浅水湖泊是全球最常见的湖泊类型, 对环境变化敏感且易受人类活动影响, 使得水体 CH_4 的产生和释放可能被低估^[8]. 长期研究表明, 内陆水域中溶解性有机质 (dissolved organic matter, DOM) 在地球化学演变中起到重要作用, 其生物、化学特性很大程度上取决于物质来源和组分特征^[10], 同时也是湖泊生态系统中重要的碳库^[11]. 荀凡等^[12] 在巢湖围隔打捞实验过程中发现藻源性 DOM 的累积会形成水下厌氧环境, 从而显著促进水体 CH_4 释放; Zhou 等^[5] 在研究太湖有色可溶性有机质 (chromophoric DOM, CDOM) 荧光特征时, 认为外源 CDOM 的输入和降解会提高河口区 CH_4 的溶存浓度; Repeta 等^[13] 的研究发现水面含氧层 CH_4 过饱和, 可能是水体 DOM 微生物转化的结果; Rasilo 等^[14] 在大规模研究 Québec 地区湖泊的 CH_4 释放特征后, 观测到夏季湖泊 CH_4 扩散通量与 CDOM 浓度负相关.

综上所述, 湖泊 CH_4 的产生和释放不仅受环境因子影响, 可能还与水体 DOM 有潜在关联. 因此, 本文结合骆马湖表层水体 CH_4 变化、DOM 来源组成和环境因子, 探讨水-气界面 CH_4 动态变化的潜在影响因素, 以期对浅水湖泊 CH_4 排放预算估计提供数据支撑, 也对明晰浅水湖泊碳中和具有一定的参考意义.

1 材料与方法

1.1 样品采集与处理

骆马湖为浅水型湖泊, 平均水深 3.3 m, 是南水北调工程中的重要枢纽湖泊^[15]. 骆马湖周边河流纵横交错, 由北到南有中运河、老沂河、新沂河和总六塘河等. 近年来, 骆马湖流域城市化不断发展, 人类活动增强导致大量营养物质输入, 对湖泊的生态

环境造成极大的影响, 也对淮河流域经济带的可持续性发展以及南水北调的水质安全产生威胁^[16]. 本研究在全湖均匀布置 10 个样点 (图 1), 于 2017 年 12 月, 2018 年的 4、6、7、9 月和 2019 年 1 月采集骆马湖表层水样, 测定 CH_4 溶存浓度和通量并记录相关环境因子.

图 1 骆马湖采样点分布示意

Fig. 1 Location of sampling sites in Lake Luoma

采集的水样首先通过高温灼烧的 Whatman GF/F 0.7 μm 孔径滤膜, 将所得滤膜置于冰箱中冷冻 48 h 以上, 使用 90% 的热乙醇提取并借助岛津公司生产的 UV-2550 型号的分光光度计测定 665 nm 和 775 nm 处吸光度再经换算得到水体叶绿素 a (Chl-a) 浓度^[17]; 滤后水经日本岛津总有机碳分析仪 (TOC-L) 在 680°C 高温灼烧测定溶解性有机碳 (DOC) 浓度^[18]; 水体总氮 (TN) 浓度采用碱性过硫酸钾消毒-紫外分光光度法测定^[16]; 总磷 (TP) 浓度采用过硫酸钾消解-钼锑抗显色分光光度法^[19] 测定; 使用便携式风速仪测定原位风速; 水温 (T) 等水质参数由 Yellow Springs Instruments (YSI) EXO2 水质分析仪原位测定; 水体透明度 (SD) 使用塞氏盘测定.

1.2 表层水体甲烷采集及通量计算

本研究采用动态顶空平衡法配合气相色谱仪分析测得 CH_4 浓度^[20]. 野外采样时, 准备 61 mL 干燥棕色玻璃瓶, 添加约 2 g 氯化钾 (KCl) 粉末对玻璃瓶预处理以抑制微生物活性^[21,22], 选择较为平稳的水面, 于水下 0.2 ~ 0.5 m 处装满水样, 原位静置玻璃瓶待 KCl 粉末充分溶解, 并排除瓶内气泡, 接着在水中用丁基胶塞密封瓶口, 用铝塑盖和压盖钳将其牢固以避免气泡再次混入. 实验室内用高纯氮气 (纯度 99.999%) 顶空 10 mL 气体, 剧烈振荡一段时间后, 用带有三通阀的针筒抽取顶空气体注入气相色谱仪 (Agilent-7890B, USA) 测定 CH_4 浓度. 顶空平衡法计算溶解 CH_4 原始浓度 ($c_w, \mu\text{mol} \cdot \text{L}^{-1}$) 主要依据道尔顿分压定律和亨利定律, 计算公式如下^[23,24]:

$$c_w = c_g \cdot (V_g/V_l) + c_1 \quad (1)$$

$$c_1 = f_g \times a \quad (2)$$

$$\ln a = A_1 + A_2(100/T) + A_3 \ln(T/100) + A_4(T/100) + S[B_1 + B_2(T/100) + B_3(T/100)^2] \quad (3)$$

式中, c_w 为水样原始 CH_4 浓度, $\mu\text{mol}\cdot\text{L}^{-1}$; c_g 为平衡后气相中 CH_4 浓度, 由气相色谱仪测定, $\mu\text{mol}\cdot\text{L}^{-1}$; V_g 和 V_l 分别为顶空平衡器内气相和液相的体积, L; c_1 为顶空平衡后剩余液相中 CH_4 的溶解浓度, $\mu\text{mol}\cdot\text{L}^{-1}$; f_g 为 CH_4 的摩尔分数 ($\mu\text{mol}\cdot\text{mol}^{-1}$); a 为布什系数; S 为盐度, ‰; A_1 、 A_2 、 A_3 、 A_4 、 B_1 、 B_2 和 B_3 为常数, 具体值见文献 [24].

利用传递系数法计算水-气界面 CH_4 气体的扩散通量^[25]:

$$F = k(c_w - c_{eq}) \quad (4)$$

式中, F 为水气界面 CH_4 通量, $\text{mmol}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{d})^{-1}$; k 为气体交换系数, 一般通过风速进行参数化; c_w 为表层水体所测 CH_4 气体浓度, $\mu\text{mol}\cdot\text{L}^{-1}$; c_{eq} 为测定原位状态下采集水-气界面平衡时的大气 CH_4 浓度, $\mu\text{mol}\cdot\text{L}^{-1}$. 传递系数 k 值的计算使用以风速为主要权重的模型方程^[26]:

$$k = k_{600} \cdot (S_c/600)^{-n} \quad (5)$$

式中, k_{600} 为施密特数为 600 时的 k 值, 是 CH_4 在 20℃ 时的归一化施密特值; n 通过已参数化水面上 10 m 处的风速判断^[25], 且风速 $< 3.7 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ 时, $n = 2/3$, 风速 $\geq 3.7 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ 时, 则 $n = 1/2$; S_c 是施密特数(无量纲).

1.3 DOM 光谱测定及平行因子分析

水样经 0.22 μm Millipore 滤膜过滤, CDOM 吸收光谱通过 Shimadzu UV-2550 UV-Vis 分光光度计进行光谱扫描, 扫描波长范围为 200 ~ 800 nm, 间隔为 1 nm, 得到波长范围内 CDOM 的吸光度, 减去 700 nm 处吸光度对基线进行校正, 进而所有吸光度乘以 2.303/ r 换算得到吸收系数, r 为比色皿路径长度, 单位为 m. 吸收系数 a_{350} 表征 CDOM 相对浓度^[27]. 使用 Hitachi F-7000 荧光光度计测得水体 CDOM 三维荧光光谱 (excitation-emission matrices, EEMs), 激发和发射波长分别设定在 230 ~ 450 nm (5 nm 间隔) 和 250 ~ 550 nm (1 nm 间隔), 以每日 Milli-Q 为背景值校正拉曼散射造成的误差, 通过 drEEM 工具包插值方法消除瑞利散射及内滤波效应. 采用 MATLAB R2019b 中 drEEM (ver. 0.2.0) 工具箱开展平行因子分析 (parallel factor analysis, PARAFAC). 腐殖化指数

(humification index, HIX) 和内源活性指数 (biological index, BIX) 分别为特定波长波段比值, HIX 越大 DOM 腐化程度越高^[28], BIX 代表自生有机质的贡献^[28]; $I_c:I_T$ 是荧光积分中 C 峰与 T 峰的比值, 可作为外源和内源对 DOM 贡献的示踪剂^[29].

1.4 数据处理及方法

使用 Excel 2019, R-studio 1.4.1717 (R 4.0.2) 软件对数据进行汇总, t 检验分析 (t -test), 方差分析 (ANOVA) 和相关性检验; 采用 MATLAB R2019b 中 drEEM 工具箱开展平行因子分析建模; 通过 ArcGIS 10.2.1 软件进行空间 IDW 插值绘图; 通过 R-studio ggplot2 包绘制相关图件.

2 结果与分析

2.1 水文情形划分

骆马湖从属于淮河流域, 沂河是骆马湖主要入湖河流. 根据水利部淮河水利委员会 (<http://www.hrc.gov.cn>) 多年水势通报 (2017 ~ 2021 年) 可知, 淮河流域丰水期一般为 5 ~ 8 月, 枯水期一般为 11 ~ 2 月, 其余为平水期, 再结合沂河观测站 (临沂站) 的流量信息, 将本研究中 1 月和 12 月划分为枯水期, 6 月和 7 月划为丰水期, 4 月和 9 月划为平水期.

2.2 骆马湖水体理化特征

6 次采样水温变化范围为 2.7 ~ 31.2℃; 水体 SD 范围在 35 ~ 260 cm 之间, 表现为: 平水期 > 枯水期 > 丰水期 ($P < 0.01$, ANOVA); $\rho(\text{TN})$ 和 $\rho(\text{TP})$ 变化范围分别为 0.9 ~ 5.0 $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ [(2.1 ± 0.9) $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$] (均值 ± 标准差) 和 0.02 ~ 0.15 $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ [(0.05 ± 0.9) $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$] (均值 ± 标准差), 不同水文期 $\rho(\text{TN})$ 和 $\rho(\text{TP})$ 均值差异显著 ($P < 0.01$, t -test), 入湖区和出湖区 $\rho(\text{TN})$ 差异不显著 ($P = 0.1$, t -test), 而 $\rho(\text{TP})$ 均值入湖区显著高于出湖区 ($P < 0.05$, t -test); $\rho(\text{Chl-a})$ 变化范围为 2.3 ~ 51.2 $\mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$ [(17.1 ± 12.6) $\mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$] (均值 ± 标准差), 表现为: 丰水期 > 平水期 > 枯水期 ($P < 0.05$, ANOVA), 入湖区显著低于出湖区 ($P < 0.05$); $\rho(\text{DOC})$ 不同水文期和不同湖区均未呈现出显著的差异性 ($P > 0.05$); 基于 SD、TN、TP 和 Chl-a 值计算综合营养指数 (TLI)^[30] 得出骆马湖全湖营养指数为 54.5 ± 5.9, 其中入湖区和出湖区 TLI 指数均值分别为 56 和 53, 说明采样时骆马湖水体为轻度富营养状态 (图 2).

2.3 表层水体 CDOM 变化特征

EEMs-PARAFAC 分析 (图 3) 得到了 4 种荧光

图2 骆马湖表层水体环境因子不同水文情景的湖区对比

Fig. 2 Comparison of environmental variables under different hydrological scenarios and regions of Lake Luoma

组分: C1、C2、C3 和 C4 (表 1); HIX 均值为 1.5 ± 0.4 , 且 $HIX > 1$ 的比例达到了 90%; BIX 值范围在 0.9 ~ 1.2 之间; a_{350} 变幅在 $1.5 \sim 5.0 \text{ m}^{-1}$, 与 DOC 显著正相关 ($P < 0.01$); $I_C : I_T$ 范围为 2.28 ~ 6.58, 反映骆马湖外源腐殖质输入对 DOM 贡献更大. 此外, TLI 与组分 C1 ($r = 0.56, P < 0.01$) 和 C3 ($r = 0.71, P < 0.01$) 显著正相关, 说明营养水平高的水体受外源输入影响大, 因而上述水体 CDOM 腐殖化水平较高.

表 1 平行因子分析 4 种荧光成分光谱特征及描述

Table 1 Spectral characteristics and descriptions of 4 fluorescence components identified by PARAFAC analyses

组分	E_x/nm	E_m/nm	荧光峰	描述
C1	240	396	A 峰	类腐殖质和富里酸 ^[19]
C2	230/285	340	T 峰	类色氨酸, 植物或土壤自源产生的蛋白质 ^[31]
C3	260/350	452	C 峰	陆源类腐殖质, 有较高的相对分子量及芳香性 ^[10, 18]
C4	275	316	B 峰	类酪氨酸, 微生物降解产生 ^[16]

2.4 表层水体 CH₄ 变化和相关性分析

骆马湖表层水 CH₄ 溶存浓度范围为 $0.01 \sim 0.5 \mu\text{mol} \cdot \text{L}^{-1}$, 平均值为 $(0.12 \pm 0.09) \mu\text{mol} \cdot \text{L}^{-1}$, 水-气界面 CH₄ 通量值为 $-1.8 \sim 92.7 \text{ mmol} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{d})^{-1}$, 平均值为 $(21.0 \pm 18.5) \text{ mmol} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{d})^{-1}$; 时间上, 6 次采样测定的 CH₄ 溶存浓度差异显著 ($P < 0.01$), 而 CH₄ 通量差异不显著 ($P = 0.12$), 且不同水文期的 CH₄ 浓度和通量均表现为: 丰水期 > 枯水期 > 平水期 ($P < 0.05$, ANOVA); 空间上, CH₄ 通量的高值主要出现在入湖区, 出湖区相对较低, 总体而言骆马湖表层水体有明显 CH₄ 过饱和现象, 即湖体为 CH₄ 的源 (图 4).

由图 5 可知, CH₄ 通量与 DOC、TP、TLI、C1、C3、 a_{350} 和 $I_C : I_T$ 呈正相关关系, 与 Chl-a 无显著关系; 由表 2 知枯水期各参数与 CH₄ 通量之间均未呈现显著关系; 平水期除 Chl-a、C2 和 C4 外, 其它参数与 CH₄ 通量有显著正相关关系; 丰水期 DOC、TN、C3、C4 和 a_{350} 与 CH₄ 通量显著相关.

图 3 PARAFAC 得到 4 种组分的荧光组分激发发射荧光图谱及对半检验结果

Fig. 3 Spectral shapes of four PARAFAC components and the four components model were validated using the split half validation procedure

图 4 表层水体甲烷浓度及通量时空分布

Fig. 4 Spatial and temporal distribution of CH₄ concentration and flux in the surface of Lake Luoma

图 5 甲烷通量与 DOC、TP、Chl-a、TLI、C1、C3、 a_{350} 和 $I_C:I_T$ 的关系

Fig. 5 Relationship between FCH₄ and DOC, TP, Chl-a, TLI, C1, C3, a_{350} , and $I_C:I_T$

表 2 不同水文情景下 CH₄ 通量与各参数关系¹⁾

Table 2 Relationship between CH₄ flux and parameters under different hydrological scenarios

时期	DOC	TN	TP	Chl-a	TLI	C1	C2	C3	C4	a_{350}	$I_C:I_T$
枯水期	0.05	0.25	0.21	0.08	0.17	0.16	0.11	0.05	0.01	0.20	-0.01
平水期	0.50*	0.77***	0.61**	0.11	0.48**	0.55*	-0.01	0.57**	-0.37	0.55*	0.64**
丰水期	0.44*	0.67**	0.38	-0.25	-0.21	0.28	0.42	0.12*	0.45*	0.50*	-0.19

1) *** 表示 $P < 0.001$, ** 表示 $P < 0.01$, * 表示 $P < 0.05$

3 讨论

3.1 骆马湖表层水体 CH₄ 时空变化特征

湖泊是全球碳循环的重要部分,对气候变化敏感,与水库和河流等相比,湖泊水体 CH₄ 排放具有更强的时空变化^[24]. 由图 5 可知,骆马湖表层水体 CH₄ 溶存浓度和通量的年内变化趋势与温度大体一致,说明 CH₄ 的生产释放受到温度的驱动影响^[32].

骆马湖处于亚热带季风气候区,6 月和 7 月丰水期水温上升,上游河流径流增强,入湖流量的增加不但没有对 CH₄ 产生明显的稀释影响,反而促进了入湖区 CH₄ 的生产释放,有研究认为,水温的不断升高,需要更大的降雨径流量才能够取代水温成为水体 CH₄ 的主要控制因子^[33]. 平水期 4 月和 9 月水温相近(约 21℃),前者是由枯水期转变为平水期,后者是由丰水期转变为平水期,不同水文期的转变使得

CH₄ 溶存浓度和排放量呈现明显差异特征, 这进一步证实了温度和径流条件对 CH₄ 的协调影响是不可忽视的. 空间上而言, 虽然骆马湖同时期各样点水温无明显差异, 但 CH₄ 溶存浓度和通量总表现由入湖区向出湖区递减的趋势. Hofmann^[34] 的研究发现中、大型湖泊水体中 CH₄ 往往表现出明显的空间异质性, 认为有机碳含量也是控制 CH₄ 产生率的重要因素. 由结果知, CH₄ 排放与 DOC 和 α_{350} 显著正相关, 说明有机质输入丰富了湖区碳基质, 经微生物降解矿化, 增加了水体呼吸, 为甲烷菌生产 CH₄ 提供了条件^[5], 而不易分解的那部分碳向下游运输, 碳基质的减少降低了 CH₄ 的生产效率^[35]. 综上所述, 水温、水文变化和碳基质均会对骆马湖 CH₄ 的时空变化产生影响.

3.2 表层水体有机质来源组成对 CH₄ 的影响

本文观测结果发现骆马湖外源 CDOM 的输入累积能够提高表层水体 CH₄ 溶解水平和释放通量, 一定程度上阐明了 DOM 是 CH₄ 的重要碳源. 近年来类似浅水湖泊(太湖和巢湖)温室气体释放的调查研究发现^[5, 36, 37], 外源有机质的输入累积是控制河流、湖泊 CH₄ 生产释放的重要因素. 本研究骆马湖水体腐殖化程度较高, 相较类蛋白组分而言, CH₄ 通量与类腐殖质 C1 和 C3 关系更为密切, 能够有意义地解释 CH₄ 通量的变异性. 平行因子结果显示 C2 和 C3 几乎对应了所有 T 峰和 C 峰的荧光强度, $I_C:I_T$ 指示了骆马湖水体 DOM 有较高的陆源腐殖质信号, CH₄ 通量与 $I_C:I_T$ 的密切关系也反映了陆源类腐殖质对 CH₄ 通量有更大的贡献. 值得注意的是, 水体类腐殖质与 CH₄ 的相关性不一定是因果关系, 因为沉积物中可能会产生一定含量的 CH₄^[38], 所以还需要进一步研究沉积物孔隙水中 DOM 和 CH₄ 释放的关联.

有研究认为, Chl-a 是水体营养水平对 CH₄ 通量影响的良好指标, 因为藻源性有机质有较高的生物不稳定性, 其降解可能会促使产甲烷菌生产释放 CH₄^[39]. 骆马湖北部营养负荷输入影响严重, 但 Chl-a 与 CH₄ 通量之间无明显相关性, 说明藻类降解可能不是驱动骆马湖表层水体 CH₄ 释放的主要因素, 不过也不排除 Chl-a 对 CH₄ 通量的影响可能被河流携带的外源输入影响所掩盖^[40]. 骆马湖流域水系发达, 湖水滞留时间较短, 藻类等浮游植物易受水流冲刷影响^[41], 造成出湖区 Chl-a 浓度高于入湖区, 同时藻类聚集容易增加水体光合作用速率使植被叶片周围生成大量溶氧^[41], 空气中的氧气亦能通过植物维管束进入水体, 加剧了 CH₄ 产生和释放过程中的氧化^[12], 这也有可能是导致出湖区 CH₄ 偏低的原因.

3.3 骆马湖富营养化状态对 CH₄ 的影响

骆马湖表层水体 CH₄ 通量与 TLI 显著正相关, 显示湖泊营养水平对 CH₄ 释放有潜在的调控能力. 人类活动中城市化、工业化等进程向湖内排放各类污水, 致使大量氮和磷等营养物质进入湖水中, 增加湖泊水体氧气消耗, 降低 CH₄ 被氧化为 CO₂ 的能力^[11], 反映人类活动深刻影响了水体 CH₄ 的生产释放^[41]. 骆马湖上游沂河和京杭运河携带大量营养物质进入湖泊, 是导致骆马湖富营养化的重要原因^[42]. 丰水期骆马湖 TN 和 TP 与 CH₄ 通量显著正相关, 径流增强提高了水体营养盐浓度和初级生产力, 促进 CH₄ 的产生^[5]. 9 月水温开始下降, 骆马湖由丰水期过渡至平水期, 而此时期 CH₄ 释放通量依然较高, 有长期实验证实, 高营养水平的湖泊水体对 CH₄ 生产释放的调控一定程度上会超过温度变化带来的影响^[40]. 尽管 12 月和 1 月枯水期水温低, 径流强度减弱, 但湖中较高浓度的氮、磷等营养物质仍然可以很好地解释该时期河口附近 CH₄ 通量变高的现象^[37]. 此外, 骆马湖不同湖区营养水平差异也与 CH₄ 通量的空间异质性紧密相关, 由于每次采样时风速、水温、太阳辐射、感热通量和潜热通量在全湖空间上差异不大, 且入湖区 TLI 高于出湖区, 所以 CH₄ 溶存浓度和通量的空间差异一定程度上可以解释为不同湖区营养水平差异的结果^[40], 而不是微气象条件差异所引起的, 也证明了水体营养水平对 CH₄ 排放具有一定的调控能力. 总而言之, 人类活动会影响水生生态系统 CH₄ 的生产释放, 在全球 CH₄ 循环研究是不可忽视的.

4 结论

骆马湖表层水体 CH₄ 溶存浓度和通量均值分别为 0.12 $\mu\text{mol}\cdot\text{L}^{-1}$ 和 21 $\text{mmol}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{d})^{-1}$, 其表现出的时空异质性受到水温和径流强度的共同影响; CDOM 和 DOC 等有机质的输入累积能够提高水体 CH₄ 的生产和释放水平, 其中 CH₄ 通量与水体类腐殖质组分 C1 和 C3 关系显著, 与藻源性有机质无显著关联; 骆马湖为轻度富营养化湖泊, 氮和磷等营养物质的输入不但提高了水体营养水平, 还促进了湖泊 CH₄ 气体的排放, 反映人类活动对气候变化的深刻影响.

致谢: 感谢陈业、邹伟、张柳青和张成英等同志在采样与室内实验过程中给予的帮助.

参考文献:

- [1] Verpoorter C, Kutser T, Seekell D A, et al. A global inventory of lakes based on high-resolution satellite imagery [J]. *Geophysical Research Letters*, 2014, 41(18): 6396-6402.

- [2] Rosentreter J A, Borges A V, Deemer B R, *et al.* Half of global methane emissions come from highly variable aquatic ecosystem sources[J]. *Nature Geoscience*, 2021, **14**(4): 225-230.
- [3] DelSontro T, Boutet L, St-Pierre A, *et al.* Methane ebullition and diffusion from northern ponds and lakes regulated by the interaction between temperature and system productivity [J]. *Limnology and Oceanography*, 2016, **61**(S1): S62-S77.
- [4] Lay J J, Miyahara T, Noike T. Methane release rate and methanogenic bacterial populations in lake sediments[J]. *Water Research*, 1996, **30**(4): 901-908.
- [5] Zhou Y Q, Xiao Q T, Yao X L, *et al.* Accumulation of terrestrial dissolved organic matter potentially enhances dissolved methane levels in eutrophic Lake Taihu, China [J]. *Environmental Science & Technology*, 2018, **52**(18): 10297-10306.
- [6] West W E, Creamer K P, Jones S E. Productivity and depth regulate lake contributions to atmospheric methane [J]. *Limnology and Oceanography*, 2016, **61**(S1): S51-S61.
- [7] Bastviken D, Cole J, Pace M, *et al.* Methane emissions from lakes: dependence of lake characteristics, two regional assessments, and a global estimate [J]. *Global Biogeochemical Cycles*, 2004, **18**(4), doi: 10.1029/2004GB002238.
- [8] Davidson T A, Audet J, Jeppesen E, *et al.* Synergy between nutrients and warming enhances methane ebullition from experimental lakes[J]. *Nature Climate Change*, 2018, **8**(2): 156-160.
- [9] Günthel M, Donis D, Kirillin G, *et al.* Contribution of oxic methane production to surface methane emission in lakes and its global importance[J]. *Nature Communications*, 2019, **10**(1), doi: 10.1038/s41467-019-13320-0.
- [10] Zhang Y L, van Dijk M A, Liu M L, *et al.* The contribution of phytoplankton degradation to chromophoric dissolved organic matter (CDOM) in eutrophic shallow lakes: field and experimental evidence [J]. *Water Research*, 2009, **43**(18): 4685-4697.
- [11] Zhou Y Q, Zhang Y L, Jeppesen E, *et al.* Inflow rate-driven changes in the composition and dynamics of chromophoric dissolved organic matter in a large drinking water lake[J]. *Water Research*, 2016, **100**: 211-221.
- [12] 荀凡, 杜先, 陈新芳, 等. 秋季连续打捞蓝藻对水-气界面温室气体通量的影响[J]. *湖泊科学*, 2020, **32**(6): 1707-1722.
- Xun F, Du X, Chen X F, *et al.* Effects of continuous cyanobacterial salvaging on greenhouse gas flux on water-air interface in autumn [J]. *Journal of Lake Sciences*, 2020, **32**(6): 1707-1722.
- [13] Repeta D J, Ferrón S, Sosa O A, *et al.* Marine methane paradox explained by bacterial degradation of dissolved organic matter [J]. *Nature Geoscience*, 2016, **9**(12): 884-887.
- [14] Rasilo T, Prairie Y T, del Giorgio P A. Large-scale patterns in summer diffusive CH₄ fluxes across boreal lakes, and contribution to diffusive C emissions[J]. *Global Change Biology*, 2015, **21**(3): 1124-1139.
- [15] 高劲松, 刘明, 吴明白, 等. 宿迁市骆马湖健康生态评估的分析[J]. *治淮*, 2020, (5): 43-45.
- [16] 张柳青, 彭凯, 杨艳, 等. 不同水文情景下洪泽湖、骆马湖有色可溶性有机物生物可利用性特征[J]. *光谱学与光谱分析*, 2020, **40**(1): 85-90.
- Zhang L Q, Peng K, Yang Y, *et al.* The bioavailability characteristics of CDOM in Lake Hongze and Lake Luoma under different hydrological scenarios[J]. *Spectroscopy and Spectral Analysis*, 2020, **40**(1): 85-90.
- [17] 陈宇炜, 陈开宁, 胡耀辉. 浮游植物叶绿素 a 测定的“热乙醇法”及其测定误差的探讨[J]. *湖泊科学*, 2006, **18**(5): 550-552.
- Chen Y W, Chen K N, Hu Y H. Discussion on possible error for phytoplankton chlorophyll-a concentration analysis using hot-ethanol extraction method[J]. *Journal of Lake Sciences*, 2006, **18**(5): 550-552.
- [18] 何小松, 席北斗, 张鹏, 等. 地下水中溶解性有机物的季节变化特征及成因[J]. *中国环境科学*, 2015, **35**(3): 862-870.
- He X S, Xi B D, Zhang P, *et al.* The seasonal distribution characteristics and its reasons of dissolved organic matter in groundwater[J]. *China Environmental Science*, 2015, **35**(3): 862-870.
- [19] 石玉, 李元鹏, 张柳青, 等. 不同丰枯情景下长江三角洲非通江湖泊(溱湖、淀山湖和阳澄湖)有色可溶性有机物组成特征[J]. *湖泊科学*, 2021, **33**(1): 168-180.
- Shi Y, Li Y P, Zhang L Q, *et al.* Characterizing chromophoric dissolved organic matter in Lake Gehu, Lake Dianshan and Lake Yangcheng in different hydrological seasons[J]. *Journal of Lake Sciences*, 2021, **33**(1): 168-180.
- [20] Koschorreck M, Prairie Y T, Kim J, *et al.* Technical note: CO₂ is not like CH₄-limits of and corrections to the headspace method to analyse pCO₂ in fresh water[J]. *Biogeosciences*, 2021, **18**(5): 1619-1627.
- [21] Crawford J T, Striegl R G, Wickland K P, *et al.* Emissions of carbon dioxide and methane from a headwater stream network of interior Alaska [J]. *Journal of Geophysical Research: Biogeosciences*, 2013, **118**(2): 482-494.
- [22] Striegl R G, Dornblaser M M, McDonald C P, *et al.* Carbon dioxide and methane emissions from the Yukon River system[J]. *Global Biogeochemical Cycles*, 2012, **26**(4), doi: 10.1029/2012GB004306.
- [23] 臧昆鹏, 王菊英, 赵化德, 等. 顶空平衡-双通道气相色谱法测定海水中溶解态甲烷和氧化亚氮[J]. *环境化学*, 2014, **33**(12): 2094-2101.
- [24] 杨凡艳, 张松林, 王少明, 等. 潘家口水库温室气体溶存、排放特征及影响因素[J]. *中国环境科学*, 2021, **41**(11): 5303-5313.
- Yang F Y, Zhang S L, Wang S M, *et al.* Dissolution and emission patterns and influencing factors of greenhouse gases in Panjiakou Reservoir [J]. *China Environmental Science*, 2021, **41**(11): 5303-5313.
- [25] 齐天赐, 肖启涛, 苗雨青, 等. 巢湖水体二氧化碳浓度时空分布特征及其水-气交换通量[J]. *湖泊科学*, 2019, **31**(3): 766-778.
- Qi T C, Xiao Q T, Miao Y Q, *et al.* Temporal and spatial variation of carbon dioxide concentration and its exchange fluxes in Lake Chaohu [J]. *Journal of Lake Sciences*, 2019, **31**(3): 766-778.
- [26] Paranaíba J R, Barros N, Mendonça R, *et al.* Spatially resolved measurements of CO₂ and CH₄ concentration and gas-exchange velocity highly influence carbon-emission estimates of reservoirs [J]. *Environmental Science & Technology*, 2018, **52**(2): 607-615.
- [27] Stedmon C A, Thomas D N, Granskog M, *et al.* Characteristics of dissolved organic matter in Baltic coastal sea ice: allochthonous or autochthonous origins? [J]. *Environmental Science & Technology*, 2007, **41**(21): 7273-7279.
- [28] Zhang Y L, Zhang E L, Yin Y, *et al.* Characteristics and sources of chromophoric dissolved organic matter in lakes of the

- Yungui Plateau, China, differing in trophic state and altitude [J]. *Limnology and Oceanography*, 2010, **55**(6): 2645-2659.
- [29] Zhou Y Q, Shi K, Zhang Y L, *et al.* Fluorescence peak integration ratio $I_C:I_T$ as a new potential indicator tracing the compositional changes in chromophoric dissolved organic matter [J]. *Science of the Total Environment*, 2017, **574**: 1588-1598.
- [30] Zhang Y L, Zhou Y Q, Shi K, *et al.* Optical properties and composition changes in chromophoric dissolved organic matter along trophic gradients: implications for monitoring and assessing lake eutrophication [J]. *Water Research*, 2018, **131**: 255-263.
- [31] Murphy K R, Stedmon C A, Waite T D, *et al.* Distinguishing between terrestrial and autochthonous organic matter sources in marine environments using fluorescence spectroscopy [J]. *Marine Chemistry*, 2008, **108**(1-2): 40-58.
- [32] Grasset C, Mendonça R, Saucedo G V, *et al.* Large but variable methane production in anoxic freshwater sediment upon addition of allochthonous and autochthonous organic matter [J]. *Limnology and Oceanography*, 2018, **63**(4): 1488-1501.
- [33] 许浩霆, 陈敏, 肖尚斌, 等. 喀斯特小流域河流溶存甲烷浓度时空变化特征 [J]. *中国环境科学*, 2021, **41**(8): 3758-3766.
- Xu H T, Chen M, Xiao S B, *et al.* Temporal and spatial pattern of dissolved methane concentration in the river of a small karst watershed [J]. *China Environmental Science*, 2021, **41**(8): 3758-3766.
- [34] Hofmann H. Spatiotemporal distribution patterns of dissolved methane in lakes: how accurate are the current estimations of the diffusive flux path? [J]. *Geophysical Research Letters*, 2013, **40**(11): 2779-2784.
- [35] Conrad R. The global methane cycle: recent advances in understanding the microbial processes involved [J]. *Environmental Microbiology Reports*, 2009, **1**(5): 285-292.
- [36] Xiao Q T, Xu X F, Duan H T, *et al.* Eutrophic Lake Taihu as a significant CO₂ source during 2000-2015 [J]. *Water Research*, 2020, **170**, doi: 10.1016/j.watres.2019.115331.
- [37] Zhang W S, Li H P, Xiao Q T, *et al.* Urban rivers are hotspots of riverine greenhouse gas (N₂O, CH₄, CO₂) emissions in the mixed-landscape Chaohu Lake Basin [J]. *Water Research*, 2021, **189**, doi: 10.1016/j.watres.2020.116624.
- [38] Langenegger T, Vachon D, Donis D, *et al.* What the bubble knows: lake methane dynamics revealed by sediment gas bubble composition [J]. *Limnology and Oceanography*, 2019, **64**(4): 1526-1544.
- [39] 陈丙法, 冯慕华, 尚丽霞, 等. 秋季聚积蓝藻打捞对蓝藻生长及水质影响的原位实验 [J]. *湖泊科学*, 2016, **28**(2): 253-262.
- Chen B F, Feng M H, Shang L X, *et al.* Effects on cyanobacterial growth and water quality after harvesting accumulated cyanobacteria in autumn: an *in-situ* experiment in Lake Chaohu [J]. *Journal of Lake Sciences*, 2016, **28**(2): 253-262.
- [40] Xiao Q T, Zhang M, Hu Z H, *et al.* Spatial variations of methane emission in a large shallow eutrophic lake in subtropical climate [J]. *Journal of Geophysical Research: Biogeosciences*, 2017, **122**(7): 1597-1614.
- [41] 张庆吉, 王业宇, 王金东, 等. 骆马湖浮游植物演替规律及驱动因子 [J]. *环境科学*, 2020, **41**(4): 1648-1656.
- Zhang Q J, Wang Y Y, Wang J D, *et al.* Succession pattern of phytoplankton and its drivers in Lake Luoma, Jiangsu Province [J]. *Environmental Science*, 2020, **41**(4): 1648-1656.
- [42] 吴雅丽. 骆马湖水质现状及评价 [J]. *环境保护与循环经济*, 2020, **40**(10): 50-51, 86.

CONTENTS

Analysis on Spatial-temporal Characteristics and Driving Factors of PM _{2.5} in Henan Province from 2015 to 2019	GE Qi-xu, LIU Yan, YANG Hong, <i>et al.</i>	(1697)
Pollution Characterization, Source Identification, and Health Risks of Atmospheric Particle-Bound Heavy Metals in PM _{2.5} in Zhengzhou City: Based on High-resolution Data	QU Guang-hui, SUN Jun-ping, WANG Shen-bo, <i>et al.</i>	(1706)
Source Analysis and Composition Characteristics of Water-soluble Ions During Spring Festival in Ningbo	YANG Meng-rong, PAN Yong, HUANG Zhong-wen, <i>et al.</i>	(1716)
Characteristics of Nitroaromatic Compounds in PM _{2.5} in Urban Area of Shanghai	ZHUANG Min, MA Ying-ge, CHENG Yu-huang, <i>et al.</i>	(1725)
Characteristics and Sources of Nitrated Phenols in Atmospheric Fine Particles of Northern Suburban Nanjing	CHEN Mei-juan, QIAN Zi-he, GU Chen-juan, <i>et al.</i>	(1738)
Variety of the Composition and Sources of VOCs During the Spring Festival and Epidemic Prevention in the Pearl River Delta	JIANG Ming, YUAN Luan, WEN Li-rong, <i>et al.</i>	(1747)
Speciated Emission Inventory of VOCs from Industrial Sources and Their Ozone Formation Potential in Chongqing	LI Ling, LI Zhen-liang, FANG Wei-kai, <i>et al.</i>	(1756)
Volatile Organic Compound Emission Characteristics and Influences Assessment of a Petrochemical Industrial Park in the Pearl River Delta Region	ZHANG Xue-chi, SHA Qing-e, LU Meng-hua, <i>et al.</i>	(1766)
Characteristics and Source Apportionment of Vehicular VOCs Emissions in a Tunnel Study	LIU Xin-hui, ZHU Ren-cheng, JIN Bo-qiang, <i>et al.</i>	(1777)
Accurate Identification of Pollution Sources in a Chemical Enterprise Based on a Distributed Multi-channel VOCs Online Monitoring Mass Spectrometry System	WEI Xiao, ZHANG Yong-jie, WANG Pei-tao, <i>et al.</i>	(1788)
Coordinated Control of PM _{2.5} and O ₃ in Hangzhou Based on SOA and O ₃ Formation Potential	LIN Xu, YAN Ren-chang, JIN Jia-jia, <i>et al.</i>	(1799)
Effect of WESP on Emission Characteristics of Condensable Particulate Matter from Ultra-low Emission Coal-fired Power Plants	WANG Peng-cheng, YUAN Chang, LIANG Sheng-wen, <i>et al.</i>	(1808)
Measurement Analysis and Superposed Effect of Residential Indoor Air Pollutants in Xi'an	WANG Xiu-ru, FAN Hao, FAN Jie, <i>et al.</i>	(1814)
Occurrence of Atmospheric (Micro)plastics and the Characteristics of the Plastic Associated Biofilms in the Coastal Zone of Dalian in Summer and Autumn	TU Chen, TIAN Yuan, LIU Ying, <i>et al.</i>	(1821)
Spatiotemporal Distribution of Ammonia Emissions from Poultry Farming in the Yangtze River Delta Based on Online Monitoring Derived Local Emission Factors	GAO Zong-yuan, XU Chang, NI Yuan-zhi, <i>et al.</i>	(1829)
Agricultural Ammonia Emission Inventory and Its Distribution in Xining City	YANG Yi, JI Ya-qin, GAO Yu-zong, <i>et al.</i>	(1844)
Analysis of the Urban Water Eco-environment Protection Strategy in the Beijing-Tianjin-Hebei Region from "Three Waters" Overall Planning	LIAO Ya, HOU Xiao-shu, REN Xiao-hong	(1853)
Non-carcinogenic Risk Assessment of Cadmium Exposure Through Drinking Water in Chinese Residents Based on Age-stratification Weight	QIN Ning, Ayibota Tuexunbieke, LIU Yun-wei, <i>et al.</i>	(1863)
Hydrochemical Characteristics and Transformation Relationship of Surface Water and Groundwater in the Plain Area of Bortala River Basin, Xinjiang	LEI Mi, ZHOU Jin-long, ZHANG Jie, <i>et al.</i>	(1873)
Hydrochemical Composition Characteristics and Control Factors of Xiaohuangni River Basin in the Upper Pearl River	TU Chun-lin, YIN Lin-hu, HE Cheng-zhong, <i>et al.</i>	(1885)
Temporal and Spatial Variation Characteristics and Driving Factors of Nitrogen of Shallow Groundwater in Hetao Irrigation District	YUAN Hong-ying, YANG Shu-qing, ZHANG Wan-feng, <i>et al.</i>	(1898)
Provenance of Groundwater Solute and Its Controlling Factors in Yancheng Area	WANG Jian, ZHANG Hua-bing, XU Jun-li, <i>et al.</i>	(1908)
Hydrogen and Oxygen Isotopic Characteristics of Different Water and Indicative Significance in Baiyangdian Lake	WANG Yu-shan, YIN De-chao, QI Xiao-fan, <i>et al.</i>	(1920)
Optical Composition and Potential Driving Factors of Chromophoric Dissolved Organic Matter in Large Lakes and Reservoirs in the Eastern Region of China	CHEN Li-li, XIAO Qi-tao, YU Xiao-qin, <i>et al.</i>	(1930)
Fluorescence Spectral Characteristics of Dissolved Organic Matter in Songhua Lake Sediment	CHENG Yun-xuan, ZHAO Ke, ZHANG Yue, <i>et al.</i>	(1941)
Abundance and Fluorescent Components of Dissolved Organic Matter Affected by Land Use in a Drinking Water Source	GAO Jing, PU Xiao, ZHANG Yu-hu, <i>et al.</i>	(1950)
Emission of Methane from a Key Lake in the Eastern Route of the South-to-North Water Transfer Project and the Corresponding Driving Factors	ZHU Jun-yu, PENG Kai, LI Yu-yang, <i>et al.</i>	(1958)
Distribution Characteristics and Ecological and Health Risk Assessment of Phthalic Acid Esters in Surface Water of Qiandao Lake, China	MI Qi-xin, GUO Xiao-chun, LU Shao-yong, <i>et al.</i>	(1966)
Phosphorus Adsorption Characteristics and Loss Risk in Sediments of Lake Bay During the Overwinter Period of Cyanobacteria	JIN Zheng-hai, TU Cheng-qi, WANG Shu-hang, <i>et al.</i>	(1976)
Ecological Quality Assessment of the Wetlands in Beijing: Based on Plant Diversity	LI Guo, SUN Guang, ZHAO Zi-yi, <i>et al.</i>	(1988)
Effects of Pollution Control of Xiaqing River on Environment Factors and Phytoplankton Community in the Laizhou Bay	ZHANG Jing-jing, WANG Yu-jue, LI Fan, <i>et al.</i>	(1997)
Effects of Different Aeration Treatments on Bacterial Diversity, Metabolic Activity, and Function in Constructed Wetlands	WANG Fei-peng, HUANG Ya-ling, ZHANG Rui-ni, <i>et al.</i>	(2007)
Analysis on the Source Tracing and Pollution Characteristics of Rainfall Runoff in the Old Urban Area of Nanning City	YUE Zhen-wu, LI Yi-ping, ZHOU Yu-xuan, <i>et al.</i>	(2018)
Effects of Aging on the Cd Adsorption by Microplastics and the Relevant Mechanisms	WANG Jun-jie, CHEN Xiao-chen, LI Qian-da, <i>et al.</i>	(2030)
Carbonized Foam Supported Co ₃ O ₄ Activated Peroxymonosulfate Towards Rhodamine B Degradation	WANG Yuan-yuan, YAN Xin, AI Tao, <i>et al.</i>	(2039)
Promoting Nitrogen Removal in ANAMMOX Biofilm Reactor by Fe ²⁺ Under Low Nitrogen Concentration	ZHENG Xu-wen, QIN Jia-fu, WANG Xiao-jun, <i>et al.</i>	(2047)
Investigation on Oxygen Gas-liquid Mass Transfer in Sewage Pipelines Under Enhanced Ventilation	YANG Zhou, ZHANG Zhi-qiang, YANG Jing, <i>et al.</i>	(2055)
Characteristics and Assessment of Heavy Metal Contamination in Soils of Industrial Regions in the Yangtze River Economic Belt	ZHANG Yi, ZHOU Xin-quan, ZENG Xiao-min, <i>et al.</i>	(2062)
Distribution and Environmental Significance of Rare Earth Elements in Typical Protected Vegetable Soil, Northern China	WANG Zu-wei, LIU Ya-ming, WANG Zi-lu, <i>et al.</i>	(2071)
Sources Identification, Ecological Risk Assessment, and Controlling Factors of Potentially Toxic Elements in Typical Lead-Zinc Mine Area, Guizhou Province, Southwest China	ZHANG Fu-gui, PENG Min, HE Ling, <i>et al.</i>	(2081)
Distribution Characteristics of Heavy Metals in Soils Affected by Different Land Use Types in a Superimposed Pollution Area with High Geological Background	WANG Xue-wen, LIU Hong-yan, GU Xiao-feng, <i>et al.</i>	(2094)
Distribution Characteristics of Heavy Metals in Farmland Soils Around Mining Areas and Pollution Assessment	WANG Hai-yang, HAN Ling, XIE Dan-ni, <i>et al.</i>	(2104)
Concentration Characteristics of Heavy Metals in Farmland-Sphagnum System and Ecological Risk Assessment	ZHU Di, ZHANG Zhao-hui, WANG Zhi-hui	(2115)
Spatial Variation and Influencing Factors of Soil pH in Anshun City	CHEN Qing-xia, LU Xiao-hui, TU Cheng-long	(2124)
Synergistic Repair Effect of Calcite-Based Passivator and Low-Accumulation Maize	REN Chao, REN Yu-zhong, LI Jing-tian, <i>et al.</i>	(2133)
Effects of <i>Burkholderia</i> sp. Y4 on Cadmium Damage and Uptake in Rice Seedlings	ZHANG Ya-hui, LIU Yue-min, WANG Chang-rong, <i>et al.</i>	(2142)
Changing Characteristics of Carbon-Based Greenhouse Gas Fluxes in Paddy Field in the Middle-Lower Yangtze Plain in China	LIU Shuo, ZHEN Xiao-jie, LIU Gang, <i>et al.</i>	(2151)
Effects of Plastic Film Mulching and Biochar Application on N ₂ O Emission from a Vegetable Field	HU Jian, JIANG Chang-sheng, CHEN Xin-tong, <i>et al.</i>	(2163)
Effects of Nitrogen Fertilizer Management on CH ₄ and N ₂ O Emissions in Paddy Field	ZHENG Mei-qun, LIU Juan, JIANG Pei-kun, <i>et al.</i>	(2171)
Structure and Functional Diversity of Bacterial Community in Rhizosphere Soil of Typical Vegetation in the Riparian Zone Along the Downstream of Songhua River	WANG Lu-ying, SUN Hui-zhen, YANG Xue	(2182)
Effects of Cotton Stalk Returning on Soil Enzyme Activity and Bacterial Community Structure Diversity in Cotton Field with Long-term Saline Water Irrigation	ZHOU Yong-xue, CHEN Jing, LI Yuan, <i>et al.</i>	(2192)
Effect of pH on the Abundance and Community Structure of Comammox <i>Nitrospira</i> in Paddy Soils	MA Rui, ZHAO Yong-peng, WANG Zhi-hui, <i>et al.</i>	(2204)
Effects of Biochar on Soil Organic Carbon of Eroded Cultivated Layer of Slope Farmland in Purple Hilly Area	ZHANG Jian-le, ZENG Xiao-ying, SHI Dong-mei, <i>et al.</i>	(2209)
Effects of Organic Fertilizer Replacing Chemical Fertilizer on Organic Carbon Mineralization and Active Organic Carbon in Dryland Yellow Soil	LIN Shi-fang, WANG Xiao-li, DUAN Jian-jun, <i>et al.</i>	(2219)
Soil Organic Carbon Storage, Active Component Contents, and Stability Along a Flooding Gradient in the Tidal Wetland of the Julong River Estuary	HUANG Xiao-qing, TONG Chuan, LUO Min, <i>et al.</i>	(2226)
System Construction and the Function Improvement of Ecological Carbon Sink in Coal Mining Areas Under the Carbon Neutral Strategy	LIU Xiang-hong, YAN Yong-jun, LIU Wei, <i>et al.</i>	(2237)