

方知库
Eco-Environmental
Knowledge Web

环境科学

ENVIRONMENTAL SCIENCE

ISSN 0250-3301 CODEN HCKHDV

HUANJING KEXUE

2000~2018年我国大气重金属沉降通量时空变化特征

陈其永, 郜允兵, 倪润祥, 潘瑜春, 阎跃观, 杨晶, 刘孝阳, 顾晓鹤



■ 主办 中国科学院生态环境研究中心

■ 出版 科学出版社



2022年9月

第43卷 第9期

Vol.43 No.9

目次

2000~2018年我国大气重金属沉降通量时空变化特征 陈其永, 郇允兵, 倪润祥, 潘瑜春, 阎跃观, 杨晶, 刘孝阳, 顾晓鹤(4413)

面向二/三维城市形态指标的PM_{2.5}浓度调控模拟 李莎, 邹滨, 刘宁, 冯徽徽, 陈军, 张鸿辉(4425)

减排背景下成都大气PM_{2.5}碳质组分特征 陈璐瑶, 于阳春, 黄小娟, 董贵明, 张军科(4438)

青岛秋冬季PM₁中金属元素污染特征及健康风险评估 刘子杨, 张宜升, 张厚勇, 马子轸, 陶文鑫, 王娇, 薛莲, 彭倩倩, 杜金花, 赵娇娇, 彭亮, 孙英杰(4448)

港口地区大气PM_{2.5}中多环芳烃污染特征及来源分析 王鹏程, 杨凌霄, 别淑君, 黄琦, 齐安安, 虞雄, 王滢铭, 徐鹏, 张天琪, 王文兴(4458)

天津市冬季道路颗粒物粒径分布及来源解析 张国涛, 殷宝辉, 白雯宇, 郭丽瑶, 王智宇, 张楠, 郑镇森, 张利文, 杨文, 韩斌, 白志鹏(4467)

北京市生物源一次气溶胶浓度变化特征及影响因素 梁林林, 刘畅, 刘旭艳, 徐婉筠, 张根, 程红兵, 刘雨思(4475)

北京市城区夏季VOCs变化特征分析与来源解析 孟祥来, 孙扬, 廖婷婷, 张琛, 张成影(4484)

东莞工业集中区夏季臭氧污染与非污染期间VOCs组分特征及其来源 周振, 肖林海, 费蕾蕾, 余纬, 林满, 黄筠钧, 张智胜, 陶俊(4497)

生活垃圾填埋场恶臭污染的时空变化与膜阻隔效果 何晶晶, 李健晨, 吕凡, 章骅, 邵立明(4506)

不同年份太湖水域全氟化合物健康风险源解析对比 武婷, 孙善伟, 樊境朴, 鲁富蕾, 郭昌胜, 徐建(4513)

沱江流域典型及新兴全氟/多氟化合物的污染特征及来源解析 宋娇娇, 汪艺梅, 孙静, 方淑红(4522)

白洋淀不同类型水体表层沉积物重金属的赋存形态及风险 许梦雅, 张超, 单保庆, 刘操(4532)

喹诺酮类抗生素在城市典型水环境中的分配系数及其主要环境影响因子 剧泽佳, 付雨, 赵鑫宇, 陈慧, 宋圆梦, 赵波, 张纪媛, 卢梦洪, 崔建升, 张璐璐(4543)

石家庄地下水中喹诺酮类抗生素生态风险及其与环境因子的相关性 陈慧, 剧泽佳, 赵鑫宇, 付雨, 崔建升, 张璐璐(4556)

不同淹水环境下湖泊沉积物DOM的特征与来源 陈佳, 李忠武, 金昌盛, 文佳骏, 聂小东, 王磊(4566)

晋城市沁河流域秋季浮游植物群落结构特征及其与环境因子的关系 高梦蝶, 李艳粉, 李艳利, 孙昂, 田爽, 张春晖, 耿亚平, 李林霞(4576)

不同配置绿色屋顶径流水质特征及综合评价 章孙逊, 张守红, 闫婧, 王任重远, 杨航(4587)

紫外活化过硫酸盐降解磷酸氯喹 李阳, 许玻琀, 邓琳, 罗伟(4597)

微气泡臭氧氧化预处理实际制药废水去除SS和有机性能 刘春, 陈蕊, 张静, 杨旭, 陈晓轩, 郭延凯, 武明泽, 庞勃(4608)

废水排放对近海环境中抗生素抗性基因和微生物群落的影响 陈嘉瑜, 苏志国, 姚鹏城, 黄备, 张永明, 温东辉(4616)

生物炭和秸秆还田对微咸水滴灌棉田土壤真菌群落结构多样性的影响 郭晓雯, 陈静, 鲁晓宇, 李远, 陶一凡, 闵伟(4625)

有机物料投入对喀斯特地区土壤磷素赋存形态与含 $phoD$ 基因细菌群落的影响 夏鑫, 乔航, 孙琪, 刘坤平, 陈香碧, 何寻阳, 胡亚军, 苏以荣(4636)

煤矿矿区复垦植被类型对土壤微生物功能基因和酶活的影响 宁岳伟, 刘勇, 张红, 李君剑(4647)

生物炭施用对黄壤土壤养分及酶活性的影响 袁访, 李开钰, 杨慧, 邓承佳, 梁红, 宋理洪(4655)

黄河源区斑块化退化高寒草甸土壤细菌群落多样性变化 孙华方, 李希来, 金立群, 赵玉蓉, 李成一, 张静, 宋梓涵, 苏晓雪, 刘凯(4662)

模拟氮沉降对三江平原小叶章湿地土壤微生物碳源利用能力的影响 翁晓虹, 隋心, 李梦莎, 刘赢男, 张荣涛, 杨立宾(4674)

石家庄市土壤中喹诺酮类抗生素空间分布特征及其与微生物群落相关性 赵鑫宇, 剧泽佳, 陈慧, 付雨, 宋圆梦, 赵波, 张纪媛, 卢梦洪, 崔建升, 张璐璐(4684)

典型氧化还原环境中微塑料表面的微生物群落组成特征与构建机制 龚志伟, 马杰, 苏趋, 林亚楠, 董鑫磊, 周立昌, 王宗平, 郭刚(4697)

作物秸秆材料处理养殖废水中氮的周年去除效果及其对氮循环微生物丰度的影响 刘铭羽, 夏梦华, 蒋磊, 彭健, 陈坤, 赵聪芳, 李希, 孟岑, 曾睿, 王栋, 李裕元, 吴金水(4706)

不同外碳源对尾水极限脱氮性能及微生物群落结构的影响 王伟, 赵中原, 张鑫, 由志鹏, 黄子晋, 彭永臻(4717)

总氮提标改造工程的微生物群落结构分析 李海松, 王柯丹, 陈晓蕾, 阎登科, 许子聪, 胡培杰(4727)

IFAS工艺处理南方低碳源污水的泥膜微生物互作规律分析 赫俊国, 江伟勋, 何卓义, 刘新平, 吴世华, 储昭瑞, 冯杰(4736)

黄土高原土地利用方式对微塑料丰度和形态分布的影响 郝永丽, 胡亚鲜, 白晓雄, 郭胜利(4748)

南方丘陵区土壤重金属含量、来源及潜在生态风险评价 王玉, 辛存林, 于爽, 薛红蕾, 曾鹏, 孙平安, 刘凡(4756)

兰州市耕地“五毒”重金属的风险评价与归因分析 张利瑞, 彭鑫波, 马延龙, 康乐, 张妍娥, 王泉灵, 张松林(4767)

石家庄市栾城区农田土壤重金属分布特征及作物风险评价 孟晓飞, 郭俊梅, 杨俊兴, 郑国砥, 陈同斌, 刘杰(4779)

典型城市土壤中重金属锑(Sb)的含量分布特征及风险评价 沈城, 叶文娟, 钱诗颖, 吴健, 朱旭东, 王敏(4791)

有色金属矿业城市典型村镇土壤重金属污染评价及来源解析 汪峰, 黄言欢, 李如忠, 吴鸿飞(4800)

柠檬酸及刈割强化象草修复镉污染土壤的效应 唐棋, 伍港繁, 辜娇峰, 周航, 曾鹏, 廖柏寒(4810)

稻田落干过程甲基化效率变化与关键影响因素分析 张玥, 李令仪, 文炯, 曾希柏, 苏世鸣(4820)

外源茉莉酸对水稻幼苗根系伸积及抗逆应答效应 李颜, 黄益宗, 保琼莉, 黄永春, 张盛楠(4831)

秸秆还田配施化肥对土壤养分及冬小麦产量的影响 宋佳杰, 徐郗阳, 白金泽, 于琦, 程伯豪, 冯永忠, 任广鑫(4839)

冬季绿肥对黄土高原旱作春玉米农田土壤温室气体排放的影响 张少宏, 王俊, 方震文, 付鑫(4848)

庞泉沟自然保护区土壤呼吸空间分异性影响因素探测 李晓敏, 严俊霞, 杜自强, 王琰(4858)

小型养殖塘水体中CH₄、CO₂和N₂O浓度的时空变化特征及影响因素 石婕, 张弥, 邱吉丽, 万梓文, 赵若男, 谢燕红, 陈明健, 赵佳玉, 肖薇, 刘寿东(4867)

丁基黄药对选矿区土壤吸附铅镉的影响 胡志浩, 郭朝晖, 冉洪珍, 肖细元, 彭驰, 李钰滢(4878)

秸秆生物炭吸附对乙酰氨基酚的机制及其位能分布特征 商岑尧, 顾若婷, 张强, 谢慧芳, 王冰玉(4888)

黄土高原地区生态脆弱性时空变化及其驱动因子分析 张良侠, 樊江文, 张海燕, 周德成(4902)

植物促生菌在重金属生物修复中的作用机制及应用 马莹, 王玥, 石孝均, 陈新平, 李振轮(4911)

《环境科学》征订启事(4512) 《环境科学》征稿简则(4735) 信息(4696, 4790, 4887)

小型养殖塘水体中 CH₄、CO₂和N₂O浓度的时空变化特征及影响因素

石婕, 张弥*, 邱吉丽, 万梓文, 赵若男, 谢燕红, 陈明健, 赵佳玉, 肖薇, 刘寿东

(南京信息工程大学气候与环境变化国际合作联合实验室大气环境中心, 南京 210044)

摘要: 养殖塘作为重要的温室气体排放源, 水体中温室气体浓度的变化不仅是准确量化温室气体排放量的基础, 还是明确其影响因素的重要依据. 基于顶空平衡-气相色谱法对长三角一处典型的小型养殖塘水体中 CH₄、CO₂ 和 N₂O 浓度的时空变化特征以及影响因素进行了分析. 结果表明, 除春季外, 在水温影响下, CH₄ 和 N₂O 浓度在午间或午后出现高值; 受水温和水生植物光合作用影响, CO₂ 浓度的高值出现在晨间光合作用较弱的时候. 养殖塘水体中 CH₄ 和 CO₂ 浓度呈现秋季最高、冬季最低的季节变化特征, $c(\text{CH}_4)$ 在秋季和冬季的均值分别为 176.34 nmol·L⁻¹ 和 32.75 nmol·L⁻¹, 主要受气温、水温和溶解氧 (DO) 影响; $c(\text{CO}_2)$ 秋季和冬季的均值分别为 134.37 μmol·L⁻¹ 和 23.10 μmol·L⁻¹, 主要受水生植物光合作用和 pH 影响; $c(\text{N}_2\text{O})$ 在夏季最高, 冬季最低, 均值分别为 97.05 nmol·L⁻¹ 和 19.41 nmol·L⁻¹, 主要受气温和水温影响. 在空间上, 垂直方向上, 夏季养殖塘 $c(\text{CH}_4)$ 随水深的加深而降低, 表层与底层、中间层的浓度差值为 71.28 nmol·L⁻¹ 和 42.80 nmol·L⁻¹, 秋季随水深的加深而升高, 底层与表层的浓度差值为 163.94 nmol·L⁻¹. $c(\text{CO}_2)$ 在夏季和秋季都表现为随着水深的加深而升高, 其底层与表层的浓度差值分别为 18.69 μmol·L⁻¹ 和 29.90 μmol·L⁻¹. N₂O 浓度在垂直方向上无明显变化规律. 水平方向上, 夏季饲料及春季鸡粪投放的区域会出现 CH₄、CO₂ 和 N₂O 浓度的高值, 春季和夏季 CH₄ 浓度约为其他区域的 1.34~1.98 倍和 1.95~2.42 倍, 春季 N₂O 浓度和夏季 CO₂ 浓度约为其他区域的 1.13~1.26 倍和 1.39~1.74 倍.

关键词: 养殖塘; CH₄、CO₂ 和 N₂O 浓度; 时空变化特征; 影响因素

中图分类号: X16 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2022)09-4867-11 DOI: 10.13227/j.hjxx.202110131

Temporal and Spatial Variation Characteristics of Methane, Carbon Dioxide, and Nitrous Oxide Concentrations and the Influencing Factors in Small Aquaculture Pond

SHI Jie, ZHANG Mi*, QIU Ji-li, WAN Zi-wen, ZHAO Ruo-nan, XIE Yan-hong, CHEN Ming-jian, ZHAO Jia-yu, XIAO Wei, LIU Shou-dong

(Yale-NUIST Center on Atmospheric Environment, International Joint Laboratory on Climate and Environment Change (ILCEC), Nanjing University of Information Science & Technology, Nanjing 210044, China)

Abstract: As an important source of greenhouse gases, the changes in greenhouse gas concentrations of aquaculture ponds are not only the basis for accurate quantification of greenhouse gases emissions but are also important for identifying their influencing factors. The spatial and temporal variation characteristics of CH₄, CO₂, and N₂O concentrations and the influencing factors in a typical small aquaculture pond in the Yangtze River Delta were analyzed based on the headspace equilibrium-gas chromatograph method. Except in spring, the concentrations of CH₄ and N₂O appeared high at noon or afternoon and were influenced by water temperature. Impacted by water temperature and aquatic plant photosynthesis, the concentrations of CO₂ were high in the morning when photosynthesis was weak. The concentrations of CH₄ and CO₂ were the highest in autumn and the lowest in winter. The mean concentrations of CH₄ in autumn and winter were 176.34 nmol·L⁻¹ and 32.75 nmol·L⁻¹, respectively, which were mainly affected by air temperature, water temperature, and dissolved oxygen. The average CO₂ concentrations in autumn and winter were 134.37 μmol·L⁻¹ and 23.10 μmol·L⁻¹, respectively, and were mainly affected by aquatic vegetation photosynthesis and pH. N₂O concentration was the highest in summer and the lowest in winter, with mean values of 97.05 nmol·L⁻¹ and 19.41 nmol·L⁻¹, respectively, which were mainly affected by air temperature and water temperature. In terms of the vertical spatial variations of the three greenhouse gases, the concentration of CH₄ decreased with water depth in summer, and the concentration differences between the surface layer and the bottom and middle layers were 71.28 nmol·L⁻¹ and 42.80 nmol·L⁻¹, respectively. The concentration of CH₄ increased with water depth in autumn, and the concentration difference between the bottom layer and surface layer was 163.94 nmol·L⁻¹. The CO₂ concentration increased with water depth in summer and autumn. The concentration differences between the bottom and surface concentrations were 18.69 μmol·L⁻¹ and 29.90 μmol·L⁻¹, respectively. N₂O concentration showed no obvious change in the vertical direction. For the horizontal variations, the concentrations of CH₄, CO₂, and N₂O in the feeding area in summer and in chicken manure in spring were approximately 1.34-1.98 times and 1.95-2.42 times those in other areas, respectively, and the concentrations of N₂O and CO₂ in spring and summer were approximately 1.13-1.26 times and 1.39-1.74 times those in other areas.

Key words: aquaculture pond; CH₄, CO₂, and N₂O concentration; temporal spatial variation characteristics; influencing factors

我国是世界上淡水养殖产量最大的国家, 其中养殖塘作为主要的养殖模式, 其养殖面积在持续增加^[1,2]. 由于养殖塘面积小, 水深浅, 水体混合作用强, 养殖期间较高的外源有机碳、氮的输入使养殖塘成为重要的温室气体排放源^[3-5]. 据估计, 我国淡

收稿日期: 2021-10-18; 修订日期: 2022-01-22

基金项目: 国家重点研发计划项目(2020YFA0607500); 国家自然科学基金项目(41575147, 41975143)

作者简介: 石婕(1997~), 女, 硕士研究生, 主要研究方向为内陆水体温室气体循环, E-mail: 765468524@qq.com

* 通信作者, E-mail: zhangn.80@nuist.edu.cn

水养殖的 CH_4 年排放量为 $(4.10 \pm 0.10) \text{Tg} \cdot \text{a}^{-1}$, N_2O 年排放量为 $(22.81 \pm 7.1) \text{Gg} \cdot \text{a}^{-1}$, 分别占全球淡水养殖 CH_4 和 N_2O 排放量的 68.0% 和 62.1%, 是世界上淡水养殖水体 CH_4 和 N_2O 排放量最高的国家^[4]. 2019 年 IPCC 新增了对水产养殖温室气体排放与吸收的估算, 水产养殖温室气体的排放将会逐步列入各个国家的排放清单中^[6,7]. 养殖塘温室气体排放量值取决于水体与大气之间 CH_4 、 CO_2 和 N_2O 浓度的差异^[8,9], 因此, 明确养殖塘中 CH_4 、 CO_2 和 N_2O 浓度的时空变化特征是准确量化其排放量和明确其影响因素的重要依据.

有研究表明, 受气温、水温和 DO 等因素影响, 养殖塘水体中 CH_4 、 CO_2 和 N_2O 浓度会呈现出暖季高、冷季低的季节变化特征^[10~12]. 对养殖塘水体中 CH_4 、 CO_2 和 N_2O 浓度日变化特征的研究发现其浓度无明显日变化特征^[13]. 然而, 也有研究表明, 在水温的调节下, CH_4 和 N_2O 浓度在午后出现高值^[14,15]. 因此, 养殖塘水体中 CH_4 、 CO_2 和 N_2O 浓度日变化特征还存在不确定性. 并且, 当养殖水体中存在水生植物时, 其光合作用是否会对 CO_2 浓度的时间动态造成影响还需要进一步明确.

与自然水体相比, 养殖塘养殖期间饲料的投放、增氧等措施会导致水体中 CH_4 、 CO_2 和 N_2O 浓度具有明显的空间差异, 例如, 水平方向上, 在投食区水体中 CH_4 、 CO_2 和 N_2O 浓度较高, 曝气区 CH_4 浓度较低, N_2O 浓度较高^[16~18]. 垂直方向上, 目前已证实 CH_4 和 CO_2 浓度在湖泊、水库、海洋等大型水体中存在垂直变化^[19]. 大型水体水深较深, CH_4 产生于底泥沉积物无氧环境下, 向上层水体传输时易被氧化^[20]. CO_2 主要产生于底部沉积物和有机物的降解过程, 通过扩散的方式传输到上层水体和大气中^[21], 因此 CH_4 和 CO_2 浓度通常表现为在底层水体中浓度较高, 表层水体较低^[22~24]. N_2O 由于产生机制较为复杂, 其浓度随水深的变化并不明确^[25].

对于养殖塘等小型水体, 有研究也发现, 由于夏秋季 CH_4 在底泥沉积物中大量产生, 从而造成了底层水体 CH_4 浓度较中间层和表层高的垂直变化^[12,19,26]. 由于人工管理措施、水生植物生长状况等存在差异, 养殖塘水体中 CO_2 和 N_2O 浓度是否存在垂直变化, 以及 CH_4 浓度垂直变化是否存在季节差异还需进一步研究.

我国长江三角洲地区水域辽阔、水系发达, 是水产养殖的重点区域. 该地区淡水养殖塘面积约为 $1.09 \times 10^{10} \text{m}^2$, 占全国淡水养殖总面积的 21%^[2]. 本研究选取位于该区域的安徽省全椒县官渡村水产养殖基地一处典型的小型养殖塘, 基于顶空平衡-气相色谱仪法观测养殖塘水体中 CH_4 、 CO_2 和 N_2O 浓度, 以明确其时空变化特征, 同时结合气象因素和水质因子的观测, 明确该养殖水体中 CH_4 、 CO_2 和 N_2O 浓度时间变化的影响因素, 以期为准确评估渔业以及农业温室气体排放量、增温潜势, 从而制定减排措施提供重要依据.

1 材料与方 法

1.1 研究地概况

本研究地点位于中国安徽省全椒县官渡村淡水水产养殖区的一处养殖塘 ($118^\circ 15' \text{E}$, $31^\circ 58' \text{N}$), 养殖塘面积为 7168m^2 (图 1). 该区域属于亚热带湿润季风气候, 夏季高温多雨, 冬季干燥少雨. 根据中国气象观测网滁州站点 1990~2020 年的观测资料, 该地区年平均温度为 16.1°C , 年平均降水量为 1091mm (数据来源: <http://data.cma.cn/>).

该养殖塘自 1985 年由水稻田转化而来一直用于水产养殖, 采取鱼-蚌混养模式, 主要养殖青鱼、草鱼、鲢鱼、鳙鱼和河蚌. 养殖期主要为春、夏和秋季, 养殖期间会通过投食机定时投放饲料, 在每年春季或冬季还会一次性投放大量鸡粪作为饲料, 养殖期夏季和秋季在养殖塘中心区域使用涡轮式增氧机

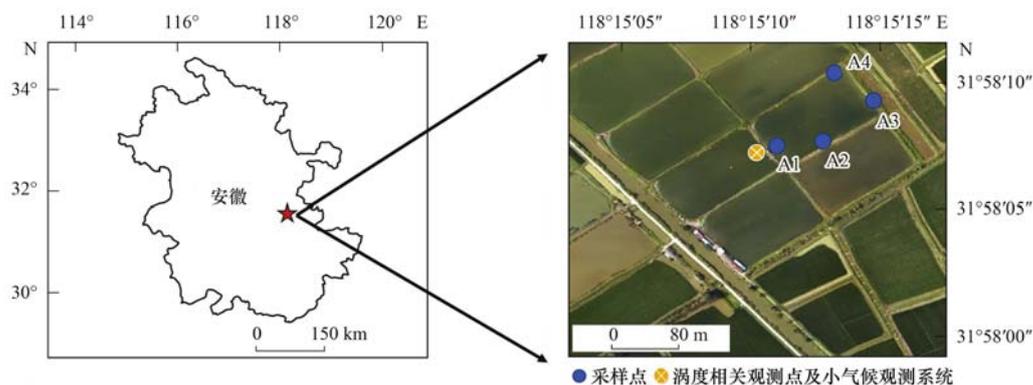


图 1 站点位置及采样点位置示意

Fig. 1 Schematic diagram of site location and sampling site locations

进行增氧. 在本研究时段 2020 ~ 2021 年期间, 于 2020 年 12 月和 2021 年 4 月在 A1 点右侧区域分别施入 2 000 kg 和 5 000 kg 鸡粪, 夏季和秋季在 A1 点左侧利用专用投食机投放饲料, 夏季每日 09:30、12:30 和 17:30 这 3 个时刻均投放饲料, 秋季每日 12:00 或 16:30 投放一次饲料, 直至 11 月 20 日不再投放饲料. 2020 年该养殖塘投放饲料约为 45.86 kg·(hm²·d)⁻¹. 该养殖塘 2020 年 8 ~ 10 月在中间区域使用涡轮式增氧机进行增氧, 增氧时间为 22:00 到次日 05:00.

1.2 样品采集

本研究在养殖塘设置 4 个采样点 (A1 ~ A4), 4 个采样点分别位于养殖塘 4 个方向, 距岸边的水平距离为 1 ~ 1.5 m (图 1), 除 A1 点为投食和投鸡粪

区域, 其余 3 点的水体及附近塘岸没有再进行任何的人工管理措施, 不影响采样点的水样采集. 为明确水体中 3 种温室气体浓度的垂直变化, 本研究将水体分为 3 个层次: 表层 (5 cm 和 15 cm)、中间层 (30 cm 和 45 cm) 和底层 (60 cm 和底泥表面). 于 2020 ~ 2021 年的夏季 (2020 年 8 月 17 ~ 24 日)、秋季 (2020 年 10 月 24 ~ 31 日)、冬季 (2021 年 1 月 3 ~ 10 日) 和春季 (2021 年 5 月 5 ~ 12 日) 每天 08:00、12:00 和 16:00 利用手持取样器 (SC-I 型, 重庆杰恒蠕动泵有限公司) 采集水样. 由于不同季节养殖塘水深并不相同, 因此不同季节各取样点采样深度略有差异. 本研究期间各季节各取样点采样深度及采集水样体积如表 1 所示.

表 1 试验期间养殖塘 A1、A2、A3 和 A4 点采集水样体积和采集水样深度¹⁾

Table 1 Volume and depth of water samples collected at A1, A2, A3, and A4 sites in the aquaculture pond during the experiment

季节	水样体积 /mL	采样深度(水面以下)/cm			
		A1	A2	A3	A4
春季	250	5、15、30、45、60 和 119	5、15、30、45 和 62	5、15、30、45、60 和 79	5、15、30、45、60 和 74
夏季	380	15、30、45 和 60	15、30、45 和 60	15、30、45 和 60	15、30、45 和 60
秋季	250	5、15、30、45、60 和 134	5、15、30、45、60 和 70	5、15、30、45、60 和 80	5、15、30、45、60 和 84
冬季	250	5、15、30、45、60 和 111	5、15、30 和 52	5、15、30、45 和 63	5、15、30、45 和 65

1) 春、秋和冬季表层水体: 5 cm 和 15 cm, 中间层水体: 30 cm 和 45 cm, 底层水体: 60 cm 和底泥表面; 夏季表层水体: 15 cm, 中间层水体: 30 cm 和 45 cm, 底层水体: 60 cm

本研究利用顶空平衡-气相色谱仪法测定水样中的温室气体浓度. 用 60 mL 的针筒抽取 30 mL 水样, 接着抽取 30 mL 氮气, 摇晃针筒使氮气与水样充分混合后静置 2 ~ 3 min, 待目标气体在气相和液相中达到动态平衡后将针筒里的 30 mL 气体注入 50 mL 铝箔气体采样真空袋中 (大连海得, MBT22-1), 并在 48 h 内将气样送回实验室, 利用气相色谱仪 (Agilent GC6890N, Agilent Technologies Inc., CA, USA) 分析其中 CH₄、CO₂ 和 N₂O 浓度.

1.3 水体中 CH₄、CO₂ 和 N₂O 浓度的计算

水体中温室气体的浓度可通过物料平衡原理推算得到, 计算方法如下^[27]:

$$c_w V_L = c_L V_L + c_g V_g \quad (1)$$

式中, c_w 为水体中溶解的温室气体浓度 (CH₄ 和 N₂O: nmol·L⁻¹; CO₂: μmol·L⁻¹), c_g 为温室气体在针筒中气相和液相达到平衡时在气相中的浓度 (CH₄ 和 N₂O: nmol·L⁻¹; CO₂: μmol·L⁻¹), 可通过气相色谱仪测得. V_g 和 V_L 分别为气相和液相的体积 (mL), 本研究为 30 mL. c_L 为温室气体在水样中气相和液相达到平衡时在液相中的浓度 (CH₄ 和 N₂O: nmol·L⁻¹; CO₂: μmol·L⁻¹). 对式 (1) 进行变换, 可得:

$$c_w = c_g \left(\frac{c_L}{c_g} + \frac{V_g}{V_L} \right) \quad (2)$$

其中:

$$c_L = K c_g \quad (3)$$

式中, K 为分配系数, 可利用下式进行计算:

$$K_H = K/RT \quad (4)$$

式中, T 为温度 (K), K_H 为亨利常数, 其与 Bunsen 溶解度系数 β [L·(L·atm)⁻¹] 的关系为:

$$\beta = K_H V_m \quad (5)$$

式中, V_m 为温室气体摩尔体积 (L·mol⁻¹). 整合公式 (2) ~ (5) 可得:

$$c_w = c_g \left(\frac{\beta RT}{V_m} + \frac{V_g}{V_L} \right) \quad (6)$$

式中, R 为气体常数, 此处取 8.31 × 10³ L·Pa·(mol·K)⁻¹, β 可以利用式 (7) 求解.

$$\ln \beta = A_1 + A_2 \left(\frac{100}{T} \right) + A_3 \ln \left(\frac{100}{T} \right) + S \left[B_1 + B_2 T \left(\frac{T}{100} \right) + B_3 \left(\frac{T}{100} \right)^2 \right] \quad (7)$$

式中, A_1 、 A_2 、 A_3 、 B_1 、 B_2 和 B_3 为常数, 具体计算方法可参考文献 [28].

1.4 辅助观测

本试验期间利用目标养殖塘西岸边的小气候观

测系统(图 1)观测气象要素,包括气温($^{\circ}\text{C}$)、气压(kPa)、风速($\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$)和太阳辐射($\text{W}\cdot\text{m}^{-2}$).在进行水样采集时,使用多参数水质分析仪(650MDS, YSI Ins., Yellow Springs, OH, USA)同步测量每个采样点不同深度下的水质因子,包括水温($^{\circ}\text{C}$)、pH值、氧化还原电位(ORP, mV)和 DO($\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$).并于每天 16:00 同步采集各取样点各深度下的水样 380 mL,利用总有机碳分析仪(TELEDYNE TEKMAR Torch, USA)测定水样内溶解有机碳(DOC)浓度($\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$).

2 结果与分析

2.1 研究期间水质因子及水温的变化特征

研究期间水质因子以及水温的变化范围如表 2 所示,冬季由于水温低,养殖塘水体中 DO 整体较高,均值为 $13.07 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$,秋季 DO 最低,均值为 $5.42 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$.本试验期间养殖塘水体总体呈现为弱

碱性,冬季时碱性最强,pH 均值为 8.43.秋季 ORP 最高,夏季最低,其 ORP 均值分别为 106.61 mV 和 64.78 mV .DOC 在春、夏和冬季较高,秋季最低.春季和冬季鸡粪的大量投放导致养殖塘水体中 DOC 较高,均值分别为 $19.81 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 和 $19.24 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$,秋季前期饲料投放频率和投放量开始降低,11 月中旬后停止投食,因此水体中 DOC 较低,约为 $8.04 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$.四季养殖塘水温均值分别为 24.5、33.6、18.4 和 4.3°C .

2.2 养殖塘水体中 CH_4 、 CO_2 和 N_2O 浓度的时间变化特征

2.2.1 养殖塘水体中 CH_4 、 CO_2 和 N_2O 浓度的日变化特征

养殖塘水体中 4 个季节 CH_4 浓度均值的日变化特征如图 2(a)所示,除春季外, CH_4 浓度的高值均在午间和午后出现.春季 $c(\text{CH}_4)$ 均值表现为: $08:00 > 12:00 > 16:00$,3 个时刻均值分别为 80.80、

表 2 试验期间养殖塘水质因子和水温变化范围

Table 2 Variations in water quality factors and water temperature in the aquaculture pond during the experiment

季节	DO/ $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$	pH	ORP/mV	DOC/ $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$	水温/ $^{\circ}\text{C}$
春季	1.81 ~ 21.27	7.49 ~ 9.34	20.10 ~ 193.10	11.96 ~ 24.84	20.3 ~ 32.6
夏季	0.85 ~ 15.5	7.28 ~ 9.46	26.00 ~ 93.00	9.39 ~ 19.26	30.6 ~ 37.4
秋季	0.74 ~ 13.17	7.00 ~ 8.77	65.10 ~ 204.30	3.72 ~ 17.15	17.3 ~ 20.0
冬季	10.81 ~ 17.27	8.05 ~ 9.90	21.00 ~ 163.20	10.96 ~ 22.50	0.8 ~ 8.8

72.62 和 $53.73 \text{ nmol}\cdot\text{L}^{-1}$,且 16:00 时 CH_4 浓度与其余两个时刻间存在显著差异.夏季养殖塘水体 $c(\text{CH}_4)$ 均值在 16:00 时为 $226.25 \text{ nmol}\cdot\text{L}^{-1}$,显著高于其余两个时刻的 $142.48 \text{ nmol}\cdot\text{L}^{-1}$ (12:00) 和 $116.95 \text{ nmol}\cdot\text{L}^{-1}$ (08:00).秋季 $c(\text{CH}_4)$ 均值在 12:00 时最高,均值约为 $227.74 \text{ nmol}\cdot\text{L}^{-1}$,其余两个时刻 $c(\text{CH}_4)$ 均值分别为 $128.91 \text{ nmol}\cdot\text{L}^{-1}$ (16:00) 和 $128.63 \text{ nmol}\cdot\text{L}^{-1}$ (08:00) 且无显著差异.冬季 $c(\text{CH}_4)$ 均值日变化呈现为: $16:00 > 08:00 > 12:00$,对应的浓度均值分别为 35.76 、 33.54 和 $29.20 \text{ nmol}\cdot\text{L}^{-1}$.

CO_2 浓度在四季都呈现出 $08:00 > 12:00 > 16:00$ 的变化 [图 2(b)],且四季 3 个时刻 CO_2 浓度均值都表现出显著的差异.春季 3 个时刻 $c(\text{CO}_2)$ 均值分别为 57.92 、 49.46 和 $34.03 \text{ }\mu\text{mol}\cdot\text{L}^{-1}$,夏季分别为 137.39 、 58.00 和 $31.83 \text{ }\mu\text{mol}\cdot\text{L}^{-1}$,秋季分别为 169.13 、 131.47 和 $102.24 \text{ }\mu\text{mol}\cdot\text{L}^{-1}$,冬季分别为 34.40 、 30.77 和 $27.63 \text{ }\mu\text{mol}\cdot\text{L}^{-1}$.

N_2O 浓度除春季无明显的日变化外,其余 3 个季节 3 个时刻间 N_2O 浓度都表现出显著差异 [图 2(c)], N_2O 浓度在午间或午后出现最高值.夏季在 16:00 时 $c(\text{N}_2\text{O})$ 均值最高,约为 $100.74 \text{ nmol}\cdot\text{L}^{-1}$,与 08:00 时的 $92.45 \text{ nmol}\cdot\text{L}^{-1}$ 差异显著.秋季和冬

季 12:00 时 $c(\text{N}_2\text{O})$ 均值最高,分别为 $27.22 \text{ nmol}\cdot\text{L}^{-1}$ 和 $17.78 \text{ nmol}\cdot\text{L}^{-1}$.

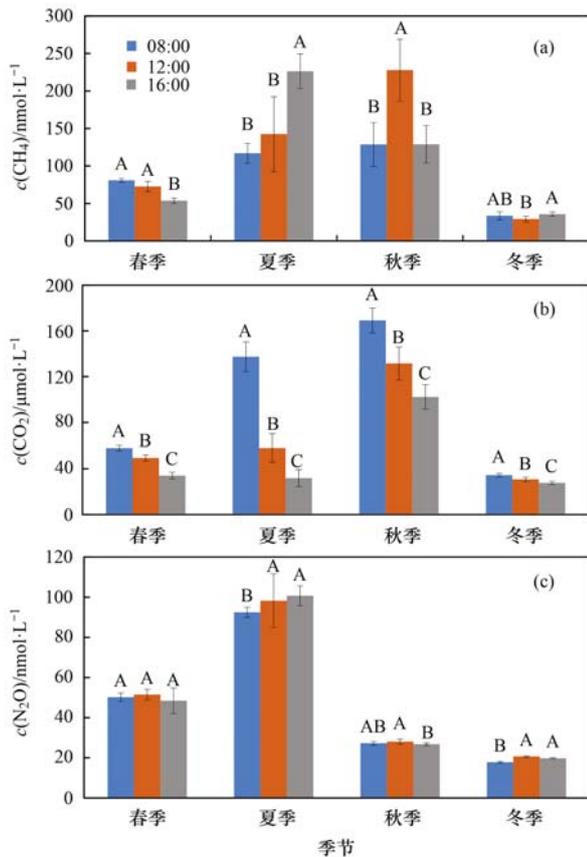
2.2.2 养殖塘水体中 CH_4 、 CO_2 和 N_2O 浓度的季节变化特征

养殖塘水体中 CH_4 、 CO_2 和 N_2O 浓度具有明显的季节变化(图 3). CH_4 和 CO_2 浓度均值表现为:秋季 $>$ 夏季 $>$ 春季 $>$ 冬季 [图 3(a) 和图 3(b)]. $c(\text{CH}_4)$ 对应的均值分别为 176.34 、 162.95 、 71.99 和 $32.75 \text{ nmol}\cdot\text{L}^{-1}$,秋季和夏季水体中 CH_4 浓度均值与春季和冬季差异显著. $c(\text{CO}_2)$ 对应的均值分别为 134.37 、 56.51 、 47.72 和 $23.10 \text{ }\mu\text{mol}\cdot\text{L}^{-1}$,季节差异显著. $c(\text{N}_2\text{O})$ 在 4 个季节差异显著,夏季时最高,均值约为 $97.05 \text{ nmol}\cdot\text{L}^{-1}$,冬季最低,均值约为 $19.41 \text{ nmol}\cdot\text{L}^{-1}$,春季和秋季 $c(\text{N}_2\text{O})$ 均值分别为 $50.23 \text{ nmol}\cdot\text{L}^{-1}$ 和 $27.34 \text{ nmol}\cdot\text{L}^{-1}$ [图 3(c)].

2.3 养殖塘水体中 CH_4 、 CO_2 和 N_2O 浓度的空间变化特征

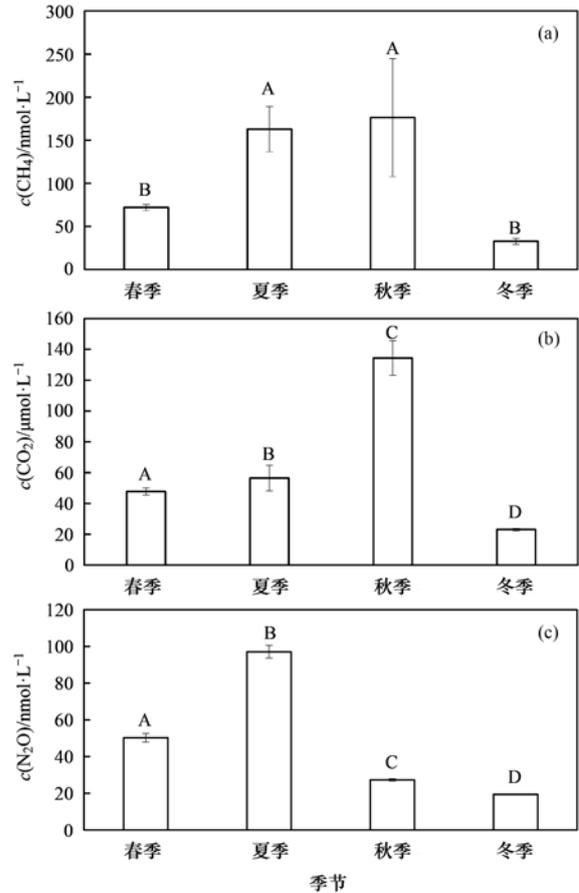
2.3.1 CH_4 、 CO_2 和 N_2O 浓度的垂直变化特征

不同季节养殖塘水体中 CH_4 、 CO_2 和 N_2O 浓度的垂直变化如图 4 所示.夏季 CH_4 浓度表现出随水深加深而降低,表层 15 cm 和中间层 30 cm 与底层 60 cm 处水体的浓度差异显著(表 3),差值分别为



不同大写字母表示不同时刻 CH₄、CO₂ 和 N₂O 浓度均值有显著性差异 ($P < 0.05$)

图 2 不同季节养殖塘水体中 CH₄、CO₂ 和 N₂O 浓度的日变化
Fig. 2 Diurnal variation in CH₄, CO₂, and N₂O concentrations in the aquaculture pond in different seasons



不同大写字母表示不同季节 CH₄、CO₂ 和 N₂O 浓度均值有显著性差异 ($P < 0.05$)

图 3 养殖塘水体中 CH₄、CO₂ 和 N₂O 浓度的季节变化
Fig. 3 Seasonal variations in CH₄, CO₂, and N₂O concentrations in the aquaculture pond

71.28 nmol·L⁻¹ 和 42.80 nmol·L⁻¹. 秋季 CH₄ 浓度随水深的加深浓度升高, 底泥表面与表层、中间层水体间浓度差异显著, 其中底泥表面和中间层 30 cm 处水体间 $c(\text{CH}_4)$ 差值最大, 约为 181.65 nmol·L⁻¹. 春季和冬季养殖塘水体中 CH₄ 浓度在垂直方向无明显变化规律. CO₂ 浓度夏季和秋季随着

水深的加深逐渐升高, 夏季底层水体 CO₂ 浓度明显高于表层水体, 其底层 60 cm 与表层 15 cm 处水体的浓度差值为 18.69 μmol·L⁻¹. 秋季表层 5 cm 水体中 $c(\text{CO}_2)$ 最低, 为 119.41 μmol·L⁻¹, 并与其余深度差异显著. 春季和冬季养殖塘水体中 CO₂ 浓度在垂直方向上无明显变化规律. N₂O 浓度在四季都无明

表 3 养殖塘水体中 CH₄、CO₂ 和 N₂O 浓度垂直变化的差异显著性分析¹⁾

Table 3 Significant analysis of vertical variation in CH₄, CO₂, and N₂O concentrations in the aquaculture pond

气体	季节	同一季节不同深度浓度差异性					
		5 cm	15 cm	30 cm	45 cm	60 cm	底泥表面
CH ₄	春季	a	a	a	a	a	a
	夏季		a	ab	bc	c	
	秋季	b	b	b	b	b	a
	冬季	a	a	a	a	a	a
CO ₂	春季	a	a	a	a	a	a
	夏季		b	b	ab	a	
	秋季	b	a	a	a	a	a
	冬季	a	a	a	a	a	a
N ₂ O	春季	a	a	a	a	a	a
	夏季		a	a	a	a	
	秋季	a	a	a	a	a	a
	冬季	a	a	a	a	a	a

1) 不同小写字母表示在同一季节不同深度下浓度的差异性, 显著性水平 $P < 0.05$; 无字母标记处表示该水深下没有进行水样的采集

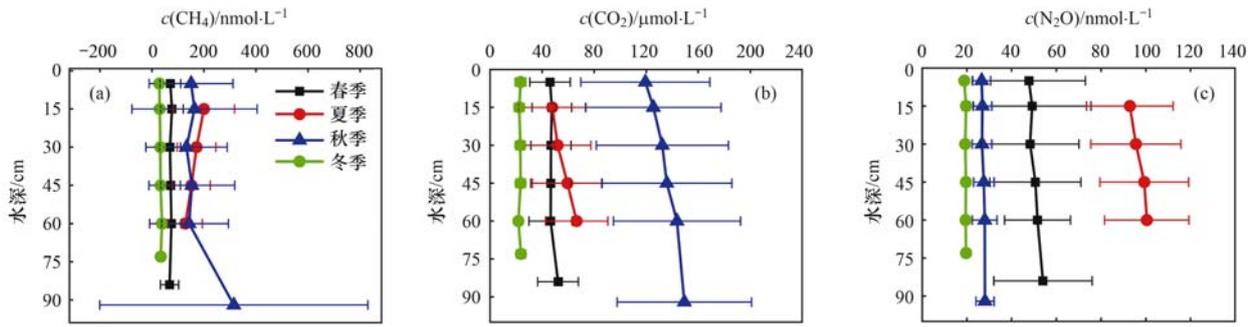


图 4 养殖塘水体中 CH₄、CO₂ 和 N₂O 浓度的垂直变化

Fig. 4 Vertical variation in CH₄, CO₂, and N₂O concentrations in the aquaculture pond

显的垂直变化.

2.3.2 CH₄、CO₂ 和 N₂O 浓度的水平变化特征

春季和夏季 A1 点 CH₄ 浓度均值都显著高于其余 3 个取样点[图 5(a)]. 春季养殖塘 c(CH₄) 均值表现为: A1 > A2 > A3 > A4, 均值分别为 98.42、72.93、66.48 和 49.80 nmol·L⁻¹. 夏季 A1、A2、A3 和 A4 取样点 c(CH₄) 均值分别为 268.20、137.60、135.24 和 110.77 nmol·L⁻¹. 秋季和冬季 4 个取样点

的 CH₄ 浓度并没有表现出显著的空间差异.

不同取样点 CO₂ 浓度均值的空间变化如图 5(b) 所示, 春季 A1 ~ A4 点 c(CO₂) 均值分别为 49.95、49.74、48.25 和 44.97 μmol·L⁻¹, A1 点与 A3 和 A4 点浓度差异显著. 夏季饲料的投放使 A1 点 CH₄ 浓度均值显著高于其余 3 个取样点, A1 ~ A4 点 c(CO₂) 均值分别为 77.24、44.43、48.82 和 55.54 μmol·L⁻¹. 与其他季节不同, 秋季 A1 点 CO₂ 浓度均值最低且与最高值 A4 点间差异显著, 这是由于秋季饲料的投放量大幅度降低且后期不再施加饲料, 此外秋季 A1 点水深为 134 cm, 为水深最深的采样点, 水深的增加会对 CO₂ 浓度产生稀释作用, 导致 A1 点 CO₂ 浓度在秋季为 4 个取样点间的最低值. 冬季 4 个取样点间 CO₂ 浓度不存在明显差异.

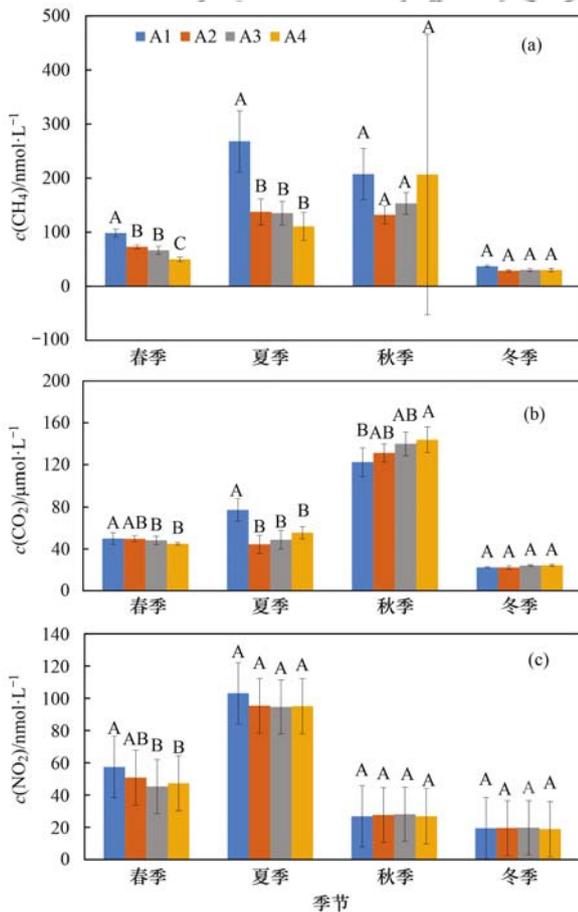
养殖塘取样点间 N₂O 浓度仅在春季表现出显著的空间差异, 其余 3 个季节 4 个取样点间浓度差异不显著[图 5(c)]. 春季 A1、A2、A3 和 A4 点水体中 c(N₂O) 均值分别为 57.39、50.80、45.31 和 47.30 nmol·L⁻¹, 鸡粪的施入使得 A1 点 N₂O 浓度高于其余 3 个取样点, 且与 A3 和 A4 点浓度差异显著.

2.4 养殖塘水体中 CH₄、CO₂ 和 N₂O 浓度时间变化的影响因素

2.4.1 养殖塘水体中 CH₄、CO₂ 和 N₂O 浓度日变化的影响因素

分析 3 种温室气体浓度日变化与各影响因子的相关关系发现(表 4), 春季 CH₄ 浓度的日变化仅与水温呈现显著的负相关, 即水温增加, CH₄ 浓度降低. 夏季 CH₄ 浓度与水温、DO 和 pH 呈极显著正相关. 养殖塘冬季 CH₄ 浓度日变化与水体中 ORP 呈显著正相关, ORP 增加, CH₄ 浓度增加.

养殖塘水体中 CO₂ 浓度的日变化在春季和夏季随水温和 DO 增加而下降, 并且在夏季还与 pH 呈显著的负相关. 秋季 CO₂ 浓度日变化与 DO 和 pH 呈极显著负相关. 冬季 CO₂ 浓度的日变化与各因子



不同大写字母表示不同取样点 CH₄、CO₂ 和 N₂O 浓度均值有显著性差异 (P < 0.05)

图 5 养殖塘不同取样点水体中 CH₄、CO₂ 和 N₂O 浓度均值

Fig. 5 Mean concentrations of CH₄, CO₂, and N₂O

in water at different sampling sites in the aquaculture pond

均无显著的相关性。

春季 N₂O 浓度日变化与水温呈显著正相关, 水温增加, N₂O 浓度升高。夏季 N₂O 浓度与 ORP 呈极显

著正相关。在秋季, N₂O 浓度日变化与 DO 和 pH 呈显著负相关。冬季, N₂O 浓度日变化与各因子之间均无显著相关性。

表 4 养殖塘水体中 CH₄、CO₂ 和 N₂O 浓度日变化影响因素的相关性分析¹⁾

Table 4 Correlation analysis between environmental factors and diurnal variation of CH₄, CO₂, and N₂O concentrations in the aquaculture pond

季节	气体	DO/mg·L ⁻¹	pH	ORP/mV	水温/℃
春季	CH ₄	-0.434	0.146	-0.347	-0.469 *
	CO ₂	-0.886 **	0.255	0.186	-0.787 **
	N ₂ O	-0.043	0.158	0.379	0.513 *
夏季	CH ₄	0.620 **	0.645 **	-0.163	0.536 **
	CO ₂	-0.863 **	-0.856 **	0.180	-0.643 **
	N ₂ O	0.171	0.151	0.518 **	-0.164
秋季	CH ₄	0.212	0.331	0.386	0.275
	CO ₂	-0.890 **	-0.741 **	-0.069	-0.392
	N ₂ O	-0.485 *	-0.558 **	0.284	0.089
冬季	CH ₄	-0.299	-0.368	0.910 *	-0.449
	CO ₂	-0.653	0.593	0.238	0.737
	N ₂ O	0.629	-0.396	-0.297	0.696

1) * 表示 $P < 0.05$, ** 表示 $P < 0.01$

2.4.2 养殖塘水体中 CH₄、CO₂ 和 N₂O 浓度季节变化的影响因素

养殖塘水体中 CH₄、CO₂ 和 N₂O 浓度季节变化与气象因素和水质因子的相关关系见表 5。CH₄ 浓度随气温和水温显著增加。然而, CH₄ 浓度与 DO 和

DOC 呈显著负相关。养殖塘 CO₂ 浓度的季节变化受 DO、pH 和 DOC 及太阳辐射的影响, 随着以上因子增加, CO₂ 浓度显著下降。N₂O 浓度的季节变化与气温、水温和气压存在显著的相关关系, 气温和水温升高 N₂O 浓度增加, 气压增加, N₂O 浓度下降。

表 5 养殖塘水体中 CH₄、CO₂ 和 N₂O 浓度季节变化影响因素的相关性分析¹⁾

Table 5 Correlation analysis between environmental factors and seasonal variations in CH₄, CO₂, and N₂O concentrations in the aquaculture pond

气体	风速 /m·s ⁻¹	气温 /℃	气压 /kPa	水温 /℃	DO /mg·L ⁻¹	pH	ORP /mV	DOC /mg·L ⁻¹	太阳辐射 /W·m ⁻²
CH ₄	-0.259	0.409 *	-0.228	0.431 *	-0.495 **	-0.294	0.084	-0.375 *	/
CO ₂	-0.096	0.276	-0.082	0.253	-0.771 **	-0.756 **	0.234	-0.818 **	-0.560 **
N ₂ O	-0.231	0.802 **	-0.804 **	0.853 **	-0.419	0.025	-0.386	0.098	/

1) * 表示 $P < 0.05$, ** 表示 $P < 0.01$

3 讨论

3.1 养殖塘水体中 CH₄、CO₂ 和 N₂O 浓度的空间变化特征

养殖塘水体中 CH₄、CO₂ 和 N₂O 浓度受饲料投放的影响会产生水平方向上的差异。本研究养殖塘水体夏季 A1 点水体中 CH₄ 和 CO₂ 浓度显著高于其余 3 个取样点。夏季养殖塘每日会在 A1 点左侧进行定时 3 次投放饲料, 较高的饲料投入量和水生动物的排泄物积累会使养殖塘水体中的有机碳含量处于一个较高的水平。春季 A1 点 CH₄ 和 N₂O 浓度为取样点最高值, 这是 A1 点右侧区域施鸡粪导致的。因为动物粪便中存在一定数量的产甲烷菌, 通过一系列的生化作用产生 CH₄^[29], 并且大部分投入的动物粪便残留在水体中并在底泥沉积物中积累, 导致底泥沉积物的有机碳含量增加, 从而促进 CH₄ 的生成和排放^[30], 使水体浓度增加。不仅如此, 鸡粪作为饲

料施入养殖塘后, 溶解在水体会析出大量可溶性有机氮, 经微生物分解后, 使水体氮含量增高, 有利于 N₂O 的生成^[31], 从而使春季 A1 点 N₂O 浓度升高。

在本研究中, 不仅发现了 3 种温室气体的水平空间变化, 而且发现夏季和秋季 CH₄ 和 CO₂ 浓度在垂直方向上随不同水深的变化。秋季 CH₄ 浓度与夏秋季 CO₂ 浓度都随着水深的加深而升高, 在底层水体中达到最高值。与本研究相似, 武汉养殖塘^[12] 和福建闽江河口养虾塘^[19,26] 都发现水体中的 CH₄ 浓度易在夏秋季发生分层现象。底泥厌氧环境下产生的 CH₄ 通过下层水体逐渐扩散到上层水体和大气中, 导致底层 CH₄ 浓度高于中间层和表层。武汉养殖塘还发现秋季水体中 CO₂ 浓度呈现出: 底层 > 中间层 > 表层。夏季和秋季投放的饲料以及水生动物排泄物在底泥沉积物中积累促进了 CH₄ 和 CO₂ 的产生, 从而使得养殖塘水体中 CH₄ 和 CO₂ 浓度在底层达到最高。但是, 本研究发现夏季时养殖塘底层水

体 CH_4 浓度较表层和中间层低,且出现了随水深加深而降低的现象,这可能是由于养殖塘在夏季时 CH_4 主要以冒泡的形式传输,气泡在表层容易破裂,导致其 CH_4 浓度较高.以往利用倒置漏斗法观测本研究养殖塘冒泡通量时发现,夏季时,冒泡为养殖塘 CH_4 的主要排放方式, CH_4 冒泡比例达到了 97.5%^[32]. 同样的,瑞典西南部湖泊冬季 CH_4 通过冒泡传输到表层结冰水体,冰面破裂导致气泡破裂, CH_4 在表层水体被释放,导致其 CH_4 浓度远高于 2 m 水深处的 CH_4 浓度^[33].

3.2 养殖塘水体中 CH_4 、 CO_2 和 N_2O 浓度的时间变化特征及影响因素

已有的研究中,夏季养殖塘水体的 CH_4 和 N_2O 浓度存在日变化特征,例如在印度养殖塘夏季水体中 CH_4 浓度^[14]和福建闽江河口养虾塘^[15]养殖初期和中期(6月下旬~8月中旬) N_2O 浓度在午后达到浓度高值,且都与水温呈现显著正相关关系. 本研究发现受水温的调节,夏、秋和冬季养殖塘水体中 CH_4 和 N_2O 浓度都表现为在午间或午后达到日间浓度的最高值. 高水温环境下水体中产甲烷菌、硝化细菌和反硝化菌的活性增强,有利于 CH_4 和 N_2O 的生成^[5,33-35],从而使 CH_4 和 N_2O 浓度升高. 但是,本研究发现,春季 CH_4 浓度的日变化与水温呈现显著的负相关. 由于春季正值养殖初期,养殖塘除投入鸡粪外并未投放饲料,底泥有机物水平远低于夏季,限制了底泥沉积物中 CH_4 的产生,但是水温的升高会使水体中 CH_4 的溶解度降低,从而导致水温升高 CH_4 浓度降低. 此外,春季养殖塘 5 cm 水体与底泥表面水体间水温的差异在 08:00、12:00 和 16:00 分别为 2.6、0.5 和 0.1 $^{\circ}\text{C}$, 08:00 时养殖塘表层水体水温明显高于底泥表面水体,这会导致养殖塘水体层结不稳定出现翻转^[36],将底泥沉积物中产生的 CH_4 带到水体中,从而使水体中 CH_4 浓度在 08:00 时达到一天最高值. 本研究中发现在春季和夏季养殖塘水体中 CO_2 浓度的日变化与水温表现出了极显著的负相关关系,即在水温较高的午后, CO_2 浓度最低. 随着午后水温升高,水生植物光合作用增强,吸收水中的 CO_2 , 从而使其浓度在午后达到最小^[37,38]. 并且,本研究还发现, CO_2 浓度日变化在春、夏和秋季还与 DO 呈极显著负相关,这同样与水生植物的光合作用有关,光合作用释放的氧气使养殖塘水体中 DO 升高, CO_2 浓度降低,这也进一步佐证了养殖塘水体中 CO_2 浓度的日变化会受到水生植物光合作用的控制.

有研究发现养殖塘水体中 CH_4 、 CO_2 和 N_2O 浓度具有明显的季节变化特征. 例如,句容流域养殖塘

N_2O 浓度与温度呈显著正相关,在夏季达到最高值^[10]. 本研究发现 N_2O 浓度受到气温和水温的调控,在夏季达到四季最高值. 夏季养殖塘气温和水温较高,水体中硝化细菌以及反硝化细菌的活性较强,有利于养殖塘水体中 N_2O 的产生,使夏季 N_2O 浓度达到最高值. 在温度影响下,养殖塘水体中 CH_4 浓度高值出现在夏季^[16,39]. 但是本研究发现 CH_4 浓度在温度和 DO 的共同影响下,在秋季最高,这是由于秋季水温虽较春季和夏季要低,但秋季养殖塘水体低 DO 环境不仅促进了 CH_4 浓度的升高,还降低了 CH_4 在传输过程中被氧化的概率,从而使秋季养殖塘水体中 CH_4 浓度最高. 闽江河口养虾塘夏季水温高, DO 和 pH 较低,使得 CO_2 浓度出现最高值^[26]. 本研究发现 CO_2 浓度的季节变化不仅受到 DO 和 pH 影响,还与太阳辐射呈现显著负相关,夏季养殖塘太阳辐射远强于秋季,水生植物的生长繁盛,光合作用强于秋季,对 CO_2 的吸收作用更强,并且秋季养殖塘水体 pH 最低, CO_2 不易形成碳酸盐,从而导致秋季 CO_2 浓度为四季最高值. 与已有研究不同^[40-42], 本研究中发现 CH_4 和 CO_2 浓度季节变化与 DOC 呈显著负相关关系. 出现这一现象的原因可能是由于 DOC 会随着初级生产力的增加而增加,高水平的初级生产力会使水体 CO_2 浓度降低,可能掩盖了 DOC 对 CO_2 的影响^[43]. 对于 CH_4 而言,以往在本研究养殖塘进行的试验表明,冒泡为 CH_4 的主要传输途径,年平均冒泡通量占比约为 74.14%^[44], DOC 增加可能导致产生的 CH_4 更多以冒泡形式排出,因此并未使水体中的 CH_4 浓度增加. 在对捷克养鱼塘研究中也发现 CH_4 浓度在 DOC 低、饲料投放量低以及水生植被繁盛的养殖塘反而较高,其原因在于 DOC 不是 CH_4 产生的主要来源, CH_4 浓度的升高可能是养殖塘水体中水生植物生长时通过光合作用为产甲烷菌提供底物以及成熟后植物残体被微生物分解后有机质含量增加的结果,而不是 DOC 的积累造成^[45]. 由此可见, DOC 对水体 CH_4 浓度的影响还存在不确定性.

3.3 养殖塘水体中 CH_4 、 CO_2 和 N_2O 浓度水平

本研究养殖塘水体中 CH_4 、 CO_2 和 N_2O 浓度与其它研究的对比如表 6 所示. 本养殖塘 CH_4 浓度与调研的养殖塘相比处于一个较低的量级,与天津盐场养虾塘^[46]相当,然而本研究观测的 CO_2 和 N_2O 浓度较其余养殖塘要高. 造成此结果的原因可能有以下几点. ①气候水化学条件:福建闽江和九龙河口^[15,26,47]地处亚热带,气温较高,微生物活性强. 养殖虾塘和蟹塘^[39]水深较本研究养鱼塘浅,降低 CH_4

在水体中传输时被氧化的概率,其水体中 CH₄ 浓度高于本研究. 印度养鱼塘作为人工养殖塘,利用废水作为主要饲料来源,水体中 TOC 和 TIC 浓度分别为 (348.05 ± 154.9) mg·L⁻¹ 和 (95.6 ± 22.0) mg·L⁻¹, 远远高于本养殖塘的 DOC (3.72 ~ 24.84 mg·L⁻¹), 高 TOC 和 TIC 的水体环境使得其 CH₄ 浓度为本养殖塘的 3 ~ 10 倍^[14]. 江苏句容与本研究养殖塘同属长江三角洲,且地理位置毗邻,气候条件相似,但由于其研究的对象还包括一些天然池塘,无养殖水生动物,没有进行定期投食等养殖措施,水体富营养化程度低,从而导致水体中 N₂O 浓度略低于本研究结果^[35,48]. ②养殖面积:武汉养鱼塘面积较大,为本研究养殖塘的 1.57 倍,面积的增大增加了饲料投放量和提高了养殖密度,使水体中 CH₄、CO₂ 和 N₂O 浓度高于本养殖塘^[12]. ③水生植物:苏州蟹塘在养殖期间会施肥料促进浮游植物和大型植被的生长^[39],水生植物及其根系分泌的有机质为产甲烷菌提供底物^[49,50],水生植物的光合作用还会使 DO 升高,抑制

反硝化作用^[11,51],从而导致其水体中 CH₄ 浓度远远高于本研究养殖塘, N₂O 浓度低于本研究养殖塘. ④人为管理措施:福建河口养虾塘投放饲料时间为 6 ~ 11 月,在养殖末期(9 月中旬 ~ 11 月下旬)还会投放大量饲料,养殖中期(7 月中旬 ~ 9 月中旬)和养殖末期(9 月中旬 ~ 11 月下旬)饲料投放速率分别为 50 ~ 55 kg·(hm²·d)⁻¹ 和 40 ~ 50 kg·(hm²·d)⁻¹^[26,47],高于本研究养殖塘的饲料投放率,大量的饲料为产甲烷菌提供底物,使其水体中 CH₄ 浓度远高于本养殖塘. 本研究中春季和冬季鸡粪的大量投放使水体中有机碳含量和富营养化水平提高,可能是造成 CO₂ 和 N₂O 浓度高于其余养殖塘的原因. ⑤传输途径:已有研究证实,冒泡为本研究养殖塘 CH₄ 的主要传输途径^[32,44],这导致本研究观测到的水体中 CH₄ 浓度低于其余养殖塘. ⑥观测时间:本研究进行的密集试验持续时间较长,且较为集中,春季和夏季气温、水温较高,所观测的结果代表了季节的最高浓度,从而导致 CO₂ 和 N₂O 浓度较高.

表 6 养殖塘水体中 CH₄、CO₂ 和 N₂O 浓度对比Table 6 Comparisons of CH₄, CO₂, and N₂O concentrations in different aquaculture ponds

地点	养殖类型	c(CH ₄) nmol·L ⁻¹	c(CO ₂) /μmol·L ⁻¹	c(N ₂ O) /nmol·L ⁻¹	文献
福建闽江河口	养虾塘	1 300 ~ 55 900	18.11 ~ 79.60	5.08 ~ 14.12	[19,31]
福建九龙江口	养虾塘	140 ~ 680	13.03 ~ 66.4	/	[47]
武汉	养鱼塘	69.98 ~ 5255.62	19.09 ~ 247.95	7.5 ~ 359.86	[12]
天津	围垦养虾塘	20 ~ 70	12.46 ~ 69.71	6.48 ~ 9.95	[46]
天津	盐场养虾塘	10 ~ 160	9.60 ~ 15.62	5.52 ~ 7.31	[46]
江苏句容	池塘 + 养殖塘	/	/	5 ~ 50	[35,48]
江苏苏州	蟹塘	3760	/	1.97 ~ 38.1	[39]
捷克	养鱼塘	60 ~ 4800	/	/	[45]
印度	养鱼塘 1	328.13 ~ 945.62	/	/	[14]
印度	养鱼塘 2	139.38 ~ 318.21	/	/	[14]
安徽全椒	鱼-蚌混养塘	31.93 ~ 162.66	31.15 ~ 131.68	19.37 ~ 75.62	本研究

4 结论

(1) 水体中 CH₄ 和 N₂O 浓度的日变化受水温的影响,夏、秋和冬季往往在午间或午后出现浓度高值. 水温的变化以及养殖塘水生植物的光合作用,使 CO₂ 浓度在四季都表现出午后出现最低值的日变化特征. 养殖塘水体中 CH₄、CO₂ 和 N₂O 浓度季节变化特征明显, c(CH₄) 和 c(CO₂) 在秋季最高,均值分别为 176.34 nmol·L⁻¹ 和 134.37 μmol·L⁻¹, c(N₂O) 在夏季最高,浓度均值为 97.05 nmol·L⁻¹. c(CH₄)、c(CO₂) 和 c(N₂O) 都在冬季达到最低值,均值分别为 32.75 nmol·L⁻¹、23.10 μmol·L⁻¹ 和 19.41 nmol·L⁻¹. CH₄ 浓度的季节变化特征主要受气温、水温和 DO 主导,CO₂ 浓度的季节变化特征受水生植物光合作用和 pH 影响,N₂O 浓度的季节变化特征

受气温和水温影响.

(2) 养殖塘在空间上,春季鸡粪及夏季饲料的投放会显著地提高该区域 3 种温室气体浓度,春季该区域 CH₄ 和 N₂O 浓度分别是其他区域的 1.34 ~ 1.98 倍和 1.13 ~ 1.26 倍,夏季该区域 CH₄ 和 CO₂ 浓度分别是其他区域的 1.95 ~ 2.42 倍和 1.39 ~ 1.74 倍. 垂直方向上,CH₄ 和 CO₂ 浓度在夏秋季表现出显著的垂直变化,夏季养殖塘 CH₄ 浓度随水深的加深而降低,秋季 CH₄ 浓度随水深的加深而升高.CO₂ 浓度在夏季和秋季都表现为随着水深的加深而升高. 在 4 个季节中,水体中 N₂O 浓度各深度下浓度分布均匀,无明显的变化规律.

(3) 与调研的养殖塘水体中 CH₄、CO₂ 和 N₂O 浓度进行对比,本养殖塘水体 c(CH₄) 较低,范围为 31.93 ~ 162.66 nmol·L⁻¹, c(CO₂) 和 c(N₂O) 较其余

养殖塘较高,范围分别为 31.15 ~ 131.68 $\mu\text{mol}\cdot\text{L}^{-1}$ 和 19.37 ~ 75.62 $\text{nmol}\cdot\text{L}^{-1}$.

参考文献:

- [1] FAO. The state of world fisheries and aquaculture: meeting the sustainable development goals[M]. Rome: FAO, 2018.
- [2] 农业农村部渔业渔政管理局, 全国水产技术推广总站, 中国水产学会. 中国渔业统计年鉴 2020[M]. 北京: 中国农业出版社, 2020.
Fisheries Bureau of Agriculture Ministry of China, National Aquatic Technology Promotion Station, China Society of Fisheries. China fishery statistical yearbook 2020[M]. Beijing: China Agriculture Press, 2020.
- [3] Yang P, Lai D Y F, Huang J F, *et al.* Effect of drainage on CO_2 , CH_4 , and N_2O fluxes from aquaculture ponds during winter in a subtropical estuary of China[J]. *Journal of Environmental Sciences*, 2018, **65**: 72-82.
- [4] Yuan J J, Xiang J, Liu D Y, *et al.* Rapid growth in greenhouse gas emissions from the adoption of industrial-scale aquaculture[J]. *Nature Climate Change*, 2019, **9**(4): 318-322.
- [5] Holgerson M A. Drivers of carbon dioxide and methane supersaturation in small, temporary ponds[J]. *Biogeochemistry*, 2015, **124**(1-3): 305-318.
- [6] IPCC. 2019 Refinement to the 2006 IPCC guidelines for national greenhouse gas inventory[R]. Japan: IPCC, 2019.
- [7] 蔡博峰, 朱松丽, 于胜民, 等. 《IPCC 2006 年国家温室气体清单指南 2019 修订版》解读[J]. *环境工程*, 2019, **37**(8): 1-11.
Cai B F, Zhu S L, Yu S M, *et al.* The interpretation of 2019 refinement to the 2006 IPCC guidelines for national greenhouse gas inventory[J]. *Environmental Engineering*, 2019, **37**(8): 1-11.
- [8] Cole J J, Caraco N F. Atmospheric exchange of carbon dioxide in a low-wind oligotrophic lake measured by the addition of SF_6 [J]. *Limnology and Oceanography*, 1998, **43**(4): 647-656.
- [9] Duc N T, Silverstein S, Lundmark L, *et al.* Automated flux chamber for investigating gas flux at water-air interfaces[J]. *Environmental Science & Technology*, 2013, **47**(2): 968-975.
- [10] 卞航. 句容水库农业小流域水体中 CO_2 、 CH_4 、 N_2O 浓度与通量研究[D]. 南京: 南京信息工程大学, 2018.
Bian H. Research on the concentration and flux of CO_2 、 CH_4 、 N_2O in agricultural watershed of Jurong reservoir[D]. Nanjing: Nanjing University of Information Science and Technology, 2018.
- [11] 安桐彤, 许潇方, 高强, 等. 我国养殖水体 N_2O 排放特征及其影响因素研究进展[J]. *生态学杂志*, 2021, **40**(1): 266-277.
An T T, Xu X F, Gao Q, *et al.* Spatiotemporal distribution and the influencing factors of nitrous oxide emissions from aquaculture water in China: a review[J]. *Chinese Journal of Ecology*, 2021, **40**(1): 266-277.
- [12] 兰晶. 养殖水体温室气体的溶存与排放及其影响因素的研究[D]. 武汉: 华中农业大学, 2015.
Lan J. Greenhouse gases concentration, emission and influence factors in farming waters[D]. Wuhan: Huazhong Agricultural University, 2015.
- [13] Hu B B, Xu X F, Zhang J F, *et al.* Diurnal variations of greenhouse gases emissions from reclamation mariculture ponds[J]. *Estuarine, Coastal and Shelf Science*, 2020, **237**, doi: 10.1016/j.ecss.2020.106677.
- [14] Shaher S, Chanda A, Das S, *et al.* Summer methane emissions from sewage water-fed tropical shallow aquaculture ponds characterized by different water depths[J]. *Environmental Science and Pollution Research*, 2020, **27**(15): 18182-18195.
- [15] 金宝石, 杨平, 赵宽, 等. 闽江河口养殖塘水体溶存氧化亚氮浓度及扩散通量研究[J]. *环境科学学报*, 2019, **39**(7): 2296-2305.
Jin B S, Yang P, Zhao K, *et al.* Dissolved nitrous oxide concentration and diffusive nitrous oxide fluxes in the aquaculture ponds in the Min River estuary[J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 2019, **39**(7): 2296-2305.
- [16] Yang P, Zhang Y, Yang H, *et al.* Large fine-scale spatiotemporal variations of CH_4 diffusive fluxes from shrimp aquaculture ponds affected by organic matter supply and aeration in Southeast China[J]. *Journal of Geophysical Research*, 2019, **124**(5): 1290-1307.
- [17] Yang P, Wang D Q, Lai D Y F, *et al.* Spatial variations of N_2O fluxes across the water-air interface of mariculture ponds in a subtropical estuary in Southeast China[J]. *Journal of Geophysical Research*, 2020, **125**, doi: 10.1029/2019JG005605.
- [18] Zhang Y F, Yang P, Yang H, *et al.* Plot-scale spatiotemporal variations of CO_2 concentration and flux across water-air interfaces at aquaculture shrimp ponds in a subtropical estuary[J]. *Environmental Science and Pollution Research*, 2019, **26**(6): 5623-5637.
- [19] Tong C, Bastviken D, Tang K W, *et al.* Annual CO_2 and CH_4 fluxes in coastal earthen ponds with *Litopenaeus vannamei* in Southeastern China[J]. *Aquaculture*, 2021, **545**, doi: 10.1016/j.aquaculture.2021.737229.
- [20] Gerardo-Nieto O, Astorga-España M S, Mansilla A, *et al.* Initial report on methane and carbon dioxide emission dynamics from sub-Antarctic freshwater ecosystems: a seasonal study of a lake and a reservoir[J]. *Science of the Total Environment*, 2017, **593-594**: 144-154.
- [21] Martinez-Cruz K, Sepulveda-Jauregui A, Greene S, *et al.* Diel variation of CH_4 and CO_2 dynamics in two contrasting temperate lakes[J]. *Inland Waters*, 2020, **10**(3): 333-347.
- [22] 肖启涛. 太湖水-气界面温室气体 (CO_2 、 CH_4 、 N_2O) 通量研究[D]. 南京: 南京信息工程大学, 2014.
Xiao Q T. Study on greenhouse gases (CO_2 , CH_4 , and N_2O) fluxes of water-air interface in Lake Taihu[D]. Nanjing: Nanjing University of Information Science and Technology, 2014.
- [23] Bastviken D, Cole J J, Pace M L, *et al.* Fates of methane from different lake habitats: connecting whole-lake budgets and CH_4 emissions[J]. *Journal of Geophysical Research*, 2008, **113**(G2), doi: 10.1029/2007JG000608.
- [24] Wang F S, Cao M, Wang B L, *et al.* Seasonal variation of CO_2 diffusion flux from a large subtropical reservoir in East China[J]. *Atmospheric Environment*, 2015, **103**: 129-137.
- [25] Roland F A E, Darchambeau F, Morana C, *et al.* Nitrous oxide and methane seasonal variability in the epilimnion of a large tropical meromictic lake (Lake Kivu, East-Africa)[J]. *Aquatic Sciences*, 2017, **79**(2): 209-218.
- [26] 张逸飞. 闽江河口养虾塘水体甲烷和二氧化碳溶存浓度与通量研究[D]. 福州: 福建师范大学, 2019.
Zhang Y F. Dissolved methane and carbon dioxide concentration and flux in coastal aquaculture shrimp ponds of Min River Estuary[D]. Fuzhou: Fujian Normal University, 2019.
- [27] Johnson K M, Hughes J E, Donaghay P L, *et al.* Bottle-calibration static head space method for the determination of methane dissolved in seawater[J]. *Analytical Chemistry*, 1990, **62**(21): 2408-2412.

- [28] Wanninkhof R. Relationship between wind speed and gas exchange over the ocean [J]. *Journal of Geophysical Research*, 1992, **97**(C5): 7373-7382.
- [29] Guo G, Chen Y X, Tian F, *et al.* Effects of livestock manure properties and temperature on the methanogen community composition and methane production during storage [J]. *Environmental Technology*, 2020, **41**(2): 131-140.
- [30] 王娇, 肖薇, 张秀芳, 等. 养殖塘 CH₄ 排放特征及其影响因素 [J]. *环境科学*, 2019, **40**(12): 5503-5514.
Wang J, Xiao W, Zhang X F, *et al.* Methane emission characteristics and its influencing factors over aquaculture ponds [J]. *Environmental Science*, 2019, **40**(12): 5503-5514.
- [31] 郭谦谦. 闽江河口围垦养虾塘水体溶存 N₂O 浓度及水-气界面 N₂O 通量研究 [D]. 福州: 福建师范大学, 2019.
Guo Q Q. Dissolved N₂O concentrations and N₂O fluxes at the water-atmosphere interface in coastal reclaimed shrimp ponds in the Min River Estuary [D]. Fuzhou: Fujian Normal University, 2019.
- [32] 张秀芳, 肖薇, 张弥, 等. 小型池塘水-气界面 CH₄ 冒泡通量的观测 [J]. *环境科学*, 2018, **39**(2): 691-702.
Zhang X F, Xiao W, Zhang M, *et al.* Quantification of methane ebullition flux from small ponds using the inverted-funnel method [J]. *Environmental Science*, 2018, **39**(2): 691-702.
- [33] Natchimuthu S, Sundgren I, Gålfalk M, *et al.* Spatio-temporal variability of lake CH₄ fluxes and its influence on annual whole lake emission estimates [J]. *Limnology and Oceanography*, 2016, **61**(S1): S13-S26.
- [34] DelSontro T, McGinnis D F, Sobek S, *et al.* Extreme methane emissions from a Swiss hydropower reservoir: contribution from bubbling sediments [J]. *Environmental Science & Technology*, 2010, **44**(7): 2419-2425.
- [35] Xiao Q T, Hu Z H, Fu C S, *et al.* Surface nitrous oxide concentrations and fluxes from water bodies of the agricultural watershed in eastern China [J]. *Environmental Pollution*, 2019, **251**: 185-192.
- [36] 贾磊, 蒲旖旎, 杨诗俊, 等. 太湖藻型湖区 CH₄、CO₂ 排放特征及其影响因素分析 [J]. *环境科学*, 2018, **39**(5): 2316-2329.
Jia L, Pu Y N, Yang S J, *et al.* Analysis of greenhouse gas emission characteristics and their influencing factors in the algae zone of lake Taihu [J]. *Environmental Science*, 2018, **39**(5): 2316-2329.
- [37] Natchimuthu S, Selvam B P, Bastviken D. Influence of weather variables on methane and carbon dioxide flux from a shallow pond [J]. *Biogeochemistry*, 2014, **119**(1-3): 403-413.
- [38] Sellers P, Hesslein R H, Kelly C A K. Continuous measurement of CO₂ for estimation of air-water fluxes in lakes: an in situ technique [J]. *Limnology and Oceanography*, 1995, **40**(3): 575-581.
- [39] Yuan J J, Liu D Y, Xiang J, *et al.* Methane and nitrous oxide have separated production zones and distinct emission pathways in freshwater aquaculture ponds [J]. *Water Research*, 2021, **190**, doi: 10.1016/j.watres.2020.116739.
- [40] 胡志强. 稻田与蟹/鱼养殖湿地甲烷和氧化亚氮排放的观测比较研究 [D]. 南京: 南京农业大学, 2015.
Hu Z Q. A comparison of methane and nitrous oxide emissions between paddy fields and crab/fish farming wetlands in Southeast China [D]. Nanjing: Nanjing Agricultural University, 2015.
- [41] Hope D, Palmer S M, Billett M F, *et al.* Variations in dissolved CO₂ and CH₄ in a first-order stream and catchment: an investigation of soil-stream linkages [J]. *Hydrological Processes*, 2004, **18**(17): 3255-3275.
- [42] Lazzarino J K, Bachmann R W, Hoyer M V, *et al.* Carbon dioxide supersaturation in Florida lakes [J]. *Hydrobiologia*, 2009, **627**(1): 169-180.
- [43] Balmer M B, Downing J A. Carbon dioxide concentrations in eutrophic lakes: undersaturation implies atmospheric uptake [J]. *Inland Waters*, 2011, **1**(2): 125-132.
- [44] 贾磊, 张弥, 蒲旖旎, 等. 养殖塘 CH₄ 通量时空变化特征及其影响因素 [J]. *中国环境科学*, 2021, **41**(6): 2910-2922.
Jia L, Zhang M, Pu Y N, *et al.* Temporal and spatial characteristics of methane flux and its influencing factors in a typical aquaculture pond [J]. *China Environmental Science*, 2021, **41**(6): 2910-2922.
- [45] Rutegwa M, Gebauer R, Vesely L, *et al.* Diffusive methane emissions from temperate semi-intensive carp ponds [J]. *Aquaculture Environment Interactions*, 2019, **11**: 19-30.
- [46] 许潇方. 天津海水养殖塘温室气体排放特征及其影响因素研究 [D]. 天津: 天津师范大学, 2020.
- [47] 杨平. 福建主要河口滨海围垦养虾塘养殖期 CO₂ 和 CH₄ 动态研究 [D]. 福州: 福建师范大学, 2017.
Yang P. Dynamics of carbon dioxide and methane in coastal reclaimed shrimp ponds during culture period of two main estuaries, Fuzhou [D]. Fuzhou: Fujian Normal University, 2017.
- [48] Yan X Y, Cai Z C, Yang R, *et al.* Nitrogen budget and riverine nitrogen output in a rice paddy dominated agricultural watershed in eastern China [J]. *Biogeochemistry*, 2011, **106**(3): 489-501.
- [49] Wang Y H, Yang H, Ye C, *et al.* Effects of plant species on soil microbial processes and CH₄ emission from constructed wetlands [J]. *Environmental Pollution*, 2013, **174**: 273-278.
- [50] Liu S W, Hu Z Q, Wu S, *et al.* Methane and nitrous oxide emissions reduced following conversion of rice paddies to inland crab-fish aquaculture in Southeast China [J]. *Environmental Science & Technology*, 2016, **50**(2): 633-642.
- [51] 丁维新, 袁俊吉, 刘德燕, 等. 淡水养殖系统温室气体 CH₄ 和 N₂O 排放量研究进展 [J]. *农业环境科学学报*, 2020, **39**(4): 749-761.
Ding W X, Yuan J J, Liu D Y, *et al.* CH₄ and N₂O emissions from freshwater aquaculture [J]. *Journal of Agro-Environment Science*, 2020, **39**(4): 749-761.

CONTENTS

Temporal and Spatial Variation Characteristics of Heavy Metal in Atmospheric Deposition in China from 2000 to 2018	CHEN Qi-yong, GAO Yun-bing, NI Run-xiang, <i>et al.</i>	(4413)
Simulation of PM _{2.5} Concentration Based on Optimized Indexes of 2D/3D Urban Form	LI Sha, ZOU Bin, LIU Ning, <i>et al.</i>	(4425)
Characteristics of Carbonaceous Species in PM _{2.5} in Chengdu Under the Background of Emission Reduction	CHEN Lu-yao, YU Yang-chun, HUANG Xiao-juan, <i>et al.</i>	(4438)
Characteristics and Health Risk Assessment of Trace Elements in Atmospheric PM ₁ During Autumn and Winter in Qingdao	LIU Zi-yang, ZHANG Yi-sheng, ZHANG Hou-yong, <i>et al.</i>	(4448)
Pollution Characteristics and Source Analysis of Atmospheric PM _{2.5} -bound Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in a Port Area	WANG Peng-cheng, YANG Ling-xiao, BIE Shu-jun, <i>et al.</i>	(4458)
Size Distribution and Source Apportionment of Road Particles During Winter in Tianjin	ZHANG Guo-tao, YIN Bao-hui, BAI Wen-yu, <i>et al.</i>	(4467)
Characteristics and Impact Factors of Number Concentration of Primary Biological Aerosol Particles in Beijing	LIANG Lin-lin, LIU Chang, LIU Xu-yan, <i>et al.</i>	(4475)
Characteristic Analysis and Source Apportionment of VOCs in Urban Areas of Beijing in Summer	MENG Xiang-lai, SUN Yang, LIAO Ting-ting, <i>et al.</i>	(4484)
Characteristics and Source Apportionment of Volatile Organic Compounds (VOCs) in a Typical Industrial Area in Dongguan During Periods of Ozone and Non-ozone Pollution in Summer	ZHOU Zhen, XIAO Lin-hai, FEI Lei-lei, <i>et al.</i>	(4497)
Temporal and Spatial Variation in Odor Pollution and Membrane Barrier Effect in Municipal Solid Waste Landfill	HE Pin-jing, LI Jian-chen, LÜ Fan, <i>et al.</i>	(4506)
Comparison of Health Risk from Sources of Perfluoroalkyl Substances in Taihu Lake for Different Years	WU Ting, SUN Shan-wei, FAN Jing-pu, <i>et al.</i>	(4513)
Pollution Characteristics and Source Apportionment of Typical and Emerging Per- and Polyfluoroalkylated Substances in Tuojiang River Basin	SONG Jiao-jiao, WANG Yi-mei, SUN Jing, <i>et al.</i>	(4522)
Speciation and Risk of Heavy Metals in Surface Sediments of Different Types of Water Bodies in Baiyangdian Lake	XU Meng-ya, ZHANG Chao, SHAN Bao-qing, <i>et al.</i>	(4532)
Distribution Coefficient of QNs in Urban Typical Water and Its Main Environmental Influencing Factors	JU Ze-jia, FU Yu, ZHAO Xin-yu, <i>et al.</i>	(4543)
Ecological Risk Assessment of Quinolones Antibiotics and the Correlation Analysis Between QNs and Physical-Chemical Parameters in Groundwater, Shijiazhuang City	CHEN Hui, JU Ze-jia, ZHAO Xin-yu, <i>et al.</i>	(4556)
Characteristics and Sources of DOM in Lake Sediments Under Different Inundation Environments	CHEN Jia, LI Zhong-wu, JIN Chang-sheng, <i>et al.</i>	(4566)
Characteristics of Phytoplankton Community Structure and Their Relationships with Environmental Factors in Autumn in Qinhe River Basin of Jincheng Region	GAO Meng-die, LI Yan-fen, LI Yan-li, <i>et al.</i>	(4576)
Integrated Assessment of Runoff Quality from Green Roofs with Different Configurations	ZHANG Sun-xun, ZHANG Shou-hong, YAN Jing, <i>et al.</i>	(4587)
Degradation of Chloroquine Phosphate by UV-activated Persulfate	LI Yang, XU Bo-hui, DENG Lin, <i>et al.</i>	(4597)
Removal Performance of Suspended Solid (SS) and Organic Compounds in the Pre-treatment of Actual Pharmaceutical Wastewater by Microbubble Ozonation	LIU Chun, CHEN Rui, ZHANG Jing, <i>et al.</i>	(4608)
Effects of Wastewater Discharge on Antibiotic Resistance Genes and Microbial Community in a Coastal Area	CHEN Jia-yu, SU Zhi-guo, YAO Peng-cheng, <i>et al.</i>	(4616)
Effects of Biochar and Straw Returning on Soil Fungal Community Structure Diversity in Cotton Field with Long-term Brackish Water Irrigation	GUO Xiao-wen, CHEN Jing, LU Xiao-yu, <i>et al.</i>	(4625)
Effects of Organic Materials on Phosphorus Fractions and <i>phoD</i> -harboring Bacterial Community in Karst Soil	XIA Xin, QIAO Hang, SUN Qi, <i>et al.</i>	(4636)
Effects of Different Vegetation Types on Soil Microbial Functional Genes and Enzyme Activities in Reclaimed Coal Mine	NING Yue-wei, LIU Yong, ZHANG Hong, <i>et al.</i>	(4647)
Effects of Biochar Application on Yellow Soil Nutrients and Enzyme Activities	YUAN Fang, LI Kai-yu, YANG Hui, <i>et al.</i>	(4655)
Changes in Soil Bacterial Community Diversity in Degraded Patches of Alpine Meadow in the Source Area of the Yellow River	SUN Hua-fang, LI Xi-lai, JIN Li-qun, <i>et al.</i>	(4662)
Effects of Simulated Nitrogen Deposition on Soil Microbial Carbon Metabolism in <i>Calamagrostis angustifolia</i> Wetland in Sanjiang Plain	WENG Xiao-hong, SUI Xin, LI Meng-sha, <i>et al.</i>	(4674)
Spatial Distribution of Quinolone Antibiotics and Its Correlation Relationship with Microbial Community in Soil of Shijiazhuang City	ZHAO Xin-yu, JU Ze-jia, CHEN Hui, <i>et al.</i>	(4684)
Composition Characteristics and Construction Mechanism of Microbial Community on Microplastic Surface in Typical Redox Environments	GONG Zhi-wei, MA Jie, SU Qu, <i>et al.</i>	(4697)
Annual Nitrogen Removal Efficiency and Change in Abundance of Nitrogen Cycling Microorganisms in Swine Wastewater Treated by Crop Straw Materials	LIU Ming-yu, XIA Meng-hua, JIANG Lei, <i>et al.</i>	(4706)
Effects of External Carbon Sources on Ultimate Nitrogen Removal Performance and Microbial Community in Secondary Effluent Treating Process	WANG Wei, ZHAO Zhong-yuan, ZHANG Xin, <i>et al.</i>	(4717)
Microbial Community Structure of Activated Sludge for Total Nitrogen Upgrading Project	LI Hai-song, WANG Ke-dan, CHEN Xiao-lei, <i>et al.</i>	(4727)
Analysis of Microbial Interaction Law of Mud Membrane in IFAS Process for Treating Low Carbon Source Sewage in South China	HE Jun-guo, JIANG Wei-xun, HE Zhuo-yi, <i>et al.</i>	(4736)
Abundances and Morphology Patterns of Microplastics Under Different Land Use Types on the Loess Plateau	HAO Yong-li, HU Ya-xian, BAI Xiao-xiong, <i>et al.</i>	(4748)
Evaluation of Heavy Metal Content, Sources, and Potential Ecological Risks in Soils of Southern Hilly Areas	WANG Yu, XIN Cun-lin, YU Shi, <i>et al.</i>	(4756)
Risk Assessment and Attribution Analysis of "Five Toxic" Heavy Metals in Cultivated Land in Lanzhou	ZHANG Li-rui, PENG Xin-bo, MA Yan-long, <i>et al.</i>	(4767)
Distribution Characteristics and Risk Assessment of Heavy Metal Pollution in Farmland Soils and Crops in Luancheng, Shijiazhuang City	MENG Xiao-fei, GUO Jun-mei, YANG Jun-xing, <i>et al.</i>	(4779)
Distribution Characteristics and Risk Assessment of Antimony in Typical Urban Soil	SHEN Cheng, YE Wen-juan, QIAN Shi-ying, <i>et al.</i>	(4791)
Contamination Assessment and Source Apportionment of Soil Heavy Metals in Typical Villages and Towns in a Nonferrous Metal Mining City	WANG Feng, HUANG Yan-huan, LI Ru-zhong, <i>et al.</i>	(4800)
Effect of Citric Acid and Mowing on Enhancing the Remediation of Cadmium Contaminated Soil by Napier Grass (<i>Pennisetum purpureum</i> Schum)	TANG Qi, WU Gang-fan, GU Jiao-feng, <i>et al.</i>	(4810)
Arsenic Methylation Efficiency Changes During Paddy Soil Drying and Its Key Influencing Factors Analysis	ZHANG Yue, LI Ling-yi, WEN Jiong, <i>et al.</i>	(4820)
Effects of Exogenous Jasmonic Acid on Arsenic Accumulation and Response to Stress in Roots of Rice Seedlings	LI Yan, HUANG Yi-zong, BAO Qiong-li, <i>et al.</i>	(4831)
Effects of Straw Returning and Fertilizer Application on Soil Nutrients and Winter Wheat Yield	SONG Jia-jie, XU Xi-yang, BAI Jin-ze, <i>et al.</i>	(4839)
Effect of Winter Cover Cropping on Soil Greenhouse Gas Emissions in a Dryland Spring Maize Field on the Loess Plateau of China	ZHANG Shao-hong, WANG Jun, FANG Zhen-wen, <i>et al.</i>	(4848)
Detection of Influencing Factors of Spatial Variability of Soil Respiration in Pangqiangou Nature Reserve	LI Xiao-min, YAN Jun-xia, DU Zi-qiang, <i>et al.</i>	(4858)
Temporal and Spatial Variation Characteristics of Methane, Carbon Dioxide, and Nitrous Oxide Concentrations and the Influencing Factors in Small Aquaculture Pond	SHI Jie, ZHANG Mi, QIU Ji-li, <i>et al.</i>	(4867)
Effect of Butyl Xanthate on Pb ²⁺ and Cd ²⁺ Adsorption by Soil Around a Dressing Plant	HU Zhi-hao, GUO Zhao-hui, RAN Hong-zhen, <i>et al.</i>	(4878)
Sorption Mechanism and Site Energy Distribution of Acetaminophen on Straw-derived Biochar	SHANG Cen-yao, GU Ruo-ting, ZHANG Qiang, <i>et al.</i>	(4888)
Spatial-temporal Variations and Their Driving Forces of the Ecological Vulnerability in the Loess Plateau	ZHANG Liang-xia, FAN Jiang-wen, ZHANG Hai-yan, <i>et al.</i>	(4902)
Mechanism and Application of Plant Growth-Promoting Bacteria in Heavy Metal Bioremediation	MA Ying, WANG Yue, SHI Xiao-jun, <i>et al.</i>	(4911)