

方知库
Eco-Environmental
Knowledge Web

环境科学

ENVIRONMENTAL SCIENCE

ISSN 0250-3301 CODEN HCKHDV

HUANJING KEXUE

南京北郊大气降水中水溶性无机氮和有机氮沉降特征

张佳颖, 于兴娜, 张毓秀, 丁铎, 侯思宇



■ 主办 中国科学院生态环境研究中心

■ 出版 科学出版社



2022年7月

第43卷 第7期
Vol.43 No.7

目次

两种模式下中国未来发电行业发展情景及其环境效益分析	刘春景, 吕建毅, 赵汶畅, 徐卿, 金玉佳 (3375)
基于 LEAP 模型的兰州市道路交通温室气体与污染物协同减排情景模拟	庞可, 张芊, 马彩云, 祝禄祺, 陈恒葵, 孔祥如, 潘峰, 杨宏 (3386)
基于半级别的城市空气质量预报评估方法探讨	王晓彦, 朱莉莉, 许荣, 高愈霄, 朱媛媛, 汪巍, 刘冰 (3396)
厦门港大气 PM _{2.5} 中重金属污染特征及健康风险评价	肖思晗, 蔡美君, 李香, 黄屋, 王坚, 朱清墩, 吴水平 (3404)
南京北郊大气降水中水溶性无机氮和有机氮沉降特征	张佳颖, 于兴娜, 张毓秀, 丁铖, 侯思宇 (3416)
晋中盆地主要城市冬季 PM _{2.5} 传输特征分析	王小兰, 王雁, 闫世明, 岳江, 郭伟, 郝振荣 (3423)
鄂尔多斯市夏秋季黑碳气溶胶时间演变特征及其来源解析	孔祥晨, 张连霞, 张彩云, 王红磊, 许晶, 郑佳峰 (3439)
济源冬季 VOCs 污染特征、来源和 SOAP	王芳, 李利霞, 王红果, 赵宗生, 张建平, 张栋 (3451)
长株潭城区 8 月 VOCs 污染特征及来源分析	罗达通, 张青梅, 刘湛, 尤翔宇, 黄杰, 宋云飞, 张敬巧 (3463)
2019 年 7 月石家庄市 O ₃ 生成敏感性控制策略解析	朱家贤, 王晓琦, 欧盛菊, 张新宇 (3473)
华北平原 AOD 时空演化与影响因素	郭霖, 孟飞, 马明亮 (3483)
基于地基太阳光度计观测的长安区气溶胶光学特性变化及其与颗粒物浓度的关系	郑玉蓉, 王旭红, 崔思颖, 冯子豪, 张秀, 刘康 (3494)
基于长时序“地-星”数据的京津冀大气污染时空分布及演变特征	王耀庭, 殷振平, 郑祚芳, 李炬, 李青春, 孟春雷, 李威 (3508)
近十年洪泽湖富营养化状态变化趋势及原因分析	陈天宇, 刘常清, 史小丽, 李云, 范子武, 贾本有, 廖轶鹏 (3523)
高原湖泊周边浅层地下水: 磷素时空分布及驱动因素	杨恒, 李桂芳, 叶远行, 陈清飞, 崔荣阳, 张丹, 陈安强 (3532)
三峡水库不同支流库湾蓄水区溶解氧分层特性及差异性	纪道斌, 方娇, 龙良红, 杨正健, 赵星星, 杨霞, 郭亚丽 (3543)
典型喀斯特城市湖泊溶解性有机质成分特征及来源解析	倪茂飞, 周慧, 马永梅, 苏印, 王晓丹, 王志康 (3552)
骆马湖表层水和沉积物中全氟化合物赋存特征、来源及健康风险评估	黄家浩, 吴玮, 黄天寅, 陈书琴, 项颂, 庞燕 (3562)
千岛湖浮游植物群落结构的垂向分布特征及其影响因素	王吉毅, 霍翟, 国超旋, 朱广伟, 龚志军, 范亚文, 王建军 (3575)
泗河水系沉积物磷的存在形态及其空间分布特征	张子涵, 张鑫茹, 贾传兴, 甘延东, 王世亮 (3587)
降雨径流过程中土地利用优化配置对磷流失的影响	周豪, 陈方鑫, 罗义峰, 龙翼, 周继, 王小燕, 李丹丹, 陈晓燕 (3597)
典型生物滞留设施重金属累积分布特征与风险评价	储杨阳, 杨龙, 周媛, 王喜龙, 王嗣禹, 张敏 (3608)
筑坝蓄水对不同水深浮游微生物群落结构和种间互作模式的影响	王洵, 张佳佳, 袁秋生, 胡斌, 刘胜 (3623)
天津独流减河流域不同等级河流沉积物细菌区系及功能辨识	刘嘉元, 丰玥, 杨雪纯, 张彦, 李德生, 刘福德 (3635)
地表水悬浮态多环芳烃时空变化特征及主要输入源响应机制	彭珂醒, 李瑞飞, 周亦辰, 卓泽铭, 张晋, 李梅, 李雪 (3645)
北京市通州区河流中微塑料组成的空间分布及潜在来源解析	门聪, 李頔, 左剑恶, 邢薇, 刘梦瑶, 魏凡钦, 胡嘉敏, 谢珍雯, 邢鑫, 沈杨贵 (3656)
微塑料对鲫鱼生长、肝脏损伤和肠道微生物组成的影响	胡嘉敏, 左剑恶, 李金波, 张艳艳, 艾翔, 龚大惠, 张继文, 孙丁明 (3664)
不同类型脱水药剂对底泥固化效果和理化性质的影响	任俊, 殷鹏, 王威振, 唐婉莹, 尹洪斌, 朱丽娟 (3672)
微纳米粒径生物炭的结构特征及其对 Cd ²⁺ 吸附机制	马文艳, 裴鹏刚, 高歌, 孙约兵 (3682)
不同生物炭对磷的吸附特征及其影响因素	连宁海, 张树楠, 刘锋, 邢宏霖, 吴金水 (3692)
Mg-La-Fe/沸石复合材料的制备及其处理低浓度含磷废水的性能	印学杰, 宋小宝, 丁陈蔓, 冯彦房, 杨根, 何世颖, 薛利红 (3699)
一体式部分亚硝化-厌氧氨氧化工艺污泥膨胀发生和恢复过程中微生物群落演替及 PICRUS2 功能预测分析	李亚男, 闫冰, 郑蕊, 姚丽, 隋倩雯, 魏源送 (3708)
丝状菌膨胀污泥好氧颗粒化稳定性及微生物多样性	高春娣, 杨箫阳, 欧家丽, 韩颖璐, 程阳阳, 彭永臻 (3718)
2000~2020 年长江流域植被 NDVI 动态变化及影响因素探测	徐勇, 郑志威, 郭振东, 宴世卿, 黄雯婷 (3730)
近 40 年来福建省水稻土有效磷富集效应及潜在生态风险评估	陈中星, 邱龙霞, 陈瀚闾, 范协裕, 毋亭, 沈金泉, 邢世和, 张黎明 (3741)
土地利用变化对西南喀斯特土壤团聚体组成、稳定性以及 C、N、P 化学计量特征的影响	何宇, 盛茂根, 王轲, 王霖娇 (3752)
长江经济带矿山土壤重金属污染及健康风险评价	张浙, 卢然, 伍思扬, 贾智彬, 王宁 (3763)
煤矸石堆积区周边土壤重金属污染特征与植物毒性	尚誉, 桑楠 (3773)
燃煤工业区不同土地利用类型土壤汞含量污染评价	李强, 姚万程, 赵龙, 张朝, 张恩月, 苏迎庆, 刘庚 (3781)
广州市南沙区第四剖面镉富集特征及生物有效性	王芳婷, 包科, 黄长生, 赵信文, 顾涛, 曾敏 (3789)
黔西北山区耕地重金属健康风险评价及环境基准	徐梦琪, 杨文毅, 杨利玉, 陈勇林, 景灏楠, 吴攀 (3799)
土壤重金属生物可利用性影响因素及模型预测	张加文, 田彪, 罗晶晶, 吴凡, 张聪, 刘征涛, 王晓南 (3811)
添加有机物料对豫中烟田土壤呼吸的影响	鲁琪飞, 叶协锋, 韩金, 潘昊东, 张明杰, 王晶, 杨佳豪, 姚鹏伟, 李雪利 (3825)
不同稻作系统土壤的 CH ₄ 产生潜力与产生途径	沈皖豫, 黄琼, 马静, 张广斌, 徐华 (3835)
东部平原矿区复垦土壤微生物群落特征及其组装过程	马静, 董文雪, 朱燕峰, 肖栋, 陈浮 (3844)
同质环境下不同锦鸡儿属植物根际土壤细菌群落结构差异及其影响因素	李媛媛, 徐婷婷, 艾喆, 魏庐潞, 马飞 (3854)
岩溶与非岩溶区水稻土团聚体细菌群落结构和功能类群比较	肖筱怡, 靳振江, 冷蒙, 李雪松, 熊丽媛 (3865)
紫色土中微生物群落结构及功能特征对土壤 pH 的差异响应	王智慧, 蒋先军 (3876)
有机物料还田对稻田土壤 DOM 碳源代谢能力的影响	肖怡, 李峥, 黄容, 汤奥涵, 李冰, 王昌全 (3884)
《环境科学》征订启事 (3403) 《环境科学》征稿简则 (3462) 信息 (3493, 3655, 3834)	

不同稻作系统土壤的 CH₄ 产生潜力与产生途径

沈皖豫^{1,2}, 黄琼^{1,2}, 马静¹, 张广斌^{1*}, 徐华¹

(1. 中国科学院南京土壤研究所, 土壤与农业可持续发展国家重点实验室, 南京 210008; 2. 中国科学院大学, 北京 100049)

摘要: 不同稻作系统土壤的 CH₄ 产生潜力, 特别是 CH₄ 产生途径(主要为乙酸发酵和 CO₂/H₂ 还原)间的差异尚不明确. 通过添加与不添加氟甲烷(CH₃F)抑制剂(添加比例分别为 2% 和 0%)的土壤厌氧培养试验, 并采用稳定性碳同位素等方法, 对我国 3 类典型稻田生态系统(稻-麦轮作, RW; 稻-休闲, RF; 双季稻, DR)土壤 CH₄ 产生累积浓度、CH₄ 产生潜力、溶解性有机碳(DOC)含量、乙酸含量和乙酸产 CH₄ 的相对贡献率(f_{ac} 值)进行了对比研究. 结果表明, RF 的 CH₄ 产生潜力为 7.18 $\mu\text{g}\cdot(\text{g}\cdot\text{d})^{-1}$, 显著低于 RW [10.33 $\mu\text{g}\cdot(\text{g}\cdot\text{d})^{-1}$] 和 DR [13.42 $\mu\text{g}\cdot(\text{g}\cdot\text{d})^{-1}$] ($P < 0.05$); 相关分析表明, CH₄ 产生潜力与土壤阳离子交换量及 pH 呈显著负相关($P < 0.01$); 添加 CH₃F 显著抑制 CH₄ 产生($P < 0.05$). DR 的 $\omega(\text{DOC})$ 和 $\omega(\text{乙酸})$ 分别为 255 $\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ 和 7.34 $\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$, 较 RW 和 RF 分别高 17%~51% 和 22%~23% ($P < 0.05$). $\delta^{13}\text{CH}_4$ 和 $\delta^{13}\text{CO}_2$ 值受稻作系统的影响显著, 其中, RF 的 $\delta^{13}\text{CH}_4$ 值最大(-43.89‰), 较 RW 和 DR 分别偏正 11.06‰ 和 8.33‰ ($P < 0.05$); 而其 $\delta^{13}\text{CO}_2$ 值最小(-26.30‰), 较 RW 和 DR 分别偏负 7.63‰ 和 5.14‰ ($P < 0.05$). RW 和 RF 的 $\alpha_{(\text{CO}_2/\text{CH}_4)}$ 值分别为 1.057 和 1.058, 显著低于 DR 的 1.062 ($P < 0.05$). RF 的 f_{ac} 值为 84%~98%, 较 RW 和 DR 分别高 34%~38% 和 20%~23% ($P < 0.05$).

关键词: 乙酸产 CH₄ 途径; 土壤性质; 稻田生态系统; 氟甲烷; 稳定性碳同位素组成

中图分类号: X16 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2022)07-3835-09 DOI: 10.13227/j.hjxx.202110204

Methane Production Potential and Methanogenic Pathways in Paddy Soils Under Different Rice-based Cropping Systems

SHEN Wan-yu^{1,2}, HUANG Qiong^{1,2}, MA Jing¹, ZHANG Guang-bin^{1*}, XU Hua¹

(1. State Key Laboratory of Soil and Sustainable Agriculture, Institute of Soil Science, Chinese Academy of Sciences, Nanjing 210008, China; 2. University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China)

Abstract: Differences in methane (CH₄) production potential in paddy soils under different rice-based cropping systems and especially in the methanogenic pathways (mainly acetate fermentation and CO₂/H₂ reduction) remain unclear. Anaerobic incubations of soil with or without fluoromethane (CH₃F) inhibitor (2% and 0%) were conducted. With the soils from three typical paddy ecosystems (rice-wheat rotation, RW; rice-fallow, RF; double-rice, DR) in China, the cumulative concentration of CH₄ production, CH₄ production potential, dissolved organic carbon (DOC) content, and acetic acid content were determined. Meanwhile, the relative contribution of acetate-dependent methanogenesis (f_{ac}) was quantified using the stable carbon isotope method. The results showed that the CH₄ production potential was 7.18 $\mu\text{g}\cdot(\text{g}\cdot\text{d})^{-1}$ in RF, which was significantly lower than that in RW [10.33 $\mu\text{g}\cdot(\text{g}\cdot\text{d})^{-1}$] and DR [13.42 $\mu\text{g}\cdot(\text{g}\cdot\text{d})^{-1}$] ($P < 0.05$). Correlation analysis showed that CH₄ production potential was significantly negatively correlated with soil cation exchange capacity and pH ($P < 0.01$); the addition of CH₃F significantly inhibited CH₄ production ($P < 0.05$). The content of DOC and acetic acid in DR were 255 $\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ and 7.34 $\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$, respectively, which were 17%~51% and 22%~23% higher than those in RW and RF, respectively. The $\delta^{13}\text{CH}_4$ and $\delta^{13}\text{CO}_2$ values were affected greatly by different rice-based cropping systems, and the highest $\delta^{13}\text{CH}_4$ value was -43.89‰ in RF, which was more positive than that of RW and DR by 11.06‰ and 8.33‰, respectively ($P < 0.05$). By contrast, the lowest value of $\delta^{13}\text{CO}_2$ was observed in RF, which was more negative than that of RW (7.63‰) and DR (5.14‰) ($P < 0.05$). The $\alpha_{(\text{CO}_2/\text{CH}_4)}$ values of RW and RF were 1.057 and 1.058, respectively, which were significantly lower than 1.062 in DR ($P < 0.05$). The f_{ac} values of RF ranged from 84% to 98%, being 34%~38% and 20%~23% higher than those of RW and DR, respectively ($P < 0.05$).

Key words: acetoclastic methanogenesis; soil properties; paddy ecosystem; fluoromethane; stable carbon isotope composition

全球气候变暖问题日趋严峻, 极有可能是由人类活动排放的温室气体造成的^[1]. 甲烷(CH₄)是大气中第二大温室气体, 其浓度已从工业革命前的 722 $\mu\text{mol}\cdot\text{mol}^{-1}$ 上升至当前的 1 887 $\mu\text{mol}\cdot\text{mol}^{-1}$ ^[2]. 稻田是大气 CH₄ 的重要人为排放源. 据估计, 全球稻田 CH₄ 排放量为 30 $\text{Tg}\cdot\text{a}^{-1}$, 约占农业排放源总量的 15%^[3], 而中国稻田 CH₄ 排放量约为 6.25 $\text{Tg}\cdot\text{a}^{-1}$, 约占全球稻田 CH₄ 排放总量的 21%^[4]. 另一方面, 在国家“碳达峰”和“碳中和”重大战略决策的指导下, 农业创收增效, 特别是稻田生态系统的增

产减排, 将成为“绿色低碳”政策体系的重要一环. 因此, 如何降低稻田 CH₄ 排放以减缓全球气候变暖已成为各国政府关注的焦点和相关科研工作者研究的热点.

稻田 CH₄ 排放是土壤 CH₄ 产生、在根际和土水

收稿日期: 2021-10-27; 修订日期: 2021-12-06

基金项目: 国家自然科学基金项目(41877325); 中国科学院青年创新促进会项目(2018349); 国家重点研发计划项目(2017YFD0300105)

作者简介: 沈皖豫(1997~), 女, 博士研究生, 主要研究方向为稻田甲烷产生机制, E-mail: shenwanyu@issas.ac.cn

* 通信作者, E-mail: gbzhang@issas.ac.cn

界面再氧化以及向大气传输(主要是植株传输,其次是冒泡和液相扩散)3个过程共同作用的结果^[5],明确 CH₄ 排放各过程可为稻田 CH₄ 减排提供重要科学依据.土壤 CH₄ 产生是稻田 CH₄ 排放的基础和先决条件^[6],在稻田生态系统中,乙酸和 CO₂/H₂ 被视为最主要的两种产 CH₄ 前体物质^[7~9].因此,稻田土壤 CH₄ 的产生主要有两个途径:①通过乙酸发酵生成 CH₄: CH₃COOH → CH₄ + CO₂; ②通过 CO₂/H₂ 还原生成 CH₄: CO₂ + 4H₂ → CH₄ + 2H₂O^[10].影响稻田土壤 CH₄ 产生途径的因素有很多,如有机物种类、乙酸盐来源及其含量等^[11].然而,我国水稻种植面积大(约占全世界的 19%)、分布广(从南到北、自东向西都有分布),且稻作系统(或耕作制度)多样,不同类型土壤的有机质含量、土壤质地等不同,这势必导致土壤产 CH₄ 过程存在一定差异.目前,关于 CH₄ 产生途径的报道大都集中在湖泊底泥和湿地土壤等方面^[12~15],关于不同类型稻田土壤 CH₄ 产生途径的对

比研究鲜见^[16~18].

本研究通过厌氧培养试验,测定了我国主要稻作区 3 类典型稻田(分别为稻-麦轮作、稻-休闲和双季稻)土壤的 CH₄ 产生累积浓度、溶解性有机碳(DOC)含量、乙酸含量和 CH₄ 产生的碳同位素组成($\delta^{13}\text{C}$),评估不同稻作系统下土壤的 CH₄ 产生潜力与产生途径,以期为稻田 CH₄ 产生的过程机制研究提供数据参考和科学借鉴.

1 材料与方法

1.1 供试土壤

不同稻作系统的供试土壤分别为:江苏句容(RW,稻麦轮作模式,31°57'N, 119°10'E)、四川简阳(RF,稻休闲模式,30°39'N, 104°55'E)和江西鹰潭(DR,双季稻模式,28°24'N, 117°03'E)稻田成熟期土壤,风干后除去石块和水稻根,过 2 mm 筛备用.土壤的基本理化性质见表 1.

表 1 土壤基本理化性质

Table 1 Basic physical and chemical properties of paddy soil in this study

稻作系统	ω (总碳) /g·kg ⁻¹	ω (总氮) /g·kg ⁻¹	ω (有机碳) /g·kg ⁻¹	CEC /cmol·kg ⁻¹	pH	$\delta^{13}\text{C}$ /‰	土壤粒径分布体积分数/%		
							砂粒 (0.02~2 mm)	粉粒 (0.02~0.002 mm)	黏粒 (<0.002 mm)
RW	12.07±0.19	1.25±0.10	12.76±0.03	12.23±0.02	5.59±0.02	-26.15±0.19	36.9±0.4	39.8±0.3	23.3±0.6
RF	33.11±0.58	2.31±0.40	19.80±0.32	22.70±0.42	7.70±0.32	-21.22±0.08	31.8±0.6	31.4±0.1	36.8±0.6
DR	18.26±0.57	1.80±0.07	19.79±0.09	7.48±0.22	4.89±0.02	-28.75±0.21	50.5±1.1	31.3±1.0	18.2±0.6

1.2 试验设计

分别取上述 3 种供试土壤 20 g 风干土于 120 mL 培养瓶中,加入超纯水使得水土比约为 1:1,混匀、封盖和抽真空充氮气后,进行室内恒温(25℃)暗箱培养^[19].本试验共设置添加和未添加乙酸产 CH₄ 抑制剂氟甲烷(CH₃F)6 个处理:即 3 种供试土壤(RW; RF; DR)×2 个 CH₃F 添加浓度[无 CH₃F 抑制剂;未添加处理;2% 的 CH₃F 抑制剂(CH₃F 体积占培养瓶上方体积的百分比为 2%);添加处理].各处理均重复 3 次.

厌氧培养前,25℃暗箱预培养 3 d 以激活土壤活性.随后,通过双通针和真空泵将培养瓶内空气抽出,造成培养瓶内真空状态后再将高压高纯度氮气充入培养瓶^[20],培养瓶经反复 6 次抽真空和充氮气(最后充至 1.013×10⁵ Pa)后,于 25℃培养箱培养 34 d.

1.3 样品采集与分析

培养瓶内气体样品(CH₄ 和 CO₂)采集时间分别为厌氧培养的第 1、5、9、13、17、21、24、27、30 和 34 d,每次采样固定在 10:00~12:00,样品待测浓度;最后一次采样结束后,测定各处理气体样品的 $\delta^{13}\text{CH}_4$ 、 $\delta^{13}\text{CO}_2$ 以及土壤样品的 DOC 和乙酸

含量.

CH₄ 和 CO₂ 浓度利用带氢火焰离子化检测器(FID)的安捷伦气相色谱(Agilent 7890B,美国)测定,柱箱温度 60℃,空气流量 400 mL·min⁻¹,H₂ 燃气流量 45 mL·min⁻¹,尾吹气流量 5 mL·min⁻¹,载气用 N₂,检测器温度 300℃.CH₄ 和 CO₂ 标准气体由中国计量科学研究院提供.

$\delta^{13}\text{CH}_4$ 和 $\delta^{13}\text{CO}_2$ 利用同位素质谱仪 MAT 253 plus 测定.土壤样品用超纯水浸提,振荡 30 min(250 r·min⁻¹),离心 5 min(4 000 r·min⁻¹);过 0.45 μm 水系微孔滤膜后,采用总有机碳/总氮分析仪(Multi NC 3100)测定土壤 DOC 含量;过 0.22 μm 有机微孔滤膜后,采用高效液相色谱仪(ELSD/UV, Agilent HPLC 1260)测定乙酸含量.

1.4 CH₄ 产生潜力的计算

土壤 CH₄ 产生潜力由如下公式计算获得^[21]:

$$P = (dc/dt) \times (V_H/W_s) \times (M_r/M_v) \times (273/T) \quad (1)$$

式中, P 为 CH₄ 产生潜力,μg·(g·d)⁻¹; dc/dt 为培养瓶内气相 CH₄ 浓度单位时间变化,μL·(L·d)⁻¹; V_H 为培养瓶内气体体积,L; W_s 为干土重,g; M_r 为

CH₄ 相对分子质量; M_v 为标准状况下 1 mol 气体的体积, L; T 为培养的热力学温度, K.

1.5 CH₄ 产生途径的计算

应用稳定性碳同位素方法测定稻田土壤 CO₂/H₂ 和 CH₃COOH 对产 CH₄ 的相对贡献率^[22], 该方法假设产甲烷总量 (CH₄) 等于乙酸发酵产甲烷 [CH_{4(ac)}] 和 CO₂/H₂ 还原产甲烷 [CH_{4(CO₂)}] 之和, 即:

$$\text{CH}_4 = \text{CH}_{4(\text{ac})} + \text{CH}_{4(\text{CO}_2)} \quad (2)$$

则乙酸产甲烷的相对贡献率 (f_{ac}) 为^[22]:

$$f_{\text{ac}} = \frac{\text{CH}_{4(\text{ac})}}{\text{CH}_{4(\text{ac})} + \text{CH}_{4(\text{CO}_2)}} \times 100\% \quad (3)$$

根据同位素质量守恒, 可得^[23]:

$$\delta^{13}\text{CH}_4 = \delta^{13}\text{CH}_{4(\text{ac})} \times f_{\text{ac}} + \delta^{13}\text{CH}_{4(\text{CO}_2)} \times (1 - f_{\text{ac}}) \quad (4)$$

式中, $\delta^{13}\text{CH}_{4(\text{ac})}$ 为通过乙酸产生 CH₄ 的 $\delta^{13}\text{C}$ 值 (‰), $\delta^{13}\text{CH}_{4(\text{ac})}$ 一般为固定值或在一定范围内变化^[17, 22~24], 本研究假定 $\delta^{13}\text{CH}_{4(\text{ac})}$ 为 -37‰ 和 -43‰^[25, 26]; $\delta^{13}\text{CH}_{4(\text{CO}_2)}$ 为通过 CO₂/H₂ 还原产生 CH₄ 的 $\delta^{13}\text{C}$ 值 (‰), 可由式 (5) 推算^[22]:

$$\delta^{13}\text{CH}_{4(\text{CO}_2)} = \frac{\delta^{13}\text{CO}_2 + 1000}{\alpha_{(\text{CO}_2/\text{CH}_4)}} - 1000 \quad (5)$$

式中, $\delta^{13}\text{CH}_{4(\text{CO}_2)}$ 值根据未添加 CH₃F 抑制剂 (乙酸产 CH₄ 抑制剂) 土壤厌氧培养得到的 CO₂ 的 $\delta^{13}\text{C}$ 值 (‰) 及 $\alpha_{(\text{CO}_2/\text{CH}_4)}$ 值计算获得 (图 1), CO₂/H₂ 还原产生 CH₄ 过程中的同位素分馏系数 $\alpha_{(\text{CO}_2/\text{CH}_4)}$ ^[17]:

$$\alpha_{(\text{CO}_2/\text{CH}_4)} = \frac{\delta^{13}\text{CO}_2 + 1000}{\delta^{13}\text{CH}_{4(\text{CO}_2)} + 1000} \quad (6)$$

式中, $\delta^{13}\text{CH}_{4(\text{CO}_2)}$ 值即为添加 CH₃F 抑制剂 (乙酸产 CH₄ 抑制剂) 土壤厌氧培养得到的 CH₄ 的 $\delta^{13}\text{C}$ 值 (‰), 见图 1.

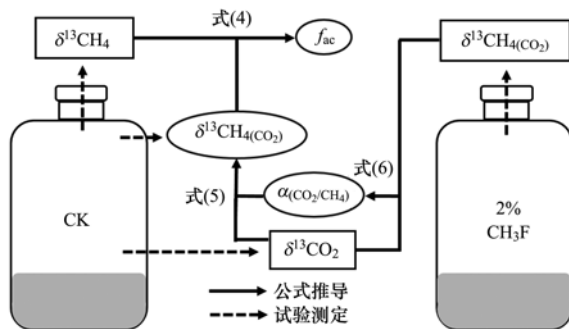


图 1 应用稳定性碳同位素方法评估 f_{ac} 流程

Fig. 1 Evaluation of the f_{ac} flow chart using stable carbon isotope method

1.6 统计与分析

数据处理及分析利用 Microsoft Excel 2016、

Origin 2017 (OriginLab, USA) 和 SPSS 25.0 (SPSS Inc., Chicago, IL, USA) 等软件完成.

2 结果与分析

2.1 CH₄ 产生累积浓度和 CH₄ 产生潜力

不同稻作系统 RW、RF 和 DR 土壤 CH₄ 产生累积浓度有着相似的变化趋势 [图 2(a) ~ 2(c)], 均随着培养时间的增加, CH₄ 产生累积浓度增加, 最后逐渐趋于平稳. 不同稻作系统土壤 CH₄ 产生累积浓度存在一定差异 [图 2(a) ~ 2(c)], CH₄ 产生累积浓度最大和最小峰值分别为 DR (150 416 $\mu\text{mol} \cdot \text{mol}^{-1}$) 和 RF (80 493 $\mu\text{mol} \cdot \text{mol}^{-1}$); 添加 CH₃F 显著降低 CH₄ 产生累积浓度, CH₄ 产生累积浓度最大和最小峰值分别为 RW (56 853 $\mu\text{mol} \cdot \text{mol}^{-1}$) 和 RF (7 912 $\mu\text{mol} \cdot \text{mol}^{-1}$). 不同稻作系统土壤的 CH₄ 产生潜力存在显著差异 ($P < 0.05$), 总体在 7.18 ~ 13.4 $\mu\text{g} \cdot (\text{g} \cdot \text{d})^{-1}$ 之间, 其由大到小依次为: DR > RW > RF [图 2(d)]. 添加 CH₃F 显著降低 CH₄ 产生潜力 ($P < 0.05$), RW、RF 和 DR 土壤 CH₄ 产生潜力分别降低 57%、90% 和 83%. 相关分析表明, CH₄ 产生潜力与 CEC 和 pH 呈显著负相关, 与砂粒含量呈极显著正相关 ($P < 0.01$).

2.2 DOC 和乙酸含量

不同稻作系统土壤 DOC 含量存在显著差异 ($P < 0.05$), 其中, DR 土壤 ω (DOC) 最高, 为 255 $\text{mg} \cdot \text{kg}^{-1}$, 较 RW 和 RF 分别高 51% 和 17% [图 3(a)]. 添加 CH₃F 显著增加 DOC 含量 ($P < 0.05$), RW、RF 和 DR 土壤 DOC 含量分别增加 267%、160% 和 234%. 3 种稻作系统土壤的 ω (乙酸) 为 5.68 ~ 7.34 $\text{mg} \cdot \text{kg}^{-1}$ [图 3(b)], $P > 0.05$. 添加 CH₃F 显著增加乙酸含量, 且不同稻作系统乙酸含量差异显著 ($P < 0.05$), 其乙酸含量由大到小依次为: DR > RF > RW.

2.3 $\delta^{13}\text{CH}_4$ 和 $\delta^{13}\text{CO}_2$ 值

不同稻作系统土壤 CH₄ 产生过程中 $\delta^{13}\text{CH}_4$ 和 $\delta^{13}\text{CO}_2$ 值范围分别为 -54.44‰ ~ -43.89‰ 和 -26.30‰ ~ -18.67‰ (表 2), 且 RW、RF 和 DR 之间的 $\delta^{13}\text{CH}_4$ 和 $\delta^{13}\text{CO}_2$ 值分别存在显著差异 ($P < 0.05$). RF 的 $\delta^{13}\text{CH}_4$ 值最高 (-43.89‰), 较 RW 和 DR 分别偏正 11.06‰ 和 8.33‰ ($P < 0.05$), 但其 $\delta^{13}\text{CO}_2$ 值最低 (-26.30‰), 较 RW 和 DR 分别偏负 7.63‰ 和 5.14‰ ($P < 0.05$). 添加 CH₃F 后, $\delta^{13}\text{CH}_4$ 值为 -82.25‰ ~ -74.57‰, $\delta^{13}\text{CO}_2$ 值为 -27.96‰ ~ -21.68‰, 较未添加 CH₃F 处理均显著偏负 (表 2, $P < 0.05$).

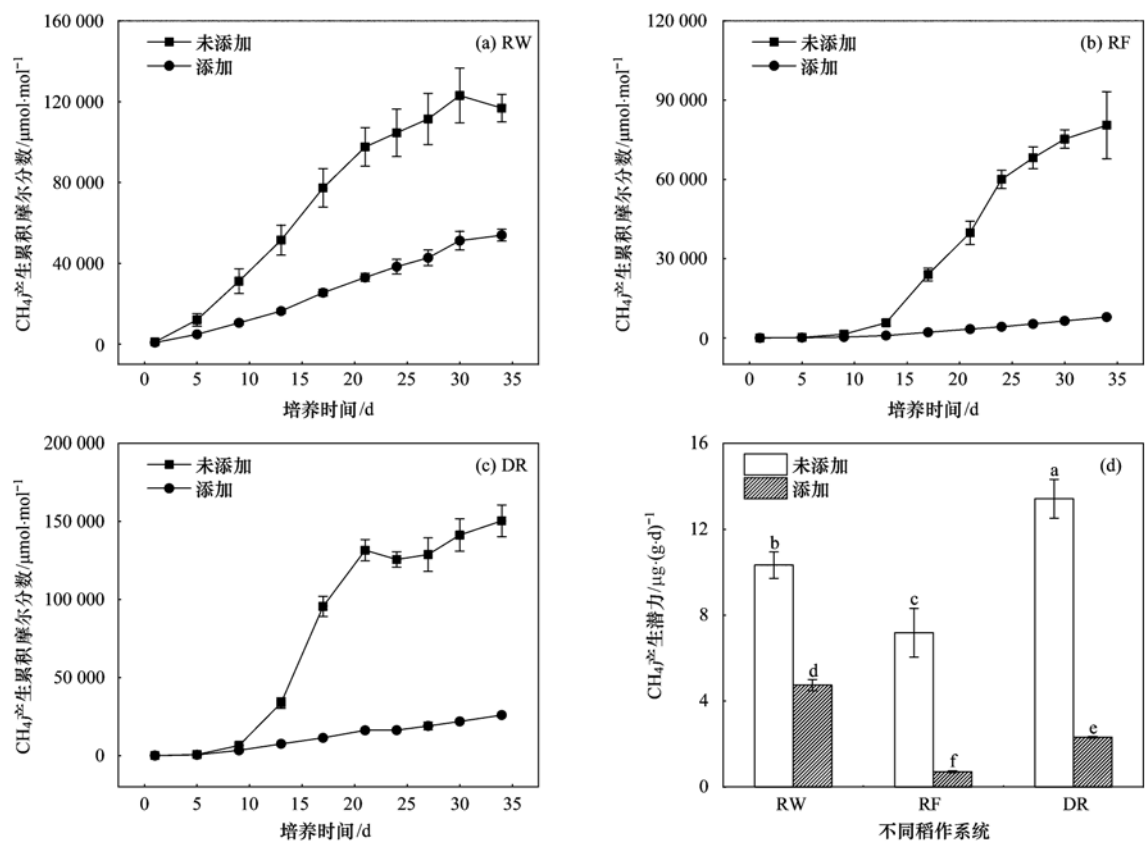
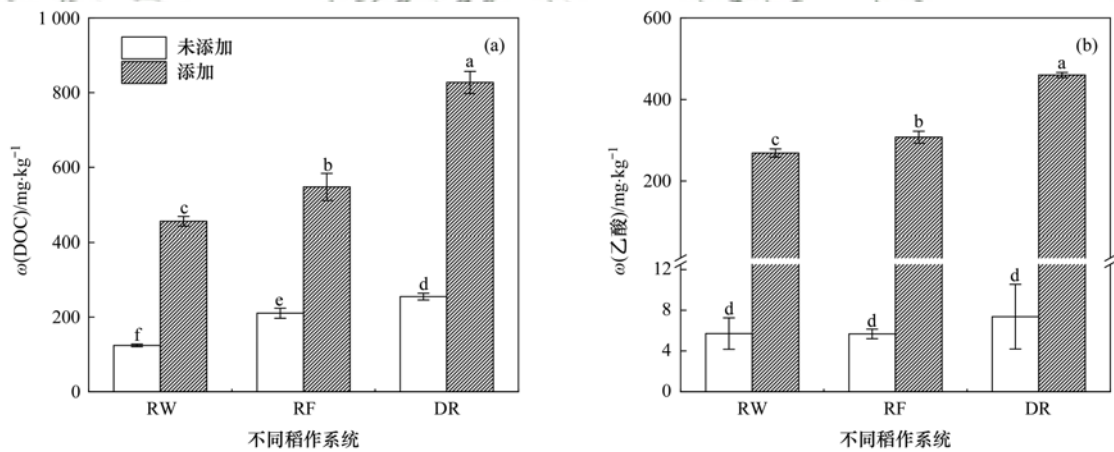


图2 不同稻作系统土壤 CH₄ 产生累积浓度和 CH₄ 产生潜力

Fig. 2 CH₄ cumulative concentration and CH₄ production potential under different rice-based cropping systems



图中不同小写字母表示处理间差异显著 ($P < 0.05$)

图3 不同稻作系统土壤 DOC 和乙酸含量

Fig. 3 DOC and acetic acid content under different rice-based cropping systems

表2 稻田土壤 CH₄ 产生过程中 $\delta^{13}\text{CH}_4$ 、 $\delta^{13}\text{CO}_2$ 、 $\alpha_{(\text{CO}_2/\text{CH}_4)}$ 、 $\delta^{13}\text{CH}_4(\text{CO}_2)$ 和 f_{ac} 值¹⁾

Table 2 Values of $\delta^{13}\text{CH}_4$, $\delta^{13}\text{CO}_2$, $\alpha_{(\text{CO}_2/\text{CH}_4)}$, $\delta^{13}\text{CH}_4(\text{CO}_2)$, and f_{ac} in the process of CH₄ production in paddy soil

稻作系统	$\delta^{13}\text{CH}_4/\text{‰}$		$\delta^{13}\text{CO}_2/\text{‰}$		$\alpha_{(\text{CO}_2/\text{CH}_4)}$ [公式(6)]	$\delta^{13}\text{CH}_4(\text{CO}_2)$ [公式(5)]/‰	$\delta^{13}\text{CH}_4(\text{ac})$ /‰	$f_{\text{ac}}/\text{‰}$
	未添加	添加	未添加	添加				
RW	-54.44 ± 0.19cA	-74.57 ± 1.17aC	-18.67 ± 0.45aA	-21.68 ± 0.17aB	1.057b	-71.70 ± 0.43aA	-37 -43	49.72 ± 0.89f 60.11 ± 0.95e
RF	-43.89 ± 1.21aA	-81.33 ± 0.33bC	-26.30 ± 0.62cA	-27.96 ± 0.31cB	1.058b	-79.76 ± 0.59cA	-37 -43	83.86 ± 3.06b 97.55 ± 3.35a
DR	-51.71 ± 0.52bA	-82.25 ± 0.38bC	-21.16 ± 0.62bA	-25.51 ± 0.15bB	1.062a	-78.15 ± 0.59bA	-37 -43	64.24 ± 1.76d 75.20 ± 1.89c

1) 同列不同小写字母表示不同稻作系统之间差异显著 ($P < 0.05$), 同行不同大写字母表示不同处理之间差异显著 ($P < 0.05$)

2.4 $\alpha_{(\text{CO}_2/\text{CH}_4)}$ 和 f_{ac} 值

不同稻作系统 RW、RF 和 DR 的 $\alpha_{(\text{CO}_2/\text{CH}_4)}$ 值分别为 1.057、1.058 和 1.062 (表 2), DR 的 $\alpha_{(\text{CO}_2/\text{CH}_4)}$ 值显著高于 RW 和 RF ($P < 0.05$), 而 RW 和 RF 之间并无显著差异. RW、RF 和 DR 的 f_{ac} 值分别为 50%~60%、84%~98% 和 64%~75% (表 2), f_{ac} 值因稻作系统的不同存在显著差异 ($P < 0.05$), 其中 RF 的 f_{ac} 值显著高于 RW 和 DR. $\delta^{13}\text{CH}_{4(\text{ac})}$ 值为 -37‰ 情况下, RF 的 f_{ac} 值分别比 RW 和 DR 高 41% 和 24%; $\delta^{13}\text{CH}_{4(\text{ac})}$ 值为 -43‰ 情况下, RF 的 f_{ac} 值分别比 RW 和 DR 高 38% 和 23%.

3 讨论

3.1 不同稻作系统对土壤 CH₄ 产生潜力的影响

CH₄ 产生是严格厌氧条件下产甲烷菌作用于产 CH₄ 基质的结果^[27], CH₄ 产生潜力受土壤性质的影响, 特别是土壤 DOC 和乙酸含量. 水稻生长过程中根部释放的根系分泌物、自溶物和细胞分泌物等会部分残留迁移到土壤中, 可提高稻田土壤 DOC 和乙酸含量, 为稻田 CH₄ 产生提供丰富的基质^[28]. 然而, 我国水稻土类型复杂多样, 导致 CH₄ 产生潜力差异较大^[29]. 本研究中, 相比于 RW 和 RF 处理, DR 处理是双季稻种植模式, 每年种植 2 次水稻, 水稻根部释放至土壤的物质较多, 这可能是 DR 处理土壤 DOC 和乙酸含量高于 RW 和 RF 处理的原因. CH₄ 产生消耗土壤中 DOC 和乙酸, 造成土壤 DOC 和乙酸含量的降低 (图 3). 然而, 本研究并未发现土壤 DOC 和乙酸含量与 CH₄ 产生潜力存在显著关系 ($r = 0.331$, $P > 0.05$; $r = 0.191$, $P > 0.05$), 这表明除 DOC 和乙酸含量以外, CH₄ 产生潜力可能会受到其他土壤理化性质的影响, 如土壤质地和 pH 等^[30].

土壤质地等稻田土壤性质能够影响土壤 DOC 含量^[31], 继而改变乙酸含量, 这可能是不同稻作系统土壤 CH₄ 产生潜力与 DOC 和乙酸含量之间对应变化规律也存在一定的差异的原因之一 [图 2(d) 和图 3]. 有研究表明, 黏质土壤对有机质有着较强的保持作用, 对产甲烷菌的有机基质供应较少^[32], 而本研究中, RF、RW 和 DR 分别属于黏质、粉质和砂质土壤, 这可能是本研究中 RF 的 CH₄ 产生潜力较 RW 和 DR 分别低 44% 和 87% 的原因 [图 2(d)]. 土壤 pH 是反映土壤性质的一个重要指标, 有研究表明随着土壤 pH 的升高^[33], 土壤中氢离子浓度降低, 高价铁、锰很难还原成低价铁、锰; 土壤中高价铁、锰含量增加会提高土壤氧化能力^[34], 降低 CH₄

产生潜力, 本研究中 pH 与 CH₄ 产生潜力极显著负相关 ($r = -0.888$, $P < 0.01$), 一定程度上证实了已有的研究结果. 此外, 土壤阳离子交换量 (CEC) 是指在一定 pH 条件下, 土壤胶体所能吸附和交换的阳离子总量^[35], 因而土壤中阳离子交换量能够反映土壤缓冲能力^[36]. 土壤 CEC 可通过影响土壤中 NH₄⁺ 从而影响 CH₄ 氧化, 土壤 CEC 低, 土壤缓冲能力弱, 较低浓度的 NH₄⁺ 即可对 CH₄ 氧化菌有强抑制作用^[37], 从而促进 CH₄ 产生, 这可能是土壤 CEC 与 CH₄ 产生潜力极显著负相关的原因 ($r = -0.930$, $P < 0.01$).

3.2 不同稻作系统对土壤 CH₄ 产生途径 f_{ac} 值的影响

CH₄ 产生途径的主要研究方法有放射性示踪技术、添加 CH₄ 抑制剂以及稳定性碳同位素法^[18], 其中稳定性碳同位素法是非破坏性采样且无需在样品中添加任何物质, 可避免因添加外来物质造成的偏差^[22,38]. 以往研究中, 同位素分馏系数 $\alpha_{(\text{CO}_2/\text{CH}_4)}$ 常取一固定值^[17,24,38], 但 $\alpha_{(\text{CO}_2/\text{CH}_4)}$ 值因环境因素以及土壤性质等不同存在一定差异^[22,39], 因而在不同稻作系统下选用同一个 $\alpha_{(\text{CO}_2/\text{CH}_4)}$ 值势必会影响结果的准确性. CH₃F 是一种乙酸产 CH₄ 抑制剂, 具有抑制稻田土壤 CH₄ 产生的作用. 有研究表明^[18], 抑制乙酸产 CH₄ 途径的 CH₃F 浓度远低于抑制 H₂/CO₂ 产 CH₄ 途径的 CH₃F 浓度, 且 CH₃F 的添加比例为 2% 时, 既远低于抑制 H₂/CO₂ 产 CH₄ 途径的 CH₃F 浓度, 又对乙酸产 CH₄ 途径有着很好地抑制作用, 因此通常认为, CH₃F 添加浓度为 2% 时只抑制乙酸产 CH₄ 途径^[40]. 本研究通过 CH₃F 抑制剂法, 分别计算出不同稻作系统土壤的 $\alpha_{(\text{CO}_2/\text{CH}_4)}$ 值, 范围为 1.057~1.062, 且 $\alpha_{(\text{CO}_2/\text{CH}_4)}$ 值受稻田土壤因素的影响^[41], 不同稻作系统土壤 $\alpha_{(\text{CO}_2/\text{CH}_4)}$ 值存在明显差异 (表 2). 已有研究也有关于不同稻作系统 $\alpha_{(\text{CO}_2/\text{CH}_4)}$ 值的探究, 选自泰国的稻田新鲜土为 DR 稻作系统, 所选用的 $\alpha_{(\text{CO}_2/\text{CH}_4)}$ 值为 1.071^[17]; 选自美国的稻田新鲜土、日本稻田风干土和意大利稻田风干土均为 RF 稻作系统, 所选用的 $\alpha_{(\text{CO}_2/\text{CH}_4)}$ 值分别为 1.045~1.060、1.049 和 1.045~1.073^[22~24,38,42,43]; 选自中国句容稻田新鲜土为 RW 稻作系统, 选用的 $\alpha_{(\text{CO}_2/\text{CH}_4)}$ 值为 1.050~1.060^[26]. 本研究为我国 3 类不同稻作系统土壤 $\alpha_{(\text{CO}_2/\text{CH}_4)}$ 值的选用提供重要参考.

碳同位素自然丰度的测定为稻田土壤 CH₄ 产生途径的定量评估提供了方法和手段^[44], 土壤 $\delta^{13}\text{CH}_4$ 值是反映 CH₄ 产生途径的重要参数之一 (图 1), 稻田土壤产生过程的 $\delta^{13}\text{CH}_4$ 值主要取决于产

CH₄ 基质类型以及 CH₄ 产生途径(乙酸和 H₂/CO₂) 的相对贡献率^[38,42]. 本研究无外加有机碳源添加的情况下,不同稻作系统 RW、RF 和 DR 处理的土壤性质的不同^[20],导致土壤 δ¹³CH₄ 值存在显著差异,说明 *f_{ac}* 值存在较大的差异. H₂/CO₂ 产 CH₄ 途径倾向于利用同位素较轻的碳,而乙酸产 CH₄ 途径倾向于利用同位素较重的碳,因此同 H₂/CO₂ 产生的 CH₄ 相比,乙酸产生的 CH₄ 相对富积¹³C,导致其 δ¹³CH₄ 相对偏正^[22,45]. 这表明乙酸产 CH₄ 贡献率高,富积¹³C,相应的 δ¹³CH₄ 值偏正, *f_{ac}* 值高,这也从另一个方面阐明了不同稻作系统的 δ¹³CH₄ 值与 *f_{ac}* 值有着相同变化趋势的原因. 此外,土壤有机碳在 CH₄ 产生过程中起着重要作用^[46],其在一定条件下可转换为乙酸,提高乙酸产甲烷途径贡献率,因此土壤有机碳含量越高, *f_{ac}* 值越大,这可能是本研究中 *f_{ac}* 值 RF > DR > RW 的原因(表 2). 稻田 CH₄ 产生总量为乙酸发酵产生 CH₄ 量和 H₂/CO₂ 还原产 CH₄ 量总和,理论上 H₂/CO₂ 对稻田产 CH₄ 的贡献率为 1/3,乙酸对稻田产 CH₄ 的贡献率为 2/3^[47]. 本研究发现 RW、RF 和 DR 的 *f_{ac}* 值几乎均在 50% 以上,这也说明了乙酸产 CH₄ 途径在稻田土壤 CH₄ 产生过程中占主导作用.

3.3 不同稻作系统*f_{ac}*值的对比

总结泰国、美国、日本、意大利和中国这 5

个国家的研究结果发现,稻田土壤 *f_{ac}* 值因稻作系统的不同存在一定差异, *f_{ac}* 值范围在 10% ~ 108% 之间(表 3). 对比分析发现,本研究中 3 个稻作系统的 *f_{ac}* 值均在已有研究范围之内,总体上 RW 和 DR 略低于已有研究,而 RF 略高于已有研究. 当然,选取对比的泰国、美国和中国句容的供试土壤均为稻田鲜土,而本研究中的供试土壤均为成熟期风干土(表 3),这表明土壤水分条件不同可能导致 *f_{ac}* 值存在一定差异^[20]. 选取对比的意大利和日本的供试土壤为稻田风干土,与本研究相对应的稻作系统 *f_{ac}* 值有所不同,其原因可能是选用了的不同 α_(CO₂/CH₄) 值.

为进一步探明 CH₄ 产生途径的影响因素,本研究统一选定国际上常用的 α_(CO₂/CH₄) = 1.06,分别计算了不同稻作系统的 *f_{ac}* 值. 结果表明,不同稻作系统的 *f_{ac}* 差异显著(*P* < 0.05),这说明稻作系统显著影响土壤 CH₄ 产生途径(图 4); 相同稻作系统下,不同地区之间的 *f_{ac}* 值也存在一定差异(表 3 和图 4),表明同一稻作系统下不同地区土壤性质也会影响 CH₄ 产生途径. 相同稻作系统下不同地区之间经纬度跨越大(表 3),土壤水热条件存在很大的差异,这些环境因素的不同会导致土壤有机碳存在一定差异^[48,49],进而导致相同稻作系统下不同地区土壤的 *f_{ac}* 值存在差异.

表 3 不同地区稻田土壤*f_{ac}*和 α_(CO₂/CH₄) 值¹⁾
Table 3 Values of *f_{ac}* and α_(CO₂/CH₄) under different regions

试验地点	稻作系统	δ ¹³ CH _{4(ac)} /‰	α _(CO₂/CH₄)	<i>f_{ac}</i> /%	文献
泰国那拉提瓦省	DR	-43	1.071	58 ~ 108	[17]
		-30	1.071	45 ~ 83	
美国得克萨斯州	RF	-40	1.045	24 ~ 67	[23]
		-40	1.060	51 ~ 80	
美国得克萨斯州	RF	-40	1.045	41 ~ 0	[24]
		-40	1.060	62 ~ 81	
日本鸿巢	RF	-40	1.049	12 ~ 100	[22]
意大利韦尔切利	RF	a1)	1.070	30 ~ 80	[38]
意大利韦尔切利	RF	a	1.045	10 ~ 51	[42]
		a	1.060	27 ~ 67	
意大利韦尔切利	RF	a	1.045	40 ~ 85	[43]
		a	1.073	0	
意大利韦尔切利	RF	-37 ~ -33	/	45 ~ 62	[19]
中国句容	RW	-37	1.050	-21 ~ 32	[26]
		-37	1.060	8 ~ 50	
		-43	1.050	-27 ~ 42	
		-43	1.060	9 ~ 61	
中国句容	RW	-37	1.057	50	本研究
		-43		60	
中国简阳	RF	-37	1.058	84	
		-43		98	
中国鹰潭	DR	-37	1.062	64	
		-43		75	

1) a 表示 ε_(ac/CH₄),数值为 -21‰

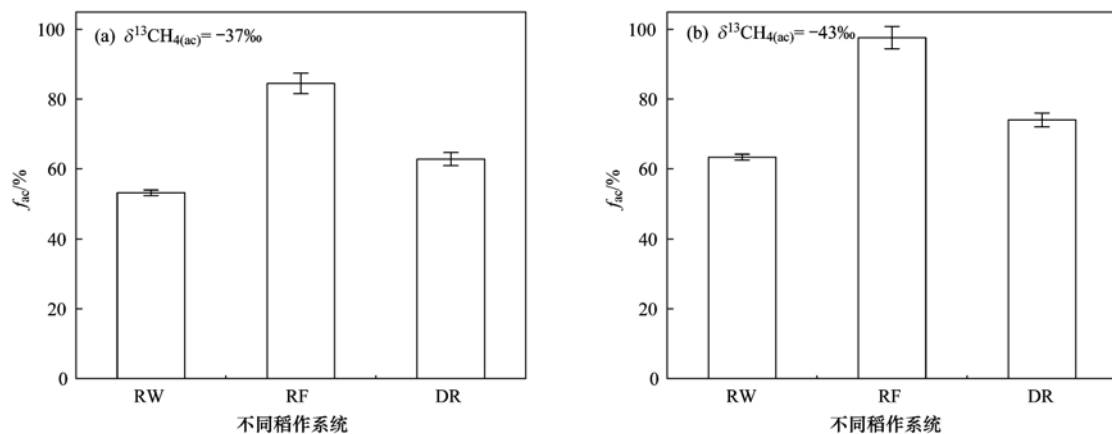


图4 $\alpha_{(\text{CO}_2/\text{CH}_4)} = 1.06$ 情况下不同稻作系统的 f_{ac} 值

Fig. 4 The f_{ac} values of different rice-based cropping systems under the condition of $\alpha_{(\text{CO}_2/\text{CH}_4)} = 1.06$

4 结论

(1) 不同稻作系统 RW、RF 和 DR 土壤 CH₄ 产生累积浓度和产生潜力存在显著差异 ($P < 0.05$), 这可能与土壤阳离子交换量和 pH 等性质不同有关。

(2) 不同稻作系统 RW、RF 和 DR 土壤 DOC 和乙酸含量差异明显 ($P < 0.05$), DR 土壤 DOC 和乙酸含量均高于 RE 和 RF。

(3) 不同稻作系统下土壤产生的 $\delta^{13}\text{CH}_4$ 和 $\delta^{13}\text{CO}_2$ 值明显不同, 土壤 $\alpha_{(\text{CO}_2/\text{CH}_4)}$ 值范围在 1.057 ~ 1.062, DR 的 $\alpha_{(\text{CO}_2/\text{CH}_4)}$ 值显著高于 RW 和 RF。

(4) 我国 3 种典型稻作系统土壤 f_{ac} 值范围为 50% ~ 98%, 但不同稻作系统的 CH₄ 产生途径存在显著差异 ($P < 0.05$), RF 的 f_{ac} 值明显高于 RW 和 DR。

参考文献:

- [1] IPCC. Climate Change 2021: The physical science basis. Contribution of Working group I to the sixth assessment report of the intergovernmental panel on climate change[M]. Cambridge: Cambridge University Press, 2021.
- [2] National Oceanic & Atmospheric Administration. Trends in atmospheric methane [EB/OL]. https://gml.noaa.gov/ccgg/trends_ch4/, 2021-11-05.
- [3] Saunio M, Stavert A R, Poulter B, *et al.* The Global methane budget 2000-2017[J]. Earth System Science Data, 2020, **12** (3): 1561-1623.
- [4] 王平, 黄耀, 张稳. 1955-2005 年中国稻田甲烷排放估算[J]. 气候变化研究进展, 2009, **5**(5): 291-297.
Wang P, Huang Y, Zhang W. Estimates of methane emission from rice paddies in China over the period 1955-2005 [J]. Advances in Climate Change Research, 2009, **5**(5): 291-297.
- [5] 上官行健, 王明星, 陈德章, 等. 稻田 CH₄ 的传输[J]. 地球科学进展, 1993, **8**(5): 13-22.
Shangguan X J, Wang M X, Chen D Z, *et al.* The transport of methane in the rice paddy fields[J]. Advance in Earth Sciences, 1993, **8**(5): 13-22.
- [6] Le Mer J, Roger P. Production, oxidation, emission and consumption of methane by soils: A review [J]. European Journal of Soil Biology, 2001, **37**(1): 25-50.
- [7] Conrad R, Claus P. Contribution of methanol to the production of methane and its ¹³C-isotopic signature in anoxic rice field soil [J]. Biogeochemistry, 2005, **73**(2): 381-393.
- [8] Malyan S K, Bhatia A, Kumar A, *et al.* Methane production, oxidation and mitigation: A mechanistic understanding and comprehensive evaluation of influencing factors [J]. Science of the Total Environment, 2016, **572**: 874-896.
- [9] Mitra S, Majumdar D, Wassmann R. Methane production and emission in surface and subsurface rice soils and their blends [J]. Agriculture, Ecosystems & Environment, 2012, **158**: 94-102.
- [10] Takai Y. The mechanism of methane fermentation in flooded paddy soil [J]. Soil Science and Plant Nutrition, 1970, **16**(6): 238-244.
- [11] 王明星, 李晶, 郑循华. 稻田甲烷排放及产生、转化、输送机理[J]. 大气科学, 1998, **22**(4): 600-612.
Wang M X, Li J, Zheng X H. Methane emission and mechanisms of methane production, oxidation, transportation in the rice fields [J]. Scientia Atmospherica Sinica, 1998, **22**(4): 600-612.
- [12] Conrad R, Chan O C, Claus P, *et al.* Characterization of methanogenic Archaea and stable isotope fractionation during methane production in the profundal sediment of an oligotrophic lake (lake Stechlin, Germany) [J]. Limnology and Oceanography, 2007, **52**(4): 1393-1406.
- [13] Conrad R, Claus P, Casper P. Characterization of stable isotope fractionation during methane production in the sediment of a eutrophic lake, lake Dagow, Germany [J]. Limnology and Oceanography, 2009, **54**(2): 457-471.
- [14] Conrad R, Claus P, Casper P. Stable isotope fractionation during the methanogenic degradation of organic matter in the sediment of an acidic bog lake, lake Grosse Fuchskuhle [J]. Limnology and Oceanography, 2010, **55**(5): 1932-1942.
- [15] Liu Y Q, Yao T D, Gleixner G, *et al.* Methanogenic pathways, ¹³C isotope fractionation, and archaeal community composition in lake sediments and wetland soils on the Tibetan Plateau [J]. Journal of Geophysical Research: Biogeosciences, 2013, **118** (2): 650-664.
- [16] Yao H, Conrad R. Electron balance during steady-state production of CH₄ and CO₂ in anoxic rice soil [J]. European Journal of Soil Science, 2000, **51**(3): 369-378.

- [17] Nakagawa F, Yoshida N, Sugimoto A, *et al.* Stable isotope and radiocarbon compositions of methane emitted from tropical rice paddies and swamps in southern Thailand[J]. *Biogeochemistry*, 2002, **61**(1): 1-19.
- [18] 张广斌, 马静, 徐华, 等. 稻田甲烷产生途径研究进展[J]. 土壤, 2011, **43**(1): 6-11.
Zhang G B, Ma J, Xu H, *et al.* Advances on methanogenic pathways in rice fields[J]. *Soils*, 2011, **43**(1): 6-11.
- [19] Ji Y, Liu P F, Conrad R. Change of the pathway of methane production with progressing anoxic incubation of paddy soil[J]. *Soil Biology and Biochemistry*, 2018, **121**: 177-184.
- [20] 蔡祖聪, 徐华, 马静. 稻田生态系统 CH₄ 和 N₂O 排放[M]. 合肥: 中国科学技术大学出版社, 2009.
Cai Z C, Xu H, Ma J. Methane and nitrous oxide emissions from rice-based ecosystems[M]. Hefei: University of Science and Technology of China Press, 2009.
- [21] 张广斌, 张晓艳, 马二登, 等. 冬季土地管理对稻季 CH₄ 产生、氧化和排放的影响[J]. 生态与农村环境学报, 2010, **26**(2): 97-102.
Zhang G B, Zhang X Y, Ma E D, *et al.* Effects of land management in winter on production, oxidation and emission of CH₄ during the rice-growing season[J]. *Journal of Ecology and Rural Environment*, 2010, **26**(2): 97-102.
- [22] Sugimoto A, Wada E. Carbon isotopic composition of bacterial methane in a soil incubation experiment: contributions of acetate and CO₂/H₂[J]. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 1993, **57**(16): 4015-4027.
- [23] Tyler S C, Bilek R S, Sass R L, *et al.* Methane oxidation and pathways of production in a Texas paddy field deduced from measurements of flux, $\delta^{13}\text{C}$, and δD of CH₄[J]. *Global Biogeochemical Cycles*, 1997, **11**(3): 323-348.
- [24] Bilek R S, Tyler S C, Sass R L, *et al.* Differences in CH₄ oxidation and pathways of production between rice cultivars deduced from measurements of CH₄ flux and $\delta^{13}\text{C}$ of CH₄ and CO₂[J]. *Global Biogeochemical Cycles*, 1999, **13**(4): 1029-1044.
- [25] Zhang G B, Ji Y, Ma J, *et al.* Intermittent irrigation changes production, oxidation, and emission of CH₄ in paddy fields determined with stable carbon isotope technique[J]. *Soil Biology and Biochemistry*, 2012, **52**: 108-116.
- [26] Zhang G B, Yu H Y, Fan X F, *et al.* Carbon isotope fractionation reveals distinct process of CH₄ emission from different compartments of paddy ecosystem[J]. *Scientific Reports*, 2016, **6**, doi: 10.1038/srep27065.
- [27] Conrad R. Microbial ecology of methanogens and methanotrophs[J]. *Advances in Agronomy*, 2007, **96**: 1-63.
- [28] 陆雅海. 水稻根在稻田甲烷产生与释放中的作用[D]. 杭州: 浙江大学, 1998.
Lu Y H. The role of rice root in methane production and emission from rice soils[D]. Hangzhou: Zhejiang University, 1998.
- [29] 徐华, 蔡祖聪, 八木一行. 水稻土 CH₄ 产生潜力及其影响因素[J]. 土壤学报, 2008, **45**(1): 98-104.
Xu H, Cai Z C, Yagi K. Methane production potentials of rice paddy soils and its affecting factors[J]. *Acta Pedologica Sinica*, 2008, **45**(1): 98-104.
- [30] 王佳佳. 鄱阳湖湿地甲烷排放通量与甲烷产生潜力及其影响因素研究[D]. 南昌: 南昌大学, 2015.
Wang J J. Study on influence factors on methane emission flux and methane production capacity in Poyang lake wetland[D]. Nanchang: Nanchang University, 2015.
- [31] 郑继成, 张刚, 王德建, 等. 稻麦轮作下秸秆还田对稻麦产量和稻田可溶性有机碳含量的影响[J]. 中国生态农业学报, 2019, **27**(3): 431-440.
Zheng J C, Zhang G, Wang D J, *et al.* Effects of straw incorporation on crop yield and dissolved organic carbon concentration at rice growing season in rice-wheat rotation cropping system[J]. *Chinese Journal of Eco-Agriculture*, 2019, **27**(3): 431-440.
- [32] 蔡祖聪, 沈光裕, 颜晓元, 等. 土壤质地、温度和 Eh 对稻田甲烷排放的影响[J]. 土壤学报, 1998, **35**(2): 145-154.
Cai Z C, Shen G Y, Yan X Y, *et al.* Effects of soil texture, soil temperature and Eh on methane emissions from rice paddy fields[J]. *Acta Pedologica Sinica*, 1998, **35**(2): 145-154.
- [33] 陈洪, 付强, 杨剑虹. 重庆地区不同母质发育潜育型水稻土的有效铁锰差异[J]. 贵州农业科学, 2014, **42**(6): 95-97.
Chen H, Fu Q, Yang J H. Difference of effective iron and manganese in different logogenic paddy soil in Chongqing[J]. *Guizhou Agricultural Sciences*, 2014, **42**(6): 95-97.
- [34] Zhang J B, Cai Z C, Cheng Y, *et al.* Denitrification and total nitrogen gas production from forest soils of Eastern China[J]. *Soil Biology and Biochemistry*, 2009, **41**(12): 2551-2557.
- [35] 李海鹰, 姜小三, 潘剑君, 等. 土壤阳离子交换量分布规律的研究——以江苏省溧水县为例[J]. 土壤, 2007, **39**(3): 443-447.
Li H Y, Jiang X S, Pan J J, *et al.* Distribution of soil cation exchange capacity—a case study of Lishui county, Jiangsu province[J]. *Soils*, 2007, **39**(3): 443-447.
- [36] 康婷, 周春火, 魏宗强, 等. 江西省土壤阳离子交换量区域分布特征及其影响因素[J]. 中国农学通报, 2021, **37**(14): 66-71.
Kang T, Zhou C H, Wei Z Q, *et al.* Regional distribution characteristics and influencing factors of soil cation exchange capacity in Jiangxi[J]. *Chinese Agricultural Science Bulletin*, 2021, **37**(14): 66-71.
- [37] De Visscher A, Boeckx P, Van Cleemput V. Interaction between nitrous oxide formation and methane oxidation in soils: influence of cation exchange phenomena[J]. *Journal of Environmental Quality*, 1998, **27**(3): 679-687.
- [38] Conrad R, Klose M, Claus P. Pathway of CH₄ formation in anoxic rice field soil and rice roots determined by ¹³C-stable isotope fractionation[J]. *Chemosphere*, 2002, **47**(8): 797-806.
- [39] Chidthaisong A, Chen K J, Valentine D L, *et al.* A comparison of isotope fractionation of carbon and hydrogen from paddy field rice roots and soil bacterial enrichments during CO₂/H₂ methanogenesis[J]. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 2002, **66**(6): 983-995.
- [40] Conrad R, Klose M. How specific is the inhibition by methyl fluoride of acetoclastic methanogenesis in anoxic rice field soil? [J]. *Fems Microbiology Ecology*, 1999, **30**(1): 47-56.
- [41] 张广斌, 马静, 徐华, 等. 稳定性碳同位素方法在稻田甲烷研究中的应用[J]. 土壤学报, 2009, **46**(4): 676-683.
Zhang G B, Ma J, Xu H, *et al.* Application of stable carbon isotope technique in study of methane emission from rice field[J]. *Acta Pedologica Sinica*, 2009, **46**(4): 676-683.
- [42] Krüger M, Eller G, Conrad R, *et al.* Seasonal variation in pathways of CH₄ production and in CH₄ oxidation in rice fields determined by stable carbon isotopes and specific inhibitors[J]. *Global Change Biology*, 2002, **8**(3): 265-280.
- [43] Fey A, Claus P, Conrad R. Temporal change of ¹³C-isotope signatures and methanogenic pathways in rice field soil incubated anoxically at different temperatures[J]. *Geochimica et*

- Cosmochimica Acta, 2004, **68**(2): 293-306.
- [44] Stevens C M, Engelkemeir A. Stable carbon isotopic composition of methane from some natural and anthropogenic sources [J]. Journal of Geophysical Research, 1988, **93**(D1): 725-733.
- [45] Whiticar M J. Carbon and hydrogen isotope systematics of bacterial formation and oxidation of methane [J]. Chemical Geology, 1999, **161**(1-3): 291-314.
- [46] 丁维新, 蔡祖聪. 土壤有机质和外源有机物对甲烷产生的影响[J]. 生态学报, 2002, **22**(10): 1672-1679.
Ding W X, Cai Z C. Effects of soil organic matter and exogenous organic materials on methane production in and emission from wetlands [J]. Acta Ecologica Sinica, 2002, **22**(10): 1672-1679.
- [47] Conrad R. Quantification of methanogenic pathways using stable carbon isotopic signatures: a review and a proposal [J]. Organic Geochemistry, 2005, **36**(5): 739-752.
- [48] 李晓菡, 邹俊亮, 武菊英, 等. 土壤呼吸和有机碳对增温的响应及其影响因素分析[J]. 地球与环境, 2022, **50**(1): 73-82.
Li X H, Zou J L, Wu J Y, *et al.* Responses of soil respiration and organic carbon to warming and their influencing factors [J]. Earth and Environment, 2022, **50**(1): 73-82.
- [49] 唐薇, 赵志忠, 王军广, 等. 不同耕作制度下稻田土壤有机碳垂直分布季节变化及其影响因素——以海南省定安县为例[J]. 西南农业学报, 2021, **34**(9): 1932-1938.
Tang W, Zhao Z Z, Wang J G, *et al.* Seasonal variations and influencing factors of vertical distribution of soil organic carbon in paddy fields under different cultivation systems: take Ding'an county, Hainan province as example [J]. Southwest China Journal of Agricultural Sciences, 2021, **34**(9): 1932-1938.

环境科学

CONTENTS

Development Scenarios and Environmental Benefits Analysis of Future Power Generation Industry Under Two Modes in China	LIU Chun-jing, LÜ Jian-yi, ZHAO Wen-chang, <i>et al.</i>	(3375)
Forecasting of Emission Co-reduction of Greenhouse Gases and Pollutants for the Road Transport Sector in Lanzhou Based on the LEAP Model	PANG Ke, ZHANG Qian, MA Cai-yun, <i>et al.</i>	(3386)
Discussion of Air Quality Forecasting Evaluation for Cities Based on Half-level Method	WANG Xiao-yan, ZHU Li-li, XU Rong, <i>et al.</i>	(3396)
Characterization and Health Risk Assessment of Heavy Metals in PM _{2.5} in Xiamen Port	XIAO Si-han, CAI Mei-jun, LI Xiang, <i>et al.</i>	(3404)
Deposition Characteristics of Water-soluble Inorganic Nitrogen and Organic Nitrogen in Atmospheric Precipitation in the Northern Suburbs of Nanjing	ZHANG Jia-ying, YU Xing-na, ZHANG Yu-xiu, <i>et al.</i>	(3416)
Analysis of PM _{2.5} Transmission Characteristics in Main Cities of Jinzhong Basin in Winter	WANG Xiao-lan, WANG Yan, YAN Shi-ming, <i>et al.</i>	(3423)
Temporal Evolution and Source Apportionment of Black Carbon Aerosol in Ordos During Summer and Autumn 2019	KONG Xiang-chen, ZHANG Lian-xia, ZHANG Cai-yun, <i>et al.</i>	(3439)
Characteristics, Sources, and SOAP of VOCs During Winter in Jiyuan	WANG Fang, LI Li-xia, WANG Hong-guo, <i>et al.</i>	(3451)
Characteristics and Source Apportionment of Volatile Organic Compounds in August in the Chang-Zhu-Tan Urban Area	LUO Da-tong, ZHANG Qing-mei, LIU Zhan, <i>et al.</i>	(3463)
Ozone Sensitivity Analysis and Control Strategy in Shijiazhuang City in July 2019	ZHU Jia-xian, WANG Xiao-qi, OU Sheng-ju, <i>et al.</i>	(3473)
Spatiotemporal Variation and Influencing Factors of AOD in the North China Plain	GUO Lin, MENG Fei, MA Ming-liang	(3483)
Aerosol Optical Characteristics with Ground-based Measurements via Sun Photometer and Its Relationship with PM Particle Concentration in Chang'an	ZHENG Yu-rong, WANG Xu-hong, CUI Si-ying, <i>et al.</i>	(3494)
Spatial-temporal Distribution and Evolution Characteristics of Air Pollution in Beijing-Tianjin-Hebei Region Based on Long-term "Ground-Satellite" Data	WANG Yao-ting, YIN Zhen-ping, ZHENG Zuo-fang, <i>et al.</i>	(3508)
Ten-year Trend Analysis of Eutrophication Status and the Related Causes in Lake Hongze	CHEN Tian-yu, LIU Chang-qing, SHI Xiao-li, <i>et al.</i>	(3523)
Shallow Groundwater Around Plateau Lakes: Spatiotemporal Distribution of Phosphorus and Its Driving Factors	YANG Heng, LI Gui-fang, YE Yuan-hang, <i>et al.</i>	(3532)
Characteristics and Differences of Dissolved Oxygen Stratification in Different Tributaries of Three Gorges Reservoir During Impoundment Period	Ji Dao-bin, FANG Jiao, LONG Liang-hong, <i>et al.</i>	(3543)
Dissolved Organic Matter Component and Source Characteristics of the Metropolitan Lakes and Reservoirs in a Typical Karst Region	NI Mao-fei, ZHOU Hui, MA Yong-mei, <i>et al.</i>	(3552)
Characteristics, Sources, and Risk Assessment of Perfluoroalkyl Substances in Surface Water and Sediment of Luoma Lake	HUANG Jia-hao, WU Wei, HUANG Tian-yin, <i>et al.</i>	(3562)
Vertical Distribution Characteristics and Influencing Factors of Phytoplankton Community Structure in Qiandao Lake	WANG Ji-yi, HUO Di, GUO Chao-xuan, <i>et al.</i>	(3575)
Chemical Forms and Spatial Distribution of Phosphorus in the Sediment of Sihe River	ZHANG Zi-han, ZHANG Xin-ru, JIA Chuan-xing, <i>et al.</i>	(3587)
Influence of Optimal Land Use Allocation on Phosphorus Loss in the Process of Rainfall and Runoff	ZHOU Hao, CHEN Fang-xin, LUO Yi-feng, <i>et al.</i>	(3597)
Distribution Characteristics and Risk Assessment of Accumulated Heavy Metals in Bioretention Systems	CHU Yang-yang, YANG Long, ZHOU Yuan, <i>et al.</i>	(3608)
Effects of Damming and Impoundment on Planktonic Microbial Community Structure and Interspecific Interaction Patterns in Different Water Depths	WANG Xun, ZHANG Jia-jia, YUAN Qiu-sheng, <i>et al.</i>	(3623)
Identification of Bacterial Flora and Metabolic Function of Sediments in Different Channels of Duliujian River Basin, Tianjin	LIU Jia-yuan, FENG Yue, YANG Xue-chun, <i>et al.</i>	(3635)
Spatiotemporal Distribution and Source Apportionment of Suspended Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in Surface Water	PENG Ke-xing, LI Rui-fei, ZHOU Yi-chen, <i>et al.</i>	(3645)
Spatial Variation and Potential Sources of Microplastics in Rivers in Tongzhou District, Beijing	MEN Cong, LI Di, ZUO Jian-e, <i>et al.</i>	(3656)
Effects of Microplastic Exposure on Crucian Growth, Liver Damage, and Gut Microbiome Composition	HU Jia-min, ZUO Jian-e, LI Jin-bo, <i>et al.</i>	(3664)
Influence of Different Types of Dewatering Agents on the Solidification Effect and Physical and Chemical Properties of Sediment	REN Jun, YIN Peng, WANG Wei-zhen, <i>et al.</i>	(3672)
Structural Characteristics of Micro-nano Particle Size Biochar and Its Adsorption Mechanism for Cd ²⁺	MA Wen-yan, PEI Peng-gang, GAO Ge, <i>et al.</i>	(3682)
Phosphorus Adsorption Characteristics of Different Biochar Types and Its Influencing Factors	LIAN Shen-hai, ZHANG Shu-nan, LIU Feng, <i>et al.</i>	(3692)
Development of Zeolite Loaded Mg-La-Fe Ternary (hydr)oxides for Treatment of Low Concentration Phosphate Wastewater	YIN Xue-jie, SONG Xiao-bao, DING Chen-man, <i>et al.</i>	(3699)
Succession and PICRUS2-based Predicted Functional Analysis of Microbial Communities During the Sludge Bulking Occurrence and Restoration in One-stage Combined Partial Nitrification and ANAMMOX Process	LI Ya-nan, YAN Bing, ZHENG Rui, <i>et al.</i>	(3708)
Aerobic Granulation Stability and Microbial Diversity of Filamentous Bulking Sludge	GAO Chun-di, YANG Xiao-yang, OU Jia-li, <i>et al.</i>	(3718)
Dynamic Variation in Vegetation Cover and Its Influencing Factor Detection in the Yangtze River Basin from 2000 to 2020	XU Yong, ZHENG Zhi-wei, GUO Zhen-dong, <i>et al.</i>	(3730)
Enrichment and Ecological Risk Assessment of Available Phosphorus in Paddy Soil of Fujian Province Over Past 40 years	CHEN Zhong-xing, QIU Long-xia, CHEN Han-yue, <i>et al.</i>	(3741)
Effects of Land Use Change on Constitution, Stability, and C, N, P Stoichiometric Characteristics of Soil Aggregates in Southwest China Karst	HE Yu, SHENG Mao-yin, WANG Ke, <i>et al.</i>	(3752)
Heavy Metal Pollution and Health Risk Assessment of Mine Soil in Yangtze River Economic Belt	ZHANG Zhe, LU Ran, WU Si-yang, <i>et al.</i>	(3763)
Pollution Characteristics and Phytotoxicity of Heavy Metals in the Soil Around Coal Gangue Accumulation Area	SHANG Yu, SANG Nan	(3773)
Evaluation of Mercury Pollution in Soil of Different Land Use Types in Coal-fired Industrial Area	LI Qiang, YAO Wan-cheng, ZHAO Long, <i>et al.</i>	(3781)
Cadmium Enrichment and Bioavailability of Quaternary Profiles in Nansha District, Guangzhou, China	WANG Fang-ting, BAO Ke, HUANG Chang-sheng, <i>et al.</i>	(3789)
Health Risk Assessment and Environmental Benchmark of Heavy Metals in Cultivated Land in Mountainous Area of Northwest Guizhou Province	XU Meng-qi, YANG Wen-tao, YANG Li-yu, <i>et al.</i>	(3799)
Effect Factors and Model Prediction of Soil Heavy Metal Bioaccessibility	ZHANG Jia-wen, TIAN Biao, LUO Jing-jing, <i>et al.</i>	(3811)
Effect of Organic Material Amendments on Soil Respiration in Tobacco Fields of Central Henan	LU Qi-fei, YE Xie-feng, HAN Jin, <i>et al.</i>	(3825)
Methane Production Potential and Methanogenic Pathways in Paddy Soils Under Different Rice-based Cropping Systems	SHEN Wan-yu, HUANG Qiong, MA Jing, <i>et al.</i>	(3835)
Characteristics and Assembly Process of Reclaimed Soil Microbial Communities in Eastern Plain Mining Areas	MA Jing, DONG Wen-xue, ZHU Yan-feng, <i>et al.</i>	(3844)
Differences in Bacterial Community Structure in Rhizosphere Soil of Three <i>Caragana</i> Species and Its Driving Factors in a Common Garden Experiment	LI Yuan-yuan, XU Ting-ting, AI Zhe, <i>et al.</i>	(3854)
Comparison of Bacterial Community Structure and Functional Groups of Paddy Soil Aggregates Between Karst and Non-karst Areas	XIAO Xiao-yi, JIN Zhen-jiang, LENG Meng, <i>et al.</i>	(3865)
Contrasting Responses of the Microbial Community Structure and Functional Traits to Soil pH in Purple Soils	WANG Zhi-hui, JIANG Xian-jun	(3876)
Effects of Agricultural Organic Waste Incorporation on the Metabolic Capacity of Microbial Carbon Sources of Dissolved Organic Matter in Paddy Soil	XIAO Yi, LI Zheng, HUANG Rong, <i>et al.</i>	(3884)