

环境科学

(HUANJING KEXUE)

ENVIRONMENTAL SCIENCE

第39卷 第2期

Vol.39 No.2

2018

中国科学院生态环境研究中心 主办
科学出版社 出版



目次

特别策划:挥发性有机污染物(VOCs)排放特征、减排控制、环境政策研究专辑(III)

序	郝郑平(477)
我国机动车排放 VOCs 及其大气环境影响	陈天增,葛艳丽,刘永春,贺泓(478)
基于 PMF 量化工业排放对大气挥发性有机物(VOCs)的影响:以南京市江北工业区为例	胡崑,王鸣,郑军,王红丽,卢兴东,景盛翱,陈超(493)
南京工业源挥发性有机物来源解析及其对臭氧贡献评估	张玉欣,安俊琳,王俊秀,师远哲,刘静达,梁静舒(502)
某工业园区 VOCs 臭氧生成潜势及优控物种	武蕾丹,王秀艳,杨文,郭风艳,刘锦(511)
某石化工业园区秋季 VOCs 污染特征及来源解析	胡天鹏,李刚,毛瑶,郑煌,秦世斌,闵洋,张家泉,邢新丽,祁士华(517)
某典型石化工业园区冬季大气中 VOCs 污染特征	毛瑶,李刚,胡天鹏,郑煌,安艺伟,闵洋,邢新丽,祁士华(525)
杭州市工业源 VOCs 排放清单及排放特征	卢滨,黄成,卢清,杨强,井宝莉,夏阳,唐伟,顾泽平(533)
秦皇岛市工业行业挥发性有机物排放特征	虎啸宇,刘航,王乃玉,王灿,揣莹(543)
浙江省汽摩配行业挥发性有机物排放特征及排放系数	杨忠平,王浙明,何志桥,徐志荣,滕富华,张华岳(551)
汽车制造企业恶臭来源及影响分析	石田立,张伟霞,陈小方,张嘉妮,梁小明,范丽雅,叶代启(557)
典型酿造业厂界无组织排放 VOCs 污染特征与风险评价	高占啟,胡冠九,王荃,朱冰清,陈素兰(567)
成都市大气环境 VOCs 污染特征及其健康风险评价	李友平,唐娅,范忠雨,蒲敏,章金莲,杨铮铮,吴大磊(576)
上海市住宅区儿童卧室中甲醛和苯系物浓度的现场检测分析	蒋巧云,刘平平,王雪颖,路荣春,刘炜,周华元,龚莹莹,周亚欣,黄晨(585)
江苏省人为源 VOCs 排放清单及其对臭氧生成贡献	夏思佳,刘倩,赵秋月(592)
江门市人为源挥发性有机物排放清单	陈小方,张伟霞,陈柄旭,张嘉妮,范丽雅,叶代启(600)
长江三角洲 2014 年天然源 BVOCs 排放、组成及时空分布	刘岩,李莉,安静宇,张伟,严茹莎,黄凌,黄成,王红丽,王卿,王敏(608)
北京城市副中心(通州区)加油站 VOCs 排放清单	黄玉虎,胡玮,李贝贝,纪旋,肖宇,任碧琪,秦建平(618)
公交车使用废食用油制生物柴油的污染物排放及 VOCs 成分谱	胡志远,林骠骑,黄成,王红丽,景盛翱,楼狄明(626)
生物滴滤塔净化甲基叔丁基醚废气的研究	褚其英,姚露露,吕雄标,叶杰旭,叶虹霓,潘梁柱,陈建孟,陈东之(633)
低温等离子体-生物耦合系统对复合 CVOCs 的降解	郭海倩,缪晶晶,姜理英,张迪(640)
水质异味期间钱塘江杭州段表层水体中挥发性和半挥发性有机物污染特征及健康风险评价	陈峰,唐访良,徐建芬,王奕奕,阮东德,张伟,周姗(648)
城市自来水管网中挥发性有机物的空间分布特征	许美佳,王海亮,李春梅,徐雄,王东红(655)
不同通勤模式暴露于 VOCs 的健康风险评价	佟瑞鹏,张磊(663)
家具制造过程中 VOCs 的来源分析及环境健康风险评价	佟瑞鹏,张磊,杨校毅,朱旭波,任传耕(672)
北京市 PM _{2.5} 时空分布特征及其与 PM ₁₀ 关系的时空变异特征	杨文涛,姚诗琪,邓敏,王艳军(684)
小型池塘水-气界面 CH ₄ 冒泡通量的观测	张秀芳,肖薇,张弥,王伟,赵佳玉,胡勇博,谢成玉,张圳,谢燕红,黄文晶(691)
中国七大流域全氟烷基酸污染水平与饮水暴露风险	王鑫璇,张鸿,王艳萍,罗骥(703)
铁岭市河流氮素时空分布及源解析	杨丽标,雷坤,乔飞,孟伟(711)
基于三维荧光及平行因子分析的川西高原河流水体 CDOM 特征	刘堰杨,秦纪洪,刘琛,孙辉,唐翔宇,范诗雨(720)
宁波市地表水重金属污染现状和健康风险评价	徐美娟,鲍波,陈春燕,王永川,高夫燕,虞效益(729)
巢湖水体可溶性重金属时空分布及污染评价	吴蕾,刘桂建,周春财,刘荣琼(738)
广西龙江沉积物重金属污染现状及生物有效性	蓝小龙,宁增平,肖青相,黄正玉,刘意章,肖唐付,赵彦龙,吴世良(748)
内电解人工湿地冬季低温尾水强化脱氮机制	郑晓英,朱星,王菊,周翔,徐亚东,韦诚,高雅洁,周敏(758)
河道型水库支流库湾营养盐动态补给过程	徐雅倩,徐飘,杨正健,刘德富,马骏(765)
降雨对蓝藻水华消退影响及其机制分析	刘心愿,宋林旭,纪道斌,刘德富,崔玉洁,黄佳维,赵冲,唐咏春,平明明(774)
城市河流沉水植物与大型底栖动物群落的关系	梁晓东,余杨,张敏,段龙飞,彭文启(783)
三峡库区兰陵溪流域径流氮磷输出及其降雨径流过程特征	张林,黄志霖,肖文发,曾立雄,宋文梅(792)
基于污染评价的地下水中优控污染物筛选	赵鹏,何江涛,王曼丽,黄德亮,王磊,梁雨(800)
硫和石英砂比对自养填充床反应器去除高浓度高氯酸盐的影响	陶华强,邵冬海,张超,宋圆圆,逯彩彩,郭建博(811)
活性炭/高分子复合水凝胶对水中亚甲基蓝和 Cu(II) 的去除性能	孔岩,庄媛,石宝友,韩志勇,郝昊天,韩昆,于建伟(819)
三维网状 HZO@SGH 对水中氟离子的吸附作用和机制	马福臻,周少奇,刘泽琚,支亮亮,周璇(828)
MgO/活性炭催化臭氧氧化降解有机物的作用机制	许珊珊,林存旺,丁亚磊,童少平(838)
污水厂二级出水中难降解有机物的臭氧化特性	侯瑞,金鑫,金鹏康,苟邦耀,王晓昌(844)
染料探针技术对二级出水中优势污染物的定量检测	孟晓荣,王穗桢,王磊,王旭东,乔茹凯,任婷婷,唐卫婷(852)
污水处理厂厌氧氨氧化工艺小试	李冬,赵世勋,王俊安,朱金凤,关宏泽,张杰(859)
间歇曝气模式下曝气量对短程硝化恢复的影响	刘宏,南彦斌,李慧,王翔,彭永臻,陈永志(865)
好氧/除磷颗粒对亚硝化颗粒污泥启动的影响	李冬,郭跃洲,曹美忠,张泽文,李帅,张杰(872)
处理垃圾渗滤液的 SBR 中微生物种群与污泥比阻	蔡丽云,黄泽彬,须子唯,江志斌,林莉莉,黄宇(880)
基于城镇化进程表层土壤多环芳烃来源解析及风险评价	姚宏,张士超,刘明丽,王静,鲁根涛,于晓华(889)
西江流域土壤砷含量空间变异与污染评价	刘畅,宋波,张云霞,雷梅,田美玲,余元元,庞瑞(899)
开封城市土壤磷素组成特征及流失风险	白秀玲,马建华,孙艳丽,刘德新(909)
电子垃圾拆解区土壤-水稻系统重金属分布特征及健康风险评价	尹伊梦,赵委托,黄庭,程胜高,赵珍丽,余葱葱(916)
上海市稻米中有机氯农药残留水平及健康风险评价	孟媛,刘翠翠,仇雁翎,周轶慧,朱志良(927)
四环素类抗生素对不同蔬菜生长的影响及其富集转运特征	迟荪琳,王卫中,徐卫红,李桃,李彦华,张春来(935)
硅肥耦合水分管理对复合污染稻田土壤 As-Cd 生物有效性及稻米累积阻控	李园星露,叶长城,刘玉玲,李丹阳,刘寿涛,罗海艳,刘孝利,铁柏清,孙健(944)
电子垃圾拆解工人的肝功能和肾功能健康状况及影响因素分析:以清远市龙塘镇为例	严晓,李淑圆,王美欢,许榕发,郑晶,任明忠(953)

小型池塘水-气界面 CH_4 冒泡通量的观测

张秀芳¹, 肖薇^{1,2*}, 张弥¹, 王伟¹, 赵佳玉¹, 胡勇博¹, 谢成玉¹, 张圳¹, 谢燕红¹, 黄文晶¹

(1. 南京信息工程大学大气环境中心, 南京 210044; 2. 南京信息工程大学气象灾害预报预警与评估协同创新中心, 南京 210044)

摘要: 为了量化亚热带浅水养殖塘 CH_4 冒泡通量占 CH_4 总通量的比例, 选取安徽省全椒县两个小型池塘为研究对象, 采用倒置漏斗法和顶空平衡法, 自2016年7月28日至8月13日观测夏季水-气界面的 CH_4 通量. 结果表明, 两个池塘 CH_4 冒泡通量分别是 $121.78 \text{ mg} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{d})^{-1}$ 和 $161.08 \text{ mg} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{d})^{-1}$, CH_4 扩散通量分别是 $3.38 \text{ mg} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{d})^{-1}$ 和 $3.79 \text{ mg} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{d})^{-1}$, CH_4 冒泡通量占总通量比例分别是 97.5% 和 96.4%. CH_4 冒泡通量具有高度空间异质性, A 塘 CH_4 冒泡通量的变化范围为 $0.11 \sim 446.90 \text{ mg} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{d})^{-1}$, B 塘 CH_4 冒泡通量变化范围为 $0.05 \sim 607.51 \text{ mg} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{d})^{-1}$. 两个池塘的气体冒泡速率都是白天高于夜间, 主要受风速控制. 对于较浅的池塘, 在小时尺度上, CH_4 冒泡通量的主要影响因素是风速; 在日尺度上, CH_4 冒泡通量的主要影响因素是风速和水深, 其中 CH_4 冒泡通量与风速呈正相关关系, 与水深呈负相关关系. 不同纬度的水体 CH_4 冒泡通量不同, 中纬度地区的淡水环境比高纬度地区 CH_4 冒泡通量更高. 通过观测手段量化小型浅水池塘 CH_4 冒泡通量, 可以为准确估算内陆水体对区域和全球碳循环的贡献提供数据支持和理论参考.

关键词: 小型池塘; 甲烷冒泡通量; 甲烷扩散通量; 倒置漏斗法; 顶空平衡法

中图分类号: X16 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2018)02-0691-12 DOI: 10.13227/j.hjxx.201707117

Quantification of Methane Ebullition Flux from Small Ponds Using the Inverted-Funnel Method

ZHANG Xiu-fang¹, XIAO Wei^{1,2*}, ZHANG Mi¹, WANG Wei¹, ZHAO Jia-yu¹, HU Yong-bo¹, XIE Cheng-yu¹, ZHANG Zhen¹, XIE Yan-hong¹, HUANG Wen-jing¹

(1. Yale-NUIST Center on Atmospheric Environment, Nanjing University of Information Science & Technology, Nanjing 210044, China; 2. Collaborative Innovation Center on Forecast and Evaluation of Meteorological Disasters, Nanjing University of Information Science & Technology, Nanjing 210044, China)

Abstract: To quantify the ratio of CH_4 ebullition to total flux in subtropical shallow ponds, the CH_4 flux at the water-air interface was measured using the inverted-funnel and water equilibrium methods in two small ponds in Quanjiao, Anhui Province from July 28 to August 13, 2016. The average CH_4 ebullition fluxes were 121.78 and $161.08 \text{ mg} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{d})^{-1}$ and the average diffusion fluxes were 3.38 and $3.79 \text{ mg} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{d})^{-1}$ over pond A and pond B, respectively. The ebullition flux accounted for 97.5% and 96.4% of the total flux over pond A and pond B, respectively. Methane ebullition ranged from 0.11 to $446.90 \text{ mg} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{d})^{-1}$ over pond A and from 0.05 to $607.51 \text{ mg} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{d})^{-1}$ over pond B. Gas ebullition rate during the day was higher than that at night and was controlled by wind speed. Methane ebullition flux was influenced by wind speed over the shallow pond at hourly scale and by water depth and wind speed at daily scale, with positive correlation with wind speed and negative correlation with water depth. Varying with latitude, methane ebullition flux was higher for the water bodies in the mid-latitude region compared to those in the high-latitude region. Direct observations of the methane ebullition flux over small ponds provide data support and theoretical reference to precisely estimate the contribution of inland water bodies to regional and global carbon cycle.

Key words: small pond; CH_4 ebullition flux; CH_4 diffusion flux; inverted-funnel method; water-equilibrium method

水生生态系统 CH_4 排放对大气 CH_4 有重要的贡献. CH_4 是一种温室气体, 其增温潜势约为 CO_2 的 21 倍^[1], 且大气中 CH_4 浓度自工业革命以来增长了 3 倍^[2], 但是其释放源的相对贡献依然饱受争议^[3]. 特别是淡水环境 CH_4 排放量占全球尺度 CH_4 排放量的 20%, 并且由于它所占面积较大, 因此被认为是 CH_4 排放的一个重要来源^[4]. 在淡水环境中, 除了大型的水体以外, 小型池塘 (面积 $< 0.001 \text{ km}^2$) 排放 CH_4 的能力也很强, 但是往往被忽视. 主

要原因是小型池塘面积较小, 不能在卫星图像或者地图上识别出来, 且小型池塘与湿地容易形成一个不易区分的连续体, 因此利用传统的遥感、地理信息系统 (GIS) 技术估算水体 CH_4 排放量容易忽略小

收稿日期: 2017-07-15; 修订日期: 2017-10-27

基金项目: 国家自然科学基金项目 (41475141, 41505005, 41575147, BK20150900, 2014046)

作者简介: 张秀芳 (1991 ~), 女, 硕士研究生, 主要研究方向是地-气温室气体交换, E-mail: 756455012@qq.com

* 通信作者, E-mail: wei.xiao@nuist.edu.cn

型池塘的贡献^[5]。但是,小型池塘面积占全球湖泊池塘表面积的 8.6%^[5],忽略小型池塘 CH₄ 排放量会低估淡水环境的 CH₄ 排放量,最终导致区域甚至全球碳排放量的低估。因此,对小型水体 CH₄ 排放的定量化和排放机制研究对于全球温室气体循环和气候变化研究是至关重要的。

尽管小型池塘对大气的 CH₄ 贡献不容忽视,目前也有多种成熟的方法观测水-气界面的 CH₄ 通量,但是在池塘上开展的观测研究却并不多见。CH₄ 是在缺氧条件下,微生物通过分解底泥中有机碳产生的。CH₄ 从产生到释放到大气有 3 个途径,即冒泡、扩散和植物体茎秆传输^[6~8]。对于池塘和湖泊等植物生长很少的水生生态系统,CH₄ 排放的途径主要是冒泡和扩散。目前国内外针对水-气界面 CH₄ 的观测方法主要有顶空平衡法^[9]、箱式法^[10]、涡度相关法^[11~13]、通量梯度法^[14]和倒置漏斗法^[15,16]。顶空平衡法只能观测到通过扩散方式排放的 CH₄,无法观测到通过冒泡和植物体茎秆传输排放的 CH₄,因此会低估 CH₄ 通量^[5];箱式法、涡度相关法、通量梯度法可以得到通过 3 种途径排放的 CH₄ 总通量,其中涡度相关法和通量梯度法可以长期、连续、在线地观测水-气界面 CH₄ 通量^[11~14],但是对仪器适用条件和维护成本较高;箱式法操作简单但仅限于单点观测,且会改变箱体内部气象条件。但是,分别观测通过扩散和冒泡方式排放的 CH₄ 量对于研究 CH₄ 排放的控制机制有重要意义。倒置漏斗法仅可以观测到通过冒泡方式排放的 CH₄,通常与顶空平衡法结合使用,量化 CH₄ 冒泡比例^[15,16]。对于 CH₄ 冒泡通量的观测,箱式法区分 CH₄ 冒泡通量的贡献是通过在静态箱内 CH₄ 冒泡发生的开始与结束时刻箱体内 CH₄ 气体浓度差来确定^[17,18];而倒置漏斗法收集的 CH₄ 是从底泥中产生的,直接到达水表不被水体氧化进入到倒置漏斗装置中的部分^[15,16,19,20]。比起箱式法,水-气界面 CH₄ 冒泡通量的观测方法中最准确的是倒置漏斗法^[15]。

小型池塘是长三角地区典型的土地利用类型。全国水产养殖面积是 $8.47 \times 10^{10} \text{ m}^2$,池塘养殖面积是 $2.70 \times 10^{10} \text{ m}^2$,池塘养殖面积占养殖总面积的 31.9%^[21]。“长江三角洲城市群”包括江苏、安徽、浙江和上海的全部或部分城市,4 个省(市)池塘养殖面积占养殖总面积分别是 51.1%、37.7%、25.0% 和 90.1%^[21],除了浙江,均远高于全国平

均水平 31.9%。本研究选取的试验站点是安徽全椒两个浅水池塘,地处亚热带季风气候区,目的是通过观测手段量化小型浅水池塘 CH₄ 冒泡通量和 CH₄ 冒泡通量占总通量的比例,以期为准估算中纬度亚热带季风区小型浅水池塘 CH₄ 排放量、估算内陆水体对区域和全球碳循环的贡献提供数据支持和理论参考。

1 材料与方法

1.1 试验站点

本研究的试验站点位于安徽省滁州市全椒县武岗镇官渡村的大片渔塘养殖区(118.25°E, 31.97°N),在由 4 个池塘组成的“田”字型池塘区内选择了对角的 A 塘和 B 塘(图 1)。本试验设置有 10 个采样点,每个池塘 5 个采样点。两个池塘水体特征为:A 塘水深 0.97 m,面积 7 168 m²,水体清澈,零星生长着空心莲子草;B 塘水深 0.48 m,面积 7 524 m²,水体浑浊,水面上漂浮有绿色泡沫。按照当地渔业养殖的惯用方式,每天 12:00 和 17:00 分别向两个塘投放一定量的饲料,其主要成分占总营养成分的比例为:蛋白质 $\geq 28.0\%$,粗纤维 $\leq 12.0\%$,粗脂肪 $\geq 3.0\%$,粗灰分 $\leq 15.0\%$, $0.50\% \leq \text{钙} \leq 2.00\%$,总磷 $\geq 0.6\%$, $0.20\% \leq \text{氯化钠} \leq 1.50\%$,水分 $\leq 12.5\%$,赖氨酸 $\geq 1.20\%$ 。



图 1 池塘观测点位置示意

Fig. 1 Location of ten observation sites in two ponds

1.2 CH₄ 冒泡通量的观测方法

1.2.1 倒置漏斗装置及其观测原理

本文采用倒置漏斗装置收集水-气界面通过冒泡方式排放的 CH₄。该装置^[22]由一个塑料漏斗(最大开口直径 0.26 m、高度 0.66 m)、一段聚四氟乙

烯 PVC 塑料管(内径 20 mm、外径 25 mm、长度 0.31 m, 带刻度)和一个塑料三通阀组成。在收集气体过程中, 漏斗倒置在水面上, 漏斗最开阔的表面位于水面以下 15 cm, 上面连接塑料管, 塑料管最上端连接三通阀, 整个装置保持密封, 不与大气交换气体。该装置收集 CH₄ 气体的原理是^[22]: 底泥产生的 CH₄ 气泡上升, 在漏斗瓶颈处逐渐集聚, 集聚的 CH₄ 气泡的瓶颈处形成一定的压力, 从而产生较大的压强, 当气压大于水压时, 气泡沿着 PVC 管慢慢向上移动, 然后到达塑料管顶部, 此时塑料管里的水位会下降, 下降的体积即为收集到的气体体积, 这样就达到了收集气体的目的。采样时, 首先读取塑料管的读数, 用于计算气体体积; 然后收集气体, 打开三通阀, 用另一个注射器快速抽取活塞顶部气体, 并用 Parafilm® M 塑封膜密封后放置于 4℃ 保温箱内保存, 24 h 之内送回实验室完成分析。

1.2.2 采样时间与分析方法

气体采样分为日常采样和密集采样。日常采样时间为 2016 年 7 月 31 ~ 8 月 13 日, 每天早上 07:00 在每个点收集冒泡气体, 代表的是一天 24 h 的平均值; 密集采样时间为 2016 年 7 月 28 ~ 30 日, 每天 06:00、12:00、18:00 和 24:00 在每个点收集冒泡气体, 代表的是 6 h 的平均值。气体样品在南京信息工程大学农业气象试验站, 用气相色谱仪(型号 GC7890B, Agilent Technologies Inc., USA)测量 CH₄、CO₂ 和 N₂O 的体积分数, 本文仅选用 CH₄ 数据。

1.2.3 CH₄ 冒泡通量计算方法

CH₄ 冒泡质量通量的计算公式如下^[20]:

$$F = \frac{x(\text{CH}_4) \times V \times M}{A \times t \times V_m} \times \frac{1}{1000} \quad (1)$$

式中, F 为 CH₄ 通量 [$\text{mg} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{d})^{-1}$], $x(\text{CH}_4)$ 为倒置漏斗内收集的 CH₄ 气体的摩尔分数 ($\mu\text{mol} \cdot \text{mol}^{-1}$), V 为倒置漏斗内收集得到的气体体积 (L), M 为 CH₄ 的摩尔质量 ($16.04 \text{ g} \cdot \text{mol}^{-1}$), A 为漏斗最大处的面积 (0.053 m^2), t 为观测时长 (d), V_m 为标准状况下的空气摩尔体积 ($22.4 \text{ L} \cdot \text{mol}^{-1}$)。

1.3 CH₄ 扩散通量的观测方法

1.3.1 顶空平衡法的观测原理

本文采用顶空平衡法观测水-气界面 CH₄ 扩散通量。该方法通过同时测量表层水和大气中 CH₄ 的浓度, 计算两者的浓度差, 再根据气体交换系数计算 CH₄ 排放通量^[23]。当水中溶解的 CH₄ 浓度高于

大气中 CH₄ 浓度时, 水体表现为 CH₄ 的源, 此时水体向大气释放 CH₄。

1.3.2 水体溶解 CH₄ 浓度的观测与分析方法

顶空平衡法需要采集水样观测其溶解的 CH₄ 浓度。本文通过一个简易采水装置^[24]取水样, 该装置是用扎带将 320 mL 玻璃瓶绑在一根长 2 m 的 PVC 管上。取水时, 将采水装置放置于漏斗附近水面以下 20 cm 深度处取水样, 然后迅速用塞子塞紧, 最后用塑封膜密封。水样采集完成后, 将其置于 4℃ 保温箱保存, 24 h 之内运送回南京信息工程大学气象楼实验室的 4℃ 冰箱里保存, 并于 3 d 之内完成分析。在处理水样时, 用高纯氮气(体积分数: 99.999%)顶空 100 mL 水样, 在密封的条件下剧烈摇晃 5 min, 静置 30 min 后用气相色谱仪分析水中溶解 CH₄ 的摩尔分数 ($\mu\text{mol} \cdot \text{mol}^{-1}$)。采样时间为 2016 年 7 月 28 日 ~ 8 月 13 日的每天正午 12:00。

1.3.3 CH₄ 扩散通量计算方法

CH₄ 扩散通量计算公式如下^[23]:

$$F = k \times (c_w - c_{eq}) \quad (2)$$

式中, F 为 CH₄ 扩散通量 [$\text{mg} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{d})^{-1}$], k 为传输系数 ($\text{m} \cdot \text{d}^{-1}$), c_w 为气相色谱仪测得的水样中溶解的 CH₄ 浓度 ($\text{nmol} \cdot \text{L}^{-1}$), c_{eq} 为在某个温度下, 水中溶解 CH₄ 浓度与大气 CH₄ 浓度达到平衡时对应的水中 CH₄ 浓度 ($\text{nmol} \cdot \text{L}^{-1}$)。

1.4 配套观测

本文的配套观测包括大气 CH₄ 浓度观测、常规气象要素(温度、湿度、风向风速、气压和辐射等)观测和水质观测。大气 CH₄ 浓度用基于离轴积分腔输出光谱技术的便携式温室气体分析仪(型号 915-0011-CUSTOM, Los Gatos Research, USA), 该温室气体分析仪可以在线连续观测大气中的 CO₂、H₂O 和 CH₄ 浓度, 测量频率为 1 Hz, 进气口距离水面 2.1 m。常规气象要素观测的仪器包括: 温湿传感器(型号 HMP155, Vaisala Inc., USA)、风速风向传感器(型号 05103, R M Young Inc., USA)、气压传感器(型号 CS106, Vaisala Inc., USA)和四分量辐射计(型号 CNR4, Kipp & Zonen B. V., USA)。其中温湿传感器架设高度为 1.5 m, 风速风向传感器架设高度距离地面 2.5 m, 气压传感器安装在 EC100 的机箱内, 四分量辐射计架设高度距离水面 0.4 m 左右。另外, 采用温度传感器(型号 T109, Campbell Scientific Inc., USA)测量 20 cm 深度处的水温。所有配套观测的数据全部由在线处理程序计算为 0.5 h 数据(其中

风速和风向数据为 30 min 的矢量平均值). 溶解氧浓度数据来自多参数水质分析仪(型号 Professional Plus, YSI Inc., Yellow Spring, Ohio). 降水数据来自中国气象数据网(<http://data.cma.cn/>).

2 结果与分析

2.1 试验期间的气象条件

试验观测期间的气压、风速、气温、净辐射和降水量的时间序列如图 2 所示. 这段时间试验站点

主要受太平洋副热带高压的控制, 以晴朗天气为主, 风速较小, 观测期间有 6 d 发生降水(降雨). 气压的变化范围为 999.9 ~ 1 007.9 hPa, 平均值为 1 004.1 hPa; 风速的变化范围为 0 ~ 4.1 $\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$, 平均值为 1.5 $\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$; 气温的变化范围为 25.6 ~ 37.6 $^{\circ}\text{C}$, 平均值为 30.5 $^{\circ}\text{C}$; 净辐射的平均值为 181.2 $\text{W}\cdot\text{m}^{-2}$; 发生降水的日期按照降水量大小排序分别为: 7 月 31 日 14.9 mm, 8 月 10 日 9.3 mm, 8 月 4 日 1.1 mm, 8 月 5 日 0.1 mm, 8 月 7 日微量.

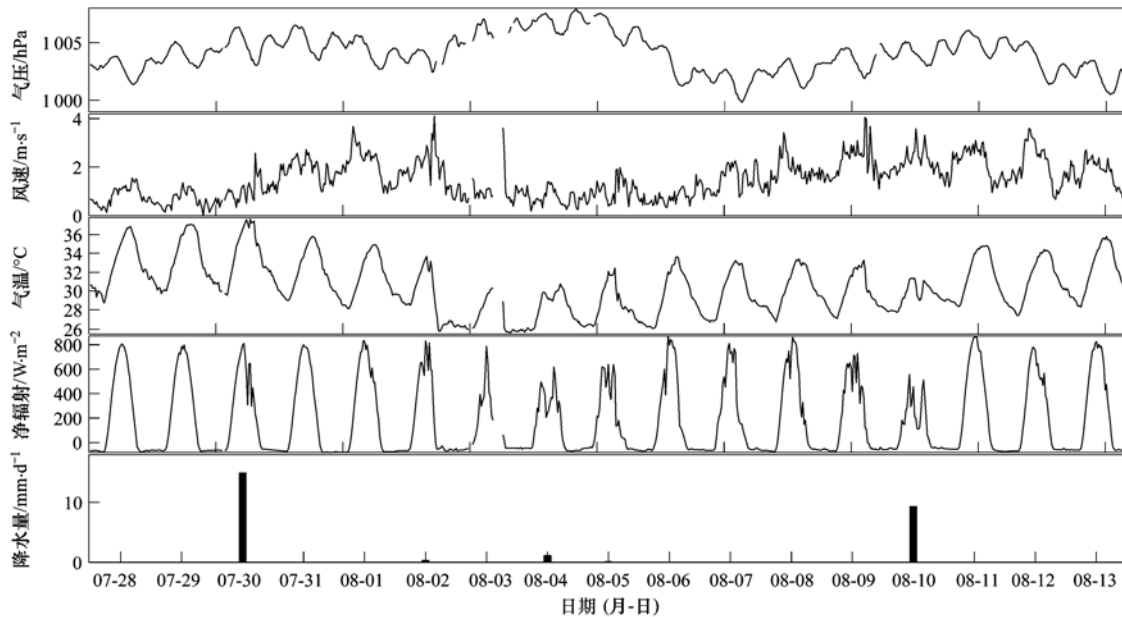


图 2 观测期间气象要素的时间序列

Fig. 2 Time series of meteorological variables during the observation period

2.2 气体冒泡速率的日变化特征

密集采样过程中(2016 年 7 月 28 ~ 30 日), 两个池塘中气体(包括 CH_4 、 CO_2 、 N_2O 和其它气体)冒泡速率如图 3 所示. 首先, 从不同时间段的结果来看[图 3(a)], 两个池塘气体冒泡速率最快的时段都是 12:00 ~ 18:00, 2 d 内这一时段 A 塘气体冒泡速率分别为 111.6 $\text{mL}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{h})^{-1}$ 和 78.6 $\text{mL}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{h})^{-1}$, B 塘气体冒泡速率分别为 60.4 $\text{mL}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{h})^{-1}$ 和 46.5 $\text{mL}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{h})^{-1}$. 其次, 对比两个池塘的气体冒泡速率, A 塘的冒泡速率明显比 B 塘快. A 塘气体冒泡速率变化范围为 40.1 ~ 111.6 $\text{mL}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{h})^{-1}$, B 塘在相同的时间段内气体冒泡速率变化范围为 27.0 ~ 60.4 $\text{mL}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{h})^{-1}$. 最后, 图 3 中误差线表征每个塘 5 个采样点观测值的 1 倍标准差, 可以看出不同采样点存在明显的空间差异. 从图 3(b) 可见, 2 d 内 4 个时段 06:00 ~ 12:00、12:00 ~ 18:00、18:00 ~ 24:00、24:00 ~ 06:00(当地时间)气体平均冒泡速率分别为: 52.1、

72.0、30.7 和 44.2 $\text{mL}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{h})^{-1}$, 白天时段(06:00 ~ 18:00)气体冒泡速率为 62.1 $\text{mL}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{h})^{-1}$, 夜间时段(18:00 ~ 06:00)气体冒泡速率为 37.5 $\text{mL}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{h})^{-1}$. 由此可见, 在小时尺度上, 气体冒泡速率存在明显的时空差异, 且白天冒泡速率明显比夜间快.

2.3 CH_4 通量的时间变化特征

常规采样过程中(2016 年 7 月 31 日 ~ 8 月 13 日), CH_4 冒泡通量和扩散通量日均值的时间序列如图 4 所示. 14 d 内两个池塘 CH_4 冒泡通量有明显的变化[图 4(a)和 4(b)]. A 塘 CH_4 冒泡通量日均值在 8 月 10 日最小, 为 62.93 $\text{mg}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{d})^{-1}$, 最大值 214.05 $\text{mg}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{d})^{-1}$ 出现在 8 月 11 日, 变化幅度小. 相比于 A 塘, B 塘 CH_4 冒泡通量变化更明显, 变化范围为 33.62 ~ 291.62 $\text{mg}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{d})^{-1}$. 另外, 图 4 中误差线表示各塘 5 个采样点观测值的 1 倍标准差, 观测期间 CH_4 冒泡通量的 1 倍标准差较大, 说明两个池塘的 CH_4 冒泡事件是高度随机的.

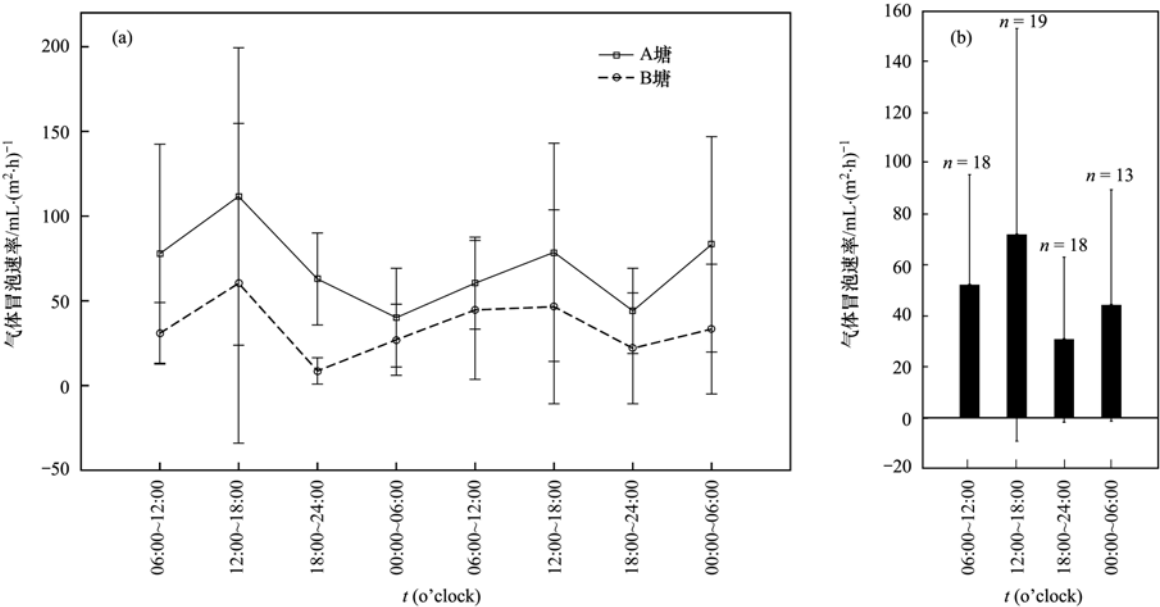


图3 密集观测时段气体冒泡速率的时间序列

Fig. 3 Time series of gas ebullition rate during the intensive campaign

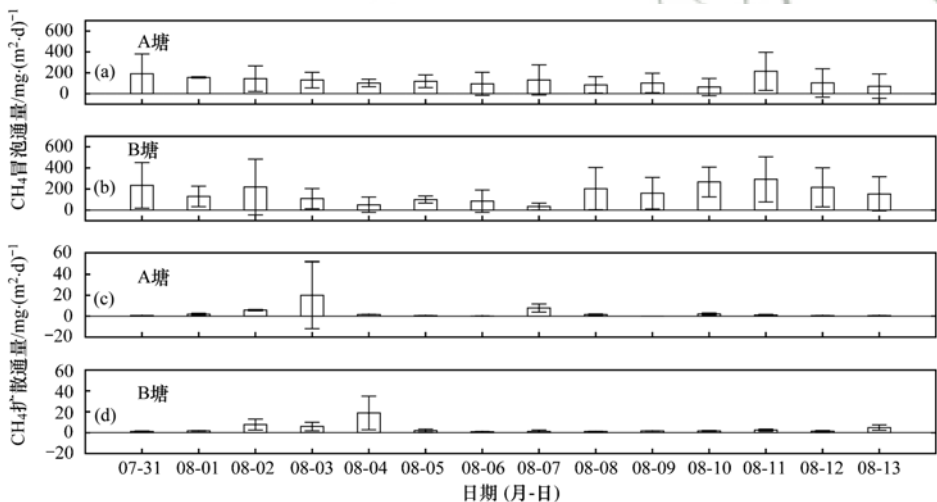


图4 CH₄ 的冒泡通量和扩散通量时间序列

Fig. 4 Time series of methane ebullition and diffusion fluxes

CH₄ 扩散通量的时间序列如[图4(c)和4(d)]所示. 与两个池塘CH₄ 冒泡通量相比, CH₄ 扩散通量的数值明显偏低. A塘CH₄ 扩散通量的日均值变化范围为0.21~20.05 mg·(m²·d)⁻¹, B塘的变化范围为0.90~18.84 mg·(m²·d)⁻¹. 两个池塘CH₄ 扩散通量的变化趋势也很一致, 都是在8月2~4日出现了高值, A塘最高值出现在8月3日, 为20.05 mg·(m²·d)⁻¹; B塘的最高值是8月4日, 为18.84 mg·(m²·d)⁻¹. A塘在8月7日出现了一个次高值, 为7.77 mg·(m²·d)⁻¹; B塘在8月3日出现了一个次高值, 为5.95 mg·(m²·d)⁻¹, 其他时间段内CH₄ 扩散通量比较

稳定, 均在0~6 mg·(m²·d)⁻¹以内. 综上所述, 夏季池塘水-气界面CH₄ 的冒泡和扩散通量都有明显的时间变化.

2.4 CH₄ 通量的空间变化特征

2.4.1 单个池塘内CH₄ 通量的空间变化特征

2016年7月31日~8月13日池塘CH₄ 通量空间分布如图5所示. A塘5个观测点CH₄ 冒泡通量日平均值的变化范围为16.31~249.24 mg·(m²·d)⁻¹; CH₄ 冒泡通量最大的点是位于池塘边缘的A4, 为249.24 mg·(m²·d)⁻¹; B塘5个观测点CH₄ 冒泡通量日平均值的变化范围为18.88~407.93 mg·(m²·d)⁻¹, 而B塘则是在池塘中央的

B5 冒泡通量最大, 为 $407.93 \text{ mg} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{d})^{-1}$. 而对于 A 塘 CH_4 扩散平均通量值, 最大值 $10.66 \text{ mg} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{d})^{-1}$ 出现在池塘边缘点 A3, 其他 3 个观测点 CH_4 扩散平均通量值分别为 1.34、1.43 和 $2.67 \text{ mg} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{d})^{-1}$; B 塘 CH_4 扩散平均通量值则变化较小, 范围为 $1.50 \sim 4.93 \text{ mg} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{d})^{-1}$, 其中在 B1 和 B2 达到最大值, 分别为 $4.94 \text{ mg} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{d})^{-1}$ 和 $4.93 \text{ mg} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{d})^{-1}$. 对比 A、B 两个池塘 10 个观测点的 CH_4 冒泡通量和扩散通量值, 可以发现标准差大于平均值的点分别是 A1、A2、B1、B2, 说明

这 4 个观测点通过冒泡和扩散方式排放的 CH_4 量均存在较大的变异. 从 10 个观测点的分布位置来看, 靠近小型池塘中央的点 (A5 和 B5) CH_4 冒泡通量值均较大, 分别是 $136.76 \text{ mg} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{d})^{-1}$ 和 $407.93 \text{ mg} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{d})^{-1}$, 其中, A5 在 A 塘内 CH_4 冒泡通量值虽然不是最大的, 但是仅次于最大值 $249.24 \text{ mg} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{d})^{-1}$ (A4), 而 B5 是 B 塘内 CH_4 冒泡通量的最大值. 以上结果表明小型池塘内不同位置点水-气界面通过冒泡和扩散方式排放的 CH_4 通量具有高度的空间变异性.

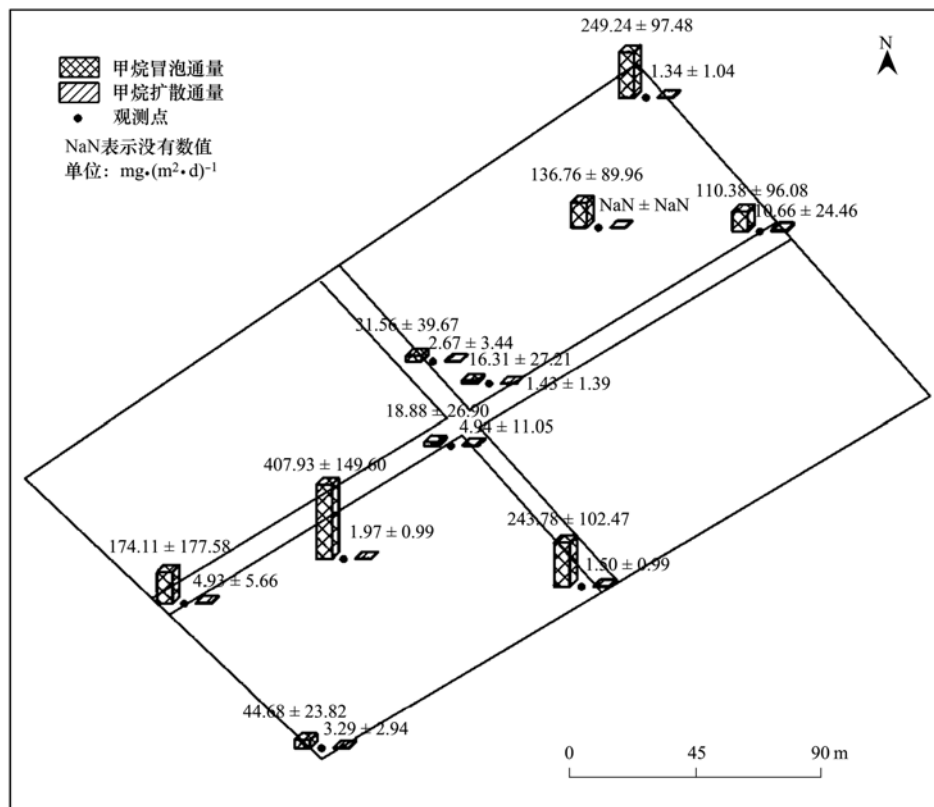


图 5 每个观测点 CH_4 通量空间分布特征

Fig. 5 Spatial patterns of CH_4 fluxes at sampling locations

2.4.2 两个池塘之间 CH_4 通量的对比分析

2016 年 7 月 31 日 ~ 8 月 13 日两个池塘 CH_4 扩散通量和冒泡通量的空间分布特征如图 6 所示. A 塘中 CH_4 冒泡通量的变化范围为 $0.11 \sim 446.90 \text{ mg} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{d})^{-1}$, B 塘中的变化范围为 $0.05 \sim 607.51 \text{ mg} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{d})^{-1}$; A 塘中 CH_4 扩散通量的变化范围为 $0.18 \sim 75.31 \text{ mg} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{d})^{-1}$, B 塘中的变化范围为 $0.42 \sim 44.65 \text{ mg} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{d})^{-1}$. 通过冒泡方式排放的 CH_4 通量是以扩散方式排放 CH_4 通量的近 40 倍 (平均值). 无论是以冒泡方式还是扩散方式排放的 CH_4 通量平均值都是: B 塘 > A 塘. 由此可见, B 塘

水-气界面 CH_4 交换比 A 塘活跃.

2.5 CH_4 冒泡通量占总通量的比例

2016 年 7 月 31 日 ~ 8 月 13 日小型池塘 CH_4 冒泡通量占总通量比例 (冒泡比例) 如表 1 所示. CH_4 总通量是冒泡通量与扩散通量之和, 由于池塘中鲜有植物, 因此忽略了池塘中通过植物传输的部分. 在观测期间, A、B 两个池塘 CH_4 冒泡比例平均值分别是 97.5% 和 96.4%. CH_4 冒泡比例最低值为 72.9%; 冒泡比例最小值出现在 8 月 4 日的 B 塘, CH_4 冒泡通量是 $50.73 \text{ mg} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{d})^{-1}$, 扩散通量达到最大值 $18.84 \text{ mg} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{d})^{-1}$, 因此冒泡比例较

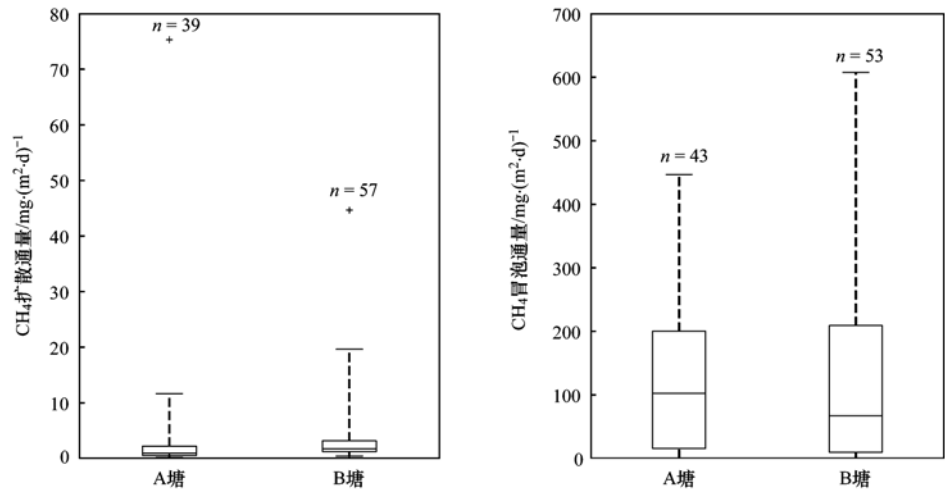


图 6 两个池塘 CH₄ 通量的空间分布特征

Fig. 6 Spatial patterns of CH₄ fluxes in two ponds

表 1 CH₄ 冒泡通量占总排放量的比例

Table 1 Ratio of CH₄ ebullition flux to total CH₄ flux

日期 (月-日)	A 塘				B 塘			
	冒泡通量 /mg·(m ² ·d) ⁻¹	扩散通量 /mg·(m ² ·d) ⁻¹	总通量 /mg·(m ² ·d) ⁻¹	冒泡比例 /%	冒泡通量 /mg·(m ² ·d) ⁻¹	扩散通量 /mg·(m ² ·d) ⁻¹	总通量 /mg·(m ² ·d) ⁻¹	冒泡比例 /%
07-31	190.29	0.61	190.89	99.7	234.93	1.21	236.14	99.5
08-01	155.34	1.82	157.17	98.8	129.86	1.82	131.68	98.6
08-02	143.30	5.73	149.03	96.2	219.24	7.73	226.97	96.6
08-03	130.27	20.05	150.32	86.7	108.79	5.95	114.73	94.8
08-04	102.27	1.61	103.88	98.5	50.73	18.84	65.98	72.9
08-05	118.41	0.50	118.92	99.6	100.09	1.96	102.05	98.0
08-06	94.61	0.21	94.81	99.8	85.11	0.90	86.00	99.0
08-07	131.56	7.77	139.33	94.4	33.62	1.23	34.85	96.5
08-08	84.98	1.53	86.51	98.2	203.55	1.20	204.75	99.4
08-09	101.65	—	—	—	160.55	1.70	162.25	99.0
08-10	62.93	2.02	64.95	96.9	266.82	1.72	268.53	99.4
08-11	214.05	1.08	215.13	99.5	291.62	2.46	294.08	99.2
08-12	102.9	0.49	103.39	99.5	215.98	1.51	217.48	99.3
08-13	73.32	0.53	72.84	99.3	154.27	4.84	159.10	97.0
平均值	121.78	3.38	126.71	97.5	161.08	3.79	164.87	96.4

小。总体来说，小型浅水池塘夏季水-气界面 CH₄ 冒泡比例均高于 72.9%，说明该池塘中 CH₄ 的排放主要以冒泡方式为主。

2.6 CH₄ 冒泡通量的影响因子分析

2016 年 7 月 31 日~8 月 13 日池塘 CH₄ 冒泡通量日均值与水深和气象因子的相关关系如表 2 和图 7 所示。对于较浅的 B 塘(水深 0.48 m)，夏季短时间尺度上(14 d)小型浅水池塘 CH₄ 冒泡通量的影响因子主要是风速和水深。B 塘 CH₄ 冒泡通量与风速呈正相关关系($P<0.01$, $r=0.74$)，与水深呈负相关关系($P<0.05$, $r=-0.59$)。因此，对于很浅的池塘，夏季水深和风速的变化会引起 CH₄ 冒泡通量的变化。

表 2 CH₄ 冒泡通量与水深和气象因子的相关系数¹⁾

Table 2 Correlations between CH₄ ebullition flux and water depth and meteorological factors

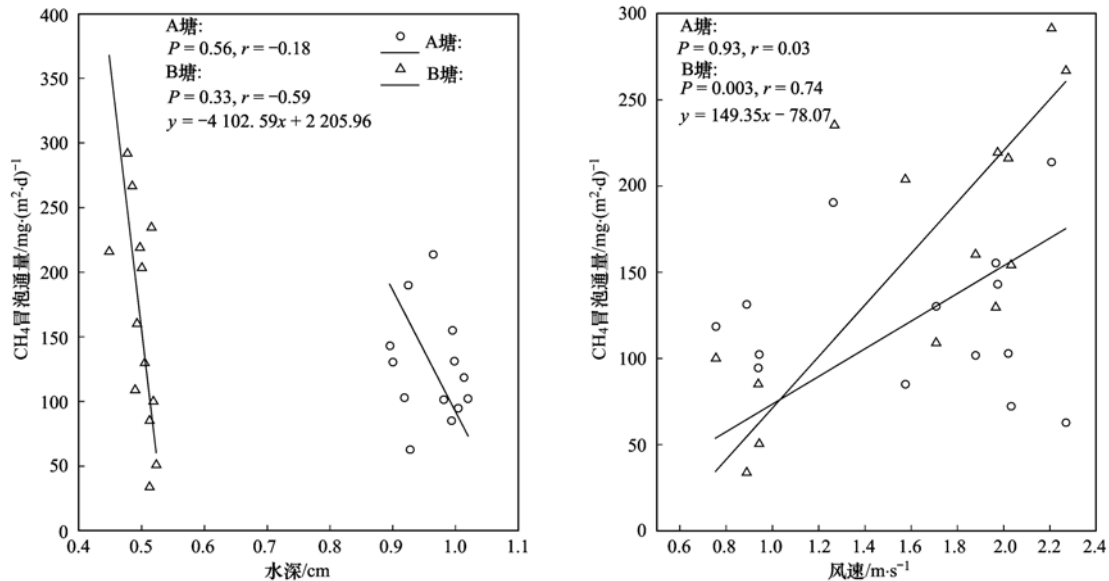
池塘类别	水深	风速	水温	气压
A 塘	-0.18	0.03	0.52	0.21
B 塘	-0.59 *	0.74 **	0.28	-0.25

1) * 表示 $P<0.05$, ** 表示 $P<0.01$

3 讨论

3.1 气体冒泡速率日变化的影响机制

小型浅水池塘气体(包括 CH₄ 和其它气体)的冒泡速率通常较高^[19]。本研究中对小型池塘(位于中纬地区)2 d 密集采样的观测，气体日平均冒泡速率为 49.8 mL·(m²·h)⁻¹，该研究结果比

图 7 CH_4 冒泡通量的影响因子Fig. 7 Factors affecting CH_4 ebullition flux

Keller 等^[16]在 1994 年 2 月对巴拿马 Gatun 湖泊(位于低纬地区)的气体冒泡速率要低,其变化范围为 $0 \sim 510 \text{ mL} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{h})^{-1}$;但比很多地区池塘和湖泊气体冒泡速率要高.位于高纬地区 Stordalen Mire 地区 3 个湖泊气体冒泡速率较低,92% 的气体冒泡速率低于 $1.3 \text{ mL} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{h})^{-1}$,8% 的气体冒泡速率仅接近于 $4.2 \text{ mL} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{h})^{-1}$ ^[20].饲养海狸的池塘(位于中纬地区)气体冒泡速率稍高,变化范围为 $6.8 \sim 22.6 \text{ mL} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{h})^{-1}$ ^[25];Québec 地区 10 个浅水湖泊(位于中纬地区)中气体冒泡速率在 $0.5 \sim 31.2 \text{ mL} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{h})^{-1}$ 范围内变化,然而湖泊气体冒泡速率小于池塘^[19].由此可见,不同纬度位置 and 不同属性的内陆水体通过冒泡形式向大气排放气体速率的量值有很大差异.

不同的水体气体冒泡速率都是白天高于夜间^[16,26].本研究中,夏季小时时间尺度上,12:00 ~ 18:00 气体冒泡速率最快,达到了 $72.0 \text{ mL} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{h})^{-1}$,其次是 06:00 ~ 12:00,为 $52.1 \text{ mL} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{h})^{-1}$,总体上白天气体冒泡排放量高于夜间. Keller 等^[16]在 1994 年 2 月对巴拿马 Gatun 湖的研究结果显示冒泡速率在 12:00 ~ 14:00(当地时间)最快,变化范围为 $60 \sim 510 \text{ mL} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{h})^{-1}$,其次是 14:00 ~ 18:00,其冒泡速率变化范围为 $0 \sim 90 \text{ mL} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{h})^{-1}$.乌梁素海湖泊湿地植物区^[27]观测的日变化结果也显示白天气体冒泡速率比夜间高. Joyce 等^[26]在 Gatun 湖泊观测到有 55% ~ 58% 的 CH_4 冒泡事件发生在 06:00 ~ 12:00.白天气体冒泡

速率高于夜间的原因之一:在小时尺度上, CH_4 冒泡的驱动因子是风速^[16],风速可以携带能量传输到底泥,此时风速会扰动水体底泥的变化促进气泡的形成和释放,例如在加利福尼亚 Searsville 湖泊中也体现出气体冒泡速率与风速有很好的正相关性^[28].由此可见,要研究 CH_4 冒泡通量的日变化特征,就需要在保证取气量满足仪器测量需要的前提下,增加采样频率,实现更高时间分辨率的观测.

3.2 CH_4 冒泡通量空间差异与水深依赖性

分析 CH_4 冒泡通量的空间差异性能促进 CH_4 排放机制的深入研究.前人的研究表明,水-气界面 CH_4 的总排放量主要反映在 CH_4 冒泡排放上^[29], CH_4 冒泡排放具有高度空间异质性,且与水深有很强的负相关关系^[16,19,25,30,31].在不同的湖泊之间 CH_4 排放通量最明显的差异性就是底泥有机质以及 N 含量的差异,但是这些变量只能解释 20% ~ 21% 的变异性^[29],池塘也是类似的.底泥中有机质含量的多少在一定程度上会限制底泥中 CH_4 的直接产生^[32],而排放至大气中的 CH_4 ,不仅与水体中有机质含量密切相关,还与水体中氧气含量有关. CH_4 产生的多,排放的也越多,这一点在湖泊^[33~35]和池塘^[36~38]中已被证实,因此,产甲烷菌在充足的有机质和厌氧条件下有利于 CH_4 的产生.当一个富营养化的系统如池塘,积累了较多有机质不受限制时,此池塘将会产生很多 CH_4 ,此时更多的 CH_4 直接以冒泡的方式排放到大气中,减少了很

多溶解和被氧化的可能性^[39, 40]. 因此, 水体越浅, 传输路径越短, 被氧化的可能性越小, CH_4 冒泡通量越大. 本文的研究结果表明在气候条件和鱼塘管理措施相同的条件下, 不同鱼塘 CH_4 排放量有明显差异. A 塘和 B 塘的 CH_4 冒泡通量平均值分别是 $121.78 \text{ mg} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{d})^{-1}$ 和 $161.08 \text{ mg} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{d})^{-1}$, 该研究中两个池塘最主要的差异是水深和溶解氧浓度, B 塘比 A 塘浅, 且 B 塘溶解氧值低于 A 塘, 这也是 B 塘 CH_4 冒泡通量比 A 塘高的潜在原因. 由于本次研究中未对两个池塘底泥有机质含量和 N 含量进行取样调查, 所以无法判定两个池塘有机质和 N 含量对 CH_4 冒泡通量的影响机制. 因此, 以后进行水-气界面 CH_4 冒泡通量的研究时应该把底泥特性纳入考虑范畴.

另外, 单个池塘内 CH_4 冒泡通量的空间变异性也突出了 CH_4 排放机制研究的复杂性. 在本研究中, 中央点的水深略高于边缘点, B 塘 CH_4 冒泡通量的最高值点出现在 B5 点(中央点), A 塘 CH_4 冒泡通量的最高值点出现在 A4 点(边缘点). 在水深为 $0.5 \sim 3 \text{ m}$ 的湖泊中, CH_4 排放通量不仅与水深有关, 还与距离湖中心的远近有关^[29]. 边缘点有较高的 CH_4 排放量, 是因为浅水区域比较容易获取到底泥中的有机质, 直接为产甲烷菌产生 CH_4 提供了必要的营养物质^[41]. 因此, 在 $1 \sim 2 \text{ m}$ 较浅的湖泊中, 由于在风速的作用下, 有机质的再悬浮作用使得产甲烷菌获得足够的有机质从而可以产生较多的 CH_4 ^[29]. 一般而言, 距离岸边越远, CH_4 冒泡通量越低, 在 Stordalen Mire 的 3 个湖泊中^[20] 以及之前的研究中早有报道^[42]. 但也不是所有的靠近岸边的观测点 CH_4 冒泡通量都是最高的, 比如 Stordalen Mire 的其中 1 个湖泊, 最大值出现在最浅的两个观测点, 而不是靠近岸边的点^[20]. 这主要是因为水深浅, CH_4 气泡容易到达水表进入大气^[39, 40], 此时有机质的获取和水深对 CH_4 冒泡通量的影响中, 水深占主导作用.

综上所述, 本研究的结果表明天气气候条件和鱼塘管理措施相同的情况下, 两个鱼塘的 CH_4 冒泡通量有明显差异, 而单个池塘内不同位置 CH_4 冒泡通量也有很大差异, 这就对 CH_4 排放的定量化和控制机制研究提出了更大的挑战, 提出了更多的、更精细和更全面的观测需求.

3.3 不同纬度 CH_4 冒泡通量的差异

不同年份不同季节、不同区域不同湿地类型的水体, 水-气界面 CH_4 冒泡通量和冒泡比例不尽相

同(表 3). 结合图 8 中不同纬度 CH_4 冒泡通量的分布, 靠近赤道的中纬度地区比高纬度地区淡水环境有更强的 CH_4 冒泡能力. 位于南纬 $0^\circ \sim 30^\circ$ 副热带地区的亚马逊流域和潘塔纳尔湿地, CH_4 冒泡排放通量的变化范围为 $40 \sim 216 \text{ mg} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{d})^{-1}$. 亚马逊地区的湖泊整体 CH_4 冒泡通量均较高, 区域变异性高, 不同湖泊之间 CH_4 冒泡通量跨越一个量级^[51]. 潘塔纳尔湿地是世界上最大的湿地, 该地区的湖泊和河流 CH_4 冒泡通量是最高的, 即使在秋季, CH_4 冒泡通量也达到 $131.8 \text{ mg} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{d})^{-1}$ 和 $216 \text{ mg} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{d})^{-1}$ ^[29]. 位于北纬 $0^\circ \sim 30^\circ$ 亚热带地区, 水体 CH_4 冒泡通量变化范围为 $5 \sim 1088 \text{ mg} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{d})^{-1}$. 中国地区的观测^[17, 18, 27, 43, 44] 都是在北纬 $30^\circ \sim 34^\circ$, 英国、西伯利亚、加拿大的观测都是在北纬 $45^\circ \sim 60^\circ$, 因此也符合以上规律, 即低纬的水体比高纬的水体 CH_4 冒泡通量高. 位于青海-西藏的高纬度湖泊, 夏季 CH_4 冒泡通量为 $362.4 \text{ mg} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{d})^{-1}$, 本研究位于中纬度的两个浅水池塘 CH_4 冒泡通量分别是 $121.8 \text{ mg} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{d})^{-1}$ 和 $161.1 \text{ mg} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{d})^{-1}$. 在中国宜昌的池塘中, 秋季几乎是观测不到 CH_4 冒泡现象的^[43]. 在纬度较高的西伯利亚, 湖泊和河流 CH_4 通过冒泡方式排放量均较小, 在春、夏、秋季节范围内变化为 $15.4 \sim 46.7 \text{ mg} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{d})^{-1}$ ^[45, 46], 虽然冒泡是湿地系统 CH_4 主要排放方式, 但不是所有湖泊都适用^[28, 52], 在高纬度湖泊中扩散依然是 CH_4 主要排放方式^[52]. 因此, 可以看出通过冒泡方式排放的 CH_4 通量具有高度空间变异性.

通过调研全球的 31 个湖泊、20 个池塘、3 条河流和 1 个大型植物草甸, 得到了 19 个冒泡比例数据. 除了 Orinoco 河流^[47]、Calaro 湖泊^[49] 和玛瑙斯湖泊^[48] 冒泡比例分别是 65%、69% 和 59%~73%, 其他水体的冒泡比例均高于 90% (图 9). 本研究中两个池塘 CH_4 冒泡比例分别为 97.5% 和 96.4%,

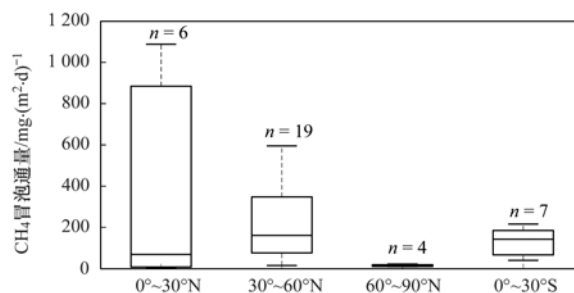


图 8 不同纬度 CH_4 冒泡通量分布

Fig. 8 CH_4 ebullition flux in different latitude ranges

表 3 不同地区湿地系统 CH₄ 冒泡通量比较

Table 3 CH₄ ebullition flux in wetlands in different regions

纬度范围	湿地类型	地区/国家	采样时间	冒泡通量 /mg·(m ² ·d) ⁻¹	样本数 (n)	冒泡比例 /%	文献
60°~90°N	3 个湖泊	Stordalen mire/瑞典	2009-06~2009-09, 2012-06~2012-09	10.0~22.6	572~1253	—	[20]
30°~60°N	池塘	湖北/中国	2013-07~2013-10	—	—	91.7~99.7	[43]
	5 个池塘	宜昌/中国	2014-11~2015-10	106.1~417.8	—	98.3~99.3	[17]
	野猪林池塘	宜昌/中国	2013-07-22~2013-07-24	595.2	—	96.4~99.7	[18]
	2 个池塘	安徽/中国	2016-07~2016-08	121.8~161.1	44~54	96.4~97.5	本研究
	花湖	青海-西藏/中国	2006-06~2007-08	362.4	—	—	[44]
	乌梁素海	内蒙古/中国	2003~2004	53.0~408.0	—	—	[27]
	Priest Pot 湖	英国	1997-05~1997-10	192	—	96	[15]
	上游源头流域	西伯利亚	2014-07~2014-08	15.4	—	—	[45]
	热溶喀斯特湖泊	西伯利亚	2003-04~2004-05	46.7	—	—	[46]
	10 个浅水池塘	Québec/加拿大	2011-06~2011-08, 2011-10	73.8	98	—	[19]
0°~30°N	3 个湖泊	Québec/加拿大	2012-05~2012-0511, 2014-07~2014-09	17.6	139	—	[19]
	养海狸池塘	Thompson/加拿大	1994-05-01~1994-09-15	83.8	—	—	[25]
	Orinoco 河	委内瑞拉	1991-07~1992-10	114	—	65	[47]
	Lago Loiz 湖	波多黎各/巴拿马	1994-07-26~1994-07-27	8~24	—	—	[26]
0°~30°S	Gatun 湖	巴拿马	1988-02~1988-05	5~1088	—	—	[16]
	平原湖泊	亚马逊	1988-11~1988-12	40	40	—	[48]
	玛瑙斯湖	亚马逊	1988-01~1988-12	44.8	90	59~73	[48]
	Calado 湖	亚马逊	1986-09	164.8	—	69	[49]
	16 个湖泊	潘塔纳尔	2006-09, 2006-12, 2008-11	131.8~216	24	91	[29]
	Miranda 河流	潘塔纳尔	2004-03, 2004-06, 2004-09, 2004-12, 2005-03	142.4	—	90	[50]

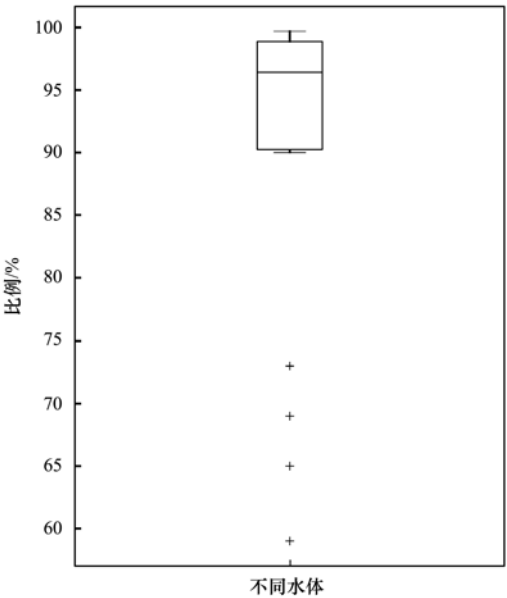


图 9 不同水体 CH₄ 冒泡比例分布

Fig. 9 CH₄ bubble ratio in different water bodies

该研究结果与 Xiao 等^[43] (91.7% 和 99.7%) 和龙丽等^[17] (98.3%~99.3%) 在湖北宜昌的池塘中结果相似. 因此, 在小型池塘中, 水-气界面 CH₄ 主要是通过冒泡方式排放的, 如果忽略水-气 CH₄ 冒泡排

放就会大大低估水体 CH₄ 排放量.

4 结论

冒泡是富营养化浅水池塘水-气界面 CH₄ 主要排放方式, 位于亚热带地区的两个池塘在 2016 年 7 月 31~8 月 13 日 CH₄ 冒泡比例平均值分别是 97.5% 和 96.4%, 日均值均高于 72.9%; CH₄ 冒泡通量具有显著的时空变异性, 试验期间两个池塘的 CH₄ 冒泡通量日均值变化范围为 33.62~291.62 mg·(m²·d)⁻¹, 10 个观测点的 CH₄ 冒泡通量变化范围为 0.05~607.51 mg·(m²·d)⁻¹; 对于较浅的池塘, 在夏季短时间尺度上, CH₄ 冒泡通量的主要影响因素是风速和水深, 其中 CH₄ 冒泡通量与风速呈正相关关系 ($P<0.01$, $r=0.74$), 与水深呈负相关关系 ($P<0.05$, $r=-0.59$). 由于池塘 CH₄ 通量 (特别是冒泡通量) 的时空变异性较大, 在日后的小型水体 CH₄ 通量量化研究、排放机制和控制策略研究中, 需要更加长期和全面的观测.

参考文献:

[1] Blasing T J. Recent greenhouse gas concentrations[R]. The United States; Carbon Dioxide Information Analysis Center, 2009. 1-5.

- [2] Manne A S, Richels R G. An alternative approach to establishing trade-offs among greenhouse gases [J]. *Nature*, 2001, **410** (6829): 675-677.
- [3] Dlugokencky E J, Bruhwiler L, White J W C, *et al.* Observational constraints on recent increases in the atmospheric CH₄ burden[J]. *Geophysical Research Letters*, 2009, **36**(18): L18803.
- [4] Williamson C E, Saros J E, Vincent W F, *et al.* Lakes and reservoirs as sentinels, integrators, and regulators of climate change[J]. *Limnology and Oceanography*, 2009, **54**(6part2): 2273-2282.
- [5] Holgerson M A, Raymond P A. Large contribution to inland water CO₂ and CH₄ emissions from very small ponds[J]. *Nature Geoscience*, 2016, **9**(3): 222-226.
- [6] Martens C S, Klump J V. Biogeochemical cycling in an organic-rich coastal marine basin-I. Methane sediment-water exchange processes[J]. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 1980, **44** (3): 471-490.
- [7] Sebacher D I, Harriss R C, Bartlett K B. Methane emissions to the atmosphere through aquatic plants [J]. *Journal of Environmental Quality*, 1985, **14**(1): 40-46.
- [8] Chanton J P, Martens C S, Kelley C A. Gas transport from methane-saturated, tidal freshwater and wetland sediments[J]. *Limnology and Oceanography*, 1989, **34**(5): 807-819.
- [9] Cole J J, Caraco N F. Atmospheric exchange of carbon dioxide in a low-wind oligotrophic lake measured by the addition of SF₆[J]. *Limnology and Oceanography*, 1998, **43**(4): 647-656.
- [10] 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): GB4009.
- [11] Schubert C J, Diem T, Eugster W. Methane emissions from a small wind shielded lake determined by eddy covariance, flux chambers, anchored funnels, and boundary model calculations: a comparison[J]. *Environmental Science & Technology*, 2012, **46** (8): 4515-4522.
- [12] Edwards G C, Neumann H H, Den Hartog G, *et al.* Eddy correlation measurements of methane fluxes using a tunable diode laser at the Kinosheo Lake tower site during the Northern Wetlands Study (NOWES) [J]. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 1994, **99**(D1): 1511-1517.
- [13] Eugster W, DelSontro T, Sobek S. Eddy covariance flux measurements confirm extreme CH₄ emissions from a Swiss hydropower reservoir and resolve their short-term variability[J]. *Biogeosciences*, 2011, **8**(9): 2815-2831.
- [14] Baldocchi D D, Hincks B B, Meyers T P. Measuring biosphere-atmosphere exchanges of biologically related gases with micrometeorological methods[J]. *Ecology*, 1988, **69**(5): 1331-1340.
- [15] Casper P, Maberly S C, Hall G H, *et al.* Fluxes of methane and carbon dioxide from a small productive lake to the atmosphere [J]. *Biogeochemistry*, 2000, **49**(1): 1-19.
- [16] Keller M, Stallard R F. Methane emission by bubbling from Gatun Lake, Panama [J]. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 1994, **99**(D4): 8307-8319.
- [17] 龙丽, 肖尚斌, 张成, 等. 亚热带浅水池塘水-气界面甲烷通量特征[J]. *环境科学*, 2016, **37**(12): 4552-4559.
- [18] 张成, 龙丽, 吕新彪, 等. 某富营养化池塘夏季温室气体通量的昼夜变化[J]. *长江科学院院报*, 2016, **33**(8): 28-33.
- [19] Zhang C, Long L, Lü X B, *et al.* Diel greenhouse emissions from an eutrophic pond in summer [J]. *Journal of Yangtze River Scientific Research Institute*, 2016, **33**(8): 28-33.
- [20] 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.
- [21] Wik M, Crill P M, Varner R K, *et al.* Multiyear measurements of ebullitive methane flux from three subarctic lakes[J]. *Journal of Geophysical Research: Biogeosciences*, 2013, **118**(3): 1307-1321.
- [22] 农业部渔业渔政管理局. 2016 中国渔业统计年鉴[M]. 北京: 中国农业出版社, 2016. 75-76.
- [23] Huttunen J T, Lappalainen K M, Saarijärvi E, *et al.* A novel sediment gas sampler and a subsurface gas collector used for measurement of the ebullition of methane and carbon dioxide from a eutrophied lake[J]. *Science of the Total Environment*, 2001, **266**(1-3): 153-158.
- [24] 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.
- [25] Heaney S I. A pneumatically-operated water sampler for close intervals of depth[J]. *Freshwater Biology*, 1974, **4**(2): 103-106.
- [26] Dove A, Roulet N, Crill P, *et al.* Methane dynamics of a northern boreal beaver pond[J]. *écoscience*, 1999, **6**(4): 577-586.
- [27] Joyce J, Jewell P W. Physical controls on methane ebullition from reservoirs and lakes [J]. *Environmental and Engineering Geoscience*, 2003, **9**(2): 167-178.
- [28] 段晓男, 王效科, 陈琳, 等. 乌梁素海湖泊湿地植物区甲烷排放规律[J]. *环境科学*, 2007, **28**(3): 455-459.
- [29] Duan X N, Wang X K, Chen L, *et al.* Methane emission from aquatic vegetation zones of Wuliangsu lake, inner Mongolia[J]. *Environmental Science*, 2007, **28**(3): 455-459.
- [30] Miller L G, Oremland R S. Methane efflux from the pelagic regions of four lakes[J]. *Global Biogeochemical Cycles*, 1988, **2** (3): 269-277.
- [31] Bastviken D, Santoro A L, Marotta H, *et al.* Methane emissions from Pantanal, South America, during the low water season: toward more comprehensive sampling[J]. *Environmental Science & Technology*, 2010, **44**(14): 5450-5455.
- [32] Martinez D, Anderson M A. Methane production and ebullition in a shallow, artificially aerated, eutrophic temperate lake (Lake Elsinore, CA) [J]. *Science of the Total Environment*, 2013, **454-455**: 457-465.
- [33] Goodrich J P, Varner R K, Froelking S, *et al.* High-frequency measurements of methane ebullition over a growing season at a temperate peatland site [J]. *Geophysical Research Letters*, 2011, **38**(7): L07404.
- [34] Kelly C A, Chynoweth D P. The contributions of temperature and

- of the input of organic matter in controlling rates of sediment methanogenesis [J]. *Limnology and Oceanography*, 1981, **26** (5): 891-897.
- [33] Huttunen J T, Alm J, Liikanen A, *et al.* Fluxes of methane, carbon dioxide and nitrous oxide in boreal lakes and potential anthropogenic effects on the aquatic greenhouse gas emissions [J]. *Chemosphere*, 2003, **52**(3): 609-621.
- [34] Juutinen S, Rantakari M, Kortelainen P, *et al.* Methane dynamics in different boreal lake types [J]. *Biogeosciences*, 2009, **6**(2): 209-223.
- [35] Davidson T A, Audet J, Svenning J C, *et al.* Eutrophication effects on greenhouse gas fluxes from shallow-lake mesocosms override those of climate warming [J]. *Global Change Biology*, 2015, **21**(12): 4449-4463.
- [36] Whiting G J, Chanton J P. Primary production control of methane emission from wetlands [J]. *Nature*, 1993, **364** (6440): 794-795.
- [37] Waddington J M, Roulet N T, Swanson R V. Water table control of CH₄ emission enhancement by vascular plants in boreal peatlands [J]. *Journal of Geophysical Research Atmospheres*, 1996, **101**(D17): 22775-22785.
- [38] Bellisario L M, Bubier J L, Moore T R, *et al.* Controls on CH₄ emissions from a northern peatland [J]. *Global Biogeochemical Cycles*, 1999, **13**(1): 81-91.
- [39] McGinnis D F, Greinert J, Artemov Y, *et al.* Fate of rising methane bubbles in stratified waters: How much methane reaches the atmosphere? [J]. *Journal of Geophysical Research: Oceans*, 2006, **111**(C9): C09007.
- [40] 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.
- [41] Bastviken D. Methane [A]. In: Likens G E (Ed.). *Encyclopedia of Inland Waters* [M]. Amsterdam: Elsevier, 2009. 783-805.
- [42] Zimov S A, Voropaev Y V, Semiletov I P, *et al.* North Siberian lakes: a methane source fueled by Pleistocene carbon [J]. *Science*, 1997, **277**(5327): 800-802.
- [43] Xiao S B, Yang H, Liu D F, *et al.* Gas transfer velocities of methane and carbon dioxide in a subtropical shallow pond [J]. *Tellus B: Chemical and Physical Meteorology*, 2014, **66**(1): 23795.
- [44] Chen H, Wu N, Yao S P, *et al.* High methane emissions from a littoral zone on the Qinghai-Tibetan Plateau [J]. *Atmospheric Environment*, 2009, **43**(32): 4995-5000.
- [45] Spawn S A, Dunn S T, Fiske G J, *et al.* Summer methane ebullition from a headwater catchment in Northeastern Siberia [J]. *Inland Waters*, 2015, **5**(3): 224-230.
- [46] Walter K M, Zimov S A, Chanton J P, *et al.* Methane bubbling from Siberian thaw lakes as a positive feedback to climate warming [J]. *Nature*, 2006, **443**(7107): 71-75.
- [47] Lesley K, Lewis Jr W M, Chanton J P, *et al.* Methane emissions from the Orinoco River floodplain, Venezuela [J]. *Biogeochemistry*, 2000, **51**(2): 113-140.
- [48] Devol A H, Richey J E, Forsberg B R, *et al.* Seasonal dynamics in methane emissions from the Amazon River floodplain to the troposphere [J]. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 1990, **95**(D10): 16417-16426.
- [49] Engle D, Melack J M. Methane emissions from an Amazon Floodplain Lake: enhanced release during episodic mixing and during falling water [J]. *Biogeochemistry*, 2000, **51**(1): 71-90.
- [50] Marani L, Alvalá P C. Methane emissions from lakes and floodplains in Pantanal, Brazil [J]. *Atmospheric Environment*, 2007, **41**(8): 1627-1633.
- [51] Devol A H, Richey J E, Clark W A, *et al.* Methane emissions to the troposphere from the Amazon floodplain [J]. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 1988, **93**(D2): 1583-1592.
- [52] Smith L K, Lewis Jr W M. Seasonality of methane emissions from five lakes and associated wetlands of the Colorado Rockies [J]. *Global Biogeochemical Cycles*, 1992, **6**(4): 323-338.

CONTENTS

Preface	HAO Zheng-ping (477)
VOCs Emission from Motor Vehicles in China and Its Impact on the Atmospheric Environment	CHEN Tian-zeng, GE Yan-li, LIU Yong-chun, <i>et al.</i> (478)
Quantification of the Influence of Industrial Emissions on Volatile Organic Compounds (VOCs) Using PMF Model; A Case Study of Jiangbei Industrial Zone in Nanjing	 HU Kun, WANG Ming, ZHENG Jun, <i>et al.</i> (493)
Source Analysis of Volatile Organic Compounds in the Nanjing Industrial Area and Evaluation of Their Contribution to Ozone	ZHANG Yu-xin, AN Jun-lin, WANG Jun-xiu, <i>et al.</i> (502)
Ozone Formation Potential and Priority Species of VOCs in an Industrial Park	WU Lei-dan, WANG Xiu-yan, YANG Wen, <i>et al.</i> (511)
Characteristics and Source Apportionment of VOCs of a Petrochemical Industrial Park During Autumn in China	HU Tian-peng, LI Gang, MAO Yao, <i>et al.</i> (517)
Characteristics of VOCs Pollution in the Winter Atmosphere of a Typical Petrochemical Industry Park	MAO Yao, LI Gang, HU Tian-peng, <i>et al.</i> (525)
Emission Inventory and Pollution Characteristics of Industrial VOCs in Hangzhou, China	LU Bin, HUANG Cheng, LU Qing, <i>et al.</i> (533)
Industrial VOCs Emission in Qinhuangdao	HU Xiao-yu, LIU Hang, WANG Nai-yu, <i>et al.</i> (543)
Pollution Characteristics and Emission Coefficient of Volatile Organic Compounds from Auto/motorcycle Parts & Accessories Manufacturing in Zhejiang Province	 YANG Zhong-ping, WANG Zhe-ming, HE Zhi-qiao, <i>et al.</i> (551)
Stench Sources and Impact Analysis in Automobile Making	SHI Tian-li, ZHANG Wei-xia, CHEN Xiao-fang, <i>et al.</i> (557)
Pollution Characteristics and Health Risk Assessment of VOCs Fugitively Emitted from Typical Brewers	GAO Zhan-qi, HU Guan-jiu, WANG Hui, <i>et al.</i> (567)
Pollution Characteristics and Health Risk Assessment of Atmospheric VOCs in Chengdu	LI You-ping, TANG Ya, FAN Zhong-yu, <i>et al.</i> (576)
Indoor Formaldehyde and Benzene Series in Shanghai Residences and Their Associations with Building Characteristics and Lifestyle Behaviors	 JIANG Qiao-yun, LIU Ping-ping, WANG Xue-ying, <i>et al.</i> (585)
Emission Inventory of Anthropogenically Sourced VOCs and Its Contribution to Ozone Formation in Jiangsu Province	XIA Si-jia, LIU Qian, ZHAO Qiu-yue (592)
Emission Inventory of Anthropogenic VOCs in Jiangmen City	CHEN Xiao-fang, ZHANG Wei-xia, CHEN Bing-xu, <i>et al.</i> (600)
Emissions, Chemical Composition, and Spatial and Temporal Allocation of the BVOCs in the Yangtze River Delta Region in 2014	LIU Yan, LI Li, AN Jing-yu, <i>et al.</i> (608)
VOCs Emission Inventory of Service Stations in a Subcenter (Tongzhou District) of the City of Beijing	HUANG Yu-hu, HU Wei, LI Bei-bei, <i>et al.</i> (618)
Pollutant Emissions from Diesel Buses Fueled with Waste Cooking Oil Based Biodiesel	HU Zhi-yuan, LIN Biao-qi, HUANG Cheng, <i>et al.</i> (626)
Treatment of the Waste Gas Containing Methyl <i>tert</i> -Butyl Ether via a Biotrickling Filter	CHU Qi-ying, YAO Lu-lu, LÜ Xiong-biao, <i>et al.</i> (633)
Composite CVOCs Removal in a Combined System of Nonthermal Plasma and a Biotrickling Filter	GUO Hai-qian, MIAO Jing-jing, JIANG Li-ying, <i>et al.</i> (640)
Pollution Characteristics and Health Risk Assessment of Volatile Organic Compounds (VOCs) and Semi-volatile Organic Compounds (SVOCs) in Qiantang River's Hangzhou Section During a Water Odor Pollution Event	CHEN Feng, TANG Fang-liang, XU Jian-fen, <i>et al.</i> (648)
Occurrence and Spatial Distribution of Volatile Organic Compounds in Urban Drinking Water Distribution Systems	XU Mei-jia, WANG Hai-liang, LI Chun-mei, <i>et al.</i> (655)
Health Risk Assessment of Volatile Organic Compounds for Different Commuting Modes	 TONG Rui-peng, ZHANG Lei (663)
Source Analysis and Environmental Health Risk Assessment of VOCs in Furniture Manufacturing	TONG Rui-peng, ZHANG Lei, YANG Xiao-yi, <i>et al.</i> (672)
Spatio-temporal Distribution Characteristics of PM _{2.5} and Spatio-temporal Variation Characteristics of the Relationship Between PM _{2.5} and PM ₁₀ in Beijing	 YANG Wen-tao, YAO Shi-qi, DENG Min, <i>et al.</i> (684)
Quantification of Methane Ebullition Flux from Small Ponds Using the Inverted-Funnel Method	ZHANG Xiu-fang, XIAO Wei, ZHANG Mi, <i>et al.</i> (691)
Contamination Levels and Exposure Risk via Drinking Water from Perfluoroalkyl Acids in Seven Major Drainage Basins of China	 WANG Xin-xuan, ZHANG Hong, WANG Yan-ping, <i>et al.</i> (703)
Spatio-temporal Distribution and Source Apportionment of Nitrogen in Rivers of Tieling	YANG Li-biao, LEI Kun, QIAO Fei, <i>et al.</i> (711)
Characteristics of Chromophoric Dissolved Organic Matter (CDOM) in Rivers of Western Sichuan Plateau Based on EEM-PARAFAC Analysis	 LIU Yan-yang, QIN Ji-hong, LIU Chen, <i>et al.</i> (720)
Assessment of Heavy Metal Pollution and Human Health Risk of Surface Waters in the City of Ningbo, China	XU Mei-juan, BAO Bo, CHEN Chun-yan, <i>et al.</i> (729)
Temporal-spatial Distribution and Pollution Assessment of Dissolved Heavy Metals in Chaohu Lake	WU Lei, LIU Gui-jian, ZHOU Chun-cai, <i>et al.</i> (738)
Spatial Distribution, Sources and Bioavailability of Heavy Metals in the Surface Sediments of Longjiang River, Southern China	 LAN Xiao-long, NING Zeng-ping, XIAO Qing-xiang, <i>et al.</i> (748)
Mechanism on Enhanced Nitrogen Removal in Municipal Secondary Effluent via Internal-Electrolysis Constructed Wetlands at Low Temperature in Winter	 ZHENG Xiao-ying, ZHU Xing, WANG Ju, <i>et al.</i> (758)
Dynamic Replenishment Process of Nutrients in Tributary of Channel Reservoir	XU Ya-qian, XU Piao, YANG Zheng-jian, <i>et al.</i> (765)
Effect of the Rainfall on Extinction of Cyanobacteria Bloom and Its Mechanism Analysis	LIU Xin-yuan, SONG Lin-xu, JI Dao-bin, <i>et al.</i> (774)
Relationship Between Macrophyte Communities and Macroinvertebrate Communities in an Urban Stream	QU Xiao-dong, YU Yang, ZHANG Min, <i>et al.</i> (783)
Characteristics of Nitrogen and Phosphorus Output in Runoff and Rainfall Runoff in Lanlingxi Watershed, Three Gorges Reservoir Area	 ZHANG Lin, HUANG Zhi-lin, XIAO Wen-fa, <i>et al.</i> (792)
Screening Method of Priority Control Pollutants in Groundwater Based on Contamination Assessment	ZHAO Peng, HE Jiang-tao, WANG Man-li, <i>et al.</i> (800)
Effect of Sulfur to Quartz Sand Ratios on the Removal of High-Concentration Perchlorate in Packed-Bed Reactors	TAO Hua-qiang, SHAO Dong-hai, ZHANG Chao, <i>et al.</i> (811)
Adsorption of Methylene Blue and Cu(II) by Activated Carbon/Macromolecule Composite Hydrogel	KONG Yan, ZHUANG Yuan, SHI Bao-you, <i>et al.</i> (819)
Adsorption Performance and Mechanism of HZO@SGH for the Removal of Fluoride from Aqueous Solution	MA Fu-zhen, ZHOU Shao-qi, LIU Ze-jun, <i>et al.</i> (828)
Mechanism of MgO/GAC Catalyzed Ozonation of Organic Compounds	XU Shan-shan, LIN Cun-wang, DING Ya-lei, <i>et al.</i> (838)
Ozonation Characteristics of Low Coagulability Organic Matter from the Secondary Effluent of WWTPs	HOU Rui, JIN Xin, JIN Peng-kang, <i>et al.</i> (844)
Quantitative Analysis of Dominant Pollutants in Secondary Effluent via Dye Probe Technology	MENG Xiao-rong, WANG Cong-hui, WANG Lei, <i>et al.</i> (852)
Lab-scale ANAMMOX Process in a Wastewater Treatment Plant	LI Dong, ZHAO Shi-xun, WANG Jun-an, <i>et al.</i> (859)
Effect of Aeration Rate on Shortcut Nitrification Recovery in Intermittent Aeration Mode	LIU Hong, NAN Yan-bin, LI Hui, <i>et al.</i> (865)
Effect of Aerobic/Phosphorus Granules on Start-up of Partial Nitrification Granular Sludge	LI Dong, GUO Yue-zhou, CAO Mei-zhong, <i>et al.</i> (872)
Microbial Communities and Sludge Specific Resistance in Two SBRs Treating Leachate	CAI Li-yun, HUANG Ze-bin, XU Zi-wei, <i>et al.</i> (880)
Sources and Risk Assessment of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons from the Urbanization Process of Topsoil	YAO Hong, ZHANG Shi-chao, LIU Ming-li, <i>et al.</i> (889)
Spatial Variability and Contamination of Arsenic in Soils of Xijiang River Basin	LIU Chang, SONG Bo, ZHANG Yun-xia, <i>et al.</i> (899)
Characterization of Phosphorus in Urban Surface Soils in Kaifeng City and Its Risk of Loss	BAI Xiu-ling, MA Jian-hua, SUN Yan-Li, <i>et al.</i> (909)
Distribution Characteristics and Health Risk Assessment of Heavy Metals in a Soil-Rice System in an E-waste Dismantling Area	YIN Yi-meng, ZHAO Wei-tuo, HUANG Ting, <i>et al.</i> (916)
Residue Levels and Health Risk Assessment of Organochlorine Pesticides in Rice from Shanghai	MENG Yuan, LIU Cui-cui, QIU Yan-ling, <i>et al.</i> (927)
Effects of Tetracycline Antibiotics on Growth and Characteristics of Enrichment and Transformation in Two Vegetables	CHI Sun-lin, WANG Wei-zhong, XU Wei-hong, <i>et al.</i> (935)
Bioavailability of Silicon Fertilizer Coupled Water Management on Soil Bioavailability and Cumulative Control of Rice in Compound Contaminated Paddy Soils	 LI Yuan-xing-lu, YE Chang-cheng, LIU Yu-ling, <i>et al.</i> (944)
Liver and Kidney Function of E-waste Dismantling Workers and Potential Influencing Factors	YAN Xiao, LI Shu-yuan, WANG Mei-huan, <i>et al.</i> (953)