

分类号：_____
密 级：_____

单位代码： 10300
学 号： 20191234004

南京信息工程大学

硕士专业学位论文



论文题目：漂浮箱法和扩散模型法测定小型湖泊
 CH_4 和 N_2O 排放通量的比较研究

申请人姓名： 严玲

指导教师： 马煜春 副教授

周伟 高级工程师

类别名称： 农业

领域名称： _____

培养学院： 应用气象学院

提交时间： 2021年6月20日

二〇二一年六月

独创性声明

本人声明所呈交的论文是我个人在导师指导下进行的研究工作及取得的研究成果。本论文除了文中特别加以标注和致谢的内容外，不包含其他人或其他机构已经发表或撰写过的研究成果，也不包含为获得南京信息工程大学或其他教育机构的学位或证书而使用过的材料。其他同志对本研究所做的贡献均已在论文中作了声明并表示谢意。

学位论文作者签名： 罗玲 签字日期： 2021.6.16

关于论文使用授权的说明

南京信息工程大学、国家图书馆、中国学术期刊（光盘版）杂志社、中国科学技术信息研究所的《中国学位论文全文数据库》有权保留本人所送交学位论文的复印件和电子文档，可以采用影印、缩印或其他复制手段保存论文，并通过网络向社会提供信息服务。本人电子文档的内容和纸质论文的内容相一致。除在保密期内的保密论文外，允许论文被查阅和借阅，可以公布（包括刊登）论文的全部或部分内容。论文的公布（包括刊登）授权南京信息工程大学研究生院办理。

公开 保密（____年 ____月）（保密的学位论文在解密后应遵守此协议）

学位论文作者签名： 罗玲 签字日期： 2021.6.16
指导教师签名： 马晓春 签字日期： 2021.6.16

目 录

摘要	I
Abstract	III
第一章 引言	1
1.1 选题依据与研究背景	1
1.2 国内外研究现状	2
1.2.1 内陆水体 CH ₄ 、N ₂ O 排放研究进展	2
1.2.2 水体中 CH ₄ 和 N ₂ O 的产生、氧化、传输	4
1.2.3 环境影响因子对温室气体的影响	5
1.2.4 内陆水体 CH ₄ 和 N ₂ O 排放通量的观测方法	8
1.3 研究目的与意义	10
1.4 研究内容	11
1.5 技术路线	12
第二章 研究方案	13
2.1 研究区域概况	13
2.2 实验设计	13
2.3 气体的采集与分析	14
2.4 水样的采集与分析	15
2.5 水-气界面 CH ₄ 和 N ₂ O 交换通量的计算	15
(1) 漂浮箱法	15
(2) 扩散模型法	15
2.6 统计分析	17
第三章 漂浮箱法与扩散模型法对 CH ₄ 、N ₂ O 排放通量比较	18
3.1 漂浮箱法与扩散模型法对 CH ₄ 排放通量比较	18
3.2 漂浮箱法与扩散模型法对 N ₂ O 排放通量比较	19
3.3 漂浮箱法和扩散模型法对 CH ₄ 和 N ₂ O 排放通量结果比较分析	21
3.3.1 漂浮箱法和扩散模型法对 CH ₄ 排放通量结果比较分析	21
3.3.2 漂浮箱法和扩散模型法对 N ₂ O 排放通量结果比较分析	22
3.4 本章小结	23
第四章 小型湖泊 CH ₄ 、N ₂ O 浓度的时间变化特征与区域比较	24
4.1 小型湖泊采样点气象因子和水质因子的时间变化	24
4.1.1 气象因子	24
4.1.2 环境参数	25
4.2 小型湖泊 CH ₄ 浓度的时间变化和区域比较	26
4.2.1 小型湖泊 CH ₄ 浓度的时间变化	26
4.2.2 小型湖泊 CH ₄ 溶存浓度不同区域比较	27
4.3 小型湖泊 N ₂ O 浓度的时间变化和区域比较	28
4.3.1 小型湖泊 N ₂ O 浓度的时间变化	28
4.3.2 小型湖泊 N ₂ O 溶存浓度不同区域比较	28

4.4 小型湖泊 CH ₄ 和 N ₂ O 溶存浓度和排放通量的时间变化	29
4.4.1 小型湖泊 CH ₄ 溶存浓度和排放通量的时间变化	29
4.4.2 小型湖泊 N ₂ O 溶存浓度和排放通量的时间变化	30
4.5 本章小结	31
第五章 小型湖泊 CH ₄ 、N ₂ O 排放通量时间变化特征和影响因素	32
5.1 小型湖泊 CH ₄ 排放通量时间变化与区域比较	32
5.1.1 小型湖泊水-气界面 CH ₄ 排放通量时间变化	32
5.1.2 小型湖泊水-气界面 CH ₄ 排放通量区域比较	33
5.2 小型湖泊 N ₂ O 排放通量的时间变化与区域比较	33
5.3 小型湖泊 CH ₄ 和 N ₂ O 排放通量的影响因素	35
5.3.1 小型湖泊 CH ₄ 和 N ₂ O 排放通量与气象因素的关系	35
5.3.2 小型湖泊水-气界面 CH ₄ 和 N ₂ O 排放通量与水质因子的关系	36
5.4 小型湖泊 CH ₄ 和 N ₂ O 通量影响因素分析	37
5.4.1 小型湖泊 CH ₄ 通量影响因素分析	37
5.4.2 小型湖泊 N ₂ O 通量影响因素分析	38
5.5 本章小结	39
第六章 结论与展望	41
6.1 结论	41
6.2 研究创新点	42
6.3 不足之处与展望	42
参考文献	43
致谢	54
作者简介	55

摘要

湖泊生态系统是大气氧化亚氮(N_2O)和甲烷(CH_4)的重要排放源。目前，有很多学者研究湖泊生态系统 CH_4 和 N_2O 的排放特征和强度，但此类报道多集中在大型水体方面，对于小型人工湖泊的报道却较少，尤其是公共绿化区的人造景观湖面如校园里的人工小型湖泊。此外，此类湖泊 CH_4 和 N_2O 的排放观测研究匮乏，因此，其对大气温室气体排放的贡献尚不明确。

漂浮箱法和扩散模型法是观测湖泊水体 CH_4 和 N_2O 排放通量的常用方法，目前极少同步采用两种观测方法比较湖泊水体 CH_4 和 N_2O 排放通量，缺乏方法适宜性的比较研究。因此本研究选取南京信息工程大学校内不同类型的小型湖泊(生活污染湖泊、自然景观湖泊)为研究对象，采用扩散模型法和漂浮箱法同步观测其 CH_4 和 N_2O 的排放通量，观测周期为七个月，每隔 10 天左右观测一次，旨在找出适合观测小型湖泊 CH_4 和 N_2O 排放通量的方法，同时也明确了校园的小型湖泊 CH_4 、 N_2O 排放通量其主要影响因素，主要研究结果如下：

1. 同步测定的结果显示，扩散模型法观测的 CH_4 和 N_2O 排放通量均低于漂浮箱法，漂浮箱法测定的 CH_4 和 N_2O 排放通量分别是扩散模型法测定的 2 倍和 1.5 倍以上。但两种方法所观测到的排放趋势、排放峰值均一致。

2. CH_4 溶存浓度具有显著的时间特征，冬季溶存浓度最高。 N_2O 溶存浓度受气温影响，冬季溶存浓度最低，生活污水区的 CH_4 、 N_2O 溶存浓度高于自然景观区的 CH_4 、 N_2O 溶存浓度。

3. 小型湖泊是大气 CH_4 排放的强源和 N_2O 的弱源，其中生活污水区的 $CH_4(8.84 \mu\text{mol m}^{-2} \text{ h}^{-1})$ 、 $N_2O(0.82 \mu\text{mol m}^{-2} \text{ h}^{-1})$ 平均排放量高于自然景观区的 $CH_4(1.86 \mu\text{mol m}^{-2} \text{ h}^{-1})$ 、 $N_2O(0.61 \mu\text{mol m}^{-2} \text{ h}^{-1})$ 平均排放量。 CH_4 的排放量冬季高于夏季的 CH_4 的排放量， N_2O 的排放量呈现夏季高于秋冬季。

4. CH_4 排放量受水温、气温、溶解有机碳(DOC)、溶解氧(DO)、硝态氮(NO_3^- -N)、铵态氮(NH_4^+ -N)等因素影响最大， N_2O 受气温、水温、溶解氧(DO)、铵态氮(NH_4^+ -N)影响较大。

关键词：漂浮箱法，扩散模型法，小型湖泊，甲烷，氧化亚氮

Abstract

Lake ecosystem is an important source of atmospheric methane(CH_4) and nitrous oxide(N_2O). Many researchers pay attention to investigate the emission characteristics and intensity of CH_4 and N_2O in lake ecosystem. However, such reports on greenhouse gas emission of lakes are mostly focused on large or middle lakes, but less on small lakes, especially those in public green areas, such as small artificial lakes on campus. Moreover, due to the lack of observational studies on CH_4 and N_2O emissions from such lakes, their contribution to atmospheric greenhouse gas emissions is unclear.

The floating tank method and the diffusion model method are commonly used to observe the CH_4 and N_2O emission fluxes from lake water. Because two different types of methods are rarely used simultaneously to compare the CH_4 and N_2O emission fluxes from lake water, and there is a lack of comparative studies on the suitability of two methods. Therefore, in this study, different types of small lakes (living polluted lakes and natural landscape lakes) in Nanjing University of Information Science and Technology are selected as research objects. The emission fluxes of CH_4 and N_2O are measured simultaneously by diffusion model method and floating tank method. The observation period is seven months, and the fluxes are observed every 10 days or so. The purpose of this study is to find out a suitable method to observe the CH_4 and N_2O emission fluxes of small lakes, and to identify the main influence factors of CH_4 and N_2O emission fluxes of small lakes on campus. The main results are as follows:

1. The results of simultaneous observation show that the CH_4 and N_2O fluxes measured by the diffusion model method are lower than those measured by floating tank method, and the methane(CH_4) and nitrous oxide(N_2O) fluxes measured by floating tank method are more than two times and 1.5 times higher than those measured by diffusion model method, respectively. However, the emission trends

and peaks observed by both two methods are consistent.

2. The concentration of CH₄ has a significant temporal characteristic, with the highest dissolved concentration in winter. The dissolved concentration of N₂O is affected by air temperature, and the lowest in winter. The dissolved concentrations of CH₄ and N₂O in domestic sewage area are higher than those in natural landscape area.

3. Small lakes are strong sources of CH₄ emission and the weak source of N₂O emission. The average emission of CH₄(8.84 μmoL m⁻² h⁻¹) and N₂O(0.82 μmoL m⁻² h⁻¹) in domestic sewage area is higher than those in natural landscape area (CH₄: 1.86 μmoL m⁻² h⁻¹)、(N₂O: 0.61 μmoL m⁻² h⁻¹). CH₄ emission in winter is higher than that in summer, and N₂O emission in summer is higher than that in autumn and winter.

4. The CH₄ emission is most affected by water temperature, air temperature, dissolved organic carbon(DOC), dissolved oxygen(DO), nitrate nitrogen(NO₃⁻-N), ammonium nitrogen (NH₄⁺-N) and other factors, while N₂O is more affected by air temperature, water temperature, dissolved oxygen(DO) and ammonium nitrogen (NH₄⁺-N).

Key words: floating box method, diffusion model method, small lakes, methane, nitrous oxide

第一章 引言

1.1 选题依据与研究背景

现如今,全世界面临的重大环境挑战是全球变暖。自 1880 年起到 2020 年,全球平均温度快速升高了 0.85°C ($0.65\text{-}1.06^{\circ}\text{C}$), 预计到 2100 年全球表面的温度将平均增加 1.0°C - 3.7°C ^[1]。导致气温上升的主要原因是温室气体的排放。大气中最主要三种温室气体是二氧化碳(CO_2)、甲烷(CH_4)、氧化亚氮(N_2O), 对全球变暖的贡献率分别为 60%、15%、5%^[2], 温室气体升高引起一系列的全球变化。比如, 全球气温升高、自然灾害增多、物种变化等都严重威胁了人类生存环境和经济发展, 已成为全球面临的重要的环境问题^[1]。在所有的温室气体中, 二氧化碳数量占绝对优势, 因此成为最主要的温室气体。 CH_4 和 N_2O 虽然在大气中浓度远小于 CO_2 , 但其百年全球增温趋势(GWP)却是二氧化碳的 28 倍和 298 倍^[2], 在气候变暖和臭氧层破坏方面都起着非常重要的作用。

大气碳收支不平衡一直是全球碳循环研究的核心问题^[3], 现研究认为陆地生态系统是碳失汇主要的生态系统, 陆地生态系统的组成部分包括湖泊生态系统。目前, 关于湖泊温室气体排放的报道多数集中在大型水体方面^[5], 但小型湖泊水体对大气温室气体贡献报道较少。现研究证明碳收支的向上估算排除了(面积 $<0.001\text{km}^2$)非常小的池塘, 因为在地图或传统的卫星图像上无法识别(面积 $<0.001\text{km}^2$)的池塘, 它们可以与湿地形成一个连续体, 使得两者难以区分, 并导致定义模糊^[8]。然而, 考虑到小池塘的 CO_2 ^[8] 浓度往往比大型湖泊高, 可能会低估了内陆水域的温室气体排放量^[11]。我国城市小型湖泊面积相对来说较小, 由于近年来国家逐渐重视改善生态环境质量, 提高人居环境的力度不断升级, 公共绿地环境如公园和校园的人工湖数量越来越多, 同时, 校园里这种小型湖泊水体流动性差, 易受人类活动影响^[16], 其温室气体的排放量可能会比较高, 所以小型人工湖泊的温室气体排放也不容忽视^[13]。但由于此类湖泊 CH_4 和 N_2O 排放的观测研究匮乏, 其对大气温室气体排放的贡献尚不明确。

此外, 漂浮箱法和扩散模型法是测定湖泊水体 CH_4 和 N_2O 排放通量的常

用方法，大多数研究只采用其中一种方法进行观测。极少有研究用这两种方法同步观测湖泊水体 CH₄ 和 N₂O 的排放通量。由于缺乏方法适宜性的比较研究，导致人们在选择观测方法时缺乏依据。

因此，本研究在前人研究基础之上，用两种方法(静态箱漂浮法、模型扩散法)研究校园小型湖泊的温室气体排放通量以及影响因素，旨在找出适合观测小型湖泊 CH₄ 和 N₂O 排放通量的方法，同时也明确了校园的小型湖泊 CH₄、N₂O 排放通量及其影响因素。研究结果将为评估不同类型湖泊的 N₂O 和 CH₄ 排放通量提供数据支持，也为评估我国公共绿地小型湖泊对大气温室气体的贡献提供科学依据。

1.2 国内外研究现状

1.2.1 内陆水体 CH₄、N₂O 排放研究进展

CH₄、N₂O 是非常重要的温室气体，当前大气中 CH₄ 和 N₂O 的浓度逐年上升。湖泊中的有机碳降解过程是厌氧反应^[17]。水体中 CH₄ 的产生是碳代谢的一个主要过程，在这个过程中，水体中 CH₄ 向大气排放。从水体排放到大气的 CH₄，其中 49% 是来自热带地区。全球内陆水体 CH₄ 的年释放量约 93.1 Tg^[18]，其中湖泊的释放量占 77%。CH₄ 在水中的溶解度小，冒泡是 CH₄ 由水体排放至大气的主要形式。同时，不同的观测方法也会对观测结果有较大的影响^[19]，目前应用较多的观测方法有漂浮箱法和扩散模型法。比如，张秀芳^[21]对小型池塘 CH₄ 排放通量进行观测采用扩散模型法，得出冒泡是富营养化浅水池塘 CH₄ 主要排放方式。兰晶^[22]采用漂浮箱法观测养殖湖泊的 CH₄ 和 N₂O 排放通量，得出养殖湖泊是大气 CH₄、N₂O 的排放来源。

氮循环受人类干扰会直接改变 N₂O 在大气中的浓度^[23]。相关研究表明，因水体富营养化导致水体的 N₂O 浓度过高，N₂O 呈高度饱和状态，从而使水体成为大气 N₂O 排放源^[24]。湖泊水体对大气 N₂O 浓度贡献的稳定性较差。但一般来说，浅水型湖泊是 N₂O 的源^[25]。

近年来，内陆水体是公认的温室气体重要的排放来源^[23]。据统计，在陆地面积中，全球湖泊面积占 2.4%，湖泊地域面积仅仅占内陆水域总面积的小部

分，对于水生系统的碳循环却起到了不可忽略的作用^[23]。研究表明，营养丰富的小型浅水湖泊会排放大量的 CH₄^[27]。Meredith A(2016)等人研究了全球范围(面积小于 0.001km²)的池塘中 CO₂ 和 CH₄ 排放，研究结果也证明了面积较小的池塘也会有异常高的 CO₂ 和 CH₄ 排放量。这些面积较小的池塘对内陆水域的 CH₄ 扩散通量有很大贡献，对 CO₂ 通量的作用较小，但仍然很重要^[28]。因此，面积较小的池塘在地球化学循环中也发挥着关键作用，对内陆水域的自然碳循环也有重要贡献。

对于水生系统中 CH₄、N₂O 的排放国外学者研究较为领先，也发表了相关成果。早期，对欧洲的河口地区 CH₄ 排放进行观测，发现 CH₄ 的排放通量具有显著的时间特征，呈现出冬天 CH₄ 的饱和度远远高于夏季^[29]。对巴西湖的 CH₄ 排放通量进行 1 年的研究，研究结果证明巴西湖是 CH₄ 排放的源^[30]。Bastien 等(2011)^[31]观测了爱尔兰的 121 个小型湖泊，这些湖泊的 CH₄ 排放量均值达到了 0.24 mg m⁻² h⁻¹。连续两年对美国河流的 N₂O 排放通量进行观测发现，夏季 N₂O 的排放通量低于冬季^[32]。同时 Garnier(2009)^[33]却得出相反的结论，发现夏季是 N₂O 排放量最高的季节。Huttunen 等(2002)^[34]对芬兰的淡水湖泊进行研究，观测到 N₂O 的排放通量较小。Mosier 等(2011)^[35]观测科罗拉多的 26 个湖泊，发现低沉积湖泊 N₂O 浓度低于高沉积湖泊的 N₂O 浓度。

如今，我国研究学者在内陆水体温室气体排放上也有了新的研究进展，在 CH₄ 排放的空间尺度上、通量测定方法比较上和计算方法参数上都有了更深入的研究。如赵炎等(2011)^[19]利用漂浮箱法对三峡水库进行观测并计算出 CH₄ 的平均排放量。高洁(2013)^[36]对于内陆水体的 CH₄ 和 N₂O 排放通量同时利用漂浮箱法和扩散模型法测定。赵佳玉(2017)^[37]用高精度光谱技术测定小型水体的温室气体排放量。Meredith A(2016)^[29]等对内陆水体 427 个湖泊和小型池塘 CH₄ 的排放进行了估算。杨平等(2015)^[38]对比漂浮箱法和扩散模型法等不同观测方法对淡水生态系统温室气体排放的主要途径进行了系统的研究。孙艺(2017)^[39]对全球内陆淡水 CH₄ 和 N₂O 排放量进行估算，得出利用扩散模型法观测的 CH₄ 和 N₂O 排放量要低于漂浮箱法观测的结果。

1.2.2 水体中 CH₄ 和 N₂O 的产生、氧化、传输

1.2.2.1 水体中 CH₄ 的产生、氧化、传输

CH₄ 是一种红外辐射活性气体，有很强的红外吸收带，是一种重要的温室气体。全球大气中 CH₄ 浓度从工业化时代前到 20 世纪 90 年代，从 715 ppbv 增加到了 1732 ppbv，到 2005 年持续增加到了 1744 ppbv，CH₄ 在大气中含量仅次于 CO₂^[1]。自然源和人为源是大气中 CH₄ 的来源。在 CH₄ 的排放清单中，人类活动导致的 CH₄ 排放量占 70% 左右^[35]。因此，受人类影响的内陆水体 CH₄ 的排放备受研究者关注。CH₄ 在水中沉积物中的产生机制较为复杂。水体产生 CH₄ 主要有两种途径：一是产甲烷菌在厌氧条件下会通过乙酸发酵过程产生 CH₄ 或是由 H₂ 还原 CO₂ 产生 CH₄^[40]；二是三甲胺、甲醇、乙酸等在产甲烷菌的作用下经过脱甲基形成 CH₄。水体中的 CH₄ 被微生物氧化后很难释放到大气中，因此，研究者发现，厌氧氧化与好氧氧化是 CH₄ 在水生生态系统中被消耗的主要形式^[42]。

但在淡水水体中，好氧氧化是消耗水体 CH₄ 的主要方式。水生生态系统 CH₄ 主要通过沉积物-水-大气的体系向大气排放。

目前，普遍认为水体中 CH₄ 向大气的传递途径主要有 3 种：冒泡排放、扩散途径、植物传输，这三种途径对 CH₄ 排放的贡献不同^[43]。

1.2.2.2 水体中 N₂O 的产生、氧化、传输

N₂O 会引发严重的环境问题，因为会把大气中臭氧层破坏掉，也会严重的影响人体健康。N₂O 作为重要的温室气体，其产生主要有两种途径，包括人为排放和自然排放，人为部分包括土地利用方式转化、生物质燃烧、畜牧业等排放源，自然排放包括内陆水体、海洋、土壤等排放源。

水体 N₂O 的产生与消耗还有许多不明确的地方，是一个非常复杂的过程。水体 N₂O 产生被大部分研究者认为主要包含反硝化作用、硝化作用、硝化-反硝化耦合作用、厌氧氨氧化作用和硝态氮异化还原作用。随着研究的不断深入和新方法的应用，N₂O 产生最主要的途径是硝化和反硝化作用。

(1) 硝化作用

硝化作用是指需要在有氧的条件下,经亚硝酸细菌和硝酸细菌的作用转化为硝酸的过程。

Yoshinary 等(1976)对大西洋 N_2O 的排放进行研究,观测到 N_2O 排放量与 O_2 成负相关,首次提出 N_2O 可以通过硝化作用产生^[46]。Bridget 等(2011)随后进一步证实了这点。但目前对于 N_2O 来源硝酰还是羟铵,学术界一直无定论^[45]。

(2) 反硝化作用

反硝化作用是指经过厌氧条件,微生物将亚硝酸盐及硝酸盐还原为氮气和气态氮化物的过程,是活性氮以氮气形式返回大气的生物过程。

在水生生态系统中,在外源氮输入量有限的基础上,通常 NO_3^- -N 的量会抑制反硝化作用,并产生 NO_3^- -N 的相关微生物过程(矿化、硝化过程等)也会影响反硝化作用。有相关研究表明,在湖泊 N_2O 的排放过程中,反硝化作用起到了重要的作用^[17]。Silvennoinen 等(2008)^[47]在研究水体 N_2O 排放速率过程中发现,水中微生物活性随着水温升高而增强,水体中沉积物的反硝化速度随之增加,从而导致 N_2O 的排放量增多。Castro.Gonzalez 等(2004)^[48]研究表明,在溶解氧浓度低的河流中,反硝化作用产生的 N_2O 的排放量较高。也有研究者指出在产生 N_2O 的来源包括沉积物-水界面的反硝化作用^[49]。

1.2.3 环境影响因子对温室气体的影响

1.2.3.1 气候因素

(1) 气温

温度是影响生态系统温室气体排放的重要因素,水体的环境参数随着气温的改变而发生相应变化,从而改变水体温室气体产生的条件,造成温室气体排放^[50]。气温对 CH_4 通量和分压的变化有较大的影响,在冬天水体底部易于形成厌氧的环境,会增加有机物的厌氧分解,甲烷的氧化速率降低,促进甲烷的大量积累^[51]。Hadi 等(2012)在对日本沼泽湿地研究中得出: N_2O 的排放通量与地表温度与其有很大的关系。我国三江平原沼泽湿地在冬天是 N_2O 汇,但随

着沼泽湿地土壤温度的升高，又逐渐变为 N_2O 的排放源^[52]。

(2) 风速

风速可以改变水-气界面气体的浓度差，导致温室气体排放通量的增加^[53]。风力使水面变得破裂，水体与空气的接触面积就会增多，气体的排放通量也会随之增加^[53]。在水浅的环境中，风力会使沉积物中碳酸盐溶解于水中，水体碱度上升，增加 CO_2 排放^[55]。风速对水-气界面 CH_4 的排放具有双面性，一方面，风力扰动会使沉积物层产生大量气泡，风会降低水-气界面气体扩散阻力，从而增加 CH_4 的排放，另一方面，风力扰动会增进水中溶解氧含量，使产甲烷菌受到抑制，从而减少 CH_4 的产生和排放^[56]。

(3) 降雨

大气中的温室气体会被降雨快速的沉降到水体中，水体中溶解性温室气体会增多。降雨也会将陆源营养盐输入到水体中，促进了水体中浮游植物的生长、叶绿素含量高、光合作用强，从而减少水体向大气排放温室气体^[57]。

1.2.3.2 水环境因素

N_2O 、 CH_4 和 CO_2 的产生都强烈依赖于水体的环境条件^[58]。

(1) 水温

CH_4 和 N_2O 排放会被水温间接影响，通过影响微生物的活性、气体在水中的溶解度氧化及还原环境。 CH_4 的释放受控于很多水环境很多因素，其中最重要的因素就是水温^[59]。有研究发现大部分产甲烷菌的新陈代谢在 4°C~45°C 之间都是活跃的，在该范围内，水温通常是与 CH_4 产生量和排放量呈正相关关系^[60]。在水生生态系统中，最适宜硝化细菌发生反应的温度是 25°C 到 30°C，研究表明反硝化速率随着温度上升而升高，当水温在 6°C~23°C 之间时， N_2O 的产生速率同温度呈显著正相关关系^[40]。

(2) 溶解氧

水体 DO 浓度是一个重要水环境因子，它会控制温室气体浓度、产量及排放量。 N_2O 产生速率与 DO 的关系十分复杂，因为产生 N_2O 的微生物包含好氧的硝化细菌和厌氧的反硝化菌。因此，DO 浓度是水体中 N_2O 产生的重要

影响因素。有研究分析发现，水体中溶存的 N_2O 浓度会随着溶解氧的减少而上升^[61]。由于 DO 的减少对 NO_3^- -N 的生成速率、硝化反应的强度以及 N_2O 还原酶的活性的影响^[43]，导致缺氧状态下的水体产生的 N_2O 含量更多。胡蓓蓓^[62]等指出 N_2O 的排放通量受 DO 的影响很大， N_2O 释放高值出现在 DO 含量相对较低阶段。

产甲烷菌是一种严格的厌氧菌，水体中 DO 的含量不仅会大大抑制甲烷的产生，还会将 CH_4 从沉积物运输到上层水体的过程中氧化，从而降低水-气界面的 CH_4 排放量^[63]，水体中的甲烷更多的是在沉积物中产生的，在沉积物处于缺氧情况下，沉积物中存储的碳大部分是以 CH_4 和 CO_2 形式排放到大气中，而当溶解氧浓度高时，多以 CO_2 这种形式释放到大气中^[64]。文献指出，沉积物中 CH_4 通过沉积物-水面和水-气界面过程中，水体 DO 含量不断上升，大部分 CH_4 会被氧化，从而减少向大气的排放量^[65]。

(3) pH

pH 值是影响温室气体产生及迁移转化的重要因子之一，pH 往往与温室气体排放量呈负相关关系，当水体 pH 值为重酸性或碱性的情况下，微生物的活性和有机质分解速度都会降低，使 CH_4 和 N_2O 的产生减少^[66]。当 pH 为 8.5 时有利于硝化反应，当 pH 在 7.0~8.5 时有利于反硝化作用的发生^[67]。pH 值的变化也会影响甲烷的活性，过酸或过碱都会影响甲烷的产生，pH 为 6.0~8.0 是绝大多数甲烷菌最适宜范围^[68]。

(4) 溶解性有机碳

作为呼吸作用和产甲烷作用的能量来源和反应基质，沉积物中的有机碳含量和水体中溶解有机碳含量都会直接影响 CO_2 和 CH_4 的产量。有研究表明， CH_4 排放通量与底泥中总氮(TN)和其他有机质的含量呈显著正相关^[69]。沉积物中的有机碳含量是控制 CH_4 产生和排放的主要影响因素，这些有机碳为产甲烷菌提供了足够利用的反应底物，并且有机碳也是 CH_4 产生碳的来源^[70]。外源 DOC 的输入可以使水体中微生物过程对电子供体的竞争降低，从而使 CH_4 产生。水生生态系统中的 N_2O 的产生速率通常也与有机碳含量呈正相关关系，因为碳也是 N_2O 产生菌的能源物质^[51]。

另一方面，有机碳可以间接影响 CH_4 和 N_2O 的产生，它的增加可以促进

水体中好氧生物对环境中 O_2 的消耗， CH_4 将因氧化过程受到抑制得以积累，而缺氧环境也有利于产生 N_2O 的厌氧微生物过程。有研究表明，有机碳的质量也会影响 CH_4 和 N_2O 的产生^[52]。

(5) 无机氮

水体无机氮也称作营养盐，包含 NH_4^+-N 、 NO_3^-N ，水体中溶解无机氮水平影响着温室气体的产量和浓度，对于 CH_4 来说， NH_4^+-N 影响 CH_4 氧化， NH_4^+-N 的化学结构类似于 CH_4 分子，一方面其可以与甲烷竞争单加氧酶，另一方面，两者的氧化菌竞争 O_2 ，从而促进 CH_4 排放^[71]。在厌氧的条件下， NO_3^- 和 NO_2^- 作为甲烷氧化酶的电子受体，进行反硝化型甲烷厌氧氧化，从而减少水体 CH_4 浓度及排放量^[73]。对于 N_2O 来说，无机氮是硝化和反硝化反应的底物，因此，无机氮的浓度水平对 N_2O 的产生和排放起着重要关系。研究发现，大多数水体 CH_4 和 N_2O 的排放通量与 NH_4^+-N 和 NO_3^-N 呈正相关关系。但也有研究指出，水体 N_2O 浓度与 NH_4^+-N 和 NO_3^-N 间相关性具有不确定性。有研究得出，长江水体溶存 N_2O 浓度与亚硝酸盐和铵盐呈正相关，与硝酸盐不相关^[74]。

(5) 其他因子

水生生态系统中还有一些其他环境因子会对温室气体的排放产生影响。如氧化还原电位(E_h)、叶绿素 a 等。 E_h 值是衡量厌氧程度的指标，影响着 CH_4 的产生和排放。 CH_4 排放通量与 E_h 相关系数极显著^[75]，有研究得出当 E_h 从 -200 mv 降到 -300 mv 时， CH_4 产量增加 10 倍，排放量增加 17 倍^[76]。水中的叶绿素 a 浓度是衡量水中藻类数量和植物的一个重要指标，反映水体的初级生产力^[77]。研究表明，初级生产力是水库中产生大量 CH_4 的主要原因^[78]。水体中叶绿素浓度可通过调节水生生态系统内氧气的含量来控制硝化和反硝化的反应，从而间接影响 N_2O 的产生^[79]。

1.2.4 内陆水体 CH_4 和 N_2O 排放通量的观测方法

水体的水-气界面的排放通量是指在单位时间内通过单位面积水面-大气界面的 CH_4 或 N_2O 的质量数，正值通量表示向大气排放，负值表示吸收大气

中的 CH₄ 或 N₂O。由于淡水生态系统温室气体从产生、传输到最终通过水-气界面进入空气是需要经历一系列复杂的物理化学过程。同时，还受诸多因素(水温、风速等)的影响，因此，淡水生态系统温室气体的收集和测定较为复杂。目前，在实际监测中对于水-气界面温室气体测定常用的方法主要含有：漂浮箱法、扩散模型法、倒置漏斗法和 TDLAS 吸收光谱法等^[20]。

(1) 静态箱法

在国外早期，漂浮通量箱法已用来观测水体水-气界面 CH₄ 和 N₂O 排放通量。其主要原理是通过在水体表面放置一个顶部密封和底面开口的箱体去测量穿过水-气界面的温室气体的浓度，一般每间隔 10-15 min，收集箱体中待测的气体的浓度，用气相色谱仪测定^{[20][41]}。静态箱法的原理简单并且操作方便，所以在国内外研究中被广泛应用。但是 Wallace 等(1985)^[80]研究表明，漂浮箱法很难区别风速对水-气界面的交换速率的作用，因此，漂浮箱法存在不足之处。

(2) 扩散模型法

扩散模型法又称梯度法，是相对简单的方法，其原理是根据水-气界面气体扩散速率 K_w 及溶存浓度差而建立的。扩散模型法可以实现对水生生态系统表层水体和大气温室气体浓度的连续监测^[81]，通过对不同温室气体浓度分析。又因为其操作简单、快速，每天可以多次测定^[82]。该方法可以克服水流动对于观测结果的影响^[83]。

(3) 倒置漏斗法

倒置漏斗法用于以冒泡方式排放温室气体为主的的采集和分析方法。其原理是将倒置的漏斗放到水体表层以下中捕获气泡，从而估算出以气泡方式排放出的气体通量。倒置漏斗法收集的是从底泥中产生的 CH₄，比起箱法是 CH₄ 冒泡通量的最准确的观测方法^[86]，但因无法实现对观测的区域进行连续的观测，导致容易忽视气泡排放的时空差异。因此，目前在研究中研究者常将倒置漏斗法和箱法结合观测，进而更加全面的估算水面-气界面 CH₄ 的排放通量。

(4) TDLAS 吸收光谱法

TDLAS 吸收光谱法有精度高、反应迅速快等特点，可以实现大区域内多种气体同时观测^[87]。其原理是应用二级管激光器波长调谐特性，得到被测气体

在特征吸收光谱范围内的吸收光谱，应用浓度梯度估计出观测区域温室气体的排放通量。但是此方法对下垫面的要求较高，地形复杂难以满足。

1.3 研究目的与意义

随着人类社会不断进步，许多工业、农业迅速发展，导致大量含碳氮的生活污水排入到淡水生态系统中，最终成为了温室气体的重要排放源。估算全球淡水生态系统 CH_4 排放量为 103 Tg yr^{-1} ，大气中 20% 的 CH_4 排放是来自淡水生态系统^[88]，Beaulice 等(2011)估算出全球 N_2O 的排放量为 1.07 Tg yr^{-1} 。湖泊属于淡水生态系统的一部分，但目前，关于湖泊温室气体的排放的报道多数集中在大型水体方面^[89]，而小型湖泊水体对大气温室气体贡献报道较少，有研究者通过对高分辨率卫星图像上获得的三个最小类型湖泊的数量进行线性回归推算出全球估计有 5.47×10^8 个池塘。非常小的池塘只占全球湖泊和池塘表面积的 8.6%，但却占所有二氧化碳排放的 15.1%，占淡水区 CH_4 扩散排放的 40.6%。考虑到小池塘的 CO_2 和 CH_4 浓度往往比大湖高，可能会低估了内陆水域的温室气体排放量^[92]。并且随着高校生态环境建设不断升级，校园的人工湖频频出现在各大高校，但是校园里这种小型湖泊水体流动性差，易受人类活动影响^[93]，所以其重要性不容忽视。因此，本研究对淡水生态系统中的小型湖泊进行 CH_4 和 N_2O 的排放观测，可以为准确估算湖泊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。

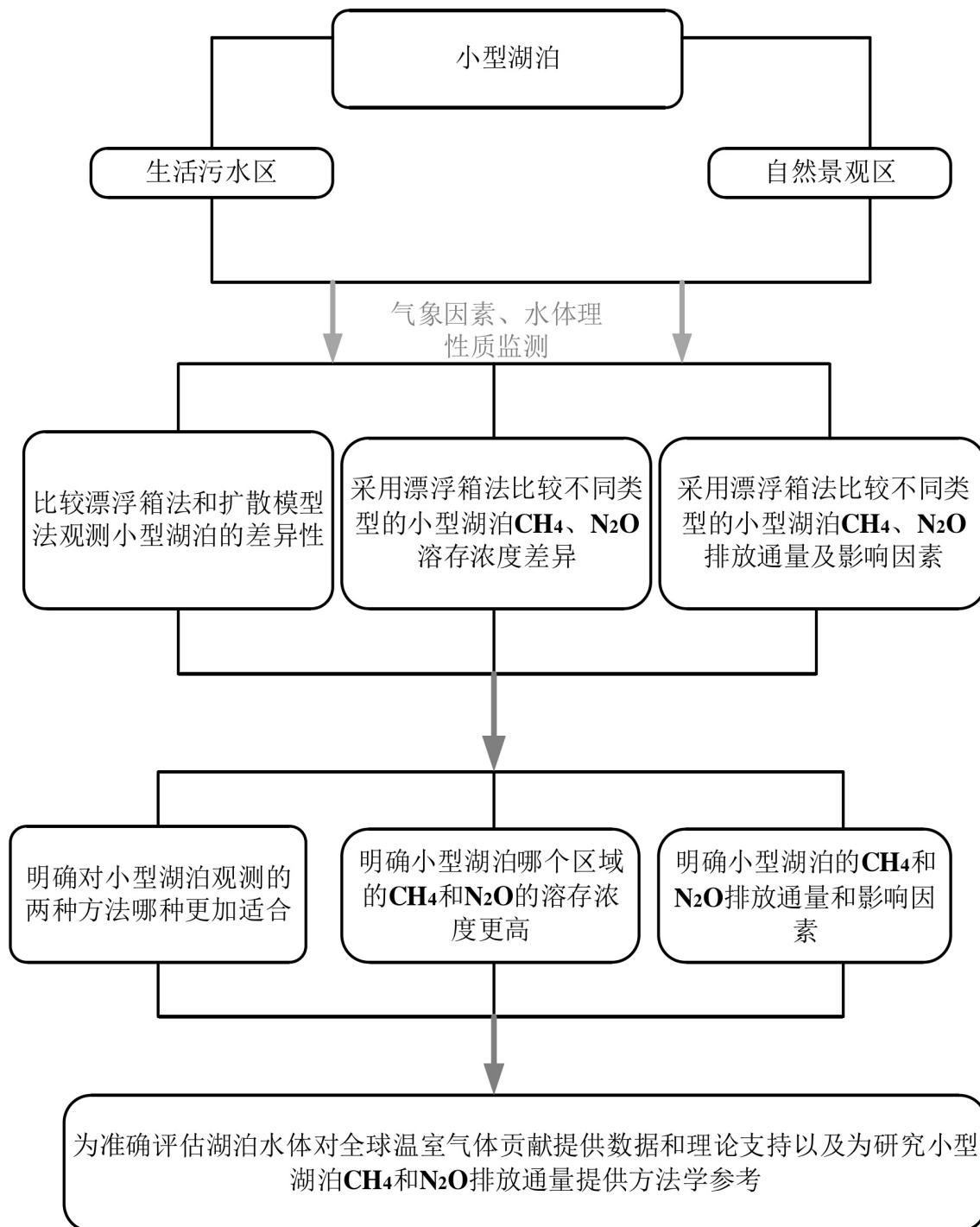
漂浮箱法和扩散模型法是最为常用的测定办法，被广泛应用于水-气界面 CH_4 和 N_2O 排放通量的研究中。但是测定的结果都存在不确定性。漂浮箱法很难区别风速对水-气界面交换速率的影响，但因操作简便，制作费用低，而被广泛应用。扩散模型法由于水温、风速的测定以及公式计算的不确定性而导致扩散模型法计算的气体交换速度误差高达 50%^[95]。这两种方法很少同步被研究者采用，因此，本研究同步使用这两种观测方法观测小型湖泊的 CH_4 和 N_2O 排放通量，来更加明确客观的评价观测方法之间的差异，为研究小型水体 CH_4 和 N_2O 水-气排放通量提供方法学参考。

1.4 研究内容

基于对国内外的研究进展，本研究主要以 2 个不同类型的小型湖泊的为研究对象，采用不同方法原位观测其 CH₄ 和 N₂O 的排放通量。旨在找出适合观测小型湖泊 CH₄ 和 N₂O 排放通量的方法，为研究小型水体 CH₄ 和 N₂O 水-气排放通量提供方法学参考，同时也明确了校园的小型湖泊 CH₄、N₂O 排放通量及其主要影响因子，为合理评估小型湖泊水体对大气温室气体的贡献提供科学依据。主要的研究内容包括以下 3 方面：

- (1) 比较漂浮箱法和扩散模型法测定小型湖泊 CH₄ 和 N₂O 观测结果的差异性，评价两种方法的适宜性。
- (2) 根据对 CH₄ 和 N₂O 的排放通量数据，估算小型湖泊水体 CH₄ 和 N₂O 的排放通量。
- (3) 根据统计分析结果，找出影响 CH₄ 和 N₂O 的排放的关键因子。

1.5 技术路线



第二章 研究方案

2.1 研究区域概况

试验地点位于江苏省南京市南京信息工程大学的农业示范站($118^{\circ}42'20''$ 、 $32^{\circ}12'21''$)，该区域周边有几条小型湖泊，是南京信息工程大学排泄雨水的主要通道，所选择的实验湖泊分别是一条生活污水湖泊和自然景观湖泊，生活污水湖泊水体主要来源自然降水和校园住户的生活污水及实验的废水。自然景观湖泊的水体来源主要是自然降水和周围山体滑落的水，湖里有 10 只天鹅，20 只鸭子和一些金鱼。据统计在南京市，绝大多数高校都有类似的小型湖泊，因此我们研究的小型湖泊具有一定的代表性，对评估校园小型湖泊，特别是污染湖泊对温室气体排放具有一定的科学意义。

2.2 实验设计

本研究的小型湖泊区域面积分别为 0.0001km^2 和 0.00015 km^2 ，水深为 1.2 m-1.5 m，实验观测时间从 2020 年 7 月 1 日到 2021 年 1 月 12 日，周期为半年(7 个月)，采样频率为每 7-10 天一次。本研究是用漂浮箱法和扩散模型法同步对两个区域湖泊的 CH_4 和 N_2O 排放量进行观测。在进行采样正式观测之前，对两个区域水体理化性质进行了分析，见表 2-1。

表 2-1 小型湖泊的水质性

Table 2-1 Water quality characteristics of small lakes

	DOC (mg L ⁻¹)	$\text{NH}_4^+ \text{-N}$ (mg L ⁻¹)	$\text{NO}_3^- \text{-N}$ (mg L ⁻¹)	pH (ppm)
生活污水区	22.02	0.055	4.24	9.8
自然景观区	9.01	0.050	0.18	9.4

每个采样区域各设置 3 个采样点。各个采样点间隔 1 米距离。用 2 种方法来观测 2 个区域的 CH_4 和 N_2O 排放通量。



图 2-1 研究区域的概况图

Figure 2-1 overview of the study area

2.3 气体的采集与分析

本研究采用漂浮箱法和扩散模型同步观测 CH_4 和 N_2O 排放通量，所用的采集箱规格为 $20 \text{ cm} \times 25 \text{ cm}$ ，为了防止太阳直射而导致采样箱内气温升的过快，采用 PVC 材质，箱外设有保温层，在保温层外贴有反光膜。每次采样时控制采样箱底正好能够完全浸没水面上，保证采样过程中气密性良好。试验有两个处理(生活污水区、自然景观区)，每个处理三个重复，总计 6 个采样点(A、B、C、D、E、F)。漂浮箱观测法的采样时间分别为(0 min、15 min、30 min、45 min)，用安捷伦 7890B 气相色谱仪在 48 h 内完成 CH_4 和 N_2O 的浓度测定。

地下水溶存浓度利用顶空取样-气象色谱法进行测定；具体过程如下：用医用注射器吸取 5 ml 水样注射 20 ml 已抽真空的玻璃瓶中，然后补充 15 ml 空气作为平衡气，手动摇匀，同时准备 4 个玻璃瓶，只注射空气，不注射地下

水水样，做空白样品瓶，然后将玻璃瓶置于 4℃ 的冷柜中，平衡 24 小时。待水中 N₂O 与空气达到平衡后，用注射器抽取玻璃瓶上部气体约 10 ml，注入气相色谱测定气体中温室气体的浓度。

气温、降雨、风速等具体数据以学校的气象站记录为准。

2.4 水样的采集与分析

试验观测期间每一次采集气体样品时，采集小型湖泊的水体，对其理化性质进行测定分析，同时采用 Orion 便携式多参数仪监测水温、溶解氧含量、pH 等指标，硝态氮(NO₃⁻-N)、铵态氮(NH₄⁺-N)、可溶性有机碳(DOC)、TN、TP 含量在实验室测定。在实验室中利用 JY-CTL-12COD 仪分析水样中 COD 含量、采用连续流动化学分析仪(SiloLS-A6, 德国)分析水样中 NH₄⁺-N 和 NO₃⁻-N、TP、TN 含量。

2.5 水-气界面 CH₄ 和 N₂O 交换通量的计算

(1) 漂浮箱法

水-气界面排放通量是指在单位面积上单位时间内 CH₄ 或 N₂O 的排放量，排放通量为正值表示水体向大气排放 CH₄ 或 N₂O，负值通量表明水体吸收大气中的 CH₄ 或 N₂O。利用漂浮箱法测定温室气体排放通量的计算公式如下：

$$F = \rho \times V / A \times \Delta C / \Delta t \times 273 / (273 + T) \quad (1-1)$$

式(1)中，F 为 CH₄(以 C 计)或 N₂O(以 N 计)排放通量， $\mu\text{mol m}^{-2} \text{ h}^{-1}$ ，ρ 为标准状况下 CH₄ 或 N₂O 的密度，分别为 0.54 g L⁻¹ 和 1.25 g L⁻¹；V 为采样箱体积 m³，A 为采样底座内土壤表面积 m²， $\Delta C / \Delta t$ 表示 CH₄ 或 N₂O 的排放速率 mL L⁻¹ h⁻¹，T 为采样箱内温度℃。

(2) 扩散模型法

扩散模型法是指通过扩散模型利用水中气体溶存浓度进行计算而获得气体排放通量的方法。本研究中利用 Liss 等(1974)^[97]提出的双层模型来计算水-

气界面 CH_4 和 N_2O 排放通量。计算公式如下：

$$F = K_w \times (C_{\text{obs}} - C_{\text{eq}}) \times 3600 / 1000 \quad (1-2)$$

其中， F 为待测气体排放通量($\mu\text{moL m}^{-2} \text{ h}^{-1}$)， K_w 为气体交换速度(m s^{-1})；

在实际水温条件下， CH_4 和 N_2O 的 C_{eq} 值可用 Henry 定律计算

$$C_{\text{eq}} = K_H \cdot p \quad (1-3)$$

其中， K_H 为平衡温度条件下 CH_4 或 N_2O 的 Henry 常数($\mu\text{moL L}^{-1} \text{ atm}^{-1}$)，由公式(4)计算获得； p_g 为 CH_4 或 N_2O 的纯气压力，即 1atm。 P 为 CH_4 或 N_2O 气体的大气分压，根据江苏地区的大气成分状况，前后两者分别约为 2×10^{-6} 和 0.32×10^{-6} Pa； K_H 为采样时水温条件下的气体 Henry 常数($\text{moL m}^{-3} \text{ Pa}^{-1}$)，其值由公式(1-4)根据实际水温计算确定。即：

$$K_H = K_H^0 \cdot e^{k \left(\frac{1}{T} - \frac{1}{T_0} \right)} \quad (1-4)$$

根据 Henry 定律和 Sander 整理的数据。其中 $T^0 = 298$ K， T 为实际绝对温度(K)， K_H^0 为 298 K 和 1 Pa 条件下的 Henry 常数， CH_4 和 N_2O 分别为 1308 和 $24714 \mu\text{moL m}^{-3} \text{ Pa}^{-1}$ ； kT 为表征 Henry 常数随温度变化的参数， CH_4 和 N_2O 分别取值 2675 和 1750。

根据气-液平衡后测定的 CH_4 和 N_2O 浓度，利用公式(1-5)计算平衡前水样中两种气体的溶存浓度，计算参照 Terry 等(1981)所推荐的方法，即：

$$c_{\text{obs}} = \frac{(N_2O_h - N_2O_a) \times H_{\text{vol}} + \alpha \times N_2O_h \times W_{\text{vol}}}{W_{\text{vol}}} \quad (1-5)$$

式中 c_{obs} 表示地下水中 N_2O 的浓度。 N_2O_h 表示平衡后真空玻璃瓶空气中的 N_2O 的浓度， N_2O_a 表示平衡气体中 N_2O 的浓度，通过测定空白样品瓶中 N_2O 的浓度获得， H_{vol} 表示加入水样后玻璃中空气的体积，为 15 ml。 α 表示温度是 4°C 时， N_2O 的本生系数，为 1.12896； CH_4 的本生系数为 0.05097， W_{vol} 表示加入玻璃中的水样的体积为 5 ml，甲烷是与上述一样的公式。

根据计算出的达到平衡时水样中的气体浓度(C_{eq})与平衡前水样中的气体浓度(C_{obs})，分别采用 LM86、W92a、W92b 和 RC01 来计算出 K_w 值并选取四种估算公式的平均值作为最终 K_w 值计算，之后利用双层模型公式(表 2-2)估计 CH_4 或 N_2O 排放通量。

表 2-2 与风速有关的气体交换速度 (K_w) 估算公式
Table 2-2 Formulas for estimating wind speed-dependent gas transfer velocity(K_w)

K_w	计算公式	U_{10} ($m s^{-1}$)	出处
	$K_w=0.17U_{10}(Sc/600)^{-2/3}$	$0 < U_{10} \leq 3.6$	Liss& Merlivat (1986)
LM86	$K_w=(2.85*U_{10}-9.65)((Sc/600)^{-1/2}$	$3.6 < U_{10} \leq 13$	
	$K_w=(5.9*U_{10}-49.3)((Sc/600)^{-1/2}$	$13 < U_{10}$	
W92a	$K_w=(0.39*U_{10}^2)((Sc/600))^{-1/2}$	Long-term U_{10}	Wanninkhof (1992)
W92b	$K_w=(0.31*U_{10}^2)((Sc/600))^{-1/2}$	Short-term U_{10}	
Rc01	$K_w=1.91\exp(0.35U_{10})((Sc/600))^{-1/2}$	Any U_{10}	Raymond & Cole (2001)

注：百分比 U_{10} 为水面上方 10m 高度的风速 ($m s^{-1}$)， K_w 值定义为风速和气体 Sc (Schmidt number 的简称) 数的函数。 Sc 数是水的动力粘度与待测气体分子扩散速率之比， CH_4 和 N_2O 的 Sc 数随 0-30°C 范围内温度而变化的关系分别为 $Sc_{CH_4}=2309.2-120.31T+3.4209T^2-0.040437T^3$ 2055.6-137.11T+4.3173T²-0.05435T³

2.6 统计分析

本研究中的数据计算和绘图采用的是 Excel 和 origin 2.5 软件完成。采用 SPSS 软件进行统计分析。

第三章 漂浮箱法与扩散模型法对 CH₄、N₂O 排放通量比较

3.1 漂浮箱法与扩散模型法对 CH₄ 排放通量比较

本实验运用漂浮箱法和扩散模型法原位观测小型湖泊，小型湖泊选自两个区域，一个生活污水区，一个自然景观区，对这两个区域分别进行 CH₄ 和 N₂O 水-气界面排放通量观测。观测时长为半年(7个月)(2020.7.1~2021.1.12)，每隔7-10天观测一次，漂浮箱法和扩散模型法同步进行。小型湖泊的两个区域采用漂浮箱法和扩散模型法同步观测 CH₄ 排放通量结果如图 3-1 所示。

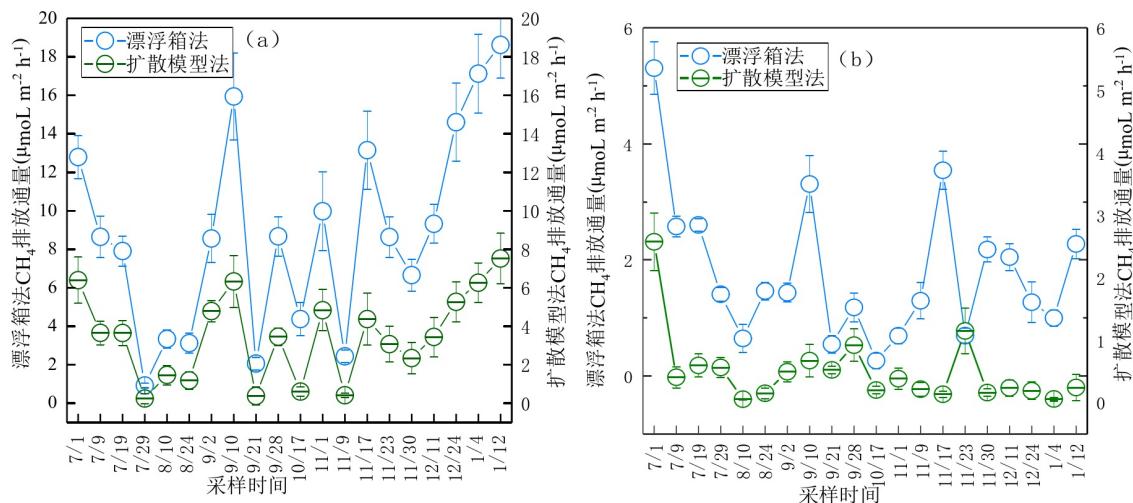


图 3-1 生活污水区和自然景观区漂浮箱和扩散模型法的 CH₄ 排放通量比较
Figure 3-1 Comparison of CH₄ emission fluxes between floating tank and diffusion model in domestic sewage area and natural landscape area

结果表明漂浮箱法观测的小型湖泊 CH₄ 排放通量范围在 $0.92 \pm 0.17 \mu\text{mol m}^{-2} \text{ h}^{-1}$ ~ $18.62 \pm 2.4 \mu\text{mol m}^{-2} \text{ h}^{-1}$ 和 $0.55 \pm 0.22 \mu\text{mol m}^{-2} \text{ h}^{-1}$ ~ $5.31 \pm 1.22 \mu\text{mol L}^{-1}$ 之间，扩散模型法测定水中的 CH₄ 溶存浓度范围为 $0.52 \mu\text{mol L}^{-1}$ ~ $17.75 \mu\text{mol L}^{-1}$ 和 $0.21 \mu\text{mol L}^{-1}$ ~ $1.55 \mu\text{mol L}^{-1}$ ，风速变化为 0.3 m s^{-1} ~ 4 m s^{-1} ，采用上面所提到的模型计算出 CH₄ 排放通量变化范围在 $0.24 \pm 0.16 \mu\text{mol m}^{-2} \text{ h}^{-1}$ ~ $7.52 \pm 1.63 \mu\text{mol m}^{-2} \text{ h}^{-1}$ 和 $0.05 \pm 0.03 \mu\text{mol m}^{-2} \text{ h}^{-1}$ ~ $2.58 \pm 0.16 \mu\text{mol m}^{-2} \text{ h}^{-1}$ 。结果表明生活污水区和自然景观区的漂浮箱法观测得到的 CH₄ 排放量都是高于扩散模型法且差异显著($p < 0.01$)。在生活污水区 11-12 月间漂浮箱法和扩散模型法观测的排放通量都呈上升趋势，3 个峰值(7 月、9 月、1 月)出现的时间一致。在自然

景观区排放峰值都出现在 7 月份，表明两种方法观测的 CH₄ 排放通量趋势一致。

根据上述结果，为了进一步比较漂浮箱法和扩散模型法观测的湖泊 CH₄ 排放量，本研究将两种方法的 CH₄ 月均排放通量做了线性相关性分析，如图 3-2 所示，漂浮箱法测定的 CH₄ 月均排放通量在 $2.12 \pm 0.56 \sim 16.79 \pm 2.45 \mu\text{mol m}^{-2} \text{ h}^{-1}$ 和 $1.17 \pm 0.68 \sim 3.49 \pm 1.14 \mu\text{mol m}^{-2} \text{ h}^{-1}$ 之间，扩散模型法的月均排放通量为 $0.86 \pm 0.11 \sim 6.3 \pm 1.21 \mu\text{mol m}^{-2} \text{ h}^{-1}$ 和 $0.16 \pm 0.04 \sim 1.19 \pm 0.36 \mu\text{mol m}^{-2} \text{ h}^{-1}$ 之间。两种方法的结果具有显著差异，扩散模型法测的 CH₄ 排放通量约是漂浮箱法测定值的 40%(生活污水区， $r^2=0.94$)和 27%(自然景观区， $r^2=0.50$)。但图 3-2 可知：两种方法呈现显著的线性关系，说明两种方法虽然观测的结果相差较大，但在反映 CH₄ 排放规律上具有一致性。

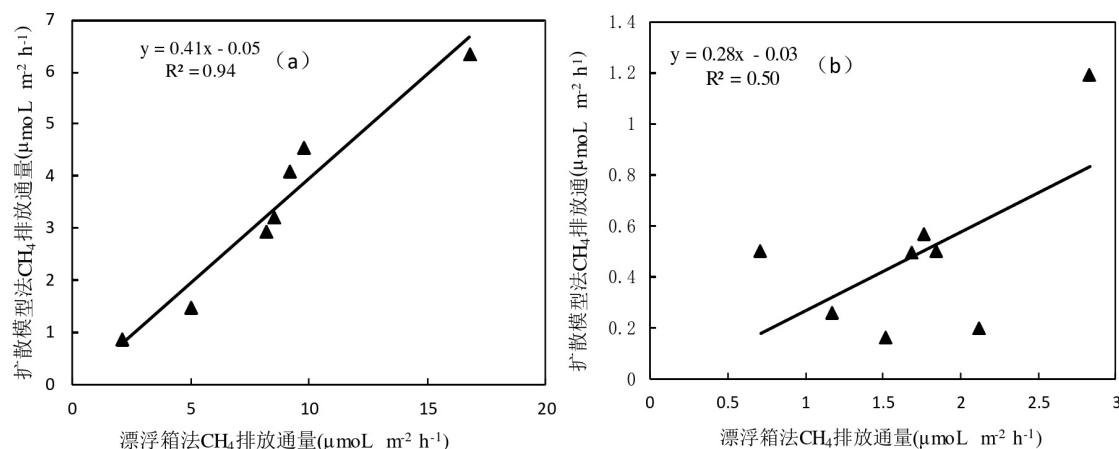


图 3-2 生活污水和自然景观区基于漂浮箱法和扩散模型的 CH₄ 月均排放通量线性关系

Figure 3-2 Linear relationship of monthly average CH₄ emission flux in domestic sewage area and natural landscape area based on floating tank method and diffusion model

3.2 漂浮箱法与扩散模型法对 N₂O 排放通量比较

对小型湖泊 N₂O 的排放通量的观测与 CH₄ 的观测同步进行，采样时间、观测地点、观测方法都是保持一致的。图 3-3 展示了不同的时间漂浮箱法和扩散模型法观测 N₂O 排放通量在时间变化上的情况。结果显示：漂浮箱法观测的小型湖泊 N₂O 排放通量范围在 $0.23 \pm 0.09 \sim 1.94 \pm 0.12 \mu\text{mol m}^{-2} \text{ h}^{-1}$ 和 $0.23 \pm 0.08 \sim 1.41 \pm 0.25 \mu\text{mol m}^{-2} \text{ h}^{-1}$ 之间；扩散模型

法测定水中的 N₂O 溶存浓度范围为 0.07 μmol L⁻¹~0.54 μmol L⁻¹ 和 0.03 μmol L⁻¹~2.38 μmol L⁻¹, 风速变化为 0.3 m s⁻¹~4 m s⁻¹, 采用上面所提到的模型计算出 N₂O 排放通量变化范围在 0.02±0.008~0.48±0.06 μmoL m⁻² h⁻¹ 和 0.01±0.003 μmoL m⁻² h⁻¹~0.47±0.16 μmoL m⁻² h⁻¹。结果表明生活污水区和自然景观区的观测结果都是漂浮箱法 N₂O 排放通量高于扩散模型法, 并且排放通量的差异也相对显著。但生活污水区的漂浮箱法和扩散模型法的 N₂O 排放峰值都出现在 10 月, 自然景观区都出现在 7 月(9 月因异常值排放量增多除外), 这说明两种观测方法虽然排放通量差量大, 但对于 N₂O 的排放通量趋势是一致的。

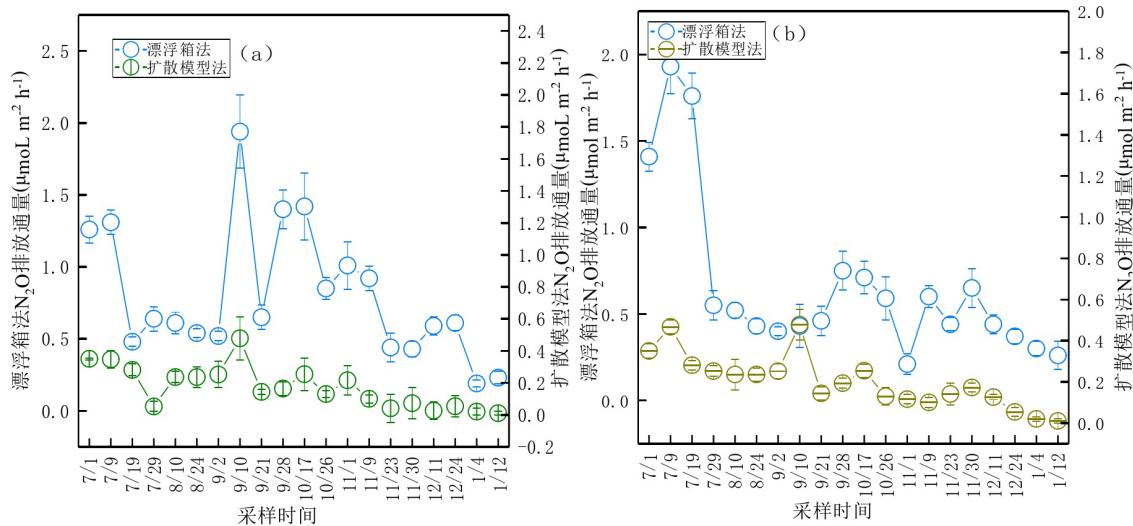


图 3-3 生活污水区和自然景观区漂浮箱法和扩散模型法的 N₂O 排放通量比较

Figure 3-3 Comparison of N₂O emission fluxes between floating tank method and diffusion model method in domestic sewage area and natural landscape area

根据观测数据, 本研究将两种方法的 N₂O 月均排放量做了线性相关性分析。

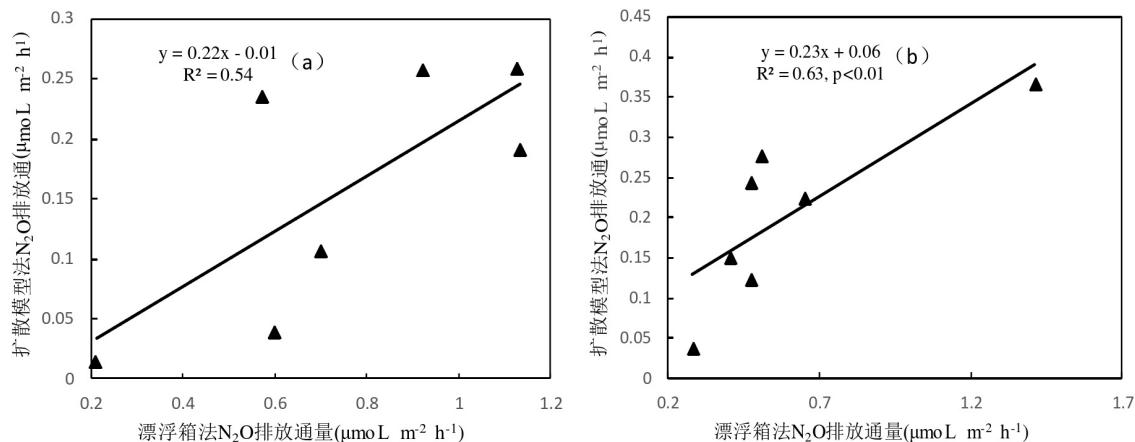


图 3-4 生活污水去和自然景观区基于漂浮箱法和扩散模型的 N₂O 月排放通量线性关系

Figure 3-4 Linear relationship of N₂O monthly emission flux of domestic sewage to natural landscape area based on floating tank method and diffusion model

如图 3-4 所示,漂浮箱法测定的 N₂O 月均排放通量在 $0.21 \pm 0.06 \sim 1.13 \pm 0.45 \mu\text{mol L}^{-1} \text{m}^{-2} \text{h}^{-1}$ 和 $0.28 \pm 0.08 \sim 1.41 \pm 0.14 \mu\text{mol L}^{-1} \text{m}^{-2} \text{h}^{-1}$ 之间, 扩散型法的月均排放量为 $0.02 \pm 0.006 \sim 0.26 \pm 0.01 \mu\text{mol L}^{-1} \text{m}^{-2} \text{h}^{-1}$ 和 $0.04 \pm 0.01 \sim 0.28 \pm 0.07 \mu\text{mol L}^{-1} \text{m}^{-2} \text{h}^{-1}$ 之间。两种方法算出的结果具有显著差异, 扩散模型法观测的 CH₄ 排放通量约是箱法测定值的 22%(生活污水区, $r^2=0.54$)和 23%(自然景观区, $r^2=0.64$)左右。但两种方法呈现显著的线性关系, 说明两种方法虽然观测的结果相差很多, 但在反映 N₂O 排放规律上具有一致性。

3.3 漂浮箱法和扩散模型法对 CH₄ 和 N₂O 排放通量结果比较分析

3.3.1 漂浮箱法和扩散模型法对 CH₄ 排放通量结果比较分析

由图 3-1 可以看出: 对于小型湖泊无论是在生活污水区还是自然景观区, 漂浮箱法测定 CH₄ 排放通量都高于扩散模型法观测结果, 对于这样的结果, 国内外研究者也有类似的结论。Matthews^[96]等(2013)通过漂浮箱法和扩散模型法对水库的 CH₄ 排放通量研究得出, 漂浮箱法 CH₄ 平均通量值高于扩散模型法 CH₄ 平均通量。Duchemin^[98]等(1999)更早的发现在大型水库的浅水区($<3.5 \text{ m}$ 深度), 漂浮箱估计值比基于风速的扩散模型估计值高 2-3 倍, 得出扩散模型法可能低估了水体 CH₄ 的排放通量。这个结果与本实验的结论接近, 平均来

看，扩散模型法观测的 CH₄ 排放通量是漂浮箱法观测的 40% 和 29% 左右。高洁(2013)对内陆水体的 CH₄ 排放量用漂浮箱法和扩散模型法(不同模型)得出无论扩散模型中的哪一种公式得出的结果都是漂浮箱法 CH₄ 排放通量高于扩散模型法 CH₄ 排放通量。吴双(2018)^[100]用漂浮箱法和扩散模型法观测灌溉水体中 CH₄ 的排放通量，两者观测结果相对吻合，但观测结果也是漂浮箱法略高于扩散模型法。在研究淡水养殖鱼塘 CH₄ 排放通量中，也有研究者得出漂浮箱法高于扩散模型法的结果^[101]。综上所述，本研究推测，扩散模型法观测小型湖泊气体排放会低估实际排放量。对于扩散模型法的 CH₄ 排放量低于漂浮箱法的可能因为本实验的风速都是 4 m s⁻¹ 以下，当风速大于 4 m s⁻¹ 时，漂浮箱法和扩散模型法的结果会越来越吻合，扩散模型法是利用风速大小和水体溶存浓度计算出的通过扩散途径产生的排放量^[101]，在扩散模型的计算过程中会忽视冒泡排放的气体排放途径，而漂浮箱法可以同时观测冒泡和扩散两种 CH₄ 排放途径。此外，漂浮箱法在采样过程也会受到人为干扰因素和恶劣的天气影响导致水面波动较大，因此漂浮箱法观测得到的 CH₄ 排放通量高于扩散模型法。由此可见，本研究的扩散模型法观测得到的 CH₄ 月均排放通量是漂浮箱法的 40% 和 29% 左右有所依据。

3.3.2 漂浮箱法和扩散模型法对 N₂O 排放通量结果比较分析

对于小型湖泊的两个区域 N₂O 的排放通量都表现为漂浮箱法的观测结果大于扩散模型法。虽然对漂浮箱法和扩散模型法同步对水体 N₂O 的排放通量的比较研究较少，但现有的研究得出的结果大多数是漂浮箱法的排放通量高于扩散模型法。高洁(2013)^[36]对内陆水体的 N₂O 排放通量用漂浮箱法和扩散模型法(不同模型)同步进行原位观测，得出无论扩散模型中的哪一种公式结果都是漂浮箱法 N₂O 排放通量高于扩散模型法。吴双(2018)^[99]用漂浮箱法和扩散模型法观测灌溉水体中 N₂O 的排放通量，两者观测结果是比较吻合的，但也是漂浮箱法的观测结果略高于扩散模型法。在对设施菜田的研究中，研究者得出的结论也是漂浮箱法的 N₂O 排放通量大于扩散模型法^[102]。综上所述，本研究推测，扩散模型法观测小型湖泊 N₂O 排放会低估实际排放量。因为扩散模

型法属于半经验模型，在整个实验过程中没有很好的体现出扩散原理和驱动机制，并且扩散模型像上文所述一样，受风速、温度、溶存浓度的影响，这些就增加了扩散系数的不确定性^[103]，最终导致 N₂O 排放结果的差异。

3.4 本章小结

在小型湖泊两种不同的区域，采用漂浮箱法和扩散模型法同时观测其中 CH₄ 和 N₂O 的排放通量，结果表明在两个区域中，两种方法的结果差异显著，其中 CH₄ 的排放通量都是漂浮箱法的排放通量大于扩散模型法，并且在生活污水区，二者之间相差 2 倍以上，在生活污水区 3 个峰值(7 月、9 月、1 月)出现的时间一致。在自然景观区排放峰值都出现在 7 月份。其中 N₂O 的排放通量都是漂浮箱法大于扩散模型法，生活污水区漂浮箱法和扩散模型法的排放峰值都出现在 9 月，自然景观区都出现在 7 月。但是两种观测方法对 CH₄ 和 N₂O 排放的峰值及趋势均一致，且漂浮箱法和扩散模型法的线性关系均呈显著相关性。因此，虽然漂浮箱法和扩散模型法观测结果相差明显，但 CH₄ 和 N₂O 排放趋势具有一致性。本研究后面章节(第四章)开始的小型湖泊排放通量和影响因素的研究采用漂浮箱法观测的结果。

第四章 小型湖泊 CH₄、N₂O 浓度的时间变化特征与区域比较

4.1 小型湖泊采样点气象因子和水质因子的时间变化

4.1.1 气象因子

本研究测定了小型湖泊的气象参数有水温、气温、10 m 高处的风速的时间变化。如图 4-1 所示。

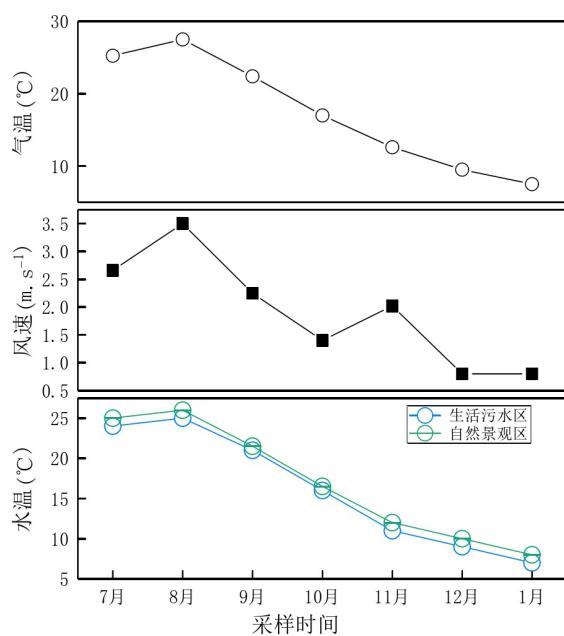


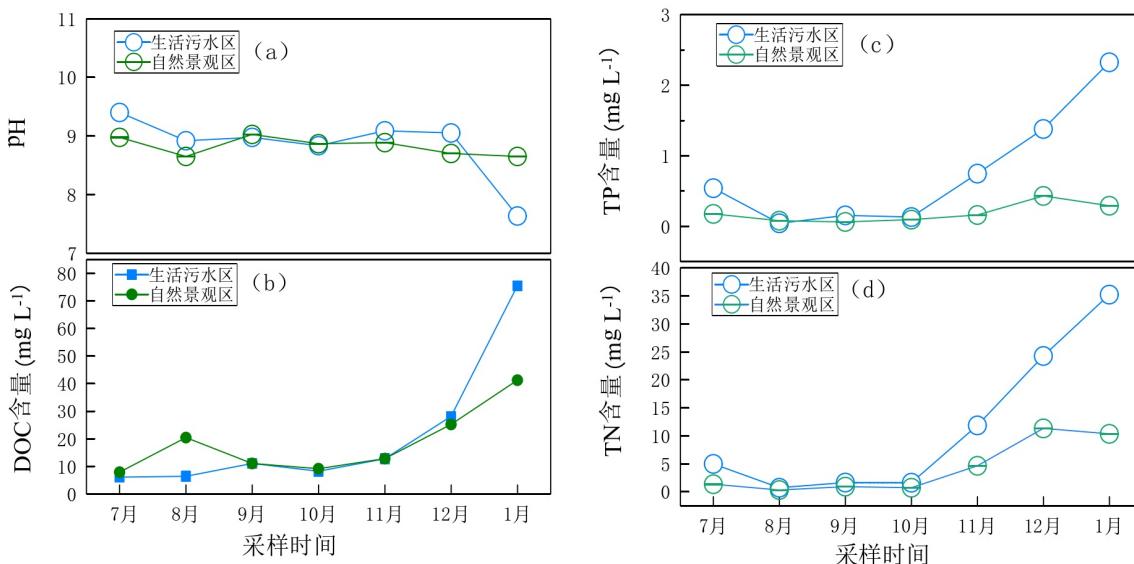
图 4-1 小型湖泊气象因素的时间的变化

Figure 4-1 Temporal variation of meteorological factors at a small lake sampling site

本研究因两个区域距离相近，气温和风速采用统一数据。从图 4-1 可以看出小型湖泊的水温呈现较强的时间变化，和气温的趋势很接近，比气温稍低。整个研究期间，气温变化在 8℃~28℃之间，20 年 12 月~21 年 1 月期间最低，20 年 7 月~8 月气温最高，最低月均气温出现在 21 年 1 月。另外，从图中可看出自然景观区的水温比生活污水区高，那是因为自然景观区的湖泊遮蔽物较少，可被阳光照射的面积较多。10 m 高处风速整体上表现为夏季(7、8 月)偏高，冬季(12、1 月)低。风速月均范围在 0.8~3.5 m s⁻¹。

4.1.2 环境参数

水体中的 DOC、 NH_4^+ -N、 NO_3^- -N、TN、TP 和 DO 浓度是影响温室气体产生的主要因子。小型湖泊中各水质因子具有显著时间变化特征(图 4-2)。DO 含量是随着时间变化越来越高，在冬季(1月)达到最高，月均值达到 9.11 mg L^{-1} 最低值出现在夏季(7月)。自然景观区高于生活污水区。 NO_3^- -N 和 NH_4^+ -N 含量的时间变化特征不明显， NO_3^- -N 在 9月份开始上升， NH_4^+ -N 在 11、12 月份呈上升趋势，7月-10月时间变化趋势不显著，生活污水区的 NO_3^- -N、 NH_4^+ -N 高于自然景观区。TP 时间变化趋势接近，都是从 10 月开始突然含量增多，生活污水区高于自然景观区。从图中可看出小型湖泊中的 DOC 含量范围在 $6.1\sim75.46 \text{ mg L}^{-1}$ 之间，冬季(1月)含量最高，月均值最高达 75.47 mg L^{-1} ，其它月份之间差异不显著。在夏季(7-8月)、秋季(10-11月)两个区域含量较低，冬季(12-1月)生活污水区高于自然景观区。pH 一直平稳，在 7-8 月份之间，自然景观区的 pH 稍高于生活污水区。



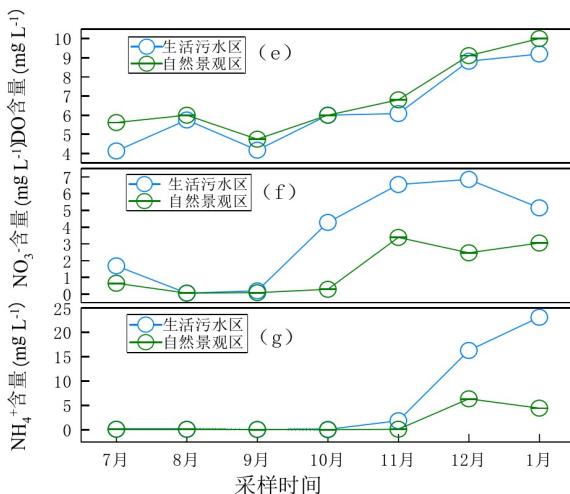


图 4-2 小型湖泊采样点水环境参数的时间变化

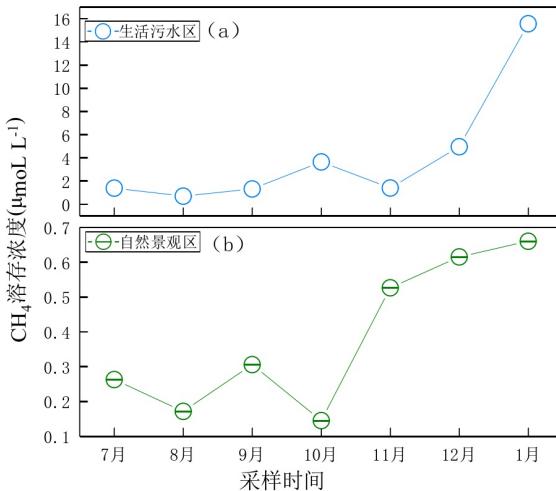
Figure 4-2 Time change of water environment parameters at sampling points of small lakes

水质因子的时间变化特征与生态系统有着密切的联系，在夏季(7-9 月)，温度高，O₂在水中的溶解度较低，DO 的含量较低。在低温时，微生物活性较弱，对水体的 O₂ 消耗少，并且水中溶解度高，因此 DO 在 12、1 月较高。夏季水中微生物增多，NH₄⁺-N、NO₃⁻-N 会被大量的消耗，秋冬(12-1 月)季节，温度下降，NO₃⁻-N、NH₄⁺-N 又会再次积累。在 12、1 月的时间段，有生活污水排放到小型湖泊中，因此水中的 DOC、TP、TN 含量急剧上升。

4.2 小型湖泊 CH₄ 浓度的时间变化和区域比较

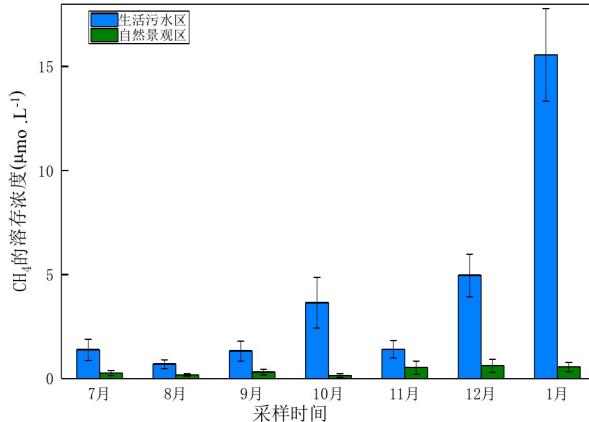
4.2.1 小型湖泊 CH₄ 浓度的时间变化

图 4-3 是小型湖泊的时间变化特征。从图中可知：生活污水区 CH₄ 溶存浓度范围在 0.698~15.56 μmoL L⁻¹ 之间。从 11 月份浓度开始上升，峰值出现在 1 月份，最小值在 8 月份。自然景观区 CH₄ 溶存浓度范围在 0.17~0.62 μmoL m⁻² h⁻¹ 之间，极大值在 1 月份，极小值在 10 月份。整体上来看，小型湖泊的冬季 CH₄ 溶存浓度最高。

图 4-3 小型湖泊 CH₄ 溶存浓度的时间变化Figure 4-3 Temporal variation of CH₄ dissolved concentration in small lakes

4.2.2 小型湖泊 CH₄ 溶存浓度不同区域比较

图 4-4 是小型湖泊不同的区域的 CH₄ 溶存浓度月均排放量的相比较结果。

图 4-4 小型湖泊不同区域 CH₄ 溶存浓度比较Figure 4-4 Comparison of CH₄ dissolved concentrations in different regions of small lakes

图中显示：生活污水区的 CH₄ 溶存浓度显著高于自然景观区。生活污水区的 CH₄ 月均溶存浓度分别为：1.388 μmoL L⁻¹、0.698 μmoL L⁻¹、1.322 μmoL L⁻¹、3.645 μmoL L⁻¹、1.404 μmoL L⁻¹、4.96 μmoL L⁻¹、15.56 μmoL L⁻¹。自然景观区 CH₄ 月均溶存浓度分别为：0.263 μmoL L⁻¹、0.172 μmoL L⁻¹、0.306 μmoL L⁻¹、0.145 μmoL L⁻¹、0.526 μmoL L⁻¹、0.615 μmoL L⁻¹、0.66 μmoL L⁻¹。生活污水区 CH₄ 溶存浓度是自然景观区的 4.3 倍以上。

4.3 小型湖泊 N₂O 浓度的时间变化和区域比较

4.3.1 小型湖泊 N₂O 浓度的时间变化

小型湖泊 N₂O 的时间变化特征如图 4-5 所示。从图中得知，小型湖泊的 N₂O 溶存浓度具有明显的时间变化特征。生活污水区的 N₂O 溶存浓度范围在 0.011~0.273 μmol L⁻¹ 之间，最大值出现在 10 月份，最小值在 1 月份。自然景观区的 N₂O 溶存浓度范围在 0.049~0.064 μmol L⁻¹ 范围之间。最大值出现在 7 月份，最小值在 1 月份。整体来看：小型湖泊的 N₂O 溶存浓度冬季最低。

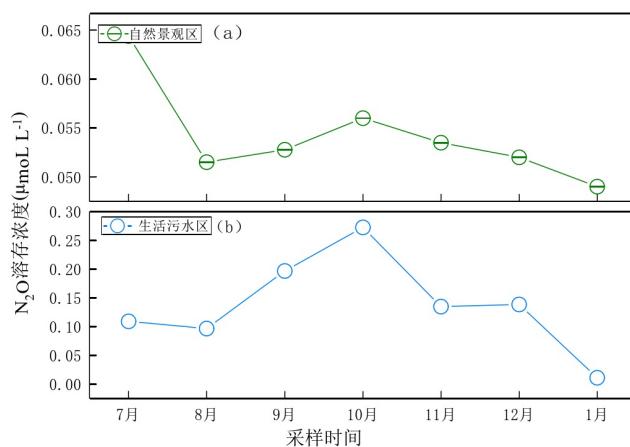


图 4-5 小型湖泊 N₂O 溶存浓度的时间变化

Figure 4-5 Temporal variation of N₂O dissolved concentration in small lakes

4.3.2 小型湖泊 N₂O 溶存浓度不同区域比较

图 4-6 呈现出两个不同区域 N₂O 溶存浓度的比较结果。

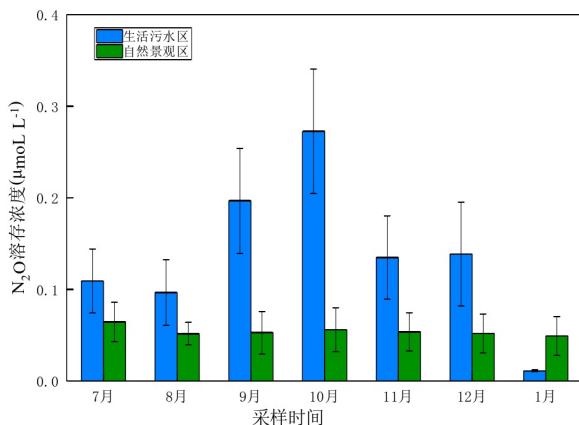
图 4-6 小型湖泊不同区域 N₂O 溶存浓度比较

Figure 4-6 Comparison of N₂O dissolved concentrations in different regions of small lakes

从图中可知：生活污水区的 N₂O 溶存浓度在 1 月份低于自然景观区，其他月份均高于自然景观区。生活污水区 N₂O 月均溶存浓度为 0.109 μmol L⁻¹、0.097 μmol L⁻¹、0.197 μmol L⁻¹、0.273 μmol L⁻¹、0.135 μmol L⁻¹、0.139 μmol L⁻¹、0.011 μmol L⁻¹。自然景观区月均溶存浓度分别为：0.064 μmol L⁻¹、0.0528 μmol L⁻¹、0.054 μmol L⁻¹、0.056 μmol L⁻¹、0.052 μmol L⁻¹、0.049 μmol L⁻¹。生活污水区 N₂O 溶存浓度高于自然景观区 1.7 倍以上。

4.4 小型湖泊 CH₄ 和 N₂O 溶存浓度和排放通量的时间变化

4.4.1 小型湖泊 CH₄ 溶存浓度和排放通量的时间变化

小型湖泊 CH₄ 浓度时间变化特征明显，图 4-4 所示：CH₄ 的溶存浓度在冬季(1 月份)最高，这与大部分的研究结果不同，但本研究冬季 CH₄ 溶存浓度高与相应区域的 DOC、TN、TP、NH₄⁺-N、NO₃⁻+NO₂⁻-N 时间变化趋势相同，说明 CH₄ 溶存浓度在冬季高是受水体中溶解有机碳等水质因素的影响。水体中 CH₄ 浓度与 NH₄⁺-N 呈正相关性(图 4-7)，是因为高的 NH₄⁺-N 会抑制甲烷氧化酶的有效性，减少水中 CH₄ 被氧化的量^[104]。自然景观区 10 月份 CH₄ 溶存浓度最低，因为其相应区域的 DOC、DN、DP、NH₄⁺-N、NO₃⁻+NO₂⁻-N 均是相应最低，与水质因素相关性较强。研究表明 DOC、NH₄⁺-N、NO₃⁻+NO₂⁻-N 对 CH₄ 浓度产生了影响^[105]。

小型湖泊水-气界面的 CH₄ 排放通量的时间变化特征较为明显，随着时间变化，排放通量也随之变化，在生活污水区甲烷的排放量在冬季最高，这与 CH₄ 溶存浓度的趋势一致，说明小型湖泊水-气界面的 CH₄ 排放量是受水体 CH₄ 溶存浓度影响，并且生活污水区的水质因子在冬季均严重高于其他月份，这是冬季 CH₄ 排放通量高的原因。也间接说明水质因素对生活污水区 CH₄ 排放量的影响大于温度对其影响。生活污水区 9 月份 CH₄ 排放通量也出现了峰值，这是因为在 9 月份受个别异常值(溶存浓度 9 月份也高)的影响。自然景观区 7 月份 CH₄ 排放通量最高，这与温度有关，表 5-1 中分析得出 CH₄ 的排放通量与温度呈正相关，1 月份 CH₄ 溶存浓度很高，排放通量却只出现小峰值，是因为这片区域的水体会被附近的山上雨水冲刷，底泥中有机碳等影响因子会被冲淡，因此出现水中 CH₄ 溶存浓度高，排放量却没有猛增的原因。也是生活污水区 CH₄ 排放通量高于自然景观区的原因。

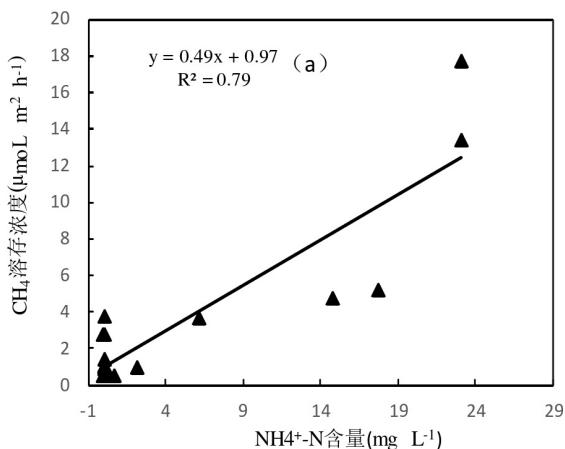


图 4-7 NH₄⁺-N 含量与 CH₄ 溶存浓度的相关性

Figure 4-7 Correlation between NH₄⁺-N content and CH₄ concentration

4.4.2 小型湖泊 N₂O 溶存浓度和排放通量的时间变化

小型湖泊 N₂O 溶存浓度的整体上呈现夏天高(7 月)，冬天低(1 月)的趋势，这说明 N₂O 的溶存浓度与水温和气温有关，因为高温会刺激微生物的活性，从而导致 N₂O 浓度上升^[108]。但是温度对 N₂O 浓度的影响不是绝对的，也有研究者发现水体的 N₂O 浓度与水温是负相关，那可能是因为 N₂O 还原酶在高温时活性强，将大量的 N₂O 转化为其他形式，在低温时，酶活性就会受到抑制，

导致 N_2O 累积^[109]。生活污水区 10 月份是 N_2O 溶存浓度最高的月份，是因为个别异常值影响，并且在十月份，对应区域的 $NO_3^-+NO_2^-N$ 含量也是增长趋势，说明可能受 $NO_3^-+NO_2^-N$ 的影响， $NO_3^-+NO_2^-N$ 对水体 N_2O 浓度促进作用可以解释为：它是反硝化作用的反应基质，可以直接抑制 N_2O 还原酶活性，导致 N_2O 大量累积^[110]。

小型湖泊 N_2O 排放通量随时间变化呈现夏季高于秋冬季节，但是在观测期间， N_2O 的排放通量小且秋冬季节变化幅度也明显。因此水温对 N_2O 的排放通量是不可忽视的。表 5-1 也分析得出 N_2O 排放通量与水温呈正相关关系。生活污水区在 9 月份 N_2O 排放通量最高，这与 CH_4 排放的趋势一样，说明是受水质因子的影响。自然景观区 N_2O 排放通量呈现出夏>秋>冬季，这个结果与很多研究结果相似。例如，鱼塘养殖水体也是秋季之后 N_2O 的排放量持续减少，冬季排放量最低^[92]。

4.5 本章小结

小型湖泊的气象因子和水质因子具有明显的时间变化特征。气温、水温随时间的变化而降低，风速的变化特征不大。 DO 的含量是随时间的变化增多，表现为夏天低秋冬季节高的特征， NH_4^+-N 、 NO_3^-N 、 TN 、 TP 、 DOC 几个水质因子在夏季变化较小，10 月含量开始增多，在冬季达到最高值。并且生活污水区的水质因子变化幅度大多数高于自然景观区，说明了生活污水区的有机碳的含量高。也是后面章节(5.1.1)生活污水区的温室气体排放量高于自然景观区的原因。

小型湖泊的 CH_4 溶存浓度具有显著的时间变化特征，整体为冬季的 CH_4 溶存浓度最高，也与上面分析的水质因子含量冬季高对应，也是冬季 CH_4 溶存浓度高的原因之一。小型湖泊的 N_2O 溶存浓度在冬季含量最低，这与气温、水温的时间变化趋势一致，说明小型湖泊的 N_2O 溶存浓度受水温、气温的影响较大。小型湖泊的生活污水区的 CH_4 、 N_2O 溶存浓度均高于自然景观区。

第五章 小型湖泊 CH₄、N₂O 排放通量时间变化特征和影响因素

5.1 小型湖泊 CH₄ 排放通量时间变化与区域比较

5.1.1 小型湖泊水-气界面 CH₄ 排放通量时间变化

小型湖泊的水-气界面 CH₄ 排放通量的时间变化特征如图 5-1 所示。

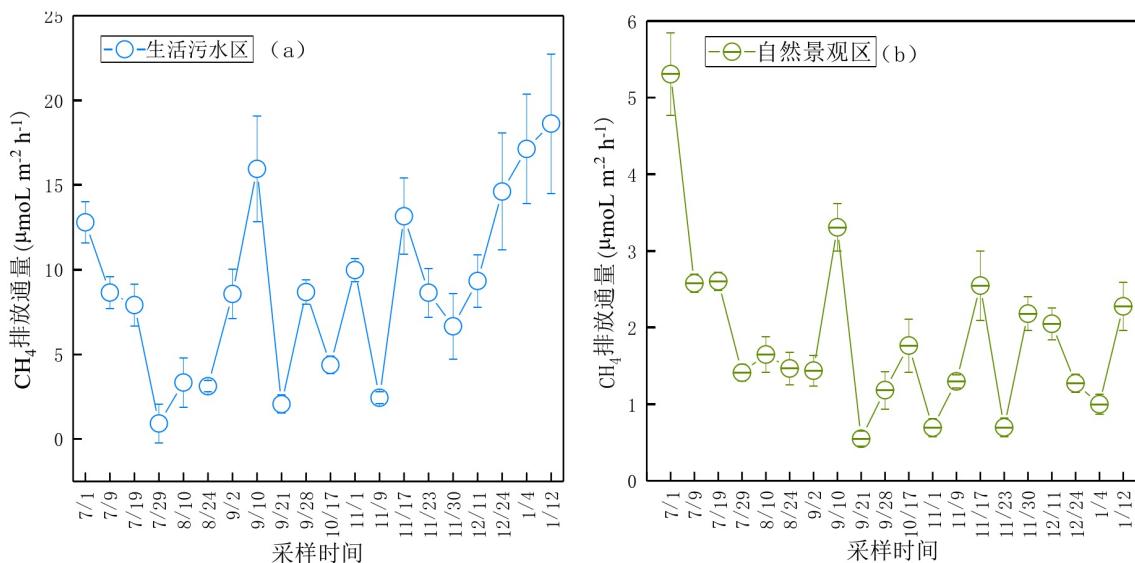


图 5-1 生活污水区自然景观区 CH₄ 排放通量的时间变化

Figure 5-1 Temporal variation of CH₄ emission flux in natural landscape area of domestic sewage area

小型湖泊水-气界面 CH₄ 排放通量的观测时间为从 2020 年 7 月 1 日到 2021 年 1 月 12 日，从 7 个月的观测结果可以发现小型湖泊水-气界面 CH₄ 排放量均为正值，表明小型湖泊是向大气排放 CH₄ 的源，在观测期间生活污水区 CH₄ 的排放通量范围在 $2.44 \pm 1.24 \mu\text{mol m}^{-2} \text{h}^{-1}$ ~ $18.6 \pm 4.73 \mu\text{mol m}^{-2} \text{h}^{-1}$ 之间，自然景观区在 $0.25 \pm 0.11 \mu\text{mol m}^{-2} \text{h}^{-1}$ ~ $5.31 \pm 2.13 \mu\text{mol m}^{-2} \text{h}^{-1}$ 之间。生活污水区极大值出现在 1 月份，极小值出现在 8 月份(9 月份应异常值而升高)，自然景观区极大值处在 7 月，极小值在 11 月。从图中可知小型湖泊 CH₄ 排放量与水体污染有关，自然景观湖泊也是 CH₄ 的排放源，自然景观区呈夏季高于秋冬季的 CH₄ 排放趋势，生活污水区呈现出冬季高于夏秋季的排放趋势。

5.1.2 小型湖泊水-气界面 CH_4 排放通量区域比较

从图 5-2 可以看出，生活污水区的 CH_4 排放量月均排放量都是高于自然景观区。

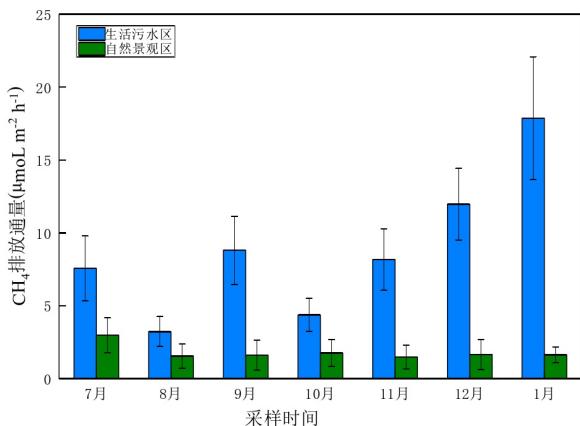


图 5-2 小型湖泊不同区域的 CH_4 排放量比较

Figure 5-2 Comparison of CH_4 emissions in different regions of small lakes

生活污水区月均排放通量分别为 $7.56 \mu\text{mol m}^{-2} \text{h}^{-1}$ 、 $3.22 \mu\text{mol m}^{-2} \text{h}^{-1}$ 、 $8.81 \mu\text{mol m}^{-2} \text{h}^{-1}$ 、 $4.37 \mu\text{mol m}^{-2} \text{h}^{-1}$ 、 $8.17 \mu\text{mol m}^{-2} \text{h}^{-1}$ 、 $11.97 \mu\text{mol m}^{-2} \text{h}^{-1}$ 、 $17.87 \mu\text{mol m}^{-2} \text{h}^{-1}$ ，自然景观区月均排放通量分别为 $2.97 \mu\text{mol m}^{-2} \text{h}^{-1}$ 、 $1.55 \mu\text{mol m}^{-2} \text{h}^{-1}$ 、 $1.62 \mu\text{mol m}^{-2} \text{h}^{-1}$ 、 $1.76 \mu\text{mol m}^{-2} \text{h}^{-1}$ 、 $1.48 \mu\text{mol m}^{-2} \text{h}^{-1}$ 、 $1.66 \mu\text{mol m}^{-2} \text{h}^{-1}$ 、 $1.64 \mu\text{mol m}^{-2} \text{h}^{-1}$ 。生活污水区的 CH_4 排放量是自然景观区的 2 倍以上。在 20 年 12~21 年 1 月期间，生活污水区 CH_4 的排放量猛增，自然景观区较 20 年 11 月呈现上升趋势，但不显著。综合看来，生活污水区 CH_4 排放量是显著大于自然景观区的排放量。

5.2 小型湖泊 N_2O 排放通量的时间变化与区域比较

5.2.1 小型湖泊 N_2O 排放通量的时间变化

小型湖泊的 N_2O 水-气界面的排放通量时间变化特征如图 5-3 所示。

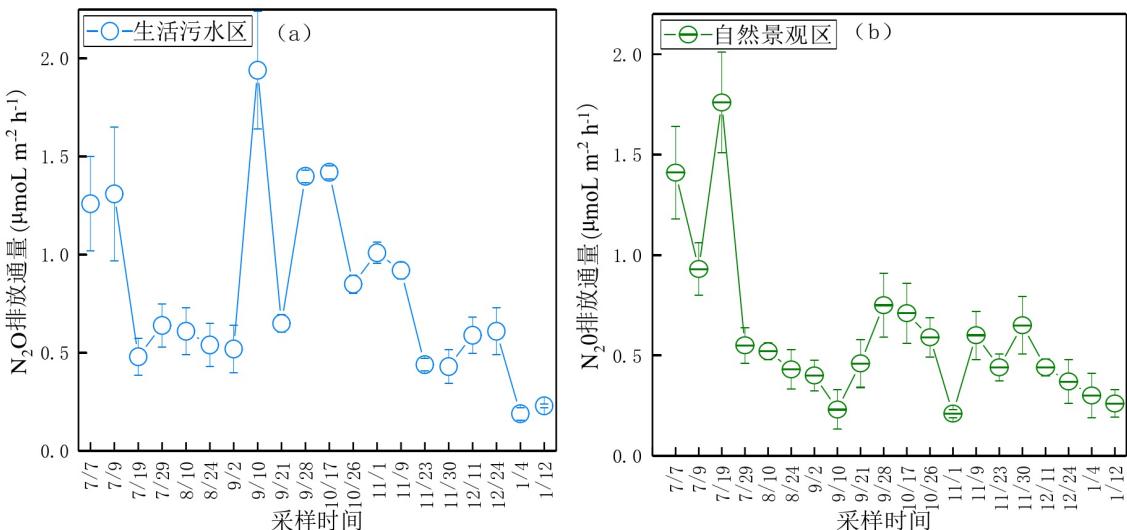
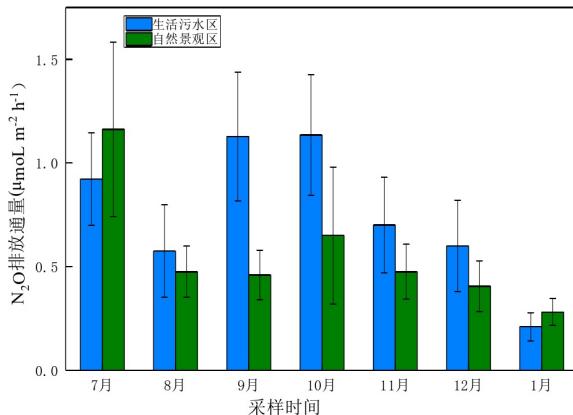
图 5-3 生活污水区自然景观区 N₂O 排放量的时间变化

Figure 5-3 Temporal variation of N₂O emission in natural landscape area of domestic sewage area

从观测结果来看小型湖泊的水-气界面 N₂O 排放通量都是正值，但两个区域的 N₂O 的排放通量值都偏小。生活污水区的 N₂O 排放通量范围在 $0.19 \pm 0.03 \sim 0.31 \pm 0.12 \mu\text{mol m}^{-2} \text{ h}^{-1}$ 之间。极大值值出现在 9 月，极小值出现在 1 月份。如图 5-3 所示，自然景观区的 N₂O 的排放通量范围在 $0.26 \pm 0.07 \sim 1.41 \pm 0.63 \mu\text{mol m}^{-2} \text{ h}^{-1}$ 之间，时间变化趋势和生活污水区相似。极大值值出现在 20 年 7 月份，极小值出现在 21 年 1 月份，这与 N₂O 溶存浓度的变化趋势一致。整体而言，小型湖泊的 N₂O 排放通量的时间变化特征显著，随着时间的变化，N₂O 的排放通量逐渐减少。

5.2.2 小型湖泊水-气界面 N₂O 排放通量不同区域比较

图 5-4 是小型湖泊不同区域的 N₂O 月平均排放量的相比较结果。如图所示，在 7 月份和 1 月份自然景观区的 N₂O 排放量稍高于生活污水区，其余月份生活污水区均高于自然景观区，生活污水区月平均排放通量分别为 $0.92 \mu\text{mol m}^{-2} \text{ h}^{-1}$ 、 $0.58 \mu\text{mol m}^{-2} \text{ h}^{-1}$ 、 $1.13 \mu\text{mol m}^{-2} \text{ h}^{-1}$ 、 $0.7 \mu\text{mol m}^{-2} \text{ h}^{-1}$ 、 $0.6 \mu\text{mol m}^{-2} \text{ h}^{-1}$ 、 $0.21 \mu\text{mol m}^{-2} \text{ h}^{-1}$ 。自然景观区月平均排放通量分别为 $1.16 \mu\text{mol m}^{-2} \text{ h}^{-1}$ 、 $0.48 \mu\text{mol m}^{-2} \text{ h}^{-1}$ 、 $0.46 \mu\text{mol m}^{-2} \text{ h}^{-1}$ 、 $0.65 \mu\text{mol m}^{-2} \text{ h}^{-1}$ 、 $0.48 \mu\text{mol m}^{-2} \text{ h}^{-1}$ 、 $0.41 \mu\text{mol m}^{-2} \text{ h}^{-1}$ 、 $0.28 \mu\text{mol m}^{-2} \text{ h}^{-1}$ 。整体看来，生活污水区 N₂O 排放通量更高。

图 5-4 小型湖泊不同区域的 N₂O 排放量比较Figure 5-4 Comparison of N₂O emissions in different regions of small lakes

5.3 小型湖泊 CH₄ 和 N₂O 排放通量的影响因素

5.3.1 小型湖泊 CH₄ 和 N₂O 排放通量与气象因素的关系

小型湖泊的 CH₄ 和 N₂O 的排放通量与气象因素的相关性如表 5-1 所示。

小型湖泊的 CH₄ 和 N₂O 通量是在通过每次的采样分析获取，气象数据通过小气候系统仪获取。表 5-1 分析表明，小型湖泊的 CH₄ 和 N₂O 排放通量与水温、气温、都呈显著的相关性，并且呈正相关，CH₄ 和 N₂O 与风速的相关性不显著。生活污水区的 CH₄ 和 N₂O 排放通量与气象因素之间的相关性都稍高于自然景观区的 CH₄ 和 N₂O 排放通量。

表 5-1 小型湖泊水-气界面排放 CH₄ 和 N₂O 通量与气象因素的相关性Table 5-1 The correlation between CH₄ and N₂O emission fluxes at water air interface and meteorological factors in small lakes

	区域	气温 (°C)	水温 (°C)	风速 (m s⁻¹)
CH ₄ (μmol m⁻² h⁻¹)	W	0.472**	0.410**	0.156
	Z	0.247**	0.269**	0.138
N ₂ O(μmol m⁻² h⁻¹)	W	0.316**	0.295**	0.173
	Z	0.264**	0.259**	0.162

注：W 表示生活污水区，Z 表示自然景观区 **表示在 0.01 水平上显著相关

5.3.2 小型湖泊水-气界面 CH₄ 和 N₂O 排放通量与水质因子的关系

小型湖泊水-气界面 CH₄ 和 N₂O 通量与水质因子相关性如表 5-2 所示。从表中分析结果可知：CH₄ 排放通量与 DO 呈显著的负相关关系，并且生活污水区的 CH₄ 排放通量与 DO 的相关性更为显著。生活污水区的 DOC 与 CH₄ 排放通量呈显著正相关，自然景观区无显著相关性。CH₄ 排放量与 NO₃⁻-N 呈负相关关系，生活污水区 CH₄ 排放量与 NH₄⁺-N、TN、TP 呈显著的正相关关系，自然景观区 CH₄ 排放量与 NH₄⁺-N、TN 无明显相关性，但与 TP 呈现显著相关。生活污水区的 CH₄ 排放量受水质因子的影响更大，相关性更强。这可能也是生活污水区 CH₄ 排放通量比自然景观区排放通量更高的原因。

表 5-2 小型湖泊水-气界面 CH₄ 和 N₂O 排放通量与水质因素的相关性

Table 5-2 The Correlation between CH₄ and N₂O emission fluxes at water air interface and water quality factors in small lakes

		DO (mg L ⁻¹)	DOC (mg L ⁻¹)	NO ₃ ⁻ +NO ₂ ⁻ -N (mg L ⁻¹)	NH ₄ ⁺ -N (mg L ⁻¹)	TN (mg L ⁻¹)	TP (mg L ⁻¹)
CH ₄ 通量 (μmoL m ⁻² h ⁻¹)	W	-0.673**	0.914**	-2.05	0.843**	0.809**	0.713**
	Z	-0.425*	-2.35	-0.122	0.366	0.286	0.398*
N ₂ O 通量 (μmoL m ⁻² h ⁻¹)	W	-0.398 *	0.24	0.151	0.443*	0.331	0.349
	Z	-4.72*	-0.387	2.99	0.859**	-3.83*	0.458*

注：**表示在 0.01 水平上显著相关，*表示在 0.05 水平上显著相关，W 表示生活污水区，Z 表示自然景观区

小型湖泊 N₂O 的排放通量与 DO 呈显著的负相关关系，与 NH₄⁺-N 呈正相关关系，自然景观区 N₂O 的排放通量与 NH₄⁺-N 含量呈现显著相关性，线性关系如图 5-5 所示，可表示为：y=2.04x+0.21(R²=0.74)，并且自然景观区 N₂O 的

排放通量与 TP 也呈显著相关性。DOC 与 N₂O 的排放量相关性不强。说明 DOC 对于小型湖泊 N₂O 的排放量没有显著影响力。

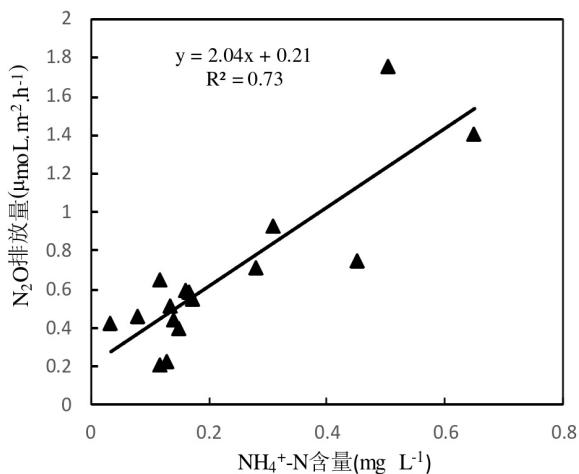


图 5-5 自然景观区 N₂O 排放量与 NH₄⁺-N 含量之间的相关性

Figure 5-5 Correlation between N₂O emission and NH₄⁺-N content in lightly polluted area

5.4 小型湖泊 CH₄ 和 N₂O 通量影响因素分析

5.4.1 小型湖泊 CH₄ 通量影响因素分析

小型湖泊 CH₄ 水-气界面排放通量受气象因素和水质因素影响。表 5-1 显示小型湖泊 CH₄ 排放通量与水温呈正相关关系，这表明水温是影响小型湖泊 CH₄ 排放通量的影响因素，水温升高会提高微生物活性，会在一定程度上促进甲烷排放。与前人研究结果一致^[111]。温度不仅会影响 CH₄ 的产生，还会影响水中溶解氧浓度^[113]。一般认为，高浓度溶解氧能够促进 CH₄ 氧化，减少 CH₄ 排放，低浓度会促进 CH₄ 排放^[116]。本研究的小型湖泊 CH₄ 水-气界面排放量与 DO 呈显著的负相关关系，和其研究结果一致。水体中 CH₄ 通量由水生系统中的 CH₄ 氧化和产生由两个过程决定，一方面产甲烷菌是厌氧细菌，只有在缺氧和低氧情况下才会产生 CH₄，另一方面水体中 DO 浓度高时对 CH₄ 进行大量氧化，会降低水中的 CH₄ 浓度，因此水体中 CH₄ 水-气界面通量均与 DO 呈负相关。

大多数研究结果表明可溶性有机碳(DOC)为产甲烷提供基质，会促进甲烷产生^[117]，本研究的生活污水区也是与 DOC 呈显著的正相关关系。但在自然景

观区 DOC 与 CH₄ 的排放通量没有显著的相关性，这可能因为这个区域会定期有鱼食投入，而没有被鱼类食用的饲料会沉降到底泥中，使底泥的环境更加厌氧，有利于产甲烷菌的产生^[119]，使得水中的 DOC 含量远高于产甲烷菌所消耗的量，所以自然景观区 CH₄ 排放通量对 DOC 含量没有显著相关性。

水体中较高的营养盐浓度有利于 CH₄ 产生和排放^[120]，本研究中 NH₄⁺-N、TN、TP 的含量是与水-气界面 CH₄ 排放通量呈正相关关系。说明 NH₄⁺-N、TN、TP 是影响小型湖泊 CH₄ 排放量的影响因子。对芬兰水库的研究发现，水中高浓度的营养盐也是引起水库 CH₄ 排放量高的主要原因，并且 NH₄⁺-N、TN、TP 含量也是与 CH₄ 排放通量呈正相关关系^[121]。

5.4.2 小型湖泊 N₂O 通量影响因素分析

影响水体 N₂O 排放的因素有很多，从表 5-1 和 5-2 可以看出：对小型湖泊 N₂O 排放通量的影响因素主要有水温、气温、溶解氧(DO)、铵态氮(NH₄⁺-N)、硝态氮(NO₃⁻-N)等因子。

一般认为，随着水温的增加，水体沉积物中微生物的活性因为硝化作用和反硝化作用而增强，导致水-气界面 N₂O 的排放增多^[122]，本研究结果证实了这个结论。但也有研究表明：较高的水温会导致水体缺氧，硝化作用受到抑制，从而导致 N₂O 的产生和排放^[123]。气温会通过间接影响水温导致温室气体的排放具有时间变化特征，对英国 5 个不同湖泊的研究发现，各个湖泊的水-气界面 N₂O 排放通量峰值均出现在气温较高的 5-10 月份，本研究的小型湖泊的 N₂O 排放峰值是在 7-10 月之间。但是不同的水体环境，气温与 N₂O 排放通量的相关性会有所不同^[124]。

N₂O 产生和排放与水体中的 DO 含量变化有密切联系，水体中 DO 主要影响硝化、反硝化等 N₂O 产生过程，从而影响 N₂O 的排放^[120]。N₂O 还原酶对 DO 含量很敏感，少量的 DO 就可以抑制 N₂O 的还原，所以当 DO 的含量较低时也能产生较高的 N₂O^[127]。本研究中水-气界面 N₂O 排放通量与 DO 含量呈显著的负相关关系。这个结果与许多研究结果相似^{[127][132]}，说明 DO 是小型湖泊 N₂O 排放的重要影响因子。Rosamod^{[129][131]}等提出在未来的研究中应将水

体 DO 含量纳入 N_2O 排放预测模型中。

本文中小型湖泊的 N_2O 排放量与 NH_4^+-N 呈显著的正相关关系。谭永洁(2016)^[6]也发现上海河流水-气界面的 N_2O 排放量与 NH_4^+-N 呈正相关关系。对养殖水体的 N_2O 扩散通量研究中发现与 NH_4^+-N 含量呈显著的正相关^{[120][129]}, 其原因可能是在水体硝化过程中, 水中较高 NO_3^-N 会使硝化产物浓度上升, 导致硝化过程的中间产物转化受限, 从而氧化为 N_2O , 使 N_2O 增加。Liu (2011) ^[130]等比较了在高温和低温季节河流 N_2O 排放通量与 NH_4^+-N 关系, 结果表明在低温和高温的情况下, N_2O 排放量都与 NH_4^+-N 呈正相关关系。

5.5 本章小结

(1) 小型湖泊的 CH_4 是向大气排放 CH_4 的源, 具有明显的时间变化特征。生活污水区因冬季(12-1月)各种有机碳含量过高, 导致冬季 CH_4 排放量高于夏秋季节, 表现出秋季高, 夏秋季低的现象。自然景观区 CH_4 排放量表现为夏季高于秋冬季。

(2) 小型湖泊的两个研究区域中, 生活污水区的 CH_4 月均排放量都高于自然景观区, 生活污水区的 CH_4 排放量是自然景观区的 2 倍以上。

(3) 小型湖泊的 N_2O 是向大气排放 N_2O 的弱源, 具有明显的时间变化特征, 两个区域都呈现出夏季高, 秋冬季节低的现象。

(4) 小型湖泊的两个研究区域中, 在 7 月份和 1 月份自然景观区的 N_2O 排放量稍高于生活污水区 N_2O 排放量, 其余月份都是生活污水区 N_2O 排放量高于自然景观区 N_2O 排放量, 整体上, 生活污水区的 N_2O 排放量高于自然景观区的 N_2O 排放量。

(5) 小型湖泊 CH_4 排放通量受水温、气温、DO、DOC、 NO_3^-N 、 NH_4^+-N 等因素影响较大, 与 DO 均呈现出显著的负相关关系, 与水温、气温具有显著的正相关关系。生活污水区的 CH_4 排放量受 DOC 的影响最大。与 $NO_3^-+NO_2$ 、 NH_4^+-N 、TP、TN 都有显著的相关性。自然景观区的 CH_4 排放通量与 TP 的相关性较大, 与 DOC、 NO_3^-N 、 NH_4^+-N 的相关性不大。

(6) 小型湖泊 N_2O 排放通量与 DO 和 NH_4^+-N 的相关性较强, 没有发现与 DOC

有明显的相关性，自然景观区 N₂O 排放通量与 TP 的相关性较为显著。

第六章 结论与展望

6.1 结论

6.1.1 漂浮箱法与扩散模型法对 **CH₄** 和 **N₂O** 的排放通量的结果比较

对两个不同类型的小型湖泊采用漂浮箱法和扩散模型法同时观测其中 **CH₄** 和 **N₂O** 的排放通量对比结果显示：两个湖泊中，漂浮箱法测定的 **CH₄** 排放通量均高于扩散模型法。在生活污水区，二者的排放通量差值在 2 倍以上，**N₂O** 和 **CH₄** 的排放通量研究结果均是漂浮箱法的排放量高于扩散模型法，但是两者观测到的排放通量变化趋势、排放峰值一致，说明两种方法虽然观测的结果相差较大，但在反映 **CH₄**、**N₂O** 排放规律上具有一致性。

6.1.2 小型湖泊 **CH₄** 和 **N₂O** 的水-气界面的排放通量时间变化特征

结果表明小型湖泊是大气 **CH₄** 的源，生活污水区排放范围 $2.44\pm1.24 \mu\text{moL m}^{-2} \text{ h}^{-1}$ ~ $18.6\pm4.73 \mu\text{moL m}^{-2} \text{ h}^{-1}$ 之间，自然景观区在 $0.25\pm0.11 \mu\text{moL m}^{-2} \text{ h}^{-1}$ ~ $5.31\pm2.13 \mu\text{moL m}^{-2} \text{ h}^{-1}$ 之间。生活污水区冬季排放量高于夏秋季而自然景观区表现为夏季高于秋冬季。

小型湖泊 **N₂O** 的排放通量较低，其中生活污水区的 **N₂O** 排放通量范围在 $0.19\pm0.03\sim0.31\pm0.12 \mu\text{moL m}^{-2} \text{ h}^{-1}$ 之间，自然景观区的 **N₂O** 的排放通量范围在 $0.26\pm0.07\sim1.41\pm0.63 \mu\text{moL m}^{-2} \text{ h}^{-1}$ 之间。两个区域都呈现出夏季高，秋冬季节低的现象。

6.1.3 小型湖泊 **CH₄** 和 **N₂O** 的水-气界面的排放通量的影响因素

小型湖泊 **CH₄** 排放通量受水温、气温、DO、DOC、NO₃⁻-N、NH₄⁺-N 等因素影响较大，其与 DO 都呈现出显著的负相关关系，与水温、气温具有显著的正相关关系。其中生活污水区的 **CH₄** 排放量受 DOC 的影响最大，自然景观区 **CH₄** 排放量与 TP 的相关性较大。**N₂O** 排放通量则与 DO 和 NH₄⁺-N 的相关性

较强。

6.2 研究创新点

- (1)本实验以小型湖泊为研究对象。
- (2)采用静态箱漂浮法和模型扩散法同步研究校园小型湖泊的温室气体排放通量。
- (3)明确校园的小型湖泊 CH₄ 排放量较高, N₂O 排放通量较弱。研究结果将为评估不同类型湖泊的 N₂O 和 CH₄ 排放通量提供数据支持。

6.3 不足之处与展望

本研究仅仅选取了小型湖泊两种不同类型的水体同步漂浮箱法和扩散模型法来进行观测结果对比, 观测点数量和湖泊类型以及观测方法有限, 可能会给研究结果带来偏差, 未来需涵盖更多的人工湖泊数量和类型, 也可以采用“TDLAS 吸收光谱法”等第三种或更多种方法开展联合对比观测, 以进一步验证方法的准确性, 确保研究结果更为可靠。通过本研究的数据表明, 小型湖泊也是大气 CH₄ 和 N₂O 排放的源, 今后应对小型湖泊温室气体的排放多加关注。

参考文献

- [1]. IPCC. Climate Change 2013: the physical scientific basis. Contribution of working group I to the 5th assessment report of the intergovernmental panel on climate change[M]. Cambridge: Cambridge University Press, 2013.
- [2]. Karlen W. Global temperature forced by solar irradiation and greenhouse gases?[J]. AMBIO: A Journal of the Human Environment, 2001, 30(6): 349-350.
- [3]. IPCC. Coupling Between Changes in the Climate System and Biogeochemistry[J]. IPCC fourth assessment report-climate change 2007: The Physical Science Basis, 2007.
- [4]. 赵小杰, 赵同谦, 郑华, 等. 水库温室气体排放及其影响因素[J]. 环境科学, 2008, 29(8): 2377-2384.
- [5]. 刘德鸿. 太湖多界面 N₂O 排放特征及其影响因素研究[D]. 南京: 南京师范大学, 2019.
- [6]. 谭永洁. 上海市河流沉积物温室气体的排放与产生机制[D]. 上海: 华东师范大学, 2014.
- [7]. 肖启涛. 太湖水-气界面温室气体通量研究[D]. 南京: 南京信息工程大学, 2014.
- [8]. Bernhard Lehner, Petra Doll. Development and validation of a global database of lakes, reservoirs and wetlands[J]. Journal of Hydrology, 2004, 296(1): 321-353.
- [9]. Raymond, P A. et al. Global carbon dioxide emissions from inland waters[J]. Nature 503, 2013(11), 355-359.
- [10]. Kortelainen P. Sediment respiration and lake trophic state are important predictors of large CO₂ evasion from small boreal lakes[J]. Global Change Biology, 2010, 12(2): 1554-1567.
- [11]. Kankaala Paula, Huotari Jussi, Tulonen Tiina. Lake-sizedependent physical forcing drives carbon dioxide and methane effluxes from lakes in a boreal landscape[J]. Limnology and Oceanography, 2013, 58(6): 21-32.
- [12]. David Bastviken, Jonathan Cole, Michael Pace, et al. Methane emissions from lakes: Dependence of lake characteristics, two regional assessments, and a global estimate[J]. Global Biogeochemical Cycles, 2004, 18(4): 32-42.

- [13]. Juutinen, S. et al. Methane dynamics in different boreal lake types[J]. Biogeosciences, 2009, 32(2): 209-223.
- [14]. Holgerson, A. Drivers of carbon dioxide and methane supersaturation in small, temporary ponds[J]. Biogeochemistry, 2015, 124(2): 305-318.
- [15]. 彭俊杰, 李传红, 黄细花. 城市湖泊富营养化成因和特征[J]. 生态科学, 2004, 23 (4) : 370-373.
- [16]. 朱晓燕. 小型人工景观水体生物碳强化水质控制技术及滨水环境对人体舒适度影响研究[D]. 上海: 同济大学, 2008.
- [17]. Borges A, Abril G, Delille B, et al. Diffusive methane emissions to the atmosphere from Lake Kivu[J]. Journal of Geophysical Research: Biogeosciences, 2011, 116(3): 231-245.
- [18]. 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]. Enviroment Science Technology, 2010, 44(14): 5450-5455.
- [19]. 赵炎, 曾源, 吴炳芳. 三峡水库香溪河支流水域温室气体排放通量观测[J]. 水科学进展, 2011, 22(4): 546-553.
- [20]. 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.
- [21]. 张秀芳, 肖薇, 张弥. 小型池塘水-气界面 CH_4 冒泡通量的观测[J]. 环境科学, 2018, 39(2): 691-702.
- [22]. 兰晶. 养殖水体温室气体的溶存与排放及其影响因素研究[D]. 上海: 华中农业大学, 2015.
- [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]. Geophys Res Biogeosci, 2008, 113(2): 3451-3463.
- [24]. Yang J, Liu J, Hu X, et al. Effect of water table level on CO_2 , CH_4 and N_2O emissions in a fresh water marsh of Northeast China[J]. Soil Biology & Biochemistry, 2013, 61(3): 52-60.
- [25]. 李香华. 太湖水-气界面温室气体通量及时空变化特征研究[D]. 南京: 河海大学,

- 2005.
- [26]. 熊正琴, 邢光熹, 沈光裕, 施书莲, 钱薇. 人为活动 N 对太湖地区水体中溶解 N₂O 的影响[J]. 农业环境保护, 2002(05): 389-392.
- [27]. 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.
- [28]. Holgerson, Meredith A, Raymond, et al. Large contribution to inland water CO₂ and CH₄ emissions from very small ponds[J]. Nature geoscience, 2016, 9(3): 222-250.
- [29]. Bange H W, Spyridon R, Meinrat O A. Nitrous oxide emissions from the Arabian Sea[J]. Geophysical Research Letters, 1996, 23(22): 3175-3178.
- [30]. Marani L, Alvala. Methane emissions from lakes and flood plains in Pantanal, Brazil[J]. Atmospheric Environment, 2007, 41(5): 1627-1633.
- [31]. Bastien J, Demary M. Spatio-temporal variation of gross CO₂ and CH₄ diffusive emissions from Australian reservoirs and natural aquatic ecosystem, and estimation of net reservoir emission[J]. Lake & Reservoirs: Research & Management, 2013, 18(2): 115-127.
- [32]. Beaulieu J J, Arango C P, Hamilton S K, et al. The production and emission of nitrous oxide from headwater streams in the Midwestern United States[J]. Global Change Biology, 2008, 14(4): 878-894.
- [33]. Garnier J, Billen G, Cebron A. Modlling nitrogen transformations in the lower Seine river all destuary(France): impact of wastewater release on oxygenation and N₂O emission[J]. Hydrobiologia, 2007, 588(2): 291-302.
- [34]. Huttunen J T, Viiisanen T S, Hellsten S K, et al. Fluxes of CH₄, CO₂, and N₂O in hydroelectric reservoirs Lokka and Porttipahta in the northern boreal zone in Finland[J]. Global Biogeochemical Cycles, 2002, 16(1): 13-17.
- [35]. Mosier A R, Duxbury J M, Freney J R. Mitigation agricultural emissions of methane[J]. Climatic Change, 1998, 40(1): 39-80.
- [36]. 高洁, 郑循华, 王睿等. 漂浮通量箱法和扩散模型法测定内陆水体 CH₄ 和 N₂O 排放通量的初步比较研究[J]. 气候与环境研究, 2014, 19(5): 290-302.
- [37]. 赵佳玉, 肖薇, 张弥, 等. 通量梯度法在温室气体及同位素通量观测研究中的应用与

- 展望[J]. 植物生态学报, 2020, 44(4): 305-317.
- [38]. 杨平, 全川, 何清华等. 闽江口鱼虾混养塘水-气界面温室气体通量及主要影响因子[J]. 环境科学学报, 2013, 33(5): 1493-1503.
- [39]. 孙艺. 全球内陆淡水水体甲烷和氧化亚氮排放的整合分析研究[D]. 南京: 南京农业大学, 2017.
- [40]. Megonigal J P, Hines M E, Visscher P T. Anaerobic metabolism: Linkages to trace gases and aerobic processes[J]. Biogeochemistry, 2003, 43(8): 317-424.
- [41]. Denier H A , Van B N, Neue H U, et al. Release of entrapped methane from wetland ricefields upon soil drying[J]. Global Biogeochemical Cycles, 1996, 10(5): 1-7.
- [42]. 胡正华, 张寒, 陈书涛等. 氮沉降对林带土壤 N_2O 和 CH_4 通量的影响[J]. 中国环境科学, 2011, 31(6): 892-897.
- [43]. Marani L, Alvala. Methane emissions from lakes and floodplains in Pantanal, Brazil[J]. Atmospheric Environment, 2007, 41(4): 1627-1633.
- [44]. Schrier-Uijl A P, Veraart A J, Leffelaar P A, et al. Release of CO_2 and CH_4 from lakes and drainage ditches in temperate wetlands[J]. Biogeochemistry, 2011, 102(13): 265-279.
- [45]. Bridget R D, John A H, Elliott W W. Microbial dinitrogen and nitrous oxide production in a small eutrophic reservoir: An in situ approach to quantifying hypolimnetic process rates[J]. Limnology Oceanography, 2011, 56(4): 1189-1199.
- [46]. Yoshinary T. Nitrous oxide in the sea[J]. Marine Chemistry, 1976, 4(1): 189-202.
- [47]. Silvennoinen H, LiikanenA, Rintala J, et al. Greenhouse gas fluxes from the eutrophic Temmesjoki River and its estuary in the Liminganlahti Bay[J]. Biogeochemistry, 2008, 90(3): 193-208.
- [48]. Castro-Gonzalez M, Farias L. N_2O cycling at the core of the oxygen minimum zone off northern Chile[J]. Marine Ecology Progress Series, 2004, 280(3): 1-11.
- [49]. Allen D E, Dalai R C, Rennenberg H et al. Spatial and temporal variation of nitrous oxide and methane flux between subtropical mangrove sediments and the atmosphere[J]. Soil Biology and Biochemistry, 2007, 39(2): 622-631.
- [50]. 赵炎, 曾源, 吴炳芳. 三峡水库香溪河支流水域温室气体排放通量观测[J]. 水科学进展, 2011, 22(4): 546-553.

- [51]. Duchemin E, Lucotte M, Canuel R. Comparison of Static Chamber and Thin Boundary Layer Equation Methods for Measuring Greenhouse Gas Emissions from Large Water Bodies[J]. Environmental Science & Technology, 1999, 33(2): 350-357.
- [52]. 程炳红, 郝庆菊, 江长胜. 水库温室气体排放及其影响因素研究进展[J]. 湿地科学, 2012, 10(1): 122-128.
- [53]. Rose L P, Dos Santos M A, Matvienko B, et al. Biogenic gas production from major Amazon reservoirs, Brazil[J]. Hydrological Processes, 2003, 17(7): 1443-1450.
- [54]. Wanninkh R, Mcgillis W R. A cubic relationship between air-sea CO₂ exchange and wind speed[J]. Geophysical Research Letters, 1999, 26(13): 1889-1892.
- [55]. 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(13): 403-413.
- [56]. 赵小杰, 赵同谦, 郑华, 段晓男, 等. 水库温室气体排放及其影响因素[J]. 环境科学, 2008, 29(8): 2377-2384.
- [57]. 吕迎春, 刘从强, 王仕禄, 等. 贵州喀斯特地区水库红枫湖、百花湖 P(CO₂) 季节变化研究[J]. 环境科学, 2007, 28(18): 2674-2681.
- [58]. 韩洋. 南京典型水体春季温室气体排放特征研究[J]. 环境科学, 2013, 33(8): 1360-1370.
- [59]. Bastviken D, Cole J J, Pace M L, et al. Fates of methane from different lake habitats: Connecting whole-lake budgets and CH₄ emissions[J]. Geophys Res Biogesci, 2008, 113(2): 34-63.
- [60]. Wagner D, Pfeiffer E M. Two temperature optima of methane production in a typic al soil of the Elbe river marshland[J]. Fems Microbiology Ecology, 1997, 22(4): 145-153.
- [61]. Liikanen A, Murtoniemi T, Tanskanen H, et al. Effects of temperature and oxygen availability on greenhouse gas and nutrient dynamics in sediment of a eutrophic mid-boreal lake[J]. Biogeochemistry, 2002, 59(5): 269-286.
- [62]. 胡蓓蓓, 谭永洁, 王东启, 李杨杰等. 冬季平原和水体溶存甲烷和氧化亚氮浓度特征及排放通量[J]. 中国科学: 化学, 2013, 43(11): 1-11.
- [63]. 小龙, 刘从强, 李思亮, 等. 猫跳河流域梯级水库夏季 N₂O 的产生与释放机理[J]. 长江流域资源与环境, 2009, 18(4): 374-378.

- [64]. Naqvi S W A, Bange H W, Gibb S W, et al. Biogeochemical ocean-atmosphere transfers in the Arabian Sea[J]. *Progress Oceanography*, 2005, 65(4): 116-144.
- [65]. Yang J, Liu J, Hu X, Wang Y, Li H. Effect of water table level on CO₂, CH₄ and N₂O emissions in a freshwater marsh of Northeast China[J]. *Soil Biology & Biochemistry*, 2013, 61(5): 52-60.
- [66]. Hellsten S K, et al. Methane fluxes at the sediment-water interface in some boreal lakes and reservoirs[J]. *Boreal Environment Research*, 2006, 11(1): 27-34.
- [67]. 程炳红, 郝庆菊, 江长胜. 水库温室气体排放及其影响因素研究进展[J]. 湿地科学, 2012, 10(1): 122-128.
- [68]. 马晓燕. 胶州湾大沽河口 N₂O、CH₄ 排放规律研究[D]: 青岛: 青岛大学图书馆, 2011.
- [69]. 蒋娜, 陈紫娟, 曹轶等. 低温湿地甲烷古菌及其介导的甲烷产生途径[J]. 微生物学通报, 2013, 40(1): 137-145.
- [70]. Schrier-Uijl A P, Veraart A J, Leffelaar P A, et al. Release of CO₂ and CH₄ from lakes and drainage ditches in temperate wetlands[J]. *Biogeochemistry*, 2011, 102(13): 265-272.
- [71]. Wagner D, Lipski A, Embacher A, et al. Methane fluxes in permafrost habitats of the Lena Delta: effects of microbial community structure and organic matter quality[J]. *Environmental Microbiology*, 2005, 7(10): 1582-1592.
- [72]. Beaulieu J J, Arango C P, Hamilton S K, et al. The production and emission of nitrous oxide from headwater streams in the Midwestern United States[J]. *Global Change Biology*, 2008, 14(4): 878-894.
- [73]. Heyer J, Berger U, SucKow R. Methanogenesis in different parts of a brackish water ecosystem[J]. *Limnologica*, 1990, 20(8): 135-139.
- [74]. 沈李东, 胡宝兰, 郑平. 甲烷厌氧化微生物的研究进展[J]. 土壤学报, 2011, 48(3): 619-628.
- [75]. 孙伟伟, 王启东, 陈振楼. 长江三角洲平原河网水体溶存 CH₄ 和 N₂O 浓度及其排放通量[J]. 中国化学, 2009, 39(2): 165-175.
- [76]. 刘泽雄, 朱瑞琴, 姚顺, 等. 闽江河口咸草湿地冬季甲烷和二氧化碳通量及影响因子分析[J]. 生态环境学报, 2011, 20(9): 1359-1366.
- [77]. Cai Z C, Shen G Y, Yan X Y. Effects of soil texture, soil temperature and Eh on methane

- emission from rice paddy fields[J]. Acta Pedologica Sinica, 1998, 35(2): 145-154.
- [78]. Huttunen J T, Vaisanen T S, Hellsten S K, et al. Methane fluxes at the sediment-water interface in some boreal lakes lakes and reservoirs[J]. Boreal Environment Research, 2006, 11(6): 27-34.
- [79]. Paasche E. On the relationship between primary production and standing stock of phytoplankton[J]. Ices Journal of Marine Science, 1960, 26(1): 33-48.
- [80]. Wallace S B, Doronhy M, Peteet D R. Does the ocean-atmosphere system have more than one stable mode of operation?[J]. Nature, 1985, 45(5): 21-26.
- [81]. Huttunen J T, Vaisanen T S, Hellsten S K, et al. Fluxes of CH₄、CO₂ and N₂O in hydroelectric reservoirs Lokka and Porttipahta in the northern boreal zone in Finland[J]. Global Biogeochemical Cyycles, 2002, 16(1): 1-17.
- [82]. 胡晓婷. 上海市主要河流水-气界面温室气体通量及影响因素演技[D]. 上海: 华东师范大学, 2017.
- [83]. Zappa C J, Mcgillis W R, Raymond P A, et al. Environmental turbulent mixing controls on air-water gas exchange in marine and aquatic systems[J]. Geophysical Research Letters, 2007, 34(3): 106-111.
- [84]. Raymond P A, Cole J J. Gas exchange in rivers and estuaries: Chooseing a gas transfer velocity[J]. Estuaries and Coasts, 2011, 24(2): 312-317.
- [85]. Upstill-Goddard R, Salter M, Mann p, et al. The riverine source of CH₄ and N₂O from the Republic of Congo, western Congo Basin[J]. Biogeosciences, 2017, 14(3): 2267-2281.
- [86]. Unesco p. Measurement specification guidance for evaluating the GHG status of man-made freshwater reservoirs[R]. International Hydrological Programme, 2009.
- [87]. Matthews C J D, Louis S V L, Hesslein R H. Comparison of three techniques used to measure diffusive gas exchange from sheltered aquatic surfaces[J]. Environmental Science Technology, 2003, 37(4): 772-780.
- [88]. 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.
- [89]. 董凤忠, 阚瑞峰, 刘文青等. 可调谐二级管激光吸收光谱技术及其在大气质量检测中的应用[J]. 量子电子学报, 2005, 22(3): 315-325.
- [90]. Bastviken D, Tranvik L J, Downing J A, et al. Freshwater methane emissions offset the

- continental carbonsink[J]. Science, 2011, 331(4): 50-63.
- [91]. 刘德鸿. 太湖多界面 N₂O 产排特征及其影响因素研究[D]. 南京: 南京师范大学, 2019.
- [92]. 肖启涛. 太湖水-气界面温室气体通量研究[D]. 南京: 南京信息工程大学, 2014.
- [93]. 彭俊杰, 李传红. 黄细花城市湖泊富营养化成因和特征[J]. 生态科学, 2004, 23(4): 370-373.
- [94]. 朱晓燕. 小型人工景观水体生物碳强化水质控制技术及滨水环境对人体舒适度影响研究[D]. 上海: 同济大学, 2008.
- [95]. Unesco P. Measurement specification guidance for evaluating the GHG status of man-made freshwater reservoirs[R]. International Hydrological Programme, 2009.
- [96]. Matthews C J D, Louis S V L, Hesslein R H. Comparison of three techniques used to measure diffusive gas exchange from sheltered aquatic surfaces[J]. Environmental Science Technology, 2003, 37(4): 772-780.
- [97]. Liss P S, Salter P G. Fluxofgases acrosstheair-seainterface[J]. Nature, 1974, 27(4): 181-184.
- [98]. Duchemin E, Lucotte M, and Canuel R. Comparison of static chamber and thin boundary layer equation methods for measuring greenhouse gas emissions from large water bodies[J]. Environmental Science & Technology, 1999, 33(5): 350-357.
- [99]. 吴双. 灌溉河流和淡水养殖湿地甲烷和氧化亚氮排放通量观测研究[D]. 南京: 南京农业大学, 2018.
- [100]. 胡涛, 黄健, 丁颖等. 基于漂浮箱法和扩散模型法测定淡水养殖鱼塘甲烷排放通量比较[J]. 环境科学, 2020, 41(2): 941-951.
- [101]. Beaulieu J J, Arango C P, Hamilton S K, Tank J L. The production and emission of nitrous oxide from headwater streams in the Midwestern United States[J]. Global Change Biology, 2008, 14(4): 878-894.
- [102]. 王琛, 尹兴, 陈盟, 等. 基于不同监测与估算方法的设施菜田 N₂O 排放量比较[J]. 植物营养与肥料学报, 2020, 26(8): 1375-1383.
- [103]. Unesco P. Measurement specification guidance for evaluating the GHG status of man-made freshwater reservoirs[R]. International Hydrological Programme, 2009.

- [104]. Conrad R, Rothfuss F. Methane oxidation in the soil surface-layer of a flooded rice field and the effect of ammonium[J]. *Biology & Fertility of Soils*, 1991, 12(1): 28-32.
- [105]. wang D Q, Chen Z L, Sun W W, et al. Methane and nitrous oxide concentration and emission flux of Yangtze Delta plain river net[J]. *Ence in China Series B: Chemistry*, 2009, 52(5): 652-661.
- [106]. Megonigal J P, Hines M E, Visscher P T. Anaerobic metabolism: Linkages to trace gases and aerobic processes[J]. *Biogeochemistry*, 2003, 63(8): 317-424.
- [107]. Wagner D, Lipski A, Embacher A, et al. Methane fluxes in permafrost habitats of the Lena Delta effects of microbial community structure and organic matter quality[J]. *Environmental Microbiology* 2005, 7(10): 1582-1592.
- [108]. Nesbit S P, Breitenbeck G A. A laboratory study of factors influencing meth and uptake by soils[J]. *Ecosystems & Environment*, 1992, 41(5): 39-54.
- [109]. 胡晓婷. 上海市主要河流水-气界面温室气体通量及影响因素演技[D]. 上海: 华东师范大学, 2017.
- [110]. Silvennoinen H, Liikanen A, Rintala J, et al. Greenhouse gas fluxes from the eutrophic Temmes joki River and its estuary in the Liming an lahti Bay[J]. *Biogeochemistry*, 2008, 90(5): 193-208.
- [111]. Beaulieu J J, Arango C P, Hamilton S K, et al. The production and emission of nitrous oxide from headwater streams in the Midwestern United States[J]. *Global Change Biology*, 2008, 14(4): 878-894.
- [112]. Soumis N, Duchemin, Canuel R, et al. Greenhouse gas emissions from reservoirs of the western United States[J]. *Global Biogeochemical Cycles*, 2004, 18(3): 321-342.
- [113]. Schrier-Uijl A P, Veraart A J, Leffelaar P A, et al. Release of CO₂ and CH₄ from lakes and drainage ditches in temperate wetlands[J]. *Biogeochemistry*, 2011, 102(3): 265-279.
- [114]. Kellner E, Baird A J, Oosterwoud M, et al. Effect of temperature and atmospheric pressure on methane(CH₄) ebullition from near-surface peats[J]. *Geophysical Research Letters*, 2006, 33(18): 184:190.
- [115]. Sun Z G, Jiang H H, Wamg L L, et al. Seasonal and spatial variations of methane emissions from coastal marshes in the northern Yellow River estuary, China[J]. *Plant and Soil*, 2016,

369(2): 317-333.

- [116]. Treat C C, Wollheim W M, Varner R K, et al. Temperature and peat type control CO₂ and CH₄ production in Alaskan permafrost peats[J]. Biogeosciences, 2014, 20(8): 2674-2686.
- [117]. Yang J, Liu J, Hu X, et al. Effect of water table level on CO₂, CH₄ and N₂O emissions in a freshwater marsh of Northeast China[J]. Soil Biology & Biochemistry, 2013, 61(4): 52-60.
- [118]. Singh N, Kulshreshtha K, Agnihotri S. Seasonal dynamics of methane emission from wetlands[J]. Chemosphere: Global Change Science, 2000, 2(1): 39-46.
- [119]. Shang Q Y, Yang X X, Gao C M, et al. Net annual global warming potential and greenhouse gas intensity in Chinese double rice-cropping systems: 3-year field measurement in long-term fertilizer experiments[J]. Global Change Biology, 2011, 17(6): 2196-2210.
- [120]. Allen D E, Dalal R C, Rennenberg H, et al. Spatial and temporal variation of nitrous oxide and methane flux between subtropical mangrove sediments and the atmosphere[J]. Soil Biology and Biochemistry, 2007, 39(3): 622-631.
- [121]. 杨平, 全川, 何清华, 等. 闽江口鱼虾混养塘水-气界面温室气体通量及主要影响因子[J]. 环境科学学报, 2013, 33(5): 1493-1503.
- [122]. Schrier-Uijl A P, Veraart A J, Leffelaar P A, et al. Veenendaal E M. Release of CO₂ and CH₄ from lakes and drainage ditches in temperate wetlands[J]. Biogeochemistry, 2011, 102(3): 265-279.
- [123]. Silvennoinen H, LiikanenA, Rintala J, et al. Greenhouse gas fluxes from the eutrophic Temmesjoki River and its estuary in the Liminganlahti Bay[J]. Biogeochemistry, 2008, 90(5): 193-208.
- [124]. 林海, 周刚, 李旭光, 等. 夏季池塘养殖中华绒螯蟹生态系统温室气体排放及综合增温潜势[J]. 水产学报, 2013, 37(3): 417-424.
- [125]. 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(3): 403-413.
- [126]. 王亮, 肖尚斌, 刘德富, 等. 香溪河库湾夏季温室气体通量及影响因素分析[J]. 环境科学, 2012, 33(5): 1471-1475.
- [127]. 张丰粟, 王小国. 沟渠 N₂O 排放研究进展[J]. 生态与农村环境学报, 2021, 37(1): 10-18.

- [128]. Kampschreur M J, Tan N, Kleerebezem R, et al. Effect of Dynamic Process Conditions on Nitrogen Oxides Emission from a Nitrifying Culture[J]. Environmental Science & Technology, 2008, 42(2): 429-435.
- [129]. Rosamond M S, Thuss S J, Schiff S L. Dependence of riverine nitrous oxide emissions on dissolved oxygen levels[J]. Nature Geoscience, 2012, 5(2): 715-718.
- [130]. Liu X L, Liu C Q, Li S L, et al. Spatiotemporal variations of nitrous oxide(N_2O) emissions from two reservoirs in SW China[J]. Atmospheric Environment, 2011, 45(31): 5458-5468.
- [131]. Rosamond M S, Thuss J, Schiff S L. Dependence of Riverine Nitrous Oxide Emissions on Dissolved Oxygen Levels[J]. Nature Geoscience, 2012, 5(10): 715-718.
- [132]. 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.

致谢

行文至此，我的毕业论文即将结束，也意味着我的整个研究生阶段即将落下帷幕。在整整两年的研究生生活中，真心学到了很多之前本科没有学习到的知识，感谢母校的平台，感谢我所遇见的美好的人。

首先，非常感谢母校提供良好的实验平台、教师资源，让我尽可能多的得到了知识的洗礼、成长，也明白了成长的意义。

其次，我要特别感谢我的指导老师马煜春老师，马老师她对我不管是学术方面还是生活方面都非常关心，在学术上，老师孜孜不倦，耐心细致地指导我的课题开展，对我整个实验过程中问题也耐心的解释。在生活方面，马老师待我像大姐姐一般，关心我的生活状态，也经常和我聊天，在这两年中我很庆幸有这样的老师陪在身边。也非常感谢我的校外导师周伟老师，周老师在实验中帮助和指导了我很多，对我的毕业论文也非常负责，熬夜帮我解答我不懂的问题，周伟老师真的是一名非常合格的老师，非常感恩在研究生生涯中可以遇到这两位老师。

同时还要感谢与我一同进行实验研究的吴秋玲学妹，在长达一年的实验期间，我们相互学习，共同进步，感谢彼此鼓励的你。最后还要感谢共两年研究生生活的同学们，感谢一直以来支持我学习和生活的父母，感恩一路上遇到的所有善意与温暖。

我愿我们都会越长大越勇敢，勇于面对生活中的困难，抓住给一次机会，让自己的生命更有意义！

作者简介

1.基本情况

姓名：严玲 性别：女 年龄：24 籍贯：江苏淮安

2.教育背景

2019年6月-至今 南京信息工程大学，应用气象学院，攻读硕士学位 担任班级团支书

2015年9月-2019年6月 淮阴工学院，生命科学与食品工程学院，获学士学位 担任班级团支书

3.科研成果

论文发表

[1].张熙栋，严玲，周伟，吴秋玲，杨波，马煜春. 稻田轮作下秸秆不同利用方式还田对稻田甲烷排放的影响[J]. 农业环境科学学报, 2020-04-06, 1-10.(第二作者)

专利

[1].严玲，马煜春. 一种用于水体水气界面温室气体排放的采集装置[P]. 江苏: ZL 2020 2 1531305.2, 2021-3-19.(已授权，第一发明人)