巢湖不同富营养化区域甲烷排放通量与途径

何 凯 ^{1,2},王洪伟 ^{2,3},胡晓康 ²,安燕飞 ¹,钟继承 ²,张 雷 ^{2*} (1.安徽大学资源与环境工程学院,安徽 合肥 230601; 2.中国科学院南京地理与湖泊研究所湖泊与环境国家重点实验室,江苏 南京 210008; 3.中国科学院大学资源与环境学院,北京 100049)

摘要:为了更好的认识不同富营养化区域甲烷(CH₄)排放通量及途径的时空异质性,本文以我国典型富营养化浅水湖泊-巢湖为研究对象,设置西北湖湾、西湖心和中湖心 3 个研究点位,采用漂浮通量箱和经验模型分析等方法对其水-气界面 CH₄ 排放通量与途径进行季节性研究.结果表明水体与沉积物中 CH₄ 溶存浓度、水-气界面 CH₄ 排放通量同水体营养盐水平及叶绿素 a 含量的空间变化相一致,且均表现为西北湖湾最高,其水体 CH₄ 溶存浓度为 (0.178 ± 0.002) - (1.123 ± 0.026) μ mol/L、表层沉积物中 CH₄ 含量为 (70.5 ± 30.7) - (189 ± 97.0) μ mol/L、CH₄ 总排放通量为 (50.1 ± 2.93) - (1232 ± 28.6) μ mol/ $(m^2$ -h);3 个点位的 CH₄ 扩散通量占总排放量的 7.3%-42.9%,冒泡通量占 57.1%-92.7%,富营养化程度最高的西北湖湾冒泡通量占比最高;CH₄ 排放通量大小与途径同时受季节变化影响,夏季 CH₄ 冒泡与总排放通量均最高,其中冒泡对总通量的贡献高达 98.1%.

关键词: 甲烷; 溶存浓度; 扩散通量; 冒泡通量; 湖泊

中图分类号: X511 文献标识码: A 文章编号: 1000-6923(2021)07-3306-10

DOI:10.19674/j.cnki.issn1000-6923.20210223.021

Emission fluxes and pathways of methane in different eutrophic areas of Lake Chaohu. HE Kai^{1,2}, WANG Hong-wei^{2,3}, HU Xiao-kang², AN Yan-fei¹, ZHONG Ji-cheng², ZHANG Lei^{2*} (1.School of Resources and Environmental Engineering, Anhui University, Hefei 230601, China; 2.State Key Laboratory of Lake Science and Environment, Nanjing Institute of Geography and Limnology, Chinese Academy of Sciences, Nanjing 210008, China; 3.College of Resources and Environment, University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China). *China Environmental Science*, 2021,41(7): 3306~3315

Abstract: In order to better understand the spatiotemporal heterogeneity of methane emission fluxes and pathways in eutrophic lakes. Emission fluxes and pathways of CH₄ were studied in areas of different trophic levels in Lake Chaohu, a large and shallow eutrophic lake in Eastern China. A total of three study sites were deployed in the northwestern bay, the center of the west lake, and the center of the middle lake, respectively. Seasonal CH₄ emission fluxes and pathways at the water-air interface were examined by using floating flux chambers and an empirical diffusion model. The spatial variations of CH₄ concentrations and emission fluxes shared similar patterns with nutrient levels and chlorophyll-a contents in the waters and the sediments. The highest CH₄ were found in the northwestern bay, in which dissolved CH₄ in water was $(0.178 \pm 0.002) \sim (1.123 \pm 0.026) \, \mu \text{mol/L}$, CH₄ in surface sediments was $(70.5 \pm 30.7) \sim (189 \pm 97.0) \, \mu \text{mol/L}$, and the total emission flux of CH₄ was $(50.1 \pm 2.93) \sim (1232 \pm 28.6) \, \mu \text{mol/(m}^2 \cdot h)$. Diffusive fluxes of CH₄ in the three areas accounted for $7.3\% \sim 42.9\%$ of the total emission, and the fluxes of ebullition accounted for $57.1\% \sim 92.7\%$ of the total emission. The northwestern bay which was also more eutrophic than the other two areas shared the highest proportion of the ebullition. CH₄ emission pathways in Lake Chaohu were influenced by seasonal changes. There were the highest total CH₄ emission fluxes and ebullition fluxes in the summer, in which the contribution of ebullition to the total emission fluxes was as high as 98.1%.

Key words: methane; concentration; diffusion flux; ebullition flux; lake

湖泊是内陆水体重要组成部分,在有机碳储存、转运和矿化过程中起着重要作用^[1].湖底沉积物富含有机质、且处于较强的还原环境,是产 CH₄的活跃区域,产生的 CH₄穿过沉积物-水界面、水-气界面进入大气^[2-4].虽然湖泊所占面积不足陆地总面积的4%^[5],但却是 CH₄的重要自然源,在全球 CH₄排放中起着关键作用^[6].

富营养化使得湖泊内生性有机碳增加,大量藻类的分解导致湖水和沉积物中 DO 减少^[7-8],CH₄产生速率升高、氧化率下降^[9-11],从而增加湖泊 CH₄排

放^[12].浅水湖泊因其水环境容量小、营养物质循环迅速,往往面临更严重的富营养化问题^[13].浅水湖泊频繁的风浪扰动作用促进了水体循环与混合,从而加速了沉积物中 CH₄ 的排放^[14];而且浅水湖泊水深浅,没有温跃层的阻挡作用,减小了 CH₄ 在水体中的氧化距离^[15].因此,浅水湖泊常常具有较高的 CH₄ 排

收稿日期: 2020-11-25

基金项目: 国家水体污染控制与治理科技重大专项(2017ZX07603002, 2017ZX07603004);国家自然科学基金资助项目(41771122)

* 责任作者, 副研究员, leizhang@niglas.ac.cn

(C)1994-2021 China Academic Journal Electronic Publishing House. All rights reserved. http://www.cnki.net

放通量[13].

在浅水湖泊中,CH4可以通过扩散、冒泡、植物传输等途径排放^[15-16],其中植物传输仅存在于水生植物生长区^[17].研究表明,湖泊、池塘和水库中通过扩散排放产生的 CH4 估计占总排放量的 21%~46%^[15,18],冒泡对于 CH4 排放具有更大的贡献量^[19]. 当前对 CH4 通量的估算大多基于北方高纬度区域^[6,20],而越来越多的证据表明亚热带和热带湖泊的 CH4 排放速率高于高纬度地区湖泊^[21].鉴于全球湖泊 CH4 排放的空间异质性,对全球 CH4 排放量的精确估算需要更多来自亚热带与热带地区的数据.

我国东部平原区域分布着大量浅水湖泊,其中很多处于富营养化状态^[22].且由于这些湖泊各湖区受人为活动干扰强度不同,同一湖泊存在着富营养化程度不同的湖区.这些湖泊 CH₄ 排放强度、排放途径及其对富营养化的相应特征尚不明确.本研究选取位于安徽省中部的巢湖为研究对象,根据巢湖水

体营养水平与沉积物性质的空间分布特征设置代表性研究点位,借助漂浮通量箱与经验模型分析水-气界面 CH₄ 总通量、扩散通量、冒泡通量.在此基础上探讨不同富营养化程度湖区 CH₄排放通量及排放途径的时空异质性,以揭示我国富营养化浅水湖泊中 CH₄排放特征及机制.

1 材料与方法

1.1 点位设置

巢湖水体营养水平呈自西北湾区向湖心、东部湖区逐渐降低的空间特征^[23],沉积物中氮、磷与有机质在西湖湾较高,中湖心则为全湖低值区域^[24].综合考虑上述因素,布设西北湖湾、西湖心、中湖心 3 个研究点位(图 1),其中西北湖湾为富营养化水平最高区域,中湖心为最低区域.现场利用 GPS 确定研究点位经纬度,分别于 2019 年 10 月(秋季)、2020 年 1 月(冬季)、5 月(春季)、8 月(夏季)开展野外采样与观测研究.

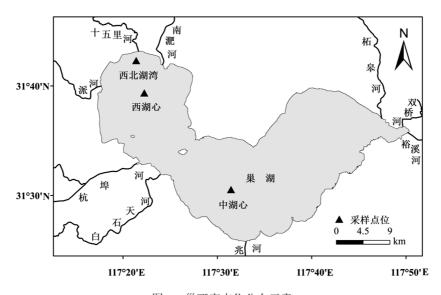


图 1 巢研究点位分布示意

Fig.1 Map of sampling sites in Lake Chaohu

1.2 采样与观测

1.2.1 现场测量 用便携式溶氧测定仪(JPB-607A, 雷磁,上海)测量现场的水温与水体 DO,用 pH 计 (PHBJ-260,雷磁,上海)测定水体 pH 值,用风速仪 (FYF-1,亿欧,上海)测定水面上方的风速.

1.2.2 样品采集 每个点用 50mL 注射器吸取水面 上方空气,注入 100mL 铝箔采样袋中(LB-301,德霖, 大连),每点取 3 个平行样.利用采水器采集表层水样, 水样通过采样器底部硅胶管引入空注射器中,溢流 2 倍体积,然后轻轻安装上注射器活塞、避免产生气泡,将 15mL 水样注入预置有 2g 氯化钾、预先抽真空并注入 15mL 高纯氮气的 30mL 顶空瓶中,每个点采集 3 个平行样,用于测定表层水溶存 CH₄.取 100mL 水样经 0.45μm 醋酸纤维滤膜过滤,滤后水样和滤膜分别放入保温箱保存;另取 100mL 原水样放入保温箱保存,用于室内化学分析.在每个采样点位用柱状采

(C)1994-2021 China Academic Journal Electronic Publishing House. All rights reserved. http://www.cnki.net

样器(内径 9cm,长 50cm)采集沉积物柱样 3 根,连同上覆水一起于当天运回实验室、立即分层分析 CH₄ 含量和沉积物基本性质.

1.2.3 漂浮通量箱观测 各点分别布设 4 个漂浮通量箱,观测水-气界面 CH₄ 总排放通量(F₁).通量箱密闭舱直径 0.2m、高度 0.15m.在布设通量箱时,先将充气的橡胶圈置于水面上,然后将通量箱轻轻扣入橡胶圈中心,使通量箱中的气体缓缓排出,借用橡胶圈的浮力使通量箱漂浮在水面上,并将三通阀关闭.待通量箱稳定后,立即用 50mL 注射器通过与通量箱相连的三通阀抽取 50mL 气体,注入到 100mL 铝箔采样袋中,每个通量箱取两个平行样,每 15min取 1 次气体.每个点观测 1h.

1.3 样品分析

- 1.3.1 样品预处理 将沉积物柱样每 2cm 分为一层,用顶端截断的 5mL 注射器获取每 2cm 一层的沉积物样品,并装入到预先装有 50mL 2.5% NaOH 溶液的 100mL 血清瓶中,立即加丁基橡胶塞密封,再利用高纯氮气通过注射针吹扫残留空气 2min,每层沉积物做 3 个平行样品,倒置保存在恒温培养箱内待测 CH₄.剩余沉积物样品先冷冻干燥,然后研磨粉碎过 100 目筛,用来分析沉积物基本性质.
- 1.3.2 CH₄ 分析 表层水溶存 CH₄ 样品放置在恒温培养箱中静置 12h,使气相和液相达到平衡,抽取5mL 顶空气体注射进入配有火焰离子检测器的气相色谱仪(GC/FID, 7890B, Agilent)分析 CH₄含量.气袋样品和沉积物样品采用同样方法分析.
- 1.3.3 水与沉积物样品化学分析 原水样用来分析总氮(TN)、总磷(TP),滤后水样用来分析硝酸盐氮(NO3-N)、氨氮(NH4⁺-N)、溶解活性磷(SRP),滤膜用来分析叶绿素 a(Chl a).原水样先用过硫酸钾氧化,再用紫外分光光度法测定 TN、钼酸铵分光光度法测定 TP;NO3-N 采用紫外分光光度法测定;NH4⁺-N 采用纳氏试剂分光光度法测定;SRP 采用钼酸铵分光光度法测定;Chl a 采用 90%丙酮萃取后,用分光光度法测定,上述分析方法均参考《水和废水监测分析方法》(第四版)^[25]完成.用过硫酸钾氧化法对沉积物样品进行消解,再分别用紫外分光光度法、钼酸铵分光光度法测定 TN、TP 含量;采用重铬酸钾法测定沉积物中有机质(OM)的含量^[26].

1.4 计算与统计分析

1.4.1 湖水样品 CH_4 浓度计算 平衡瓶中气相 CH_4 浓度($C_{g,\mu}$ mol/L)根据理想气体状态方程计算^[27]:

$$C_{\rm g} = \frac{aP_0}{RT} \times 10^6 \tag{1}$$

式中:a 为气相色谱测得的气相样品中 CH_4 含量,无量纲; P_0 为大气压, P_a ;R 为理想气体常数,8.314J/(mol· K);T 为热力学温度,K.

水相-气相平衡后水相中 CH_4 浓度(C_l , $\mu mol/L$),根据公式(1)和亨利定律得到:

$$C_1 = \frac{aP_0C_0}{E} \times 10^6$$
 (2)

式中:E为 CH_4 亨利系数,Pa; C_0 为溶液的总浓度,由于水样中气体浓度很低,可认为溶液总浓度为水的浓度(55.46mol/L).

则湖水样品中 CH_4 的溶存浓度(C_w , $\mu mol/L$)为:

$$C_{\rm w} = \frac{C_{\rm g}V_{\rm g} + C_{\rm l}V_{\rm l}}{V_{\rm l}} \tag{3}$$

式中: $V_{\rm g}$ 、 $V_{\rm l}$ 分别为血清瓶中气相、水相的体积,mL. 沉积物中 ${\rm CH_4}$ 的溶存浓度($C_{\rm p}$, μ mol/L)为:

$$C_{p} = \frac{C_{g}V_{g} + C_{l}V_{l}}{V_{p}}$$
 (4)

式中: $V_{g'}$ 、 $V_{l'}$,和和 V_p 分别为 100mL 血清瓶中气相、水相和沉积物的体积,mL.

1.4.2 CH₄排放通量计算

(1) CH_4 总排放通量(F_t , $\mu mol/(m^2 \cdot h)$)的计算公式如式(5):

$$F_{\rm t} = k \frac{V}{A} = kh \tag{5}$$

式中:V 为通量箱气室体积, m^3 ;A 为通量箱横截面积, m^2 ;k 为通量箱中 CH₄ 浓度随时间变化的斜率, μ mol/(m^2 ·h);h 为通量箱空气柱高度,m.

(2) CH4扩散通量

 CH_4 扩散通量(F_d , $\mu mol/(m^2 \cdot h)$)根据扩散方程计算^[28]:

$$F_{\rm d} = k_0 \times (C_{\rm w} - C_{\rm eq}) \tag{6}$$

式中: C_{eq} 是与空气中 CH_4 达到平衡时的液相 CH_4 浓度, μ mol/L,可由采样点水面上方空气中 CH_4 测量结果带入公式(2)得到; k_0 为气体交换系数, ϵ m/h,计算公式如下式^[29]:

$$k_0 = k_{600} \left(\frac{Sc}{600} \right)^n \tag{7}$$

 $Sc = 1909.4 - 120.78t + 4.1555t^2 - 0.080578t^3 +$

$$0.00065777t^4 \tag{8}$$

式中:Sc 是施密特数;t 是现场测得水温;n 的大小由 10m 高处的风速(U_{10} ,m/s)决定,当 U_{10} <3.7 时,n=-2/3, 当 U_{10} >3.7 时,n=-1/2.

 k_{600} 是 Sc=600 的传输速度,目前已经发展了多种经验公式估算 k_{600} .由于估计 k_{600} 的不确定性,本文使用表 1 中模型的平均值作为 k_{600} 的值.

 U_{10} 可由现场测定风速(U_z ,m/s)、现场测量时的高度(z,m)根据下式换算得到^[29]

$$U_{10} = U_z \left[1 + \frac{0.0013^{0.5}}{0.41} \ln \left(\frac{10}{z} \right) \right]$$
 (9)

(3) CH₄ 冒泡通量

 CH_4 冒泡通量(F_e , μ mol/(m^2 ·h))结合上述计算结果、根据下式计算[30].

$$F_{\rm e} = F_{\rm t} - F_{\rm d} \tag{10}$$

1.4.3 统计分析 采样点位图采用 Arc GIS 10.2 绘制,其他图用 Origin 2018 绘制.把点位与季节作为主变量,利用双因素方差分析(two-way ANOVA)检验不同点位的 CH₄ 溶存浓度以及通量差异;如果不同点位、季节之间存在显著性差异(*P*<0.05),再利用 Tukey 事后检验分析哪些点位、季节间存在显著性差异;统计分析利用 SPSS 20.0 完成.

表 1 k_{600} 估算模型 Table 1 k_{600} models

公式	适用风速 (m/s)	k 600 模型	参考文献
$k_{600} = 0.251U_{10}^2$	$U_{10} \ge 3.7 \text{m/s}$	Wanninkhof,2014	[31]
$k_{600} = 1.74 U_{10} - 0.15$	任意 U ₁₀	Macintyre,2010	[32]
$k_{600} = 4.33U_{10} - 13.3$	$U_{10} \ge 3.7 \text{m/s}$	Crusius and Wanninkhof,2003	[29]
$k_{600} = 0.72U_{10}$	$U_{10} < 3.7 \text{m/s}$	Crusius and Wanninkhof,2003	[29]
$k_{600} = 2.07 + 0.215U_{10}^{1.7}$	任意 U ₁₀	Cole and Caraco,1998	[32]
$k_{600} = 1.91 \times e^{(0.3.5 \times U_{10})}$	任意 U ₁₀	Wanninkhof,1992	[28]

2 结果与分析

2.1 观测期间水体与沉积物理化性质 3 个研究点位的 TN、TP、NH₄⁺-N、SRP、NO₃⁻-N

等营养盐浓度以及 Chl a 含量整体表现出西北湖湾水体高于西湖心和中湖心,西湖心高于中湖心的空间特征,表明 3 个点位富营养化水平呈现自西北湖湾向中湖心递减的趋势(表 2).

表 2 巢湖西北湖湾、西湖心和中湖心水体理化性质

Table 2 Physicochemical properties of surface waters in the northwestern bay, the center of the west lake, and the center of the middle lake in Lake Chaohu

点位	季节	温度 (℃)	DO (mg/L)	pH 值	TN(mg/L)	TP(mg/L)	Chl a (µg/L)	NH ₄ ⁺ -N (mg/L)	SRP(mg/L)	NO ₃ -N(mg/L)
202	秋	19.7	16.9	8.62	3.33	0.474	177	0.130	0.00570	0.588
西	冬	7.50	10.2	8.01	3.70	0.0693	21.5	1.12	0.0114	1.88
北	春	27.50	8.50	8.00	2.68	0.167	45.6	1.19	0.0310	1.10
湖湾	夏	36.3	23.5	10.1	10.2	0.370	850	0.0880	0.0120	0.417
码	平均	22.8 ± 10.0	14.8 ± 5.94	8.67 ± 0.800	4.98 ± 3.04	0.270 ± 0.160	274 ± 338	0.630 ± 0.520	0.0150 ± 0.01	1.00 ± 0.560
西	秋	18.9	12.2	8.79	2.12	0.410	172	0.103	0.0210	0.406
湖	冬	7.50	11.0	7.88	3.48	0.0833	33.2	1.08	0.0131	1.73
小厂	春	27.0	11.1	8.23	2.95	0.254	168	0.144	0.012 0	0.445
	夏	33.1	14.0	10.1	2.75	0.0920	40.0	0.00720	0.0190	0.487
	平均	21.6 ± 9.60	12.1 ± 1.21	8.75 ± 0.800	2.83 ± 0.490	0.210 ± 0.130	103 ± 66.8	0.334 ± 0.400	0.0164 ± 0.001	0.770 ± 0.560
中	秋	19.2	8.90	8.70	0.433	0.008	16.2	0.098	0.0130	0.392
湖	冬	7.40	11.90	8.00	0.619	0.0587	19.7	0.148	0.0124	0.543
心	春	26.2	8.00	8.00	1.29	0.123	74.6	0.204	0.0160	0.753
	夏	31.3	8.60	8.94	1.52	0.028	12.7	0.00603	0.00260	0.984
	平均	21.0 ± 9.00	9.35 ± 1.50	8.41 ± 0.400	0.97 ± 0.400	0.054 ± 0.040	30.8 ± 25.4	0.11 ± 0.070	0.011 ± 0.001	0.668 ± 0.200

沉积物中 TN、TP 和 OM 含量随着深度的增加逐渐降低(图 2).西北湖湾和西湖心沉积物中 TN、TP

和 OM 含量整体高于中湖心.从季节变化上来看,夏季沉积物中 TN、TP、OM 整体上处于较高水平,尤

其是西北湖湾和西湖心夏季表层沉积物中 TN 和 OM 含量增加显著.



图 2 沉积物中 TP、TN 和 OM 的垂直分布

Fig.2 Vertical distributions of TP, TN, and OM in sediment cores

2.2 水体与沉积物中 CH₄ 溶存浓度

2.2.1 水体中 CH_4 溶存浓度 四个季度中西北湖湾、西湖心、中湖心 C_w 含量分别为 (0.178 ± 0.002) ~ (1.123 ± 0.026) , (0.098 ± 0.001) ~ (0.376 ± 0.023) , (0.060 ± 0.005) ~ (0.221 ± 0.009) µmol/L (图 3),其中西北湖湾 C_w 显著高于西湖心和中湖心(P<0.001).3 个点位中TN、TP、NH $_4$ ⁺-N、SRP 等营养盐浓度也表现为西北湖湾最高、中湖心最低的空间特征.CH $_4$ 浓度的空间变化与水体营养水平的空间变化相一致.不同季节, C_w 变化显著,春季最高 (0.573 ± 0.394) µmol/L、秋季最低 (0.128 ± 0.035) µmol/L.

2.2.2 沉积物中 CH₄ 垂直分布 沉积物中 CH₄ 的 垂直分布呈现先随深度增加而增大、在 6~10cm 某

一深度达到峰值、然后逐渐变小的趋势(图 4).除夏季外,西北湖湾沉积物中 CH₄ 含量明显高于西湖心与中湖心.表层沉积物中CH₄在4个季节的均值为西湖湾(189±97.0)μmol/L>西湖心(94.9±49.4)μmol/L>中湖心(70.5±30.7)μmol/L,与水体富营养化水平、沉积物中有机质含量整体一致.

2.3 CH4排放通量与排放途径

通过野外观测与模型计算可知,西北湖湾、西湖心和中湖心 F_t 分别为(50.1±2.93)~(1232±28.6),(2.49±0.207)~(51.9±18.4),(3.66±0.597)~(50.1±2.93) μ mol/(m^2 ·h)(图 5a),西北湖湾的 F_t 显著高于西湖心和中湖心(P<0.001),与这 3 个点位的营养盐水平以及 Chla含量的高低相一致(表 2).从季节变化看,秋、冬、春、

夏 4 个季节的均值分别为(6.102±3.149),(5.732±4.467), (150.363±141.136),(312±531) μ mol/(m²·h),春、夏 F_t 大于秋、冬季.

西北湖湾、西湖心和中湖心 F_d 分别为(0.523±0.068)~(97.0±2.28),(1.11±0.147)~(21.5±1.36),(1.38 ±0.127)~(12.8±0.521)µmol/(m^2 ·h)(图 5b).西北湖湾的 F_d 明显高于西湖心和中湖心(P<0.001),4 个季节中春季最高为(43.8±37.7)µmol/(m^2 ·h)、冬季最低为(1.72±0.716)µmol/(m^2 ·h).

3 个观测区域都出现了冒泡通量,西北湖湾、西湖心和中湖心 F_e 分别为 (1.42 ± 0.683) ~ (1215 ± 28.6) 、 (0.716 ± 0.128) ~ (30.5 ± 18.4) , (1.87 ± 0.597) ~ (37.3 ± 2.93) μ mol/ $(m^2\cdot h)$ [图 5(c)],西北湖湾 F_e 远高于西湖心和中湖心(P<0.001).不同季节,夏季冒泡通量最高为 (306 ± 524)

μmol/(m²·h)、秋季最低为(2.81±2.78)μmol/(m²·h).

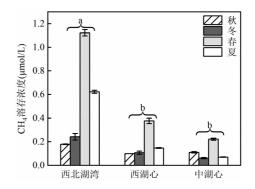


图 3 巢湖 3 个点位表层水中 CH₄ 溶存浓度 CH₄ concentrations in surface waters of different study

areas in Lake Chaohu a、b 为 Tukey 事后检验结果,不同字母表示点位之间存在显著差异

(P < 0.05)

CH₄ (µmol/L)
150 300 450 600 750 900 150 300 450 600 750 900
12
150 300 450 600 750 900 150 300 750 900 150 300 750 900 150 300 750 900 150 300 750 900 150 300 750 900 150 300 750 900 150 300 750 900 150 300 750 900 150 300 750 900 150 300 750 900 150 750

图 4 沉积物柱样中 CH₄的垂直分布

Fig.4 Vertical distribution of CH₄ in sediment cores

西北湖湾、西湖心、中湖心 F_d 分别占 F_t 的 7.33%、42.9%、26.4%; F_e 分别占 F_t 的 92.7%、57.1%、73.6%,表明 3 个观测点 CH_4 排放均以冒泡排放为主,西北湖湾 F_t 最高、 F_e 所占比例也最高.从季节变化看,3 个观测点中秋季冒泡排放占 F_t 的比例最低 (46.1%),而冬、春、夏 CH_4 排放以冒泡排放为主, F_e 分别贡献了总通量的 70.0%、71.3%和 98.1%.

3 讨论

3.1 巢湖 CH₄溶存与排放通量的空间变化

西北湖湾 C_w 、 F_t 、 F_d 和 F_e 显著高于西湖心和中湖心(图 5, P<0.001),表明西北湖湾是巢湖 CH_4 产生量较大、排放速率较高的热点区域,这与 3 点位富营养化水平呈现自西北湖湾向中湖心递减的趋势

(C)1994-2021 China Academic Journal Electronic Publishing House. All rights reserved. http://www.cnki.net

相一致(表 2).巢湖西北湾区受南淝河、派河、十五 里河等河流外源输入影响严重,大量营养盐、有机碳 在此汇聚,使西北湖湾呈现高富营养化状态^[23].与此 同时,营养盐升高使得此区域蓝藻水华频发、大量蓝 藻长时间聚积,突出表现为 Chl a 的水平远高于西湖 心和中湖心(表 2).

西北湖湾和西湖心的沉积物中 TN、TP 和 OM 的含量均高于受外界干扰较小的中湖心(图 2),表明 在外源有机碳输入与蓝藻水华所产生的内生有机 碳共同作用下,西部湖区沉积物中 OM 含量丰富,为 沉积物中产 CH4 提供了更多的底质、提高了产 CH4 速率[9-12].因此,西北湖湾沉积物中 CH4 整体高于西 湖心与中湖心,比如西湖湾表层 0~2cm 沉积物中年 均 CH₄含量远高于西湖心和中湖心(图 3).沉积物中 所产生的CH₄通过冒泡或扩散的方式由沉积物迁移 到上覆水,进而经水-气界面最终进入大气[7].虽然西 湖心沉积物中 TN、TP、OM 含量不低于西北湖湾, 但西湖心 CH4 含量和排放通量均小于西北湖湾,这 可能是因为西北湖湾接收了大量来自外源与藻源 的新鲜有机质,这些新鲜有机质可以极大的促进沉 积物产 CH₄、提升 CH₄ 冒泡排放通量^[33].Xiao 等^[34] 发现太湖的梅梁湾、西北湖区和湖心区 CH4 排放随 着营养梯度的升高而增大,蓝藻华聚积区与低藻区 CH4 通量差异较大; 闫兴成等[35]发现太湖蓝藻聚积 区表层水体中 CH4 浓度远远高于开阔湖区;Zhou 等[13]通过对长江中下游不同营养状态湖泊研究发 现,CH4排放通量随富营养化水平升高呈指数式增 长.以上研究均与本文结果相一致.

从 CH₄ 排放的季节变化看,春、夏季 CH₄ 的排放通量相对较高,秋季和冬季相对较低(图 4).一方面是 CH₄ 的产生与排放受温度影响强烈^[36],因为春、夏季气温较高,产甲烷菌的新陈代谢活动较强、产 CH₄ 速率高^[36].此外较高的温度也有利于蓝藻的聚积,为产甲烷菌提供了丰富的新鲜有机碳^[10].Xing等^[10]发现当沉积物表面温度高于 25℃,CH₄ 排放量急剧增加.另一方面,在西北湖湾夏季 F_t远高于其他季节,可能跟夏季巢湖流域的大量降水有关,大量的降水使得流域的营养盐和溶解态有机碳随地表径流进入西北湾区,加速了该区域新鲜有机碳沉积^[12]. 而在气温较低的秋、冬季节,即使是在高度富营养化的西北湖湾 CH₄ 溶存浓度和通量依然很低,因为此

时温度限制了 CH4产生速率[37].

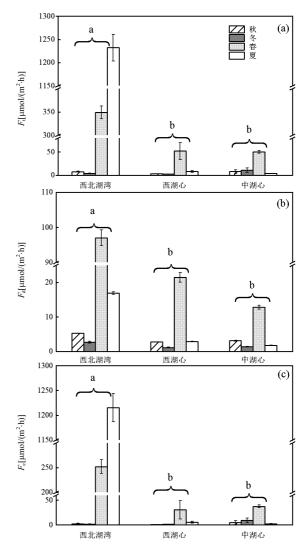


图 5 各点位 CH4 排放通量季节变化

Fig.5 Seasonal changes of CH_4 fluxes in different study areas a、b 为 Tukey 事后检验结果,不同字母表示点位之间存在显著差异 $(P{<}0.05)$

3.2 巢湖 CH4 排放途径

从空间变化看,3 个区域 CH_4 排放方式均以冒泡排放为主,西北湖湾、西湖心、中湖心的 F_e 分别占 F_t 的 92.4%、57.1%和 73.5%(图 5).Sanches 等对全球 297 个湖泊统计后发现 F_d 对 F_t 的贡献较小,而冒泡排放被认为是湖泊 CH_4 排放易被忽略的重要途径,如果仅以扩散通量估算总通量,将会使总通量低估 277%^[21];而 Sturm 等^[38]通过观测亚热带湖泊 CH_4 排放得出,冒泡排放占湖泊 F_t 的 60%~99%,与本文观测的巢湖 F_e 所占比例一致.巢湖是一个浅水湖泊,较低的静水压有利于气泡的形成,并且气泡在向水一气界面迁移过程中不易被氧化^[38].巢湖西北湾区蓝藻水华

频发,而由此产生的新鲜藻源溶解性有机质的积累可能会促进浅水湖泊中冒泡通量的增加 $^{[33]}$.因此,西北湖湾作为巢湖富营养化水平最高的区域,其 $^{[34]}$.因此,西北通量最高、 $^{[35]}$.因此,西北通量最高、 $^{[35]}$.因此,也远高于其他 $^{[35]}$.因此,他过高于其他 $^{[35]}$.

从季节变化看,春季和夏季 CH_4 的 C_w 、 F_t 、 F_d 和 F_e 均远远大于秋季和冬季,秋季和冬季差别不大;秋、冬季水一气界面的 F_e 贡献了 F_t 的 46.1%与 70.0%,春、夏季水一气界面 F_e 分别贡献了 F_t 的 71.3%和 98.1%,由此可知 CH_4 的 F_d 和 F_e 与季节密切相关.夏季 CH_4 主要通过冒泡排放,在美国 Elsinore 湖,当白天温度达到 35°C时 F_e 对 F_t 的贡献率高于 90% [39].

夏季以冒泡为主的排放方式可能是由于温度升高导致产 CH₄ 菌的活性增加,同时降低了水体 CH₄ 饱和度,促进了冒泡的形成^[16,21].

3.3 巢湖与其他湖泊 CH4 通量对比

邢阳平等^[40]、陈永根等^[41]曾报道过巢湖 CH₄排放通量(表 3).陈永根等^[41]研究表明,冬季巢湖 F_t 为 1.31 μ mol/(m²·h),与本研究冬季的观测结果相一致(1.72 \pm 0.716) μ mol/(m²·h).邢阳平等^[40]报道巢湖 F_t 为 23.1 μ mol/(m²·h),和本研究中西湖心、中湖心结果相一致,但比西北湖湾低一个数量级,进一步表明巢湖西北湖湾为 CH₄排放热点区域.

表 3 世界不同区域湖泊 CH₄ 排放通量 Table 3 CH₄ fluxes in different lakes in the world

湖泊名称	气候	$F_t[\mu \text{mol/(m}^2 \cdot \text{h})]$	$F_{\rm e}[\mu { m mol/(m^2 \cdot h)}]$	$F_{\rm d}[\mu { m mol/(m}^2 \cdot { m h})]$	文献	
巢湖 a 亚热带		23.1	-	-	[44]	
巢湖 b	亚热带	1.31	-	-	[41]	
洞庭湖	亚热带	354	346	8.13	[16]	
东湖	亚热带	60.7 ± 48.4	-	-	[10]	
东太湖 a	亚热带	_	_	6.96	[34]	
梅梁湾 a	亚热带	_	-	3.67	[34]	
太湖西北湖区	亚热带	-	-	7.96	[34]	
太湖湖心区	亚热带	_	_	1.04	[34]	
太湖 a	亚热带	_	_	3.83	[34]	
东太湖 b	亚热带	10.44	-	-	[17]	
太湖 b	亚热带	90	-	-	[44]	
鄱阳湖 a	亚热带	10.8	-	-	[17]	
鄱阳湖 b	亚热带	6.68	-	-	[45]	
洪泽湖	亚热带	0.432	_	-	[17]	
南四湖	亚热带	1.62	-	-	[43]	
Gatun 湖	热带	970	937.5	32.5	[15]	
Elsinore 湖	温带	900~6663	813~6000	87.5~663	[39]	
Shingobee 湖	温带	360	-	-	[17]	
欧洲中部湖泊	温带	83.3	33.3	50	[46]	
欧洲北部湖泊	北温带	9.58	1.25	8.33	[46]	
Little Nerang Dam	热带	6223~15390	6094~15260	130	[47]	
Polegar 湖夏季	亚热带	96.2	4.89 ± 11.1	91.3 ± 43.7	[48]	
Biguás 湖夏季	亚热带	1616	468 ± 423	1148 ± 761	[48]	
Vehmasjärvi 湖	北温带	23.4	_	-	[17]	
Mäkijärvi 湖	北温带	14.4	-	-	[17]	
五大湖	温带	245	_	-	[17]	
东部平原湖区	亚热带	50.6 ± 91.2	-	-	[49]	
中国湖泊	_	73.1 ± 117	-	-	[44]	
全球湖泊	_	183	-	-	[43]	
巢湖西北湖湾	亚热带	322	290	31.7	本研究	
巢湖西湖心	亚热带	17.6	10.2	7.40	本研究	
巢湖中湖心	亚热带	18.0	13.3	4.70	本研究	

注:"-"表示不存在;同一湖泊的不同小写字母表示数据出自不同的研究,相同的小写字母表示出自同一研究.

与国内东部平原湖区的湖泊 F_t 相比,巢湖在西湖心、中湖心的水-气界面 F_t 低于东部平原湖区的平均值(50.6±91.2) μ mol/(m^2 ·h),比洞庭湖、东湖、太

湖低,比东太湖、鄱阳湖、洪泽湖和南四湖高;而西 北湖湾 F_t 远高于东部平原湖区的多数湖泊,但低于 洞庭湖(表 3).这可能是因为洞庭湖的研究时间在夏 季,并且正处洪水期,地表径流携带大量有机质进入该采样区域^[16],并且季节性淹水会使植被覆盖的湿地 CH_4 排放量升高^[42].巢湖西湖心和中湖心 F_d 与太湖和洞庭湖的研究结果相一致,但西北湖湾比太湖与洞庭湖高出 1 个数量级.

与国外湖泊相比,巢湖西湖心和中湖心的 CH4 排放量低于全球平均水平 183μmol/(m²·h),仅与一些 北方寒冷地区的湖泊相当(表 3),比如欧洲北部湖 泊、芬兰的 Vehmasjärvi 湖、Mäkijärvi 湖.而西北湖 湾的 CH4 排放超过了全球平均水平,与温带的 Shingobee 湖、北美的五大湖相当,但远低于一些热 带、亚热带湖泊,比如巴拿马的 Gatun 湖、澳大利亚 的 Little Nerang Dam 以及巴西南部的 Biguás 湖,这 可能是由于水深、地理位置和营养物质有效性的差 异造成的^[43].本研究的结果也表明巢湖 CH4 存在较 大时空异质性,因此在湖泊 CH4 排放通量估算研究 中应该尽可能多地增加采样点位及采样频次,来提 高湖泊甲烷通量估算的可靠性.

4 结论

- 4.1 巢湖 3 个研究点位 $C_{\rm w}$ 含量分别为(0.178±0.002)~(1.123±0.026),(0.098±0.000)~(0.376±0.023), (0.060±0.005)~(0.221±0.009) μ mol/L,西北湖湾 $C_{\rm w}$ 显著高于西湖心和中湖心;沉积物中 CH_4 亦表现为西北湖湾整体水平较高,水体与沉积物中 CH_4 含量与水体营养盐水平、Chl a 含量整体一致.
- 4.2 巢湖西北湖湾、西湖心和中湖心的 F_t 分别为 (50.1 ± 2.93) ~ (1232 ± 28.6) , (2.49 ± 0.207) ~ (51.9 ± 18.4) , (3.66 ± 0.597) ~ (50.1 ± 2.93) µmol/ $(m^2 \cdot h)$,巢湖 CH_4 排放通量呈现出显著的时空异质性,夏季和春季通量显著高于秋季和冬季;西北湖湾 F_t 显著高于西湖心和中湖心,表现为巢湖 CH_4 排放的热点区域. 4.3 3 个点位 CH_4 排放以冒泡排放为主,西北湖湾、西湖心和中湖心 F_e 分别占 F_t 的 92.7%、57.1 %、73.6%;夏季冒泡排放对 F_t 贡献比例最大,高达

参考文献:

98.1%.

- Battin T J, Luyssaert S, Kaplan L A, et al. The boundless carbon cycle
 Nature Geoscience, 2009,2(9):598-600.
- [2] Crowe S A, Katsev S, Leslie K, et al. The methane cycle in ferruginous Lake Matano [J]. Geobiology, 2011,9(1):59–69.

- [3] Bretz K A, Whalen S C. Methane cycling dynamics in sediments of Alaskan Arctic Foothill lakes [J]. Inland Waters, 2014,4(1):65-78.
- [4] 李玲玲,薛 滨,姚书春.湖泊沉积物甲烷的产生和氧化研究的意义 及应用 [J]. 矿物岩石地球化学通报, 2016,35(4):634-645. Li L, Xue B, Yao S. The significance and application of the research on production and oxidation of methane in lake sediments [J]. Bulletin of Mineralogy, Petrology and Geochemistry, 2016,35(4):634-645.
- [5] Verpoorter C, Kutser T, Seekell D A, et al. A global inventory of lakes based on high-resolution satellite imagery [J]. Geophysical Research Letters, 2014,41(18):6396-6402.
- [6] Bastviken D, Tranvik L J, Downing J A, et al. Freshwater methane emissions offset the continental carbon sink [J]. Science, 2011, 331(6013):50.
- [7] Yan X, Xu X, Ji M, et al. Cyanobacteria blooms: A neglected facilitator of CH₄ production in eutrophic lakes [J]. Sci. Total Environ., 2019,651(Pt 1):466-474.
- [8] 胡万婷,唐 千,孙 伟等.水体中蓝藻水华分解产甲烷动态过程研究 [J]. 中国环境科学, 2017,37(2):702-710.
 Hu W, Tang Q, Sun W, et al. Dissolved methane dynamics during the degradation of organic matter derived from cyanobacterial bloom [J]. China Environmental Science, 2017,37(2):702-710.
- [9] Segers R. Methane production and methane consumption: a review of processes underlying wetland methane fluxes [J]. Biogeochemistry, 1998,41(1):23-51.
- [10] Xing Y, Xie P, Yang H, et al. Methane and carbon dioxide fluxes from a shallow hypereutrophic subtropical Lake in China [J]. Atmospheric Environment, 2005,39(30):5532-5540.
- [11] 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.
- [12] West W E, Coloso J J, Jones S E. Effects of algal and terrestrial carbon on methane production rates and methanogen community structure in a temperate lake sediment [J]. Freshwater Biology, 2012,57(5):949–955.
- [13] Zhou Y, Song K, Han R, et al. Nonlinear response of methane release to increased trophic state levels coupled with microbial processes in shallow lakes [J]. Environ. Pollut, 2020,265(Pt B):114919.
- [14] Gu B H, Schelske C L, Hodell D A. Extreme 13C enrichments in a shallow hypereutrophic lake: Implications for carbon cycling [J]. Limnology and Oceanography, 2004,49(4):1152–1159.
- [15] 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):1–12.
- [16] 任艺洁,邓正苗,谢永宏,等.洞庭湖湿地洪水期甲烷扩散和冒泡排放 通量估算及水环境影响分析 [J]. 湖泊科学, 2019,31(4):1075-1087. Ren Y, Deng Z, Xie Y, et al. Estimation of methane diffusion and ebulltion flux and water environmental controls during flooding period in Lake Dongting wetlands [J]. Lake Sciences, 2019,1(4):1075-1087.
- [17] Liu L, Xu M, Lin M, et al. Spatial variability of greenhouse gas effluxes and their controlling factors in the Poyang Lake in China [J]. Polish Journal of Environmental Studies, 2013,22(3):749-758.
- [18] Wik M, Varner R K, Anthony K W, et al. Climate-sensitive northern lakes and ponds are critical components of methane release [J]. Nature Geoscience, 2016,9(2):99–106.
- [19] Juutinen S, Alm J, Martikainen P, et al. Effects of spring flood and water level draw-down on methane dynamics in the littoral zone of boreal lakes [J]. Freshwater Biology, 2001,46(7):855–869.
- (C)1994-2021 China Academic Journal Electronic Publishing House. All rights reserved. http://www.cnki.net

- [20] 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):222-229.
- [21] Sanches L F, Guenet B, Marinho C C, et al. Global regulation of methane emission from natural lakes [J]. Sci. Rep., 2019,9(1):255.
- [22] 杨桂山,马荣华,张 路,等.中国湖泊现状及面临的重大问题与保护 策略 [J]. 湖泊科学, 2010,22(6):799-810.
 - Yang G, Ma R, Zhang L, et al. Lake status, major problems and protection strategy in China [J]. Lake Sciences, 2010,22(6):799-810.
- [23] 张 民,孔繁翔.巢湖富营养化的历程、空间分布与治理策略 (1984~2013 年) [J]. 湖泊科学, 2015,27(5):791-798. Zhang M, Kong F. The process,spatial and temporal distributions and mitigation strategies of the eutrophication of Lake Chaohu(1984~2013) [J]. Lake Sciences, 2015,27(5):791-798.
- [24] 安徽省巢湖管理局.2019 巢湖健康状况报告 [R]. 合肥:安徽省巢湖管理局,2020.
- [25] 国家环境保护总局,水和废水监测分析方法编委会.水和废水监测分析方法 [M]. 北京:中国环境出版集团, 2002:1-748.

 State Environmental Protection Administration of China. Methods for monitoring and analysis of water and wastewater (fourth edition) [M]. Beijing: China Environmental Science Press, 2002,1-784.
- [26] 金相灿,屠清瑛,湖泊富营养化调查规范(第二版) [M]. 北京:中国环境科学出版社, 1990:219-224.
- [27] Zhang L, Liao Q, Gao R, et al. Spatial variations in diffusive methane fluxes and the role of eutrophication in a subtropical shallow lake [J]. Sci. Total Environ., 2020:143495.
- [28] Wanninkhof R. Relationship between wind speed and gas exchange over the ocean [J]. Journal of Geophysical Research, 1992,97(C5): 7373-7382
- [29] Crusius J, Wanninkhof R. Gas transfer velocities measured at low wind speed over a lake [J]. Limnology and Oceanography, 2003, 48(3):1010-1017.
- [30] Zhang L, Xia X, Liu S, et al. Significant methane ebullition from alpine permafrost rivers on the East Qinghai–Tibet Plateau [J]. Nature Geoscience, 2020,13(5):349–354.
- [31] Wanninkhof R. Relationship between wind speed and gas exchange over the ocean revisited [J]. Limnology and Oceanography: Methods, 2014,12(6):351–362.
- [32] Miao Y, Huang J, Duan H, et al. Spatial and seasonal variability of nitrous oxide in a large freshwater lake in the lower reaches of the Yangtze River, China [J]. Sci. Total Environ., 2020,721:137716.
- [33] Zhou Y, Zhou L, Zhang Y, et al. Autochthonous dissolved organic matter potentially fuels methane ebullition from experimental lakes [J]. Water Res., 2019,166:115048.
- [34] Xiao Q, Zhang M, Hu Z, 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.
- [35] 闫兴成,张重乾,季 铭,等.富营养化湖泊夏季表层水体温室气体浓度及其影响因素 [J]. 湖泊科学, 2018,30(5):1420-1428.

 Yan X, Zhang C, Li M, et al. Concentration of dissolved greenhouse gas and its influence factors in the summer surface water of eutrophic lake [J]. Lake Sciences, 2018,30(5):1420-1428.
- [36] Yvon-Durocher G, Allen A P, Bastviken D, et al. Methane fluxes show consistent temperature dependence across microbial to ecosystem scales [J]. Nature, 2014,507(7493):488-491.
- [37] Wik M, Johnson J E, Crill P M, et al. Sediment characteristics and

- methane ebullition in three subarctic lakes [J]. Journal of Geophysical Research: Biogeosciences, 2018,123(8):2399-3411.
- [38] Sturm K, Yuan Z, Gibbes B, et al. Methane and nitrous oxide sources and emissions in a subtropical freshwater reservoir, South East Queensland, Australia [J]. Biogeosciences, 2014,11(18):5245–5258.
- [39] 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, 2013,454:457-565.
- [40] 邢阳平.长江中下游地区淡水湖泊水-气界面碳交换及机制研究 [D]. 武汉:中国科学院水生生物研究所, 2006.

 Xing Y. Studies on carbon exchange and mechanism at air—water interface in freshwater lakes along the middle and lower reaches of Yangtze River [D]. Wuhan: Chinese Academy of Sciences Institute of Hydrobiology, 2006.
- [41] 陈永根,白晓华,李香华,等.中国 8 大湖泊冬季水-气界面甲烷通量初步研究 [J]. 湖泊科学, 2007,(1):11-17.

 Chen Y, Bai X, Li X, et al. A primary study of the methane flux on the water-air interface of eight lakes in winter, China [J]. Lake Sciences, 2007,19(1):11-17.
- [42] 郭 佳,晁碧霄,张 颖,等.西洞庭湖季节性淹水和植被类型对温室 气体排放通量的影响 [J]. 湖泊科学, 2020,32(3):726-734.

 Guo J, Chao B, Zhang Y, et al. Effects of seasonal flooding and vegetation types on greenhouse gas emission in west Lake Dongting [J]. Lake Sciences, 2020,32(3):726-734.
- [43] Kumar A, Yang T, Sharma M P. Greenhouse gas measurement from Chinese freshwater bodies: Areview [J]. Journal of Cleaner Production, 2019.233:368–378.
- [44] 张 佩,王晓锋,袁兴中.中国淡水生态系统甲烷排放基本特征及研究进展 [J]. 中国环境科学, 2020,40(8):3567-3579.

 Zhang P, Wang X, Yuan X. General characteristics and research progress of methane emissions from freshwater ecosystems in China [J]. China Environmental Science, 2020,40(8):3567-3579.
- [45] 王佳佳,弓晓峰,李志龙,等.不同季节鄱阳湖湿地的甲烷排放通量
 [J]. 南昌大学学报(理科版), 2015,39(3):286-295.

 Wang J, Gong X, Li Z, et al. Seleium deposition regularity with different forms of selenium in rat tissues [J]. Journal of Nanchang University (Natural Science), 2015,39(3):286-295.
- [46] Rinta P, Bastviken D, Schilder J, et al. Higher late summer methane emission from central than northern European lakes [J]. Journal of Limnology, 2016,76(1):52–67.
- [47] Grinham A, Dunbabin M, Albert S. Importance of sediment organic matter to methane ebullition in a sub-tropical freshwater reservoir [J]. Sci. Total Environ., 2018,621:1199–1207.
- [48] Palma–Silva C, Marinho C C, Albertoni E F, et al. Methane emissions in two small shallow neotropical lakes: The role of temperature and trophic level [J]. Atmospheric Environment, 2013,81:373–379.
- [49] Li S, Bush R T, Santos I R, et al. Large greenhouse gases emissions from China's lakes and reservoirs [J]. Water Research, 2018,147: 13-24.

致谢: 本研究在采样、实验过程中得到等周绍宇、王亦奇、朱利钊等同学的支持与帮助,以及王兆德、刘成和申秋实老师对本文给出了修改建议,在此一并感谢.

作者简介:何 凯(1995-),男,安徽阜阳人,安徽大学资源与环境工程学院硕士研究生,研究方向为环境生物地球化学.发表论文 2 篇.