

太湖竺山湾甲烷扩散通量及其驱动机制

刘臻婧^{1,2}, 肖启涛^{2*}, 胡正华^{1**}, 张 弥³, 王 伟³, 肖 薇³ (1.南京信息工程大学应用气象学院, 江苏 南京 210044; 2.中国科学院南京地理与湖泊研究所, 中国科学院流域地理学重点实验室, 江苏 南京 210008; 3.南京信息工程大学大气环境中

摘要: 选取竺山湾为研究区域, 同时选取受人为活动影响较小的湖心区作为对比区域, 基于 2011 年 11 月至 2013 年 8 月逐月连续观测, 探讨外源输入及富营养化对 CH_4 扩散通量的影响及其驱动机制。结果表明, 竺山湾水-气界面 CH_4 扩散通量显著 ($P<0.01$) 高于湖心区 CH_4 扩散通量, 其平均通量分别为 $(0.193 \pm 0.049) \text{ mmol}/(\text{m}^2 \cdot \text{d})$ 和 $(0.024 \pm 0.005) \text{ mmol}/(\text{m}^2 \cdot \text{d})$ 。同时, 竺山湾湖区不同点位间 CH_4 扩散通量也表现出明显差异, 位于河流入湖口附近点位的 CH_4 扩散通量显著 ($P<0.01$) 偏高。逐月观测表明湖心区 CH_4 扩散通量具有明显的时间变化特征, 且与水温表现出显著正相关关系 ($R^2=0.53, P<0.01$), 但竺山湾无此结果。另外, 入湖河流 CH_4 溶存浓度与竺山湾 CH_4 溶存浓度及其扩散通量呈显著正相关关系 (浓度: $R^2=0.75, P<0.05$; 通量: $R^2=0.64, P<0.05$)。考虑到入湖河流具有较高的 CH_4 溶存浓度和污染负荷, 河流外源输入可能弱化了竺山湾 CH_4 通量对温度的依赖性, 并导致富营养化的竺山湾是大气 CH_4 的“热点”排放源。

关键词: 富营养化湖区; CH_4 扩散通量; 时间变化; 空间变化; 外源输入

中图分类号: X52 **文献标识码:** A **文章编号:** 1000-6923(2022)01-0393-09

Methane diffusion flux and its driving factors in Zhushan Bay of Lake Taihu. LIU Zhen-jing^{1,2}, XIAO Qi-tao^{2*}, HU Zheng-hua^{1**}, ZHANG Mi³, WANG Wei³, XIAO Wei³ (1.School of Applied Meteorology, Nanjing University of Information Science and Technology, Nanjing 210044, China; 2.Key Laboratory of Watershed Geographic Science, Nanjing Institute of Geography and Limnology, Chinese Academy of Sciences, Nanjing 210008, China; 3.Yale-NUIST Center on Atmospheric Environment, Nanjing University of Information Science and Technology, Nanjing 210044, China). *China Environmental Science*, 2022,42(1): 393~401

Abstract: To identify the influence of input of pollutants and eutrophication on the temporal and spatial variations of the CH_4 diffusion flux, monthly field measurements of CH_4 flux was conducted in Zhushan Bay from November 2011 to August 2013. For comparison, the CH_4 flux in the Central Zone of the lake with less impact from human activities was also determined. Results showed that the CH_4 diffusion flux in Zhushan Bay with a mean value of $(0.193 \pm 0.049) \text{ mmol}/(\text{m}^2 \cdot \text{d})$ was significantly ($P<0.01$) higher than that $((0.024 \pm 0.005) \text{ mmol}/(\text{m}^2 \cdot \text{d}))$ in the Central Zone. Meanwhile, the highest CH_4 flux occurred at the sampling site with river discharge in Zhushan Bay. Further, the CH_4 diffusion flux in the Central Zone showed apparent temporal variation, and the flux was positively correlated with water temperature ($R^2=0.53, P<0.01$). However, the CH_4 flux showed a poor correlation with water temperature in Zhushan Bay ($P>0.05$). In addition, both the dissolved CH_4 concentration and CH_4 flux in Zhushan Bay were positively correlated with the dissolved CH_4 concentration in the inflowing river (concentration: $R^2=0.75, P<0.05$; flux: $R^2=0.64, P<0.05$). The results indicated that the external input of pollutants might weaken the effect of temperature on CH_4 flux in Zhushan Bay, leading to the eutrophic Zhushan Bay being a significant source of atmospheric CH_4 .

Key words: eutrophic lake; methane diffusion flux; temporal variation; spatial variation; external input

甲烷(CH_4)是重要的大气温室气体, CH_4 浓度持续增加对预测未来气候变化情形带来了不确定性^[1]。在众多大气 CH_4 排放源中, 湖泊等自然源的作用不可忽视, 湖泊等内陆水体 CH_4 的排放量可抵消掉陆地生态系统碳汇的 25%, 显著影响全球温室气体的收支估算^[2]。最新一项研究表明全球 CH_4 排放量有接近一半来自于湖泊等内陆水体^[3]。此外, 水体 CH_4 排放对气候变化特别敏感, 全球气温升高可显著促进湖泊等内陆水体 CH_4 的排放^[4]。目前研究发现近些年大气 CH_4 浓度的增长速率具有明显加强的趋势,

但导致 CH_4 浓度再次增加的原因还不甚清晰^[1]。考虑到湖泊等水体 CH_4 排放对气候变化的响应, CH_4 排放强度及其变化趋势对全球大气 CH_4 浓度的快速升高可能具有重要贡献^[5-6]。因此, 加强湖泊水体 CH_4 扩散通量研究对全球碳收支估算及气候变化预测具有重要的科学价值。

收稿日期: 2021-05-26

基金项目: 国家自然科学基金资助项目(41801093); 中国科学院南京地理与湖泊研究所引进人才启动项目(NIGLAS2019QD007)

* 责任作者, 肖启涛, 助理研究员, qtxiao@niglas.ac.cn; 胡正华, 教授, zhhu@nuist.edu.cn

目前,国内外学者对湖泊等淡水生态系统碳循环进行了相关研究^[7-9,18],但是,由于影响CH₄产生和排放的因素较多,准确评估内陆湖泊CH₄排放仍存在一定的挑战^[10-11].外源污染物富集导致的水体富营养化是当前湖泊生态系统面临的主要问题^[12-13],相关研究表明富营养化湖泊较高的初级生产力为CH₄的产生提供基质,可显著提高CH₄排放量^[12,14-15].同时,相关研究也表明外源输入也可提高湖泊CH₄排放量^[16-17].例如Natchimuthu等^[19]对瑞典湖泊CH₄通量的时空变异研究中发现溪流汇入的湖区CH₄通量比全湖平均水平高1.3倍;Murase等^[20]分析了日本Biwa湖泊CH₄来源时发现河流输入是湖泊CH₄的主要来源.

太湖是我国第三大淡水湖泊,同时也是典型的富营养化湖泊,其中位于太湖西北角的竺山湾,因与太湖主要的入湖河流(殷村港、太浦运河)连通,受外源污染物输入影响显著,也是太湖较为严重的富营养化湖区.本研究通过对竺山湾进行长期连续(2011年11月至2013年8月)的逐月CH₄通量观测,同时选取受人为活动影响较低的湖心区作为对比区域,探讨外源输入及富营养化对湖泊CH₄扩散通量的影响,为深入了解富营养化湖区CH₄排放动态提供重要的数据支撑和理论依据.

1 材料与方法

1.1 研究区域

太湖水体面积约为2400km²,位于长江三角洲区域,地处亚热带湿润季风区,平均水深为1.9m,年平均气温16.2℃,年均降水量1120mm^[21].根据富营养化程度和污染类型等可将太湖分为不同的湖区^[14],其中竺山湾通过入湖河流接收大量外源污染物,是严重富营养化区域,而湖心区位于太湖中部,受人类活动影响较小.本研究选取竺山湾和湖心区作为研究区域,在2个湖区分别设置2个采样点(图1).竺山湾湖区的采样点为站点1和站点2,湖心区的采样点为站点3和站点4.在2011年11月至2013年8月对2个区域的4个观测点进行水样采集,采样频次为每月1次,采样时间固定为每月中旬.另外,在2012年11月至2013年5月每次野外调查时,在太湖主要入湖河流-殷村港采集水样,用于水体CH₄溶存浓度分析.殷村港是太湖西岸的主要入湖河流之一,平均年径流量达11亿m³,据估算,殷村港所携带的污染物

占太湖入湖负荷的20.1%^[22].

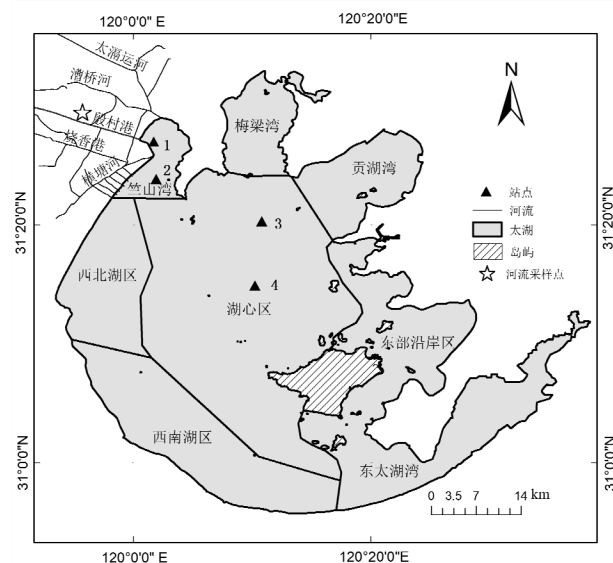


图1 太湖分区、研究区域、河流采样点示意

Fig.1 Location of sampling sites, seven biological zones and a river sampling site in Lake Taihu

1.2 CH₄水样采集

在各样点位置采样时保证水面无扰动,用待测湖水将玻璃瓶清洗2~3次后,采取水表以下20cm处的水样装入300mL的玻璃瓶中,立即用丁基胶塞密封.为了防止气体溢出,将瓶塞和玻璃瓶的接口用封口膜密封.采集的水样放置于保温箱中保存(保存温度为4℃),再将样品送入实验室进行分析和处理.

水样运回实验室后每个样品均用100mL高纯氮气(摩尔分数>99.999%)顶空,顶空完成后将水样剧烈振荡5min,待CH₄气体在玻璃瓶中的气相(顶空的部分)和液相(剩余的液体)达到动态平衡,使用带有三通阀的注射器从瓶中抽取CH₄气体,再通过气相色谱仪测量其浓度.水体CH₄的原始溶解浓度(C_w ,nmol/L)通过顶空平衡法计算得到^[23].

基于野外采样获取的水体溶存CH₄浓度,本研究利用传质系数法计算湖泊水-气界面的CH₄扩散通量(F_m ,mmol/(m²·d)):

$$F_m = k \times (C_w - C_{eq}) \quad (1)$$

式中: C_w 为水体CH₄溶存浓度,由顶空平衡法计算得到, C_{eq} 为特定温度下水体表面CH₄气体与大气中CH₄气体达到平衡时的浓度,nmol/L; k 是水-气界面CH₄气体的交换系数.考虑到在大型湖泊中, k 值主要受风力驱动^[24],因此本研究基于观测的风速计算水-气界面CH₄气体交换速率,计算公式为^[25]:

$$k = \left(2.07 + 0.215U_{10}^{1.7} \right) \left(\frac{S_c}{600} \right)^{-n} \quad (2)$$

式中: U_{10} 为 10m 高度处的风速(m/s); n 是与风速相关的系数, $U_{10} > 3.7\text{m/s}$, $n=0.5$, $U_{10} < 3.7\text{m/s}$, $n=2/3$. S_c 是无量纲 CH_4 气体的施密特数^[26], 计算公式为:

$$S_c = 1897.8 - 114.28t + 3.2902t^2 - 0.039061t^3 \quad (3)$$

式中: t 为表层水体的温度, $^{\circ}\text{C}$. 本研究中水-气界面 CH_4 交换通量(F_m)为正值时表示水体为大气 CH_4 的排放源.

1.3 辅助环境变量

在野外调查中,通过多参数水质监测仪原位测量水温(T_w)、pH 值、溶解氧(DO)浓度和电导率(S_{pc})等.另外,采集水样分析水体营养盐浓度(铵态氮、硝酸盐氮、总氮和总磷)、溶解有机碳浓度(DOC)和叶绿素 a(Chl-a)浓度等.其中,水体铵态氮($\text{NH}_4^+\text{-N}$)浓度采用纳氏试剂光度法;硝酸盐氮($\text{NO}_3^-\text{-N}$)浓度的测定通过流动分析仪分析得到;总氮(TN)浓度采用过硫酸钾消解紫外分光光度法测定;总磷(TP)浓度采用过硫酸钾消解钼酸铵分光光度法测定;溶解性有机碳(DOC)通过 Whatman GF/F 滤膜过滤后用总有机碳分析仪测定 DOC 浓度;Chl-a 浓度用 90%热乙醇萃取分光光度法测定.本研究中的水化学数据由国家生态观测网络太湖湖泊生态系统研究站提供.每月降水量和出入湖水量数据由水利部太湖流域管理局水文局水情月报提供.另外,通过太湖中尺度通量网的观测站点^[23]获取风速等气象数据.

1.4 数据分析

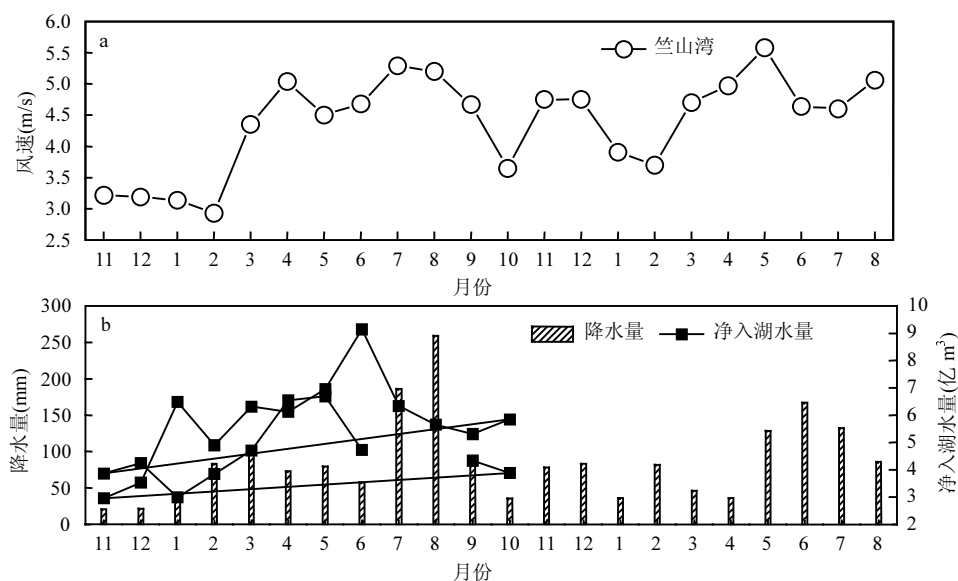
本研究对观测和计算出的实验数据分站点,分

湖区(竺山湾和湖心区),分季节(3~5 月为春季,6~8 月为夏季,9~11 月为秋季,12~次年 2 月为冬季)进行分析.在 CH_4 通量的时间变化特征及其控制因子分析中,分别将竺山湾和湖心区 2 个站点的观测数据求平均,然后明晰其变化趋势.数据的统计分析使用 SPSS 22.0 中的相关分析(Pearson correlations)方法分析数据之间的相关系数.采用单因素方差分析(One-Way ANOVA)方法分析数据之间的差异性,使用最小显著性差异法(LSD)方法检验差异性是否显著, $P < 0.05$ 为显著性水平, $P < 0.01$ 为极显著性水平.采用逐步多元回归方法分析影响 CH_4 扩散通量时空变化的主要控制因子.数据的绘图采用 Origin 2021.

2 结果与分析

2.1 环境变量特征

竺山湾风速(图 2a)具有显著的季节变化特征,春、夏、秋、冬 4 个季节风速的平均值为 4.8, 4.9, 4.1, 3.6m/s. 夏季风速显著($P < 0.01$)高于秋季和冬季.竺山湾降水量(图 2b)同样显示出明显的时间变化,季节尺度上具有显著性差异,4 个季节的平均降水量分别为 78.3, 148.1, 54.0, 57.7mm,夏季降水量显著($P < 0.05$)偏高.由太湖水情月报可知(图 2b),在 2011 年 11 月至 2013 年 8 月,竺山湾等湖西区总入湖水量为 116.5 亿 m^3 ,总出湖水量为 1.1 亿 m^3 .净入湖水量最大值出现在 2012 年 8 月(9.1 亿 m^3),最小值出现在 2012 年 1 月(3.0 亿 m^3).夏季净入湖水量显著($P < 0.05$)高于春季和冬季的净入湖水量.降雨量驱动净入湖水量变化($R^2=0.61$, $P < 0.01$).



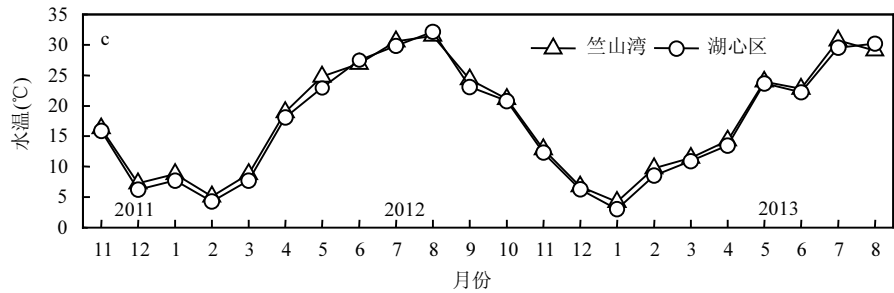


图 2 观测期间 2 个湖区风速、降水量、净入湖水量和水温的逐月变化
Fig.2 Monthly variation of wind speed, precipitation, net inflowing water and water temperature in the Central Zone and Zhushan Bay of Lake Taihu during sampling period

已有研究发现,太湖各区域水温在空间尺度上无显著性差异,但在时间尺度上具有显著性差异^[14,23].本研究实验结果同以往研究结果一致(图 2c),在湖心区,年均水温为 17.1℃,在竺山湾,年均水温为 17.7℃.竺山湾和湖心区的最高水温分别为 28.6 和 28.5℃,均出现在夏季,最低水温分别为 7.0 和 6.6℃,均出现在冬季,具有显著的季节变化特征.

从表 1 中可知,竺山湾 1 号点的 DO、水深显

著($P<0.01$)低于其他 3 个站点,而 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 浓度显著($P<0.01$)高于 2、3、4 号点.竺山湾 2 号点的 Chl-a 浓度显著($P<0.05$)高于其他 3 个站点.湖心区 3 号点与 4 号点之间的指标差异不显著($P>0.05$).将同一湖区的 2 个观测点的指标取平均值可发现,竺山湾的 DO、水深显著($P<0.01$)低于湖心区,而 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 、TN、TP、DOC($P<0.01$), $\text{NO}_3^-\text{-N}$ 显著($P<0.05$)高于湖心区.

表 1 观测期间(2011 年 11 月到 2013 年 8 月)不同站点的基本生化特征
Table 1 Basic bio-chemical properties of the Central Zone and Zhunshan Bay of Lake Taihu

研究区域	站点	DO (mg/L)	$\text{NO}_3^-\text{-N}$ (mg/L)	$\text{NH}_4^+\text{-N}$ (mg/L)	TN (mg/L)	TP (mg/L)	DOC (mg/L)	Chl-a ($\mu\text{g/L}$)	水深 (m)	pH 值
竺山湾	1	7.00 ± 1.95	1.33 ± 0.69	1.83 ± 1.17	5.30 ± 1.50	0.26 ± 0.07	5.02 ± 1.26	22.65 ± 22.35	1.93 ± 0.25	8.19 ± 0.26
	2	9.08 ± 1.48	1.28 ± 0.68	1.26 ± 1.08	5.26 ± 1.91	0.28 ± 0.23	5.01 ± 1.14	47.31 ± 80.48	2.33 ± 0.19	8.31 ± 0.37
	区域均值	8.04 ± 1.43	1.31 ± 0.61	1.55 ± 1.09	5.28 ± 1.42	0.27 ± 0.13	5.02 ± 1.06	34.98 ± 48.55	2.13 ± 0.21	8.25 ± 0.30
湖心区	3	9.38 ± 1.66	0.79 ± 0.59	0.40 ± 0.27	2.56 ± 1.11	0.15 ± 0.18	4.13 ± 1.09	16.08 ± 16.54	2.62 ± 0.39	8.27 ± 0.27
	4	9.49 ± 1.41	0.94 ± 0.79	0.44 ± 0.43	2.69 ± 1.46	0.10 ± 0.05	4.17 ± 0.16	12.28 ± 10.84	2.56 ± 0.23	8.27 ± 0.25
	区域均值	9.44 ± 1.50	0.86 ± 0.64	0.42 ± 0.34	2.62 ± 1.25	0.12 ± 0.11	4.14 ± 0.75	14.18 ± 12.67	2.59 ± 0.24	8.27 ± 0.24

注:表格中数据为平均值±标准偏差.

2.2 CH_4 扩散通量的空间变化

从图 3 中可看出,4 个站点 CH_4 扩散通量的均值分别为 (0.281 ± 0.076) , (0.105 ± 0.040) , (0.022 ± 0.004) , $(0.022\pm 0.006)\text{mmol}/(\text{m}^2\cdot\text{d})$,竺山湾 1 号站点的 CH_4 扩散通量显著($P<0.01$)高于其他 3 个站点.将同一湖区的 2 个站点的 CH_4 扩散通量比较发现,竺山湾的 2 个站点之间 CH_4 扩散通量具有极显著性($P<0.01$)差异,而湖心区的 2 个站点之间 CH_4 扩散通量无显著性($P>0.05$)差异.在区域水平上,竺山湾的 CH_4 扩散通量的平均值为 $(0.193\pm 0.049)\text{mmol}/(\text{m}^2\cdot\text{d})$,湖心区 CH_4 扩散通量的平均值为 $(0.024\pm 0.005)\text{mmol}/(\text{m}^2\cdot\text{d})$,2 个湖区的 CH_4 扩散通量具有显著性差异($P<0.01$).

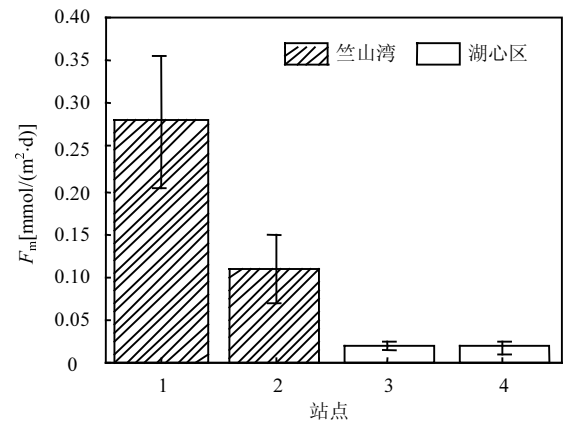


图 3 不同站点 CH_4 扩散通量的空间变化
Fig.3 Spatial variations of CH_4 diffusion flux in different sites of Lake Taihu
误差线为标准误差

2.3 CH₄ 扩散通量的时间变化

如图 4 所示,在竺山湾,CH₄ 扩散通量的最高值为 0.921mmol/(m²·d),出现在 2013 年 1 月,最低值为 0.022mmol/(m²·d),出现在 2013 年 3 月.春、夏、秋、冬 4 个季节 CH₄ 扩散通量的平均值分别为 0.127, 0.251, 0.181, 0.215mmol/(m²·d),表现为夏季>冬季>

秋季>春季.在湖心区,CH₄ 扩散通量的最高值为 0.088mmol/(m²·d),出现在夏季(2013 年 8 月),最低值为 0.001mmol/(m²·d),出现在冬季(2012 年 1 月).春、夏、秋、冬 4 个季节 CH₄ 扩散通量的平均值分别为 0.011, 0.049, 0.035, 0.006mmol/(m²·d),夏季 CH₄ 扩散通量显著($P<0.01$)高于春季和冬季的 CH₄ 扩散通量.

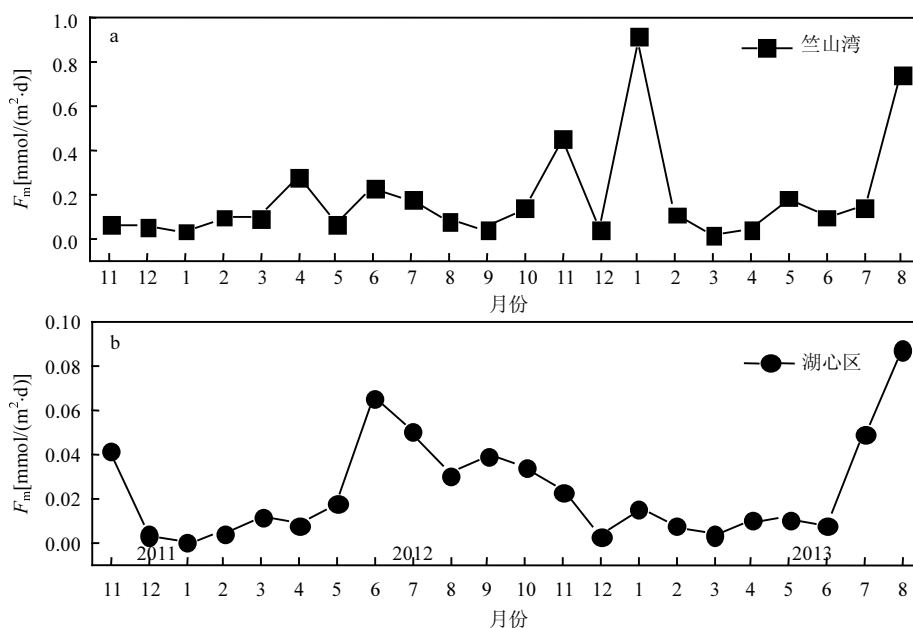


图 4 观测期间 2 个湖区 CH₄ 扩散通量的逐月变化特征

Fig.4 Temporal variation of CH₄ diffusion flux from November 2011 to August 2013 in Zhushan Bay and the Central Zone of Lake Taihu

图中数据为竺山湾 2 个观测点及湖心区 2 个观测点 CH₄ 扩散通量的月平均值

2.4 CH₄ 扩散通量的影响因子

将 2 个区域不同站点的 CH₄ 扩散通量求算术平均值后,与环境变量进行拟合,分析 CH₄ 扩散通量与环境变量的时间相关性.结果表明水温与湖心区 CH₄ 扩散通量呈现显著正相关关系($R^2=0.53, P<0.01$; 图 5a),水温控制 53%CH₄ 扩散通量的时间变化,是影响 CH₄ 扩散通量的重要环境因子.但在竺山湾区域,水温与 CH₄ 扩散通量相关性不显著($P=0.14$;图 5b),水温可能不是直接影响 CH₄ 扩散通量变化的主要驱动因子.

从表 2 中可知,竺山湾 1 号点的 CH₄ 扩散通量与水体理化指标均无显著相关性.但竺山湾 2 号点的 CH₄ 扩散通量变化主要与 DOC 浓度有关.在湖心区域,3 号点的 CH₄ 扩散通量与 NO₃⁻-N 和 TN 浓度呈显著负相关.而 4 号点的 CH₄ 扩散通量与 Chl-a 浓度呈极显著正相关,与 NO₃⁻-N 浓度呈极显著负相关,

其次是 TN 和 DO 浓度.将同一湖区的 2 个观测点的 CH₄ 扩散通量取平均值,与水体理化指标进行相关性分析可发现,在竺山湾,CH₄ 扩散通量与水体理化参数的相关性不显著.在湖心区,CH₄ 扩散通量主要与 NO₃⁻-N 和 TN 浓度呈极显著负相关,其次是 DO 浓度,与 Chl-a 浓度呈显著正相关.同时,将两个区域的 CH₄ 扩散通量与水体理化指标进行逐步多元回归发现,水温、溶解氧(DO)共同控制湖心区 63%CH₄ 扩散通量的时间变化($R^2=0.63, P<0.01$).但竺山湾无主要控制因子.

殷村港是太湖西部区重要的入湖河道.基于 2012 年 11 月至 2013 年 5 月殷村港入湖河流 CH₄ 浓度季度数据表明,殷村港 CH₄ 浓度驱动竺山湾 CH₄ 浓度的时间变化,呈显著正相关($R^2=0.75, P<0.05$; 图 6a).殷村港 CH₄ 浓度与竺山湾 CH₄ 通量同样具有显著正相关关系($R^2=0.64, P<0.05$;图 6b).观测结果表

明河流CH₄外源输入是影响竺山湾CH₄排放的重要 因子.

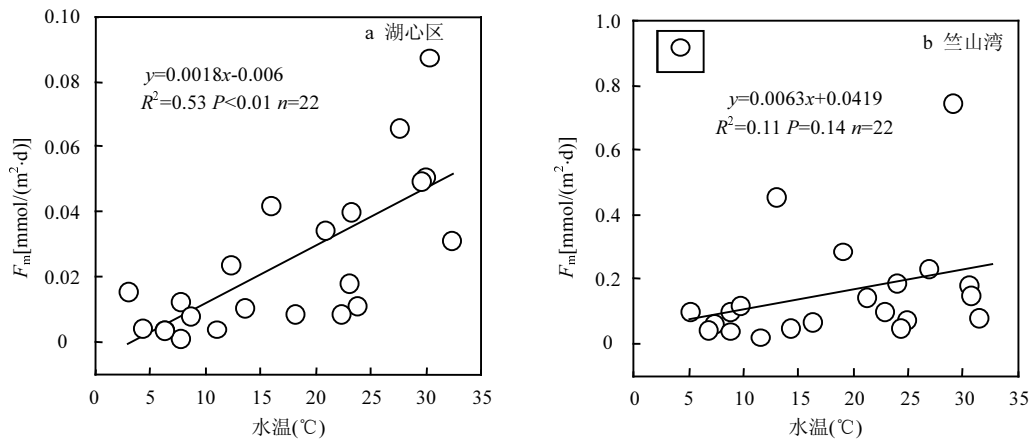


图5 2个湖区CH₄扩散通量与水温的时间相关性

Fig.5 Temporal correlation between CH₄ diffusion flux and water temperature in the Central Zone and Zhushan Bay of Lake Taihu
方框中的数值为2013年1月的数据,为极高值,不进行拟合

表2 2个区域CH₄扩散通量与水体理化指标的时间相关性

Table 2 Pearson correlations between CH₄ diffusion flux and physical-biological-chemical factors in the Central Zone and Zhushan Bay of Lake Taihu

研究区域	站点	DO	Chl-a	NO ₃ ⁻ -N	NH ₄ ⁺ -N	TN	TP	DOC	水深
竺山湾	1	-0.18	-0.07	0.16	0.08	0.22	0.18	0.05	-0.03
	2	-0.34	0.05	-0.31	-0.06	-0.16	0.32	0.46*	-0.35
	区域均值	-0.18	-0.04	0.06	0.06	0.04	0.16	0.15	-0.12
湖心区	3	-0.34	0.28	-0.42*	-0.29	-0.51*	-0.29	0.28	-0.09
	4	-0.39*	0.54**	-0.53**	-0.28	-0.50*	-0.18	0.18	-0.12
	区域均值	-0.43*	0.40*	-0.62**	-0.35	-0.58**	-0.24	0.22	-0.12

注:**表示相关性在0.01水平上显著;*表示相关性在0.05水平上显著.

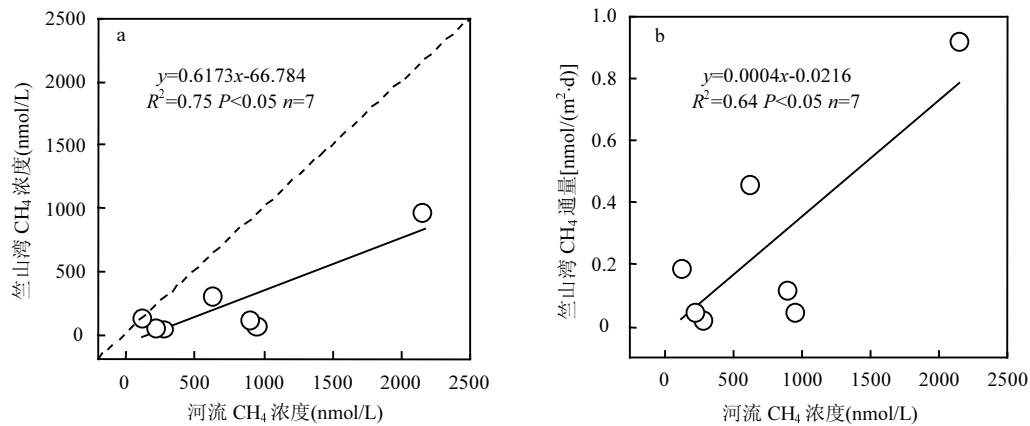


图6 殷村港入湖河流CH₄浓度与竺山湾CH₄浓度及通量的时间相关性

Fig.6 Temporal correlation of CH₄ concentration in Yincun Gang against CH₄ concentration and diffusion flux in Zhushan Bay

3 讨论

3.1 不同区域CH₄通量的对比分析

湖泊等水体CH₄产生、转移、排放是一个复杂的生物地球化学过程.受流域特征和人类活动干扰等影响,湖泊CH₄排放存在空间异质性^[27-28].本研究

表明湖心区和竺山湾 4 个站点的水-气界面 CH_4 扩散通量均为正值,说明其为大气 CH_4 的排放源。但是 4 个站点 CH_4 扩散通量的差异性显著,具有空间变化(图 3)。竺山湾的 CH_4 平均排放量是湖心区 CH_4 平均排放量的 8 倍,其中,位于竺山湾 1 号点的 CH_4 排放量是湖心区 CH_4 排放量的 14 倍(图 3)。造成这种差异的原因可能是由于竺山湾湖区处于富营养化状态,而湖心区处于中营养化^[15]。富营养化湖泊的一大特征是水体中碳、氮、磷等营养物质富集,导致水体初级生产力增加,蓝藻频繁暴发^[13,24]。蓝藻暴发一方面为 CH_4 产生提供丰富的有机质,提高 CH_4 产生量;另一方面蓝藻腐烂分解可消耗水中溶解氧(DO),使湖泊达到缺氧或厌氧的条件,抑制水体 CH_4 氧化,促进湖泊 CH_4 的排放^[30]。相关研究表明,富营养化湖泊的 CH_4 排放速率和 CH_4 排放通量高于贫营养化湖泊^[12,14,17],进一步说明了富营养化对湖泊 CH_4 排放的空间异质性具有重要影响。

竺山湾同一湖区的 2 个站点进行对比发现,1 号点的 CH_4 扩散通量显著高于 2 号点。由于 1 号点位于竺山湾河流入湖口附近,受殷村港等入湖河道外源输入影响(图 1),污染负荷显著偏高(表 1),进而促进 CH_4 产生和排放^[19]。同时,1 号点的水深较浅(表 1), CH_4 在水体中氧化传输距离大大减少,有利于水-气界面 CH_4 的排放^[31]。在湖心区,人为活动干扰影响较小,3 号点和 4 号点的 CH_4 扩散通量差异性不显著。与以往研究结果一致,湖泊内 CH_4 扩散通量的空间变异与水深及离入湖口的距离相关^[19]。

3.2 CH_4 扩散通量时间变化的影响因子

水温是重要的水体物理参数,可通过影响微生物活性间接影响水体 CH_4 的产生和排放。水温升高会刺激微生物活性,增加水体 CH_4 产生速率,从而促进水体向大气释放 CH_4 ^[4,27,32]。受季风气候影响,太湖水温具有显著的季节变化特征(图 2c)。但是在不同湖区,水温对 CH_4 扩散通量的影响程度不同,在湖心区,水温控制 53% CH_4 扩散通量的时间变化,但在竺山湾,统计分析表明水温与 CH_4 扩散通量无显著相关性($P>0.05$,图 5)。因而,水温可能不是 CH_4 扩散通量时间变化的唯一影响因子,应更加综合地考虑多种因子对水体 CH_4 排放的影响。竺山湾位于太湖西北角,入湖河流众多,大量外源负荷的输入可能“复合”温度对竺山湾 CH_4 扩散通量的直接影响^[14,19]。

相关研究也表明大量外源营养物质的输入对浅水湖泊温室气体通量的影响要高于温度对通量的影响^[33]。另外,总体来看竺山湾 CH_4 通量随着温度升高也随之升高(图 5), CH_4 扩散通量的季节均值在夏季处于较高水平(图 4),表明温度可能间接影响 CH_4 排放。同时,分析数据表明竺山湾 2 号点位的 CH_4 通量与 DOC 呈现显著的正相关关系(表 2),DOC 为 CH_4 产生提供底物,温度升高可加快 DOC 降解,提高 CH_4 的产生和排放。因此,温度对富营养化湖区 CH_4 通量的具体调控机制需要进一步明晰。

本研究发现,湖心区 CH_4 扩散通量具有明显的季节变化特征,具体表现为暖季排放量大,冷季排放量低,但竺山湾 CH_4 扩散通量的季节变化不明显,其中最低值和最高值分别出现在 2013 年 3 月和 2013 年 1 月(图 4)。在 2013 年 3 月,竺山湾 CH_4 扩散通量出现最低值的原因可能是由于温度(11.45°C)较低而不利于 CH_4 产生,且较高的 DO 浓度(9.05mg/L)有利于 CH_4 的氧化消耗,而 2013 年 1 月出现极高值可能是由于外源输送提高了湖体 CH_4 的溶存浓度。同步观测数据表明,在 2013 年 1 月竺山湾 CH_4 溶存浓度出现峰值时,入湖河流 CH_4 溶存浓度也出现了峰值(图 6)。另外,相关研究表明富营养化湖泊的高初级生产力促进水体 CH_4 的排放^[12,14-15]。本研究中湖心区的 4 号点及区域均值的 CH_4 扩散通量与表征初级生产力的 Chl-a 具有显著的正相关性,但对于严重富营养化的竺山湾湖区 CH_4 通量与 Chl-a 无显著相关性(表 2)。同时,相关研究发现 DO 是湖泊 CH_4 排放的重要影响因子^[27],本研究发现水温和 DO 共同控制湖心区 63% CH_4 扩散通量的时间变化($R^2=0.63, P<0.01$),但竺山湾无此结果。考虑到竺山湾受人为活动影响强烈,但湖心区域受人为干扰相对较小,因此人类活动可能改变了湖体 CH_4 的排放动态,因此需要考虑多因子的综合调控效应。

3.3 外源输入对竺山湾 CH_4 排放的影响

国内外相关研究^[10,18,35-37]表明外源输入能显著改变内陆水体 CH_4 等温室气体的产生和排放,为准确评估内源和外源对湖泊等内陆水体温室气体排放的相对贡献率,应重点开展外源输入影响下湖泊等水体温室气体排放的特征研究。本研究中殷村港入湖河流 CH_4 浓度与竺山湾 CH_4 浓度及通量具有显著正相关关系(图 6)。相关研究表明世界上大部分河

流水体 CH_4 处于过饱和状态^[34,36],且本研究也表明入湖河流 CH_4 溶存浓度显著($P<0.05$)显著高于湖体 CH_4 溶存浓度(图 6a).因此,入湖河流的汇入可将大量富含 CH_4 的水体带入湖泊,直接提高 CH_4 的排放量.其次,外源输入可将营养盐等负荷带入水体,刺激产生 CH_4 的生物化学过程,提高湖体 CH_4 的内源产生和排放^[19-20].

外源输入可能影响 CH_4 排放的时间变化.诸多研究表明 CH_4 排放的时间变化受水温调节^[4,14,27,36].本研究中湖心区水温与 CH_4 扩散通量呈极显著正相关($R^2=0.53, P<0.01$),且水温和 DO 共同控制湖心区 63% CH_4 扩散通量的时间变化($R^2=0.63, P<0.01$),但这种关系在竺山湾不显著($P>0.05$,图 5).外源输入可能会影响 CH_4 排放对温度的依赖性.因此,为深入理解湖泊等水体温室气体的排放特征,需更综合地考虑外源输入对湖泊等水体温室气体排放的影响.

外源输入可能改变了 CH_4 扩散通量的时间变化,在某一时刻达到 CH_4 排放“热点”.本研究发现尽管竺山湾 CH_4 扩散通量的季节均值在夏季处于较高水平,但在 2013 年冬季调查中(1 月),发现了竺山湾 CH_4 的峰值排放,排放量高达 $0.921\text{mmol}/(\text{m}^2\cdot\text{d})$ (图 4),这与大多数研究指出的湖泊生态系统内 CH_4 扩散通量夏高冬低的模式不一致^[28,32].同时,同步的河道采样发现在竺山湾出现峰值 CH_4 排放时,河道的 CH_4 溶存浓度也相应出现峰值(图 6),进一步表明了河流外源输入对湖泊 CH_4 排放有显著的促进作用,河道 CH_4 的外源输入可能导致本研究中竺山湾 CH_4 排放的峰值出现在冬季.考虑到大部分湖泊都与河流相连通,在全球淡水生态系统中这种机制可能普遍存在,需更加综合地考虑外源输入对湖泊 CH_4 等温室气体排放的变异特征.同时,竺山湾极值 CH_4 排放量出现表明连续采样对提高湖泊 CH_4 等排放量估算精度的重要性.综上所述,外源输入可能是竺山湾高 CH_4 排放主要影响因素,这一机制可能适用于全球淡水湖泊.

4 结论

4.1 太湖竺山湾是大气 CH_4 的显著排放源,其 CH_4 扩散通量为 $(0.193 \pm 0.049)\text{mmol}/(\text{m}^2\cdot\text{d})$,显著高于湖心区 CH_4 扩散通量(均值: $(0.024 \pm 0.005)\text{mmol}/(\text{m}^2\cdot\text{d})$).此外,竺山湾不同点位间 CH_4 扩散通量也具

有显著差异.

4.2 湖心区 CH_4 扩散通量表现出明显的时间变化特征,且 CH_4 通量变化主要受水温调控,但竺山湾无此结果.

4.3 河流外源输入促进了富营养化竺山湾 CH_4 的排放,导致竺山湾是大气 CH_4 的“热点”排放区域.

参考文献:

- [1] Nisbet E G, Dlugokencky E J, Bousquet P. Methane on the Rise—Again [J]. *Science*, 2014,343(6170):493–495.
- [2] Bastviken D, Tranvik L J, Downing J A, et al. Freshwater methane emissions offset the continental carbon sink [J]. *Science*, 2011, 331(6013):50–50.
- [3] Rosentreter J A, Borges A V, Deemer B R, et al. Half of global methane emissions come from highly variable aquatic ecosystem sources [J]. *Nature Geoscience*, 2021,14:225–230.
- [4] 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.
- [5] Zhu Y, Purdy K J, Eyice Z, et al. Disproportionate increase in freshwater methane emissions induced by experimental warming [J]. *Nature Climate Change*, 2020,10(7):1–6.
- [6] Kirschke S, Bousquet P, Ciais P, et al. Three decades of global methane sources and sinks [J]. *Nature Geoscience*, 2013,6(10):813–823.
- [7] Holgersson M A, Raymond P A. Large contribution to inland water CO_2 and CH_4 emissions from very small ponds [J]. *Nature Geoscience*, 2016,9(3):222–226.
- [8] Yang P, Zhang Y, Yang H, et al. Large fine-scale spatiotemporal variations of CH_4 diffusive fluxes from shrimp aquaculture ponds affected by organic matter supply and aeration in Southeast China [J]. *Journal of Geophysical Research: Biogeosciences*, 2019,124(5): 1290–1307.
- [9] 齐天赐,肖启涛,苗雨青,等.巢湖水体二氧化碳浓度时空分布特征及其水-气交换通量 [J]. *湖泊科学*, 2019,31(3):766–778.
Qi T C, Xiao Q T, Miao Y Q, et al. Temporal and spatial variation of carbon dioxide concentration and its exchange fluxes in Lake Chaohu [J]. *Journal of Lake Sciences*, 2019,31(3):766–778.
- [10] 肖启涛,胡正华,张 弥,等.水力调控对湖泊甲烷扩散通量的影响 [J]. *湖泊科学*, 2021,33(2):561–570.
Xiao Q T, Hu Z H, Zhang M, et al. Effects of water diversion on methane diffusion flux across the water–air interface in lakes [J]. *Journal of Lake Sciences*, 2021,33(2):561–570.
- [11] Deemer B R, Holgersson M A. Drivers of methane flux differ between lakes and reservoirs, complicating global upscaling efforts [J]. *Journal of Geophysical Research Biogeosciences*, 2021,126(4):e2019JG 005600.
- [12] Beaulieu J J, DelSontro T, Downing J A. Eutrophication will increase methane emissions from lakes and impoundments during the 21st century [J]. *Nature Communications*, 2019,10:1375.
- [13] Sinha E, Michalak A M, Balaji V. Eutrophication will increase during

- the 21st century as a result of precipitation changes [J]. *Science*, 2017,357(6349):405–408.
- [14] Xiao Q T, Zhang M, Hu Z H, et al. Spatial variations of methane emission in a large shallow eutrophic lake in subtropical climate [J]. *Journal of Geophysical Research: Biogeosciences*, 2017,122(7):1597–1614.
- [15] Yan X, Xu X, Ji M, et al. Cyanobacteria blooms: A neglected facilitator of CH₄ production in eutrophic lakes [J]. *Science of the Total Environment*, 2019,651(1):466–474.
- [16] Zhou Y, Xiao Q, Yao X, et al. Accumulation of terrestrial dissolved organic matter potentially enhances dissolved methane levels in Eutrophic Lake Taihu, China [J]. *Environmental Science and Technology*, 2018,52(18):10297–10306.
- [17] 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.
- [18] 刘臻婧,肖启涛,胡正华,等.引江济太对太湖贡湖湾氧化亚氮通量的影响 [J]. *中国环境科学*, 2020,40(12):5229–5236.
- Liu Z J, Xiao Q T, Hu Z H, et al. Effects of water diversion from Yangtze River to Lake Taihu on N₂O flux in Gonghu Bay, Lake Taihu [J]. *China Environmental Science*, 2020,40(12):5229–5236.
- [19] Natchimuthu S, Sundgren I, Galfalk M, et al. Spatio-temporal variability of lake CH₄ fluxes and its influence on annual whole lake emission estimates [J]. *Limnology and Oceanography*, 2016,61(S1): S13–S26.
- [20] Murase J, Sakai Y, Sugimoto A, et al. Sources of dissolved methane in Lake Biwa [J]. *Limnology*, 2003,4(2):91–99.
- [21] Zhang M, Xiao Q T, Zhang Z, et al. Methane flux dynamics in a submerged aquatic vegetation zone in a subtropical lake. [J]. *Science of the total Environment*, 2019,672:400–409.
- [22] 牛勇,余辉,牛远,等.太湖流域殷村港沉积物中营养元素及重金属污染特征研究 [J]. *农业环境科学学报*, 2015,34(8):1557–1562.
- Niu Y, Yu H, Niu Y, et al. Pollution of nutrients and heavy metals in sediments from Yin Cun Gang River of Lake Taihu Basin, China [J]. *Journal of Agro-Environment Science*, 2015,34(8):1557–1562.
- [23] 肖启涛.太湖 CH₄ 通量的空间格局及影响因子分析 [D]. 南京:南京信息工程大学, 2017.
- Xiao Q T. Spatial pattern of CH₄ flux and its impact factors analysis in Lake Taihu [D]. Nanjing: Nanjing University of Information Science and Technology, 2017.
- [24] 肖启涛,张弥,胡正华,等.基于不同模型的大型湖泊水-气界面气体传输速率估算 [J]. *湖泊科学*, 2018,30(3):790–801.
- Xiao Q T, Zhang M, Hu Z H, et al. Estimate of gas transfer velocity between water-air interface in a large lake based on different models: A case study of Lake Taihu [J]. *Journal of Lake Sciences*, 2018,30(3): 790–801.
- [25] Cole J J, Caraco N F. Atmospheric exchange of carbon dioxide in a low-wind oligotrophic lake measured by the addition of SF₆ [J]. *Limnology and Oceanography*, 1998,43(4):647–656.
- [26] Wanninkhof R. Relationship between wind speed and gas exchange over the ocean [J]. *Journal of Geophysical Research*, 1992,97(C5): 7373–7382.
- [27] 杨平,全川.淡水水生生态系统温室气体排放的主要途径及影响因素研究进展 [J]. *生态学报*, 2015,35(20):6868–6880.
- Yang P, Tong C. Emission paths and measurement methods for greenhouse gas fluxes from freshwater ecosystems: A review [J]. *Acta Ecologica Sinica*, 2015,35(20):6868–6880.
- [28] 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 F, Yuan X Z. General characteristics and research progress of methane emissions from freshwater ecosystems in China [J]. *China Environmental Science*, 2020,40(8):3567–3579.
- [29] Zhou Y, Zhou L, Zhang Y, et al. Autochthonous dissolved organic matter potentially fuels methane ebullition from experimental lakes [J]. *Water Research*, 2019,166:115048.
- [30] 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 T, 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.
- [31] 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.
- [32] 商东耀,肖启涛,胡正华,等.富营养化湖区 CH₄ 排放特征及其影响因素 [J]. *环境科学*, 2018,39(11):5227–5236.
- Shang D Y, Xiao Q T, Hu Z H, et al. CH₄ emissions characteristics and its influencing factors in an eutrophic lake [J]. *Environmental Science*, 2018,39(11):5227–5236.
- [33] Davidson T A, Audet J, Svenning J C, et al. Eutrophication effects on greenhouse gas fluxes from shallow-lake mesocosms override those of climate warming [J]. *Global Change Biology*, 2015,21(12):4449–4463.
- [34] Campeau A, del Giorgio P A. Patterns in CH₄ and CO₂ concentrations across boreal rivers: major drivers and implications for fluvial greenhouse emissions under climate change scenarios [J]. *Global Change Biology*, 2014,20(4):1075–1088.
- [35] Xiao Q T, Xu X F, Duan H T, et al. Eutrophic Lake Taihu as a significant CO₂ source during 2000–2015 [J]. *Water Research*, 2019, 170:115331.
- [36] 王晓锋,袁兴中,陈槐,等.河流 CO₂ 与 CH₄ 排放研究进展 [J]. *环境科学*, 2017,38(12):5352–5366.
- Wang X F, Yuan X Z, Chen H, et al. Review of CO₂ and CH₄ emissions from rivers [J]. *Environmental Science*, 2017,38(12): 5352–5366.
- [37] Xiao Q T, Liu Z J, Hu Z H, et al. Notable changes of carbon dioxide in a eutrophic lake caused by water diversion [J]. *Journal of Hydrology*, 2021,603:127064.

作者简介: 刘臻婧(1997–),女,湖南娄底人,南京信息工程大学硕士研究生,主要从事湖泊温室气体循环及其控制机制研究.发表论文 2 篇。