太湖藻型湖区 CH4 冒泡通量

蒲旖旎,贾 磊,杨诗俊,秦志昊,苏荣明珠,赵佳玉,张 弥^{*} (南京信息工程大学气候与环境变化国际合作联合实验室大 气环境中心,江苏省农业气象重点实验室,江苏 南京 210044)

摘要: 冒泡是甲烷排放的主要途径之一,为量化太湖藻型湖区 CH4 冒泡通量及其占总通量的比例,本研究采用静态箱—便携式温室气体自动分析仪方 法对春、夏季太湖梅梁湾进行了多日连续观测.结果表明,太湖藻型湖区春、夏季 CH4 冒泡通量均存在白天高于夜间的日变化特征.春、夏季 CH4 冒泡 通量分别为 1.843、104.497nmol/(m²·s),占总通量的比例分别为 31.2%和 68.6%,即冒泡是夏季 CH4 排放的主要方式,而春季 CH4 排放则以扩散为主.在小时及日尺度上,CH4 冒泡通量与温度(气温、表面水温和底泥温度)和气压显著相关,且随着温度升高、气压降低,CH4 冒泡排放分别呈指数增加和线性增 加趋势.本研究可为准确估算太湖流域 CH4 总排放量及明确我国湖泊对全球碳循环的贡献提供重要的基础数据.

关键词:太湖藻型湖区;箱式法;甲烷通量;冒泡通量;冒泡通量比例;气象因子

中图分类号: X511 文献标识码: A 文章编号: 1000-6923(2018)10-3914-11

The methane ebullition flux over algae zone of Lake Taihu. PU Yi-ni, JIA Lei, YANG Shi-jun, QIN Zhi-hao, SU Rong-ming-zhu, ZHAO Jia-yu, ZHANG Mi^{*} (Yale-NUIST Center on Atmospheric Environment, International Joint Laboratory on Climate and Environment Change, Jiangsu Key Lab of Agricultural Meteorology, Nanjing University of Information Science & Technology, Nanjing 210044, China). *China Environmental Science*, 2018,38(10): 3914~3924

Abstract: Ebullition is one of the main pathways for CH_4 emission. To quantify CH_4 ebullition flux and its ratio to total CH_4 emission flux over algae zone of Lake Taihu, floating chamber method was utilized in this study in the Meiliang Bay of Lake Taihu during spring and summer time. The results showed that daytime CH_4 ebullition flux was obviously higher than that of nighttime in both spring and summer seasons. The mean CH_4 ebullition flux and its ratio to total CH_4 flux in spring were 1.843nmol/(m²·s) and 31.2% respectively and that in summer were 104.497nmol/(m²·s) and 68.6%. The results indicated that the dominant CH_4 emission pathway was diffusion in spring and different from spring, ebullition played important role in summer. Temperature (air temperature, surface water temperature, and sediment temperature) and air pressure were significantly correlated to CH_4 ebullition emission at hourly and daily scale. The CH_4 ebullition emission increased exponentially with increasing temperature and increased linearly as air pressure decreased. This study can provide important basic data for accurately estimating total CH_4 emission in Lake Taihu basin and clarifying the contribution of CH_4 emission from lakes in China to the global carbon cycle.

Key words: algae zone of Lake Taihu; floating chamber; methane flux; ebullition flux; ratio of ebullition flux; meteorological factors

湖泊是大气 CH4 重要的自然源^[1-2],可抵消约 25%的全球陆地碳汇^[3],并且可能对全球大气 CH4浓 度的再次升高存在重要的贡献^[4].因此,明确湖泊 CH4排放量对全球 CH4收支的贡献已成为气候变化 及全球温室气体循环研究中亟待解决的科学问题.

湖泊中,CH₄ 是在底泥缺氧的条件下,通过乙酸 发酵或 H₂还原 CO₂ 降解有机物的过程中产生^[5].由 于 CH₄相对不溶于水,在底泥生成后会以3种途径向 大气排放,即扩散、冒泡和植物介导.对于挺水植被 较少的湖泊,CH₄ 主要通过扩散和冒泡方式排放.在 湖泊水体中,通过扩散方式排放的 CH₄ 在穿过水柱 时,会被氧化^[6],因此,CH₄ 的扩散排放量通常较小.冒 泡方式排放的 CH₄,通过气泡包裹迅速释放到大气 中,气泡从底泥向湖表运动的过程中,其中的 CH₄ 几 乎不会被氧化.研究发现,湖泊中以冒泡方式排放的 CH4通量,约占 CH4总排放量的 50%~90%^[3,7].然而, 受早前观测方法的限制,大多数研究在观测湖泊 CH4 排放量时仅关注扩散通量,而忽视了占比极高 的冒泡通量,导致严重低估了湖泊的 CH4排放量^[3,8]. 因此,量化 CH4 冒泡通量对于精确估算湖泊向大气 排放的 CH4 至关重要^[9].

由于 CH4 冒泡是高度随机事件,具有不规律性、 间歇性和空间异质性,使得湖泊 CH4 冒泡排放量的 观测存在很大的不确定性,因此,进行高空间分辨率 长时间连续观测能够降低这种不确定性^[10].目前国

收稿日期: 2018-03-26

基金项目: 国家自然科学基金资助项目(41575147)

^{*} 责任作者, 讲师, zhangm.80@nuist.edu.cn

内外观测 CH₄ 冒泡通量的方法有倒置漏斗法^[11-13]、 声学技术^[9,14]和箱式法^[15-17].前两种方法仅能观测以 冒泡形式排放的 CH₄.其中,倒置漏斗法不能捕捉到 单个冒泡事件的特征^[18],且采样过程与气体浓度的 分析过程分离,可能会造成一定的误差,而声学技术 多适用于深水湖泊且仪器成本较高^[14].而箱式法,特 别是将箱室与温室气体自动分析仪相结合的箱式 法,可以实现对 CH₄浓度的在线实时连续测量^[19],在 测量 CH₄ 总排放量的同时,可以分离出以冒泡和扩 散形式排放的 CH₄^[15-16],从而明确不同排放方式对 CH₄总排放量的贡献.

太湖是我国大型浅水湖泊,近年来水环境日益 恶化,蓝藻频繁爆发^[20-21],而蓝藻生物量的增加是否 会促使 CH₄ 冒泡排放增加仍有待进一步明确.在太 湖北部富营养化严重的藻型湖区—梅梁湾,已基于 便携式温室气体分析仪改进的箱式法,对该区域春、 夏季的CH₄排放总通量及其时间变化特征和影响因 素进行了分析^[22].但是,该分析中并未明确 CH₄ 冒泡 排放通量及占总通量的比例.故本文的目的为:1)明 确春、夏季太湖藻型湖区 CH₄ 冒泡排放通量及冒泡 通量占总通量的比例;2)得出影响太湖藻型湖区 CH₄冒泡通量的气象因子,以期为明确太湖流域CH₄ 排放的主要方式和准确估算总排放量及我国湖泊 对全球碳循环的贡献提供重要的基础数据.

1 材料与方法

1.1 研究地概况



Fig.1 Location of the observational site

太湖是位于我国亚热带季风气候区的一个大型浅水湖泊,湖区面积2338km²,平均水深1.9m^[21].太 湖年平均气温 16.2℃,多年平均年降水量 1122mm, 年平均风速 2.6m/s^[23].梅梁湾是位于太湖北部的一 个半封闭湖湾,水域面积 120km²,平均水深 2.45m,其 周边连接有梁溪河、直湖港等入湖河道^[24],给该区输 入大量的污染物和有机质.2005~2017年梅梁湾的叶 绿素 a、DTN 和 DTP 浓度多年平均值分别为 38.7µg/L,2.40,0.044mg/L^[25].每年夏季,该区域都会 有大量的藻类繁殖,水体富营养化状态十分严峻.本 研究的观测点设在位于梅梁湾湖区的中国科学院 太湖湖泊生态系统研究站的栈桥附近(图 1),离湖岸 约 300m^[22].

1.2 静态箱一便携式温室气体分析仪观测原理

传统的箱式法测定 CH₄ 通量的原理是通过在水 面扣置一个底部中通、顶部密闭的箱体,每隔一段时 间抽取箱体内的气体并结合气相色谱测定 CH4 浓度, 进而求得 CH4 通量.本研究在传统箱式法的基础上进 行了一定的改进,改用便携式温室气体分析仪(915-0011-CUSTOM, Los Gatos Research, SF, USA)(LGR) 替代人工取样实现以 1Hz 的频率在线实时连续测定 箱体内的 CH4 浓度变化.LGR 对 CH4 气体 100s 的测 量精度为体积分数 0.6×10⁻⁹.本研究所使用的静态箱 由有机玻璃板粘合而成,箱体体积75L,底面积0.25m², 高 0.3m.箱体表层贴有锡箔纸,以减少光照对箱体内 气温的影响,从而造成箱体内外较大的气温差异.箱体 内顶部固定有2根导管,分别连通LGR的进气口和出 气口,LGR 在持续抽出箱体内的气体进行分析的同时 将分析后的气体通过导管排回箱体内,从而形成一个 循环的气路且不改变箱体内部环境,同时不影响水面 排放 CH4 在箱体内造成的浓度增加.此外,箱体内顶部 还装有小风扇.用以使箱内气体充分混合.为实现箱体 在水面漂浮,在箱体周围加裹高密度泡沫板,使箱体漂 浮于水面,同时在泡沫板上加装两个气囊,通过给气囊 充气、放气实现箱体的自动抬起、扣下.前期研究成 果已对本研究的静态箱——便携式温室气体自动分析 仪进行了详细的说明[22].

CH₄ 通量,即单位时间单位面积上 CH₄ 浓度的 变化量.计算公式如下^[26]:

$$F = \frac{\Delta c \cdot h}{t \cdot V_{\rm m}} \tag{1}$$

式中: F 为 CH₄ 通量, mmol/(m²·s),但为了科学表示 CH₄ 通量的计算结果,本文统一将单位转换为 nmol/(m²·s); Δc 为 t 时间段内的 CH₄ 浓度变化量, µmol/mol; t 为时间间隔, s,本研究取 1800s; h 为箱体 高度, m,本研究箱体高度为 0.3m; V_m 为气体摩尔体 积,取 22.4L/mol.

观测以整点(或半点)为起始时刻,若时间间隔 1800s 内 CH₄ 仅以扩散方式排放,则 LGR 所测定的 箱体内 CH₄浓度的时间序列为线性增加(图 2a).先求 得 1800s 内的 CH₄ 扩散浓度的变化量Δ*c*,即 B 点的 浓度减去 A 点的浓度,再结合公式(1)求得观测时间 段内的扩散通量.



图 2 不同排放方式下箱体内 CH₄浓度的时间序列 Fig.2 Time series of CH₄ concentration in the floating chamber through different emission pathways

若 1800s 内有 CH₄ 冒泡现象发生,则箱体内 CH₄ 浓度线性增加的时间序列会被一个或多个突增的 浓度打断(图 2b).此时 CH₄ 通量包含冒泡通量和扩 散通量两部分.CH₄ 冒泡通量的计算方法:假定 1800s 内的扩散速率恒定,采用最小二乘法对 CD 直线段进 行拟合,求得直线的斜率即为该时间段内的 CH₄ 扩 散速率;根据斜率求得观测时间末,即 E 点处的 CH₄ 扩散浓度;用 F 点的浓度(实测浓度)减去 E 点的浓度 即为观测时间段内 CH₄ 冒泡导致的浓度的变化量 $\Delta c^{[15]}$;结合公式(1)求得 1800s 内的冒泡通量,从而得 到每半小时的 CH₄ 冒泡通量时间序列.有冒泡时段 的 CH₄扩散通量的计算方法与上述提到的仅有扩散 排放时通量的计算方法相同,此时 CH₄ 扩散浓度的 变化量 Δc 为 E 点的浓度减去 C 点的浓度.由于在观 测点无大型挺水植被生长,可忽略由植物介导作用 传输的 CH₄通量,因此, 1800s 内 CH₄总通量为冒泡 通量与扩散通量之和.

研究表明,春季至夏季气温逐渐上升,湖泊底泥 中的产甲烷菌趋于活跃,CH4 产量及冒泡量开始逐 渐增加^[27].因此本研究分别在春、夏季开展了为期 12d 和 5d 的多日连续观测.其中春季试验观测时间 为 2017 年 4 月 14~25 日,夏季试验观测时间为 2016 年 8 月 25~29 日.除因大风、降雨等天气原因存在缺 测外,春、夏季试验均是全天 24h 观测.一次通量观 测过程持续 1h 左右,之后通过给气囊充气使箱体抬 起,待 LGR 测定的箱体内 CH4浓度降低并趋于稳定 时说明箱体内的气体与外部环境气体已充分混合, 再通过给气囊抽气使箱体扣下,再进行下一次通量 观测,如此循环.

1.3 其他数据

梅梁湾通量站安装有小气候系统仪器 (Dynakmet, Dynakmax Inc., Houston, TX, USA),距 离漂浮箱约50m,因此仪器所测定的气温、风速等气 象数据可代表采样箱附近的气象环境.此外,站点还 分别在20,50,100,150,200cm水深处安装有水温计 (109-L, Campbell Scientific Inc. Logan, UT, USA),用 以获取不同深度的水温数据^[28].其中本文所使用的 底泥温度即200cm处的水温,而表面水温是通过斯 蒂芬—玻尔兹曼定律计算得到的,计算公式如下:

$$L \uparrow = \varepsilon \sigma T^4 + (1 - \varepsilon) L \downarrow \tag{2}$$

式中: *L*↑和*L*↓分别为观测的向上和向下的长波辐射, W/m²; ε 为水体表面的发射率,太湖取 0.97; σ 为斯蒂芬—玻尔兹曼常数,取 5.67×10⁻⁸W/(m²·K⁴);*T* 为 表面水温, K.

2 结果与分析

2.1 CH₄ 冒泡通量的时间变化特征

2.1.1 CH4 冒泡通量的日变化特征 春季 CH4 冒

泡通量的多日平均日变化如图 3 所示.可以看出,除 00:00~03:30 和 12:30~15:30 这 2 个时间段几乎没有 CH₄ 冒泡,其他时间段均有不同程度的 CH₄ 冒泡发 生.观测时间内,各时间段 CH₄ 冒泡通量的多日平均 值均低于 20nmol/(m²·s),且高值主要集中在 08:00~ 12:00 和 16:00~19:00 这 2 个时间段.此外,CH₄ 冒泡 通量高值对应的标准差也很大,这说明 CH₄ 冒泡是 一个高度随机事件,冒泡频数和单次冒泡的浓度变 化很大.



图 3 春季 CH₄ 冒泡通量多日平均日变化 Fig.3 Diurnal variation of CH₄ ebullition flux in spring

进一步分析 CH₄ 冒泡通量在各时间段的变化发现,各个时段的上、下四分位数均为 0,这说明春季观测期间大部分时间都没有 CH₄ 冒泡现象的发生.此外,CH₄ 冒泡通量在各时间段的平均值均低于 4nmol/(m²·s),且存在明显的昼夜差异,即白天冒泡通量较高,尤其是 08:00~12:00 时段内均值最高,为 3.794nmol/(m²·s),而夜间冒泡通量相对较低.计算得 到春季 白天 (06:00~18:00)和夜间 (18:00~06:00)的 CH₄ 平均冒泡通量分别为 2.461 和 1.171nmol/(m²·s), 即白天 CH₄ 冒泡通量约为夜间的 2.1 倍.

夏季 CH₄ 冒泡通量的多日平均日变化如图 4 所示.可以看出,夏季 CH₄ 冒泡通量整体高于春季,CH₄ 冒泡通量的多日平均值集中在 10~100nmol/(m²·s)范围内.1d 中 CH₄ 冒泡在 11:30~14:30 和 21:00~00:30 这两个时间段较为活跃,通量值多高于 100nmol/(m²·s).值得注意的是,在 11:30~13:00 时段 CH₄ 冒泡 通量较高,但其对应的标准差却相对较小,说明观测 期间该时间段的 CH₄ 冒泡通量变幅较小.



图 4 夏季 CH₄ 冒泡通量多日平均日变化 Fig.4 Diurnal variation of CH₄ ebullition flux in summer

进一步分析,夏季 CH₄ 冒泡通量在各时间段的 平均值均低于 200nmol/(m²·s),且存在明显的时间差 异.在 12:00~16:00 和 20:00~24:00 期间,CH₄ 冒泡通 量较高,均值分别为 128.841 和 196.201nmol/(m²·s), 但其相应的四分位距也较大,说明 CH₄ 冒泡通量的 变幅很大.而在 00:00~08:00 期间 CH₄ 冒泡通量相对 较低,集中在 0~100nmol/(m²·s)范围内.计算得到夏季 白天(06:00~18:00)和夜间(18:00~06:00)的 CH₄ 平均 冒泡通量分别为 99.832 和 101.538nmol/(m²·s),即夏 季白天和夜间的 CH₄ 冒泡通量相当.鉴于 8 月 25 日 天 CH₄ 冒泡通量约为夜间的 1.8 倍. 2.1.2 CH₄ 冒泡通量的季节差异 春、夏季 CH₄ 冒泡通量日均值如表 1 所示.可以看出,春季仅有 7d 观测到 CH₄ 冒泡现象,且 CH₄ 冒泡通量整体较低,最 大值出现在 4 月 25 日为 12.028nmol/(m²·s).春季 CH₄ 冒泡通量多日平均值为 1.843nmol/(m²·s).相比春季, 夏季 CH₄ 冒泡通量明显增加,最大值出现在 8 月 25 日为 268.115nmol/(m²·s),最小值出现在 8 月 29 日为 13.778nmol/(m²·s).夏季 CH₄ 冒泡通量多日平均值为 104.497nmol/(m²·s).观测期间,相比于春季,夏季 CH₄ 冒泡通量是春季的 56.7 倍.

表 1 春、夏季 CH_4 冒泡通量日均值 Table 1 Daily mean value of CH_4 ebullition flux in spring and

| summer | | | | | | | |
|--------|--|--------|---------|-------|--|--|--|
| 日期 | 日期(月-日) CH4 冒泡通量 [nmol/(m ² ·s)] | | 日期(月-日) | | CH ₄ 冒泡通量 [nmol/(m ² ·s)] | | |
| | 04-14 | 0 | | | | | |
| | 04-15 | 0.004 | | | | | |
| | 04-16 | 0 | 夏季 | | | | |
| | 04-17 | 0 | | 08-25 | 268.115 | | |
| | 04-18 | 0 | | 08-26 | 56.943 | | |
| 去禾 | 04-19 | 0.201 | | 08-27 | 120.579 | | |
| 甘子 | 04-20 | 0 | | 08-28 | 63.067 | | |
| | 04-21 | 1.840 | | 08-29 | 13.778 | | |
| | 04-22 | 4.288 | | | | | |
| | 04-23 | 0.171 | | | | | |
| | 04-24 | 3.579 | | | | | |
| | 04-25 | 12.028 | | | | | |
| | 平均 | 1.843 | | 平均 | 104.497 | | |

2.2 CH4 冒泡通量占总通量比例的变化

由图 5a 可以看出,在春季试验的前 7d 中 CH₄ 主要以扩散方式传输,仅在日序 105,109d(4 月 15、 19日)时观测到 CH₄ 冒泡现象,且冒泡通量占总通量 比例分别为 5.6%和 27.7%.在春季试验的后 5d 中 CH₄ 冒泡较为活跃,尤其是日序 115d(4 月 25 日)时 CH₄ 冒泡通量高达 12.028nmol/(m²·s),占 CH₄ 总通量 的 96.3%.在日序 112,114d(4 月 22、24 日)时 CH₄ 冒 泡通量比例也较高,分别为 95.2%和 88.5%.值得注意 的是,日序 111d(4 月 21 日)时虽然 CH₄ 总通量很高, 但由于该天 CH₄ 扩散通量较大,冒泡通量比例不高, 仅为 36.3%.计算得到春季观测期间 CH₄ 冒泡通量占 总通量比例的平均值为 31.2%,综上所述,春季 CH4 冒泡通量占总通量的比例并不高, CH4 排放的方式 以扩散为主.

不同于春季,在夏季5d的试验中均有不同程度 的冒泡现象发生(图 5b).其中在日序 238d(8 月 25 日)时,CH₄ 总通量最高,高达 274.600nmol/(m²·s),且 CH₄ 冒泡通量比例也是 5d 中最高的,高达 97.6%. 在日序 239,240,241d(8 月 26、27 和 28 日)时 CH₄ 冒泡通量比例也较高,分别为 58.7%、71.3%和 67.1%.而在日序 242d(8 月 29 日)时,CH₄ 总通量最 低,仅为 28.480nmol/(m²·s),且 CH₄ 冒泡通量比例也 是 5d 中最低的,仅为 48.4%.计算得到夏季观测期间 CH₄ 冒泡通量占总通量比例的平均值为 68.6%,该 值约为春季结果的 2.2 倍,说明夏季冒泡是 CH₄ 排 放的主要方式.



图 5 谷学和复学 CH₄ 自泡迪重与分 取迪里 Fig.5 The CH₄ ebullition and diffusion flux in spring and summer



分别在春季和夏季选择了 CH₄ 冒泡相对较多的 2d 的时间序列进行分析.

通过 2017 年春季 4 月 21~22 日 CH₄ 冒泡通量 和各气象要素随时间的变化图可以看出(图 6),CH₄ 冒泡通量高值的出现时间正好是 1d 中气温较高的 时段,同时,冒泡通量也与表面水温呈现出较为一致 的变化趋势,即气温、表面水温越高,CH4 冒泡通量越高.此外,4 月 21 日 10:00~16:00 期间气压逐渐下降, 该时间段也是 CH4 冒泡集中出现的时间,两者呈现 出相反的变化趋势,即随着气压的降低,CH4 冒泡增加.然而 CH4 冒泡通量与风速之间没有表现出明显 的一致或相反的变化趋势.



图 6 2017 年 4 月 21~22 日 CH₄ 冒泡通量、气温、表面水温、底泥温度、气压和风速随时间的变化 Fig.6 Temporal variability of CH₄ ebullition flux, air temperature, surface water temperature, sediment temperature, air pressure, and wind speed from April 21 to 22, 2017



图 7 2016 年 8 月 27~28 日 CH₄ 冒泡通量、气温、表面水温、底泥温度、气压和风速随时间的变化 Fig.7 Temporal variability of CH₄ ebullition flux, air temperature, surface water temperature, sediment temperature, air pressure, and wind speed from August 27 to 28, 2016

2016年夏季8月27~28日CH4冒泡通量和各气 象要素随时间的变化如图7所示.可以看出,CH4冒 泡通量的高值主要集中在08:00~16:00期间,该时间 段内的气温在逐渐升高,而气压在逐渐降低,即 CH₄ 冒泡通量与气温呈现出明显的同步变化,与气压呈 现出较好的反相位变化.此外,8月27日相比28日底 泥温度更高,该天的 CH₄ 冒泡频数和高值也相对较 多.CH₄ 冒泡通量与风速之间依然没有明显的一致 或相反的变化趋势.

从个例分析可以看出,CH4 冒泡通量变化仅与 温度(气温、表面水温和底泥温度)和气压变化有关.

为了进一步验证各气象要素与CH4 冒泡通量的 相关关系,分别在小时尺度和日尺度上,将春、夏季 CH4 冒泡通量与相应的气象因子进行相关分析.结 果如表 2 所示,无论在小时尺度还是日尺度上,CH4 冒泡通量与温度(气温、表面水温和底泥温度)和气 压均有显著的相关关系,且与温度呈正相关关系,与 气压呈负相关关系.然而 CH4 冒泡通量与风速之间 并没有显著的相关关系,说明风速并不是影响 CH4 冒泡通量的气象因子.

在小时尺度上,分别按照 1℃为间隔对温度(气

温、表面水温和底泥温度)与其对应的 CH₄ 冒泡通 量进行分段统计,并计算得到其平均值,如图 8 所示. 可以看出,CH₄ 冒泡通量随着气温、表面水温和底泥 温度的升高呈指数递增趋势,且当温度高于 24℃ 时,CH₄ 冒泡通量迅速增加.同时,按照 0.1kPa 为间隔 对气压与其对应间隔内 CH₄ 冒泡通量平均值进行分 析发现,CH₄ 冒泡通量随着气压的升高呈线性递减 趋势.

表 2 CH4 冒泡通量与气象因子的相关分析

Table 2Correlation analysis between CH4 ebullition flux and
meteorological factors

| 气象要素 | 气温 | 表面水温 | 底泥温度 | 风速 | 气压 |
|------|---------|---------|---------|--------|----------|
| 小时尺度 | 0.339** | 0.337** | 0.336** | -0.142 | -0.325** |
| 日尺度 | 0.869** | 0.819** | 0.715** | -0.365 | -0.739** |

注:**表示在0.01水平上显著相关.



图 8 CH4 冒泡通量随气温、表面水温、底泥温度和气压的变化

Fig.8 Relationships between CH₄ ebullition flux and air temperature, surface water temperature, sediment temperature, and air pressure

3 讨论

3.1 CH4 冒泡通量的日变化特征

大量研究结果表明, 湖泊 CH₄ 冒泡通量白天高 于夜间^[1,12].本研究计算得到春季白天 CH₄ 冒泡通量 约为夜间的 2.1 倍,而夏季白天 CH₄ 冒泡通量约为夜 间的 1.8 倍,故太湖藻型湖区春、夏季 CH4 冒泡通量 均是白天高于夜间.造成湖泊 CH4 冒泡通量白天高 于夜间的原因可能是:白天太阳辐射的加热作用使 得水温和底泥温度较高.当底泥中有机物一定时,底 泥温度越高,产甲烷菌的活性则越高,CH4 的生成速 率也就越快.此外,水温升高,CH4 在水中的溶解度降 低,更有利于底层 CH4 气泡的产生并以冒泡形式向 大气排放.

CH4 冒泡通量的日变化强调了进行长期连续 通量观测的重要性,若缺少夜间 CH4 冒泡通量的观 测则可能会使 CH4 冒泡总排放量的估算出现显著 偏差.

3.2 影响 CH4 冒泡通量的气象因子

本研究发现,无论在小时尺度还是日尺度上,CH4 冒泡通量与温度(气温、表面水温和底泥温度)均有显 著的正相关关系,且随着温度的升高,CH4 冒泡通量呈 指数升高.Aben 等^[27]在调研全球 CH4 冒泡通量与温 度的关系时也发现,在不同类型的淡水生态系统中 CH4 冒泡通量均随温度的升高呈指数增加.这主要是 由于一方面温度升高,底泥中产甲烷菌的数量和活性 都会增加,加快 CH4 的生成^[29];另一方面水温升高会 降低CH4在水中的溶解度,促进CH4气泡的形成.然而 在贫营养湖泊中,底泥中有机物的限制可能会强烈削 弱 CH4 冒泡与温度之间的这种关系^[13],但在富营养化 的太湖并不存在这样的情况.

气压已被证实对 CH₄ 冒泡的变化有很大的影 响,甚至可能是 CH₄ 冒泡的触发机制^[11,30].早在1987 年 Mattson 等^[31]便首次提出 CH₄ 冒泡与局地气压 变化有关,且气压每下降 1mbar 甲烷冒泡增加 18%. Casper 等在对 Priest Pot 湖研究时也发现在气压迅 速下降期间可观测到 CH₄ 冒泡现象,并得出气压每 降低 2%,冒泡增加 10 倍的结论^[30].而本研究也发现 无论在小时尺度还是日尺度上,CH₄ 冒泡通量与气 压均呈显著负相关,在小时尺度上,气压每下降 1kPa,冒泡通量升高 130.5nmol/(m²·s).这主要是由 于:随着气压的降低,CH₄ 在水中的溶解度也会降低, 更有利于 CH₄气泡的形成.此外,气压降低会引起静 水压降低,从而减小 CH₄气泡排放的阻力,加速其释 放到大气中^[17].

本研究中并没有发现CH₄冒泡通量与风速存在 相关关系.但对巴拿马 Gatun 湖的研究中却发现两 者有很好的正相关关系^[1].研究表明 CH₄ 冒泡通量 与底流引起的切应力密切相关,而底流是风、内部气 压梯度和水深的复杂函数^[12].Casper 等^[30]研究中发 现最大 CH₄冒泡通量发生时刻所对应的风速却很低. 因此,底流通常是由风切变以外的其他因子产生.梅 梁湾底流可能是由风切变以外的因子触发,因此本 研究 CH₄冒泡通量与风速不存在显著的相关关系可 能与之有关.此外,梅梁湾地处湖湾,风速较小且变化 范围不大,这也使得冒泡通量与风速之间未表现出 显著的相关性.

3.3 太湖藻型湖区 CH4 冒泡通量的水平

3.3.1 太湖藻型湖区 CH4 冒泡通量比例 冒泡被 认为是湖泊向大气排放 CH4 的主要机制^[1,12,30].据估 计,全球平均湖泊冒泡通量比例为 40%~60%^[32],而 在亚热带气候区比例则更高,可达 60%~99%^[33].位 于青藏高原的花湖^[17]、巴拿马的 Gatun 湖^[1]、英国 的 Priest Pot 湖^[30],其冒泡通量比例高达 93%、98%、 96%,说明这些湖泊主要以冒泡方式向大气排放CH4, 而扩散比例极小甚至可忽略.但并非所有湖泊都适 用.已有研究发现在 5 个高纬度湖泊,扩散是 CH4 排 放的主要途径[34];位于魁北克的3个湖泊,其冒泡仅 占 CH₄ 总排放量的 18%~23%^[13].本研究计算得到 春、夏季 CH4 冒泡通量占总通量的比例分别为 31.2%和 68.6%,即春季 CH4 以扩散为主要途径,而夏 季则以冒泡为主要途径.这可能是由于夏季温度较 高,产甲烷菌活性增强,CH4的产量大幅度增加,底层 高浓度的CH₄聚集在一起更容易形成气泡并释放到 大气中.

Bastviken 等^[32]得到了 CH₄ 冒泡的相对贡献 率与湖泊面积之间的关系,据此计算得到太湖 CH₄ 冒泡通量比例约为 55%,该值介于本研究春、夏季 结果之间.而 Xiao 等^[35]观测得到太湖梅梁湾地区 CH₄冒泡通量比例的平均值为 71%,该值相比本研 究结果较高.究其原因可能是:一是研究方法不同. 本研究采用静态箱—温室气体分析仪直接测量 CH₄冒泡通量,而 Xiao 等采用了一种间接的方法, 即通过计算通量梯度法得到的 CH₄总通量与水平 衡法得到的 CH₄扩散通量之间的差值来求得 CH₄ 冒泡通量^[35].由于水平衡法采用人工取样,在操作 过程中 CH₄ 易被氧化,导致计算得到的扩散通量 偏低,进而导致求得的冒泡通量偏高;二是研究的 空间代表性不同,箱式法代表观测区域附近的结果,微气象学方法代表数平方公里的综合结果,而 CH4 冒泡有很强的空间变化,因此,两者结果之间 会存在差异.

| 表 | ₹3 | 不同湖泊 CH4 冒泡通量的对比分析 |
|---------|----|--|
| Table 3 | Co | nparison of CH4 ebullition flux over different |
| | | lakes |

| 湖泊夕/国宅 | 面积 | 水深 | 观测 | CH4冒泡通量 | 文献 |
|--------------------|-----------|------|----------------|------------------------|------|
| 砌石石/国豕 | (km^2) | (m) | 时间 | $[nmol/(m^2 \cdot s)]$ | |
| 十油梅洌迹/中国 | 100 | 25 | 4 月 | 1.8 | 本研 |
| 入砌梅朱려/中国 | | 2.5 | 8月 | 104.5 | 究 |
| 太湖梅梁湾/中国 | 100 | 2.5 | 全年 | 3.9 | [35] |
| 花湖/中国 | 1.6 | 0.5 | 5~8 月 | 448.5 | [17] |
| 2 个湖泊/西伯利亚 | 0.06~0.11 | _ | 6~10 月 | 33.8 | [39] |
| Postilampi/芬兰 | 0.03 | 3.2 | 7~10 月 | 26.0~33.3 | [40] |
| Kevätön/芬兰 | 4.07 | 2.3 | 5~10 月 | 2.5 | [41] |
| Villasjön/瑞典 | 0.17 | 0.7 | 6~9月 | 15.9 | [11] |
| Inre Harrsjön/瑞典 | 0.02 | 2.0 | 6~9月 | 4.9 | [11] |
| Mellan Harrsjön/瑞典 | 0.01 | 1.8 | 6~9月 | 12.1 | [11] |
| Priest Pot/英国 | 0.01 | 3.7 | 5~10 月 | 138.9 | [30] |
| Lac Croche/加拿大 | 0.18 | 4.7 | 5~11 月 | 1.7 | [13] |
| Lac Cromwell/加拿大 | 1.10 | 3.5 | 5~11 月 | 6.9 | [13] |
| Lac Triton/加拿大 | 0.02 | 2.5 | 5~11 月 | 15.0 | [13] |
| Mirror/美国 | 0.15 | 11.0 | 6~8月 | 8.8 | [31] |
| Brown/美国 | 0.33 | — | 6~8月 | 3.8 | [32] |
| Crampton/美国 | 0.26 | — | 6~8月 | 2.2 | [32] |
| East Long/美国 | 0.02 | 5.4 | 6~8月 | 7.0 | [32] |
| Hummingbird/美国 | 0.01 | _ | 6~8月 | 3.0 | [32] |
| Morris/美国 | 0.06 | — | 6~8月 | 43.0 | [32] |
| Paul/美国 | 0.02 | — | 6~8月 | 7.1 | [32] |
| Peter/美国 | 0.03 | 5.7 | 6~8月 | 11.8 | [32] |
| Roach/美国 | 0.45 | — | 6~8月 | 0.2 | [32] |
| Tuesday/美国 | 0.01 | — | 6~8月 | 3.1 | [32] |
| Ward/美国 | 0.03 | — | 6~8月 | 26.4 | [32] |
| Kinneret/以色列 | — | — | 6~12 月 | 115.7 | [42] |
| Loiza/波多黎各 | 2.4 | 6.1 | 7月 | 5.8~17.4 | [12] |
| Gatun/巴拿马 | 431 | 12.7 | 9月 | 3.6~787.0 | [12] |
| Calado/巴西 | — | — | 9月 | 81.4 | [43] |
| Medalha/巴西 | _ | _ | 3、6、9、 12 日 | 107.1 | [44] |
| | | | 12月 | | |
| Mirante/巴西 | _ | — | 12月 | 59.3 | [44] |

注: ---表示文献中未给出数据.

3.3.2 太湖藻型湖区 CH4 冒泡通量 明确太湖藻 型湖区 CH4 冒泡通量在全球范围湖泊中的位置,对 于评估其碳源能力有着重要的意义.然而针对湖泊 CH4 排放的研究在全球分布不均,其中 70%分布在 美国、巴西、加拿大、芬兰和中国^[36].通过调研全球 30 个湖泊可以发现,大多数研究开展的时间都集中 在温暖的季节(表 3).对比其他研究结果,本研究夏季

的 CH4 冒泡通量处于一个较高的水平,比芬兰、瑞 典、加拿大和美国等寒带和温带地区的湖泊高1至 2 个数量级,但比热带地区的大多数湖泊低.造成这 种现象的原因主要是不同地区的温度不同,寒带和 温带地区的温度较低,产甲烷菌的活性较低,CH4的 产量也就比亚热带和热带地区低.同时,温度越低, CH₄ 在水体中的溶解度也就越高,在这样的环境下, 底泥中 CH4 气泡的形成过程将大大减弱.值得注意 的是,位于温带地区的 Priest Pot 湖虽然温度较低,但 冒泡通量却高于本研究,这主要是因为 Priest Pot 湖 是一个超富营养化的湖泊,而一项长期的试验已表 明营养物质浓度对CH4排放的影响超过了温度对湖 泊 CH4 排放的影响^[37].此外,位于中国若尔盖高原的 花湖,其 CH4 冒泡通量约为本研究的 4 倍,这主要是 由于花湖的有机碳含量极高,为 CH4 的生成创造了 有利条件.此外,花湖的海拔高达 3450m 导致大气压 较低,使得 CH4 在底泥孔隙水中的溶解度几乎是低 海拔湖泊的 1/3^[17].而 Xiao 等观测得到太湖梅梁湾 年平均 CH4 冒泡通量略高于本研究春季观测结果, 但远低于夏季的观测结果.这可能是由于秋、冬季 CH4 冒泡现象极少发生,通量值很低,从而使全年的 平均值降低[16].由此可见,为准确估算太湖藻型湖区 年平均冒泡通量,在 CH4 冒泡较少的秋、冬季开展试 验是十分必要的.

值得注意的是,本研究测得的 CH₄ 冒泡通量可 能会低于实际的冒泡总通量.一方面是因为冒泡可 能会以相对较小的稳定气泡流出现,导致箱体内的 CH₄ 浓度随时间线性增加^[38],而这部分数据在处理 时会被认定为扩散排放.另一方面是因为本研究的 空间分辨率较低,已有研究表明,采样点越少,CH₄ 冒 泡被低估的可能性就越高^[10].因此,在同一个湖区开 展多点的同时观测会降低结果的不确定性.

4 结论

4.1 太湖藻型湖区春、夏季 CH4 冒泡通量分别为
1.843,104.497nmol/(m²·s),且存在白天高于夜间的日
变化特征.春、夏季 CH4 冒泡通量比例分别为 31.2%
和 68.6%,即夏季冒泡是湖泊 CH4 的主要排放方式,
而春季 CH4 则以扩散排放为主.

4.2 无论在小时尺度还是日尺度上,温度(气温、表面水温和底泥温度)和气压控制着 CH₄ 冒泡通量.

参考文献:

- Keller M, Stallard R F. Methane emission by bubbling from Gatun Lake, Panama [J]. Journal of Geophysical Research Atmospheres, 1994,99(D4):8307–8319.
- [2] Davidson T A, Audet J, Jeppesen E, et al. Synergy between nutrients and warming enhances methane ebullition from experimental lakes [J]. Nature Climate Change, 2018,8(2):156–160.
- [3] Bastviken D, Tranvik L J, Downing J A, et al. Freshwater methane emissions offset the continental carbon sink [J]. Science, 2011, 331(6013):50.
- [4] Kirschke S, Bousquet P, Ciais P, et al. Three decades of global methane sources and sinks [J]. Nature Geoscience, 2013,6(10): 813-823.
- [5] Conrad R. Quantification of methanogenic pathways using stable carbon isotopic signatures: a review and a proposal [J]. Organic Geochemistry, 2005,36(5):739–752.
- [6] 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]. Journal of Geophysical Research Biogeosciences, 2008,113(G2), doi:10.1029/2007JG000608.
- [7] Walter K M, Smith L C. Methane bubbling from northern lakes: present and future contributions to the global methane budget [J]. Philosophical Transactions, 2007,365(1856):1657–1676.
- [8] 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.
- [9] Schmid M, Ostrovsky I, Mcginnis D F. Role of gas ebullition in the methane budget of a deep subtropical lake: What can we learn from process-based modeling? [J]. Limnology & Oceanography, 2017, 62(6):2674–2698.
- [10] Wik M, Thornton B F, Bastviken D, et al. Biased sampling of methane release from northern lakes: A problem for extrapolation [J]. Geophysical Research Letters, 2016,43(3):1256–1262.
- [11] Wik M, Crill P M, Varner R K, et al. Multiyear measurements of ebullitive methane flux from three subarctic lakes [J]. Journal of Geophysical Research Biogeosciences, 2013,118(3):1307–1321.
- [12] Joyce J. Physical Controls on Methane Ebullition from Reservoirs and Lakes [J]. Environmental & Engineering Geoscience, 2003,9(2):167– 178.
- [13] Delsontro T, Boutet L, St-Pierre A, et al. Methane ebullition and diffusion from northern ponds and lakes regulated by the interaction between temperature and system productivity [J]. Limnology & Oceanography, 2016,61:S62–S77.
- [14] Ostrovsky I. Methane Bubbles in Lake Kinneret: Quantification and Temporal and Spatial Heterogeneity [J]. Limnology & Oceanography, 2003,48(3):1030–1036.
- [15] 龙 丽,肖尚斌,张 成,等.亚热带浅水池塘水-气界面甲烷通量特征 [J]. 环境科学, 2016,37(12):4552-4559.
- [16] 谢 恒,龙 丽,肖尚斌,等.城市浅水河流冬夏季温室气体日变化及 影响因素 [J]. 三峡大学学报(自然科学版), 2017,39(4):31-35.
- [17] Dan Z, Yan W, Chen H, et al. Intense methane ebullition from open water area of a shallow peatland lake on the eastern Tibetan Plateau [J]. Science of The Total Environment, 2016,542:57–64.

- [18] Strack M, Kellner E, Waddington J M. Dynamics of biogenic gas bubbles in peat and their effects on peatland biogeochemistry [J]. Global Biogeochemical Cycles, 2005,19(1),doi:10.1029/ 2004GB002330.
- [19] Xiao S, Wang Y, Liu D, et al. Diel and seasonal variation of methane and carbon dioxide fluxes at Site Guojiaba, the Three Gorges Reservoir [J]. Journal of Environmental Sciences, 2013,25(10):2065– 2071.
- [20] Hu W, Jørgensen S E, Zhang F, et al. A model on the carbon cycling in Lake Taihu, China [J]. Ecological Modelling, 2011,222(16):2973– 2991.
- [21] 秦伯强.太湖生态与环境若干问题的研究进展及其展望 [J]. 湖泊 科学, 2009,21(4):445-455.
- [22] 贾 磊,蒲旖旎,杨诗俊,等.太湖藻型湖区 CH₄、CO₂ 排放特征及其影响因素分析 [J]. 环境科学, 2018,39(5):2316-2329.
- [23] Lee X, Liu S, Xiao W, et al. The Taihu Eddy Flux Network: An observational program on energy, water, and greenhouse gas fluxes of a large freshwater lake [J]. Bulletin of the American Meteorological Society, 2014,95(10):1583–1594.
- [24] 宋晓兰,刘正文,潘宏凯,等.太湖梅梁湾与五里湖浮游植物群落的比较 [J]. 湖泊科学, 2007,19(6):643-651.
- [25] 朱广伟,秦伯强,张运林,等.2005~2017年北部太湖水体叶绿素 a 和营养盐变化及影响因素 [J]. 湖泊科学, 2018,30(2):279-295.
- [26] 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.
- [27] Aben R, Barros N, Van E D, et al. Cross continental increase in methane ebullition under climate change [J]. Nature Communications, 2017,8,doi:10.1038/s41467-017-01535-y.
- [28] 肖启涛.太湖水-气界面温室气体(CO₂、CH₄、N₂O)通量研究 [D]. 南 京:南京信息工程大学, 2014.
- [29] 韩 洋,郑有飞,吴荣军,等.南京典型水体春季温室气体排放特征研究[J]. 中国环境科学, 2013,33(8):1360-1371.
- [30] 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.
- [31] Mattson M D, Likens G E. Air pressure and methane fluxes [J]. Nature, 1990,347:718–719.
- [32] 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):305– 313.
- [33] 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.
- [34] Smith L K, Jr W M L. Seasonality of methane emissions from five lakes and associated wetlands of the Colorado Rockies [J]. Global Biogeochemical Cycles, 1992,6(4):323–338.
- [35] 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.
- [36] Ortiz-Llorente M J, Alvarez-Cobelas M. Comparison of biogenic

methane emissions from unmanaged estuaries, lakes, oceans, rivers and wetlands [J]. Atmospheric Environment, 2012,59(9):328-337.

- [37] 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.
- [38] Coulthard T J, Baird A J, Ramirez J, et al. Methane dynamics in peat: Importance of shallow peats and a novel reduced-complexity approach for modeling ebullition [J]. Geophysical Monograph, 2009,184:173-185.
- [39] Walter K M, Zimov S A, Chanton J P, et al. Methane bubbling from Siberian thaw lakes as a positive feedback to climate warming [J]. Nature, 2006,443(7107):71-75.
- [40] Huttunen J T, Lappalainen K M, Saarijärvi E, et al. A novel sediment gas sampler and a subsurface gas collector used for measurement of the ebullition of methane and carbon dioxide from a eutrophied lake [J]. Science of the Total Environment, 2001,266(1):153–158.

- [41] 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.
- [42] Ostrovsky I, Mcginnis D F, Lapidus L, et al. Quantifying gas ebullition with echosounder: the role of methane transport by bubbles in a medium-sized lake [J]. Limnology & Oceanography Methods, 2008, 6(2):105–118.
- [43] Engle D, Melack J M. Methane emissions from an Amazon floodplain lake: enhanced release during episodic mixing and during falling water [J]. Biogeochemistry, 2000,51(1):71–90.
- [44] Marani L, Alvalá P C. Methane emissions from lakes and floodplains in Pantanal, Brazil [J]. Atmospheric Environment, 2007,41(8):1627– 1633.

作者简介: 蒲旖旎(1995-),女,四川营山人,南京信息工程大学硕士研究 生,主要从事地气交换研究.发表论文1篇.

《中国环境科学》2011~2014 年发表的论文中 20 篇入选"领跑者 5000"提名论文

《中国环境科学》2011~2014 年发表的论文中有 20 篇入选"精品期刊顶尖论文平台——领跑者 5000"提名论文."领跑 者 5000(F5000)"平台由中国科学技术信息研究所于 2013 年建设,旨在集中展示中国精品科技期刊上发表的最高端的学术研 究成果,将与国际和国内重要检索系统链接,扩大论文影响.该平台将与汤森路透公司合作,拟利用 WOK 国际检索系统平台,与 SCI 数据库在同一平台内实现文献链接和国际引文检索,在更大范围内向世界科技同行展示和推广中国最重要的科研成果.提 名论文均为 2011~2014 年在学科领域内被引率排名居前的论文.本次环境学科共有 65 篇文章入选"领跑者 5000"提名论文.

3924