富营养化湖区 CH_4 排放特征及其影响因素

商东耀[1]，肖启涛[2*]，胡正华[1*]，谢燕红[3]，黄文晶[3]，张弥[3]
(1. 南京信息工程大学，气象灾害预报预警与评估协同创新中心，江苏省农业气象重点实验室，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，南京 210008; 3. 南京信息工程大学大气环境中心，南京 210044)

摘要: 为明确富营养湖区 CH_4 排放特征及其影响因素，对太湖梅梁湾湖区和湖心区进行为期 1a 的观测，分析影响富营养化湖泊 CH_4 扩散通量时空格局的环境要素. 结果表明，太湖不同湖区均表现为大气 CH_4 的源，但富营养化梅梁湾湖区的 CH_4 扩散排放量 [年均值: 0.140 mmol·(m^2·d)$^{-1}$] 要明显高于中营养化湖心区的排放量 [年均值: 0.024 mmol·(m^2·d)$^{-1}$]，并且在富营养化湖区中，湖岸区的 CH_4 排放量最高. CH_4 通量表现出显著的季节变化: 夏季排放量最高，冬季排放量最低，并且季节间的差异可达一个数量级大小. 太湖 CH_4 通量的空间变化与水体 DOC 浓度显著正相关($R^2 = 0.62$, $P < 0.01$)，富营养化湖区中较高 DOC 浓度导致其出现高 CH_4 排放量. 太湖 CH_4 扩散通量的时间变化受风速和水温等气象因素的驱动，部分水质因子对此有间接影响作用. 鉴于湖泊 CH_4 扩散通量强烈的时空变化以及环境因素巨大的影响，湖泊 CH_4 排放量准确的估算依赖于较大空间和较长时间的观测.

关键词: 富营养湖泊; 扩散通量; 时间变化; 空间变化; 影响因子
中图分类号: X14; X16 **文献标识码:** A **文章编号:** 0250-3301(2018)11-5227-10 **DOI:** 10.13227/j.hjkx.201803128

CH_4 Emissions Characteristics and Its Influencing Factors in an Eutrophic Lake

SHANG Dong-yao[1], XIAO Qi-tao[2*], HU Zheng-hua[1*], XIE Yan-hong[3], HUANG Wen-jing[3], ZHANG Mi[3]
(1. Collaborative Innovation Center on Forecast and Evaluation of Meteorological Disasters, Jiangsu Key Laboratory of Agricultural Meteorology, Nanjing University of Information Science & 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 & Technology, Nanjing 210044, China)

Abstract: In order to identify methane (CH_4) diffusion emissions characteristics and their impact factors in an eutrophic lake, CH_4 flux across the lake-air interface was observed in Meiliang Bay and the central zone of Lake Taihu over one year. The relationships between CH_4 flux and environmental factors and water quality indices were analyzed. The results indicated that the annual mean CH_4 diffusion flux in the eutrophic zone was significantly higher than that in the central zone, which were 0.140 mmol·(m^2·d)$^{-1}$ and 0.024 mmol·(m^2·d)$^{-1}$, respectively. Additionally, the highest CH_4 flux appeared in the eutrophic littoral zone. The CH_4 flux varied seasonally, which was consistent with water temperature that peaked in summer. Furthermore, the difference in CH_4 flux between seasons was an order of magnitude. The temporal variation in CH_4 flux was mostly driven by wind speed and water temperature. The spatial correlation between CH_4 flux and dissolved organic carbon concentration was highly significant ($R^2 = 0.62$, $P < 0.01$). Observing temporal and spatial patterns of CH_4 flux was necessary to accurately estimate whole-lake CH_4 emissions due to large variability across time and space.

Key words: eutrophic lake; diffusion flux; temporal variation; spatial variation; influencing factors

大气温室气体浓度升高导致的全球气候变暖给社会经济可持续发展以及人类生存带来严重威胁，目前已成为备受关注的环境问题. 甲烷(CH_4)是重要的大气温室气体，对温室效应的贡献达到 20%，且大气 CH_4 浓度自工业革命以来增长了 3 倍，是导致全球升温的重要原因之一[1,2]. 监测数据发现近年来大气 CH_4 浓度增长速率在加剧，大气 CH_4 浓度的变异给预测未来温室气体浓度变化以及气候变化情景带来不确定性[2,3]. 在众多大气 CH_4 排放源中，湖泊水体占据着重要地位，其 CH_4 排放量对大气 CH_4 浓度的变化及其全球碳循环具有重要影响[4,5]. 内陆湖泊的面积虽然仅占全球陆地总面积的 3.7%[6]，但其生产力高，受人为活动影响大，对气候变化敏感[5,7]，CH_4 生物地球化学循环过程在该区域异常活跃，其 CH_4 排放对全球变化的响应可能是导致大气 CH_4 浓度变异的主要原因之

收稿日期: 2018-03-20; 修订日期: 2018-05-15
基金项目: 国家自然科学基金项目(41775152, 41575147)
作者简介: 商东耀(1992~)，男，硕士研究生，主要研究方向是地-气温室气体交换，E-mail: 1978769569@qq.com
* 通信作者，E-mail: qtxiao@niglas.ac.cn; zhhu@nuist.edu.cn

?1994-2018 China Academic Journal Electronic Publishing House. All rights reserved. http://www.cnki.net

一[8,9]. 据估算内陆湖泊对自然界 CH_4 排放量的贡献率为 6% ~16%[10]，且最新研究表明湖泊的富营养化将会明显增加其 CH_4 排放量[11,12]. 因此，湖泊富营养化对 CH_4 排放的影响逐渐成为当前研究的热点. 目前全球湖泊富营养化趋势严重[13]，2016 年水利部水资源公报指出我国富营养化湖泊的比例为 78.6%. 湖泊水体富营养化是世界各国目前甚至今后很长的一段时期要面临的水环境问题[14,15]. 因此，本研究通过对太湖富营养化湖区进行为期 1 a 的 CH_4 通量观测，通过揭示湖泊富营养化湖泊 CH_4 通量的变化特征及其影响因素，以期为深入认识富营养化湖泊 CH_4 的排放动态提供数据支撑和理论参考.

1 材料与方法

1.1 研究区域和监测站点

太湖(30°55′40″ ~ 31°32′58″N、119°52′32″ ~ 120°36′10″E) 位于长江三角洲区域，湖区水面面积为2 400 km^2，平均水深仅为 1.9 m. 湖区内光照充足，温热条件好，但由于经济的快速发展以及湖泊资源的不合理利用，太湖生态系统出现退化，蓝藻频繁暴发，其对气候变化的响应及其反馈成为相关研究中所关注的热点区域[16].

本研究选取太湖梅梁湾湖区为研究区域，梅梁湾位于太湖的北部，是一个半封闭的港湾，受河流(梁溪河、直湖港和武进港，图 1) 携带的外源营养负荷输入的影响，该湖区富营养化严重，水质较差，蓝藻水华暴发严重，是太湖环境污染治理重点关注的区域[17]. 另外，太湖常年盛行东南风，暴发的蓝藻很容易在此聚集腐烂.

根据太湖的富营养化特征[17]，本研究在太湖富营养化的梅梁湾湖区选取 7 个空间监测站点(1 ~7 号，图 1)，其中 1 号站点位于梁溪河口，2 号和 3 号站点位于近岸区，4 ~7 号站位分别位于梅梁湾湖区. 同时为对比分析，在受人为活动影响较小的开阔湖心区选两个空间监测站点(8 号和 9 号)，该站点处于中营养化水平. 9 个空间站点的采样频率为每月一次. 此外，为明晰富营养湖区 CH_4 扩散通量的时间动态，在太湖中尺度通量网中的 MLW 站点(图 1)，每天定时(13:00) 定点(MLW 在实验栈桥上，离岸边大约 300 m) 采集水样.

1.2 水样采集和分析

采集水表以下 20 cm 处的水样，水样装入 300 mL 玻璃瓶中. 采样时确保水面没有扰动，并用待

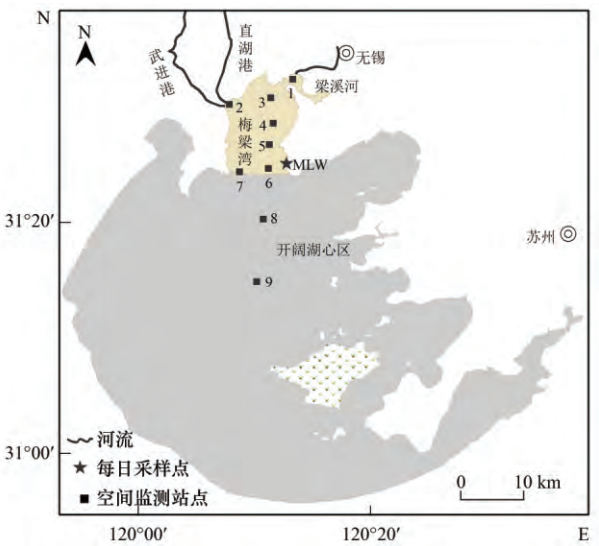

图 1 研究站点示意

Fig. 1 Location of sampling sites

采湖水清洗玻璃瓶 2 ~3 次. 玻璃瓶装满水样后立即用丁基胶塞密封，保证瓶中无气泡. 为防止气体逸出，用封口膜密封瓶塞和玻璃瓶的接口处. 野外采集的水样均保存在保温箱中(保存温度 4℃)，运到实验室后立即进行处理和分析. 水样处理和分析流程如下: 用 100 mL 高纯氮气(摩尔分数 ≥ 99.999%) 顶空，顶空完成后将水样剧烈摇晃 5 min，然后静置，待 CH_4 气体在玻璃瓶的液相(剩余的水样) 和气相(顶空的部分) 中达到动态平衡后，抽取 CH_4 气体，用气相色谱仪分析其浓度，水体 CH_4 溶解原始量浓度(c_w，$nmol \cdot L^{-1}$) 通过顶空平衡法计算得到[18].

基于水体溶解 CH_4 浓度(c_w，$nmol \cdot L^{-1}$)，本研究利用扩散模型法计算太湖水-气界面 CH_4 扩散通量($F_{m,d}$)，计算公式如下:

$$F_{m,d} = k \times (c_w - c_{eq}) \quad (1)$$

式中，c_{eq} 是特定温度下水表 CH_4 气体与大气 CH_4 达到平衡的浓度($nmol \cdot L^{-1}$)；k 是水-气界面 CH_4 气体的交换速率，一般通过风速进行参数化[19]，计算公式为:

$$k = [2.07 + 0.215(U_{10})^{1.7}] \times (S_c/600)^{-n} \quad (2)$$

式中，U_{10} 是 10 m 高度的风速($m \cdot s^{-1}$)，根据粗糙度和仪器的观测高度计算得到，S_c 是无量纲 CH_4 气体施密特数，与水温相关；n 是与风速相关的系数. 在每次野外调查中，采集水面上方 CH_4 气样，经气相色谱仪分析其浓度后，用于 c_{eq} 的计算.

1.3 环境指标的测定

采样现场用 YSI 6600 多参数水质监测仪监测

?1994-2018 China Academic Journal Electronic Publishing House. All rights reserved. http://www.cnki.net

水温、pH 值、溶解氧(DO)、电导率(Spc)等指标. 水深和透明度分别用测深仪和塞氏盘现场测定. 此外,采集水样用于溶解有机碳(DOC)、总氮(TN)、总磷(TP)和叶绿素(Chl-a)的分析测定. 水样经 Whatman GF/F 滤膜(孔径大小: 0.45 μm)过滤后用 Shimadzu 公司生产的 TOC-5000A 型总有机碳分析仪测定 DOC 浓度,TN 采用过硫酸钾消解紫外分光光度法测定,TP 采用钼酸铵分光光度法测定,Chl-a 采用 90% 热乙醇萃取分光光度法测量.

此外,太湖中尺度通量网中 MLW 站点的辐射观测系统、小气候观测系统和水温梯度观测系统为本研究提供辐射、气温、风速、风向、湿度和水温等数据,所有数据的时间步长为 30 min. 水化学数据由太湖湖泊生态系统研究站提供.

1.4　数据分析

分季度、分区以及年均指标采用每个季度、各区和一年内的数学平均值. 四季的划分: 春季为 3 ~5 月; 夏季为 6 ~8 月; 秋季为 9 ~11 月,冬季为 12 月 ~次年 2 月. 采用 SPSS 16.0 软件的单因素方差分析(One-Way ANOVA)方法分析数据之间的差异性,$P<0.05$ 为显著水平,$P<0.01$ 为极显著水平; 采用相关分析(Pearson correlations)方法分析数据之间的相关性.

2　结果与分析

2.1　气象因子及湖水水质参数分析

风速和水温等是重要气象环境因子,也是水-气界面 CH_4 扩散通量的重要驱动因子,图 1 为 2012 年 MLW 站点的日均风速和水温的时间序列. 从中可知,风速的变幅较大,在日均水平上的变化范围为: 0.31 ~8.56 $m \cdot s^{-1}$,但风速没有明显的时间变化特征,春、夏、秋和冬这 4 个季节的均值分别为 2.98、2.60、2.74 和 2.64 $m \cdot s^{-1}$. 受太阳辐射季节变化的影响,水温有明显的季节变化特征,春、夏、秋和冬这 4 个季节的平均水温分别为 17.12、28.61、18.80 和 4.91℃. 在日尺度上,年内最大水温差可达到 32℃,最高水温出现在 7 月,最低水温出现在 1 月.

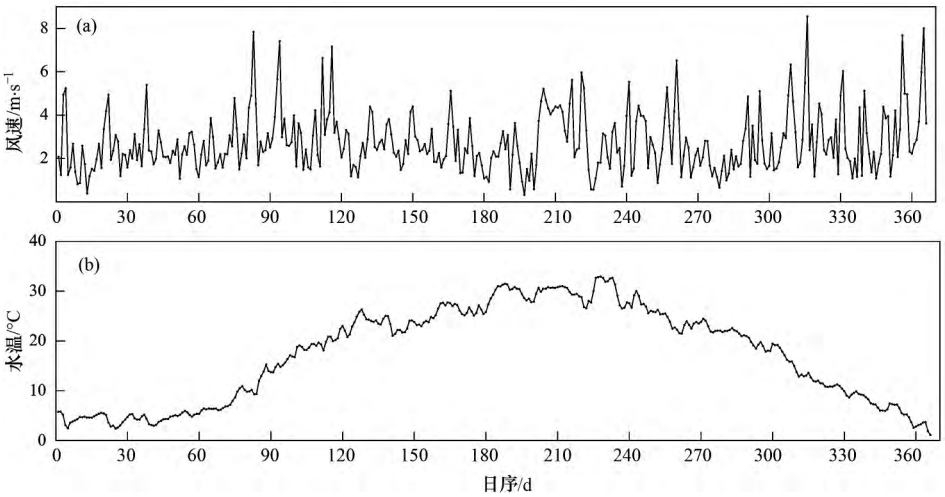

图 2　MLW 站点日均风速和水温的时间变化序列

Fig. 2　Time series of daily mean wind speed and water temperature at the MLW site

表 1 为观测期间不同区域水质指标的年均值. 从中可知,水体 DO 浓度在不同区域的差异较小,但 pH 值、DOC 浓度和 Chl-a 浓度沿着河口区、近岸区、梅梁湾湖区和开阔湖心区呈现梯度变化: pH 值逐渐升高,DOC 和 Chl-a 呈现降低趋势. 因外源营养物直接输入的贡献,TN 和 TP 浓度在河口区最高,但在开阔无直接外源输入的湖心区,也出现较高的 TN 和 TP 浓度. 此外,除河口区外,湖心区的水深最深,但观测表明该区域的水体透明度最低. 这可能是因为湖心区较开阔,风浪扰动能够轻易使底泥悬浮,增加氮磷浓度,降低透明度[20]. 此外,在水体富营养化状态评价体系中,Chl-a 浓度是一个重要的权重因子,因此本研究采用 Chl-a 浓度量化样点的富营养化程度. 根据表 1 中 Chl-a 浓度可知: 从河口区到开阔湖心区,水体富营养化程度呈现显著降低趋势.

2.2　CH_4 扩散通量的空间变化

图 3 表征 CH_4 扩散通量从河口区到开阔湖心区的空间变化. 从中可知,水-气界面 CH_4 扩散通量出现明显的空间变化. 沿着湖水流动的方向,年均 CH_4 扩散通量呈现出显著的递减趋势. 从河口区到湖心区,随着富营养化程度的降低,CH_4 扩散通

?1994-2018 China Academic Journal Electronic Publishing House. All rights reserved.　http://www.cnki.net

表 1 观测期间不同区域的年均水质等指标

Table 1 Annual mean water quality indices during sampling period among different zones

区域	DO/mg·L^{-1}	pH	TP/mg·L^{-1}	TN/mg·L^{-1}	DOC/mg·L^{-1}	Chl-a/μg·L^{-1}	水深/m	透明度/m
河口区	9.69	8.11	0.17	2.85	4.71	49.12	3.15	0.57
近岸区	9.37	8.25	0.13	2.85	4.64	21.21	2.00	0.60
梅梁湾湖区	9.78	8.33	0.11	2.66	4.39	24.12	2.55	0.55
开阔湖心区	9.57	8.34	0.15	2.70	4.01	16.86	2.70	0.35

量由 0.491 mmol·(m^2·d)$^{-1}$ 递减到 0.019 mmol·(m^2·d)$^{-1}$. 在同一个富营养湖区内，近岸区域的 CH_4 排放量[均值: 0.173 mmol·(m^2·d)$^{-1}$]要明显高于梅梁湾湖区的排放量[均值: 0.107 mmol·(m^2·d)$^{-1}$]，但二者之间的差异性不显著(P = 0.196). 但湖心区的 CH_4 通量与近岸区(P < 0.01)和梅梁湾湖区(P < 0.05)的通量均有显著性差异. 位于梁溪河口的 1 号监测站点，因受外源负荷影响严重，其水体的物理化学属性与湖水有显著的差异，故在后面的分析中，不将该点的观测结果列入.

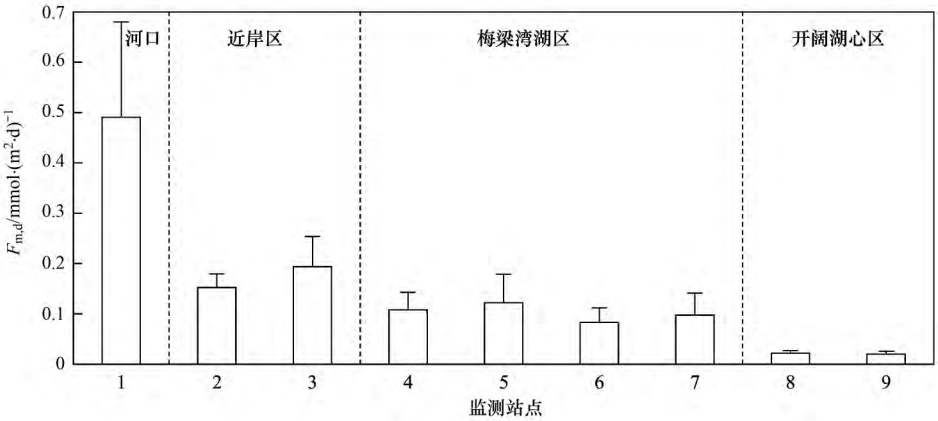

图 3 空间监测站点的年均 CH_4 扩散通量

Fig. 3 Spatial patterns of annual mean CH_4 diffusion fluxes at sampling sites

2.3 CH_4 扩散通量的时间变化

图 4 表征近岸区、梅梁湾湖区、湖心区以及 MLW 站点 CH_4 扩散通量的时间变化特征. 在 2012 年全年观测期间，所有的观测值均为正值，说明太湖水体在不断向大气释放 CH_4. 不同区域 CH_4 扩散通量均表现出很强的季节变化特征: 夏季最高，其次是春季和秋季，冬季最低. MLW 站点的连续观测数据表明: 夏季 CH_4 的平均扩散排放通量[0.279 mmol·(m^2·d)$^{-1}$]比冬季的平均排放量[0.022 mmol·(m^2·d)$^{-1}$)]高出一个数量级. 并且水-气界面 CH_4 扩散通量在 3 月初出现突然升高趋势，但在 11 月末出现突然降低的变化. 同步观测表明，MLW 站点的 CH_4 通量总是高于其他区域的 CH_4 通量. MLW 站点位于梅梁湾湖区的东湖岸区，蓝藻生物量丰富，富营养化程度与近岸区相当，是大气 CH_4 的“热点”排放区域.

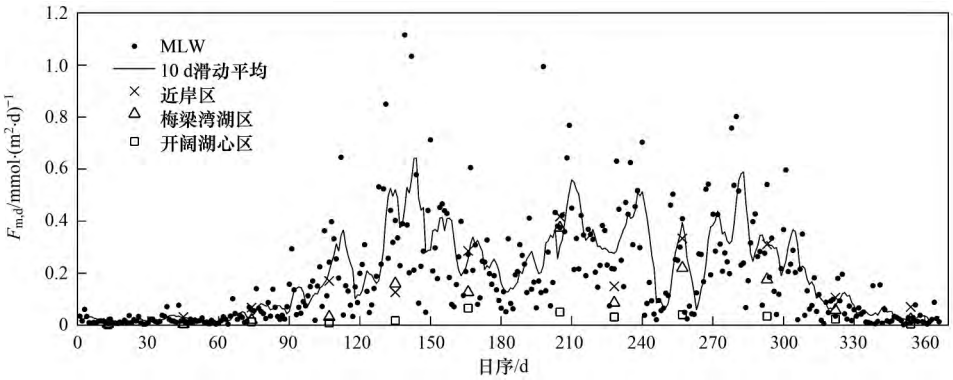

图 4 水-气界面 CH_4 扩散通量的时间序列

Fig. 4 Time series of CH_4 diffusion flux across the water-air interface

?1994-2018 China Academic Journal Electronic Publishing House. All rights reserved. http://www.cnki.net

2.4　时空格局的影响因素

2.4.1　空间格局的控制因子

湖泊 CH_4 通量的空间变化对水体物理生物化学因子较敏感，本研究表明太湖水表 CH_4 溶解浓度及水-气界面 CH_4 扩散通量的空间变化与水体 DOC 浓度呈现显著正相关关系(图 5)，但与 DO、pH、TN、TP 和 Chl-a 浓度等均不显著相关(表 2). 水体 CH_4 的产生主要源于有机质的降解，太湖水表溶解 CH_4 浓度与 DOC 浓度呈现出高度正相关关系 [图 5(a)]，表明 DOC 是太湖水体 CH_4 产生的重要基质，高 DOC 浓度可增加水体 CH_4 产生量，促进水-气界面 CH_4 排放.

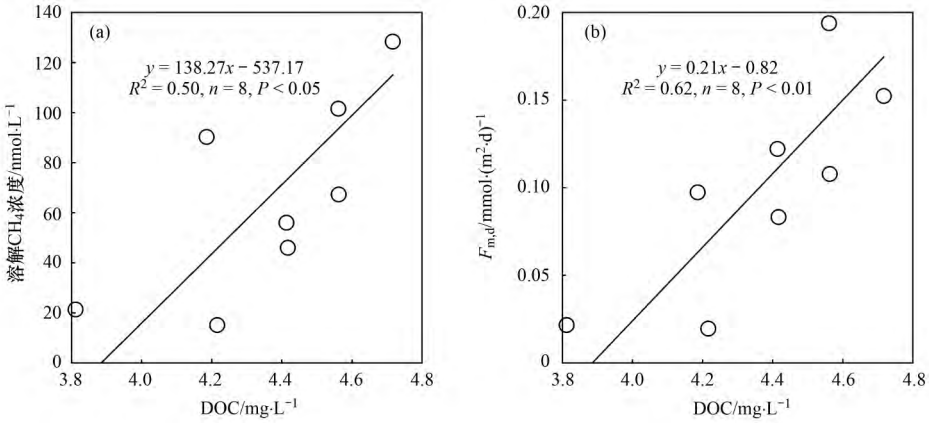

图 5　年均溶解有机碳(DOC)浓度与年均 CH_4 浓度与 CH_4 扩散通量的空间相关性

Fig. 5　Spatial correlation of annual mean DOC concentration against surface dissolved CH_4 concentration and diffusion emissions

DO、pH、TP、TN 和 Chl-a 等是重要的水环境因子，但在空间尺度上，水-气界面 CH_4 的扩散通量与 DO、pH、TP、TN 和 Chl-a 浓度的相关性不显著(表 2)，这进一步说在该大型浅水富营养化湖泊中，水-气界面 CH_4 的排放是一个复杂动态的过程，需要综合考虑多种因素(外源负荷输入、生物因素和水体理化性质等)对其的影响.

2.4.2　时间动态的控制因子

长期连续的野外观测表明，水-气界面 CH_4 扩散通量的时间变化主要受风速和水温等气象因子的驱动(图 6). 风力促进水体的扰动，改变表层水体与大气中 CH_4 气体的浓度梯度，增加 CH_4 气体扩散排放的强度. 水体 CH_4 的产生是一个温度控制的过程，温度的升高能增加产甲烷菌活性，提高水体 CH_4 的产生量，进而增加水-气界面 CH_4 的扩散排放量. 此外，水温也是 CH_4 扩散通量季节变化的重要驱动因子，基于 MLW 站点每日的连续采样，发现月均 CH_4 扩散通量与水温呈现高度正相关关系($R^2=0.84$，$P<0.01$；图 7). 因此，水温是一个有效的预测因子，可以很好表征湖泊 CH_4 扩散通量的季节变化.

表 2　年均 CH_4 扩散通量与年均水质等指标的空间相关性[1)]

Table 2　Spatial correlations between annual CH_4 diffusion flux and water quality indices

项目	DO	pH	TP	TN	Chl-a	透明度
CH_4 浓度	−0.41	−0.71*	−0.16	0.47	0.21	−0.84**
CH_4 通量	−0.05	−0.60	−0.36	0.07	0.33	−0.59

1) * 和 ** 分别表示在 0.05 和 0.01 水平的显著相关性，下同

图 6 也表征在 3 个不同区域，风速和水温对 CH_4 扩散通量的影响程度不同. 例如在开阔湖心区，风速和水温与 CH_4 扩散通量的时间相关系数 R^2 分别达到 0.81 和 0.58，但在富营养化的梅梁湾湖区，该值仅为 0.45 和 0.49. 表 3 的分析结果表明，在 3 个不同区域，CH_4 扩散通量的时间变化除受风速和水温的影响外，DO、pH、TP、TN 和 Chl-a 浓度对其也有影响. 鉴于多个环境因子对太湖 CH_4 扩散通量时间变化的影响，本研究采用逐步多元回归统计分析，结果表明: 在近岸区 CH_4 扩散通量由风速、DO 和 pH 共同控制($R^2=0.94$，$P<0.01$)；在梅梁湾湖区 CH_4 扩散通量由水温和风速共同控制($R^2=0.64$，$P<0.05$)；在开阔湖心区 CH_4 扩散通量由风速、水温和透明度共同控制($R^2=0.92$，$P<0.05$).

?1994-2018 China Academic Journal Electronic Publishing House. All rights reserved.　http://www.cnki.net

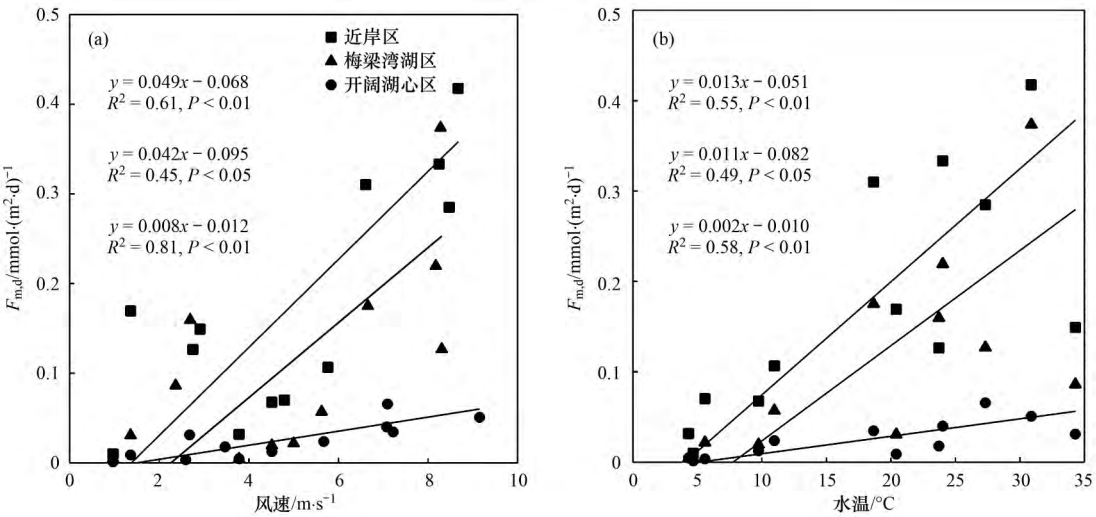

图 6 3 个区域 CH_4 扩散通量与风速和水温的时间相关性

Fig. 6 Temporal correlations between CH_4 diffusion flux and wind speed and water temperature among three study zones

表 3 3 个区域 CH_4 扩散通量与水质等指标的时间相关性

Table 3 Temporal correlations between CH_4 diffusion flux and water environmental factors from different zones

位置	水温	风速	DO	pH	TP	TN	DOC	Chl-a	透明度	水深
近岸区	0.74**	0.79**	−0.65*	0.34	0.76**	−0.17	0.37	0.69**	−0.33	0.57*
梅梁湾湖区	0.70**	0.67**	−0.46	0.50*	0.55*	−0.54*	0.18	0.57*	−0.64*	0.26
湖心区	0.76**	0.81**	−0.54*	0.40	−0.34	−0.55*	0.04	0.29	0.21	−0.06

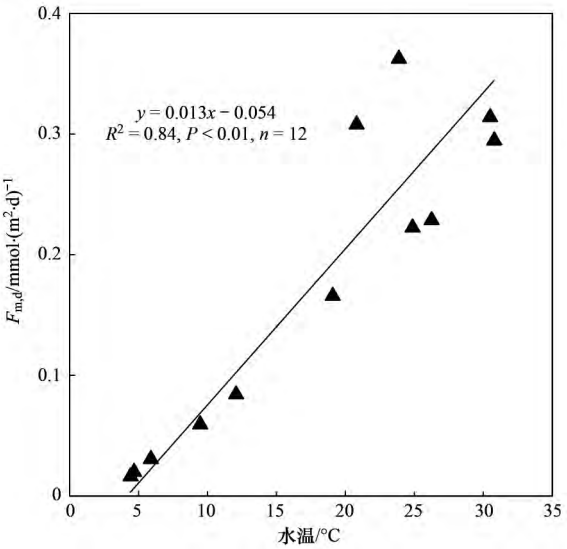

图 7 MLW 站点月均 CH_4 扩散通量与水温的相关性

Fig. 7 Correlation of monthly mean CH_4 diffusion flux against water temperature at the MLW site

3 讨论

3.1 不同区域 CH_4 通量的对比分析

本研究结果表明，不同监测站点水-气界面 CH_4 扩散通量均为正值，说明水体溶解 CH_4 浓度均处于过饱和状态，是大气 CH_4 的源. 但是在不同区域，CH_4 扩散排放强度不同，存在空间变化(图 3)，富营养化的近岸区和梅梁湾湖区均与湖心区的 CH_4 通量存在显著差异($P < 0.05$). 太湖湖心区处于中等营养状态，其 CH_4 排放量 [0.024 mmol·(m²·d)⁻¹] 要显著低于富营养湖区的排放量 [0.14 mmol·(m²·d)⁻¹; 图 2]，在其它湖泊研究中也发现类似现象[11,12,21,22]. 富营养化水体中增加的外源营养物刺激了微生物的生命过程，提高水体 CH_4 产生量，促使水体 CH_4 出现过饱和状态，是大气 CH_4 的一个重要潜在的排放源[23]. 有研究表明受气候变化和人为活动的双重影响，湖泊水体的富营养化状态将会持续升高[15,24]，其在全球 CH_4 收支重要的作用将会更加凸显.

通过对比分析发现，在富营养湖区中，近岸区 CH_4 的通量要明显高于其它区的通量(图 3 和图 4). 湖泊 CH_4 是沉积物在厌氧环境中降解产生，产生的 CH_4 气体通过浓度梯度输送到水表，进而排放到大气中[25]. 但在输送过程中需要克服静水压力[10]，并且大部分 CH_4 气体会被水中的氧气氧化消耗掉[26]. 近岸水体的水深较浅，静水压力较小，且较短的输送路径减少 CH_4 的氧化时间，增加湖表溶解 CH_4 浓度，有利于水-气界面 CH_4 的排放[10,27]. 此外，近岸水体受人为影响程度大，有机

?1994-2018 China Academic Journal Electronic Publishing House. All rights reserved. http://www.cnki.net

质积累多，促进水体 CH_4 的产生和排放，因此富营养化湖岸区是大气 CH_4 的“热点”排放源[28,29].

有研究表明，与湿地和河流等水生生态系统相比，湖泊 CH_4 排放具有更强的空间变化[23]. 之前研究表明湖泊的形态(面积和水深等)[30]、沉积物类型[31]以及植被类型[29]等和湖泊 CH_4 通量的空间变化紧密相关. 此外，不同湖泊之间的富营养化程度不同，其 CH_4 排放通量也有所不同，富营养化程度也与 CH_4 通量的空间异质性紧密相关[11]. 本研究发现在同一个湖泊中，因水体富营养化状态不同，其 CH_4 排放通量也存在高度的空间变化. 因此，富营养化是湖泊 CH_4 通量空间变化的重要驱动因素. 因外源营养物质的输入、水产养殖以及水流的变化等，导致湖泊等内陆水体的富营养化程度不同[32]，可能会进一步加强水体 CH_4 通量的空间异质性.

3.2　气象要素对 CH_4 扩散通量的影响

温度和风速是两个重要的气象因素，本研究发现太湖水-气界面 CH_4 扩散通量与水温和风速均呈显著正相关(图 6). 水温是重要的水物理参数，温度升高，刺激微生物的生命过程，增加水体 CH_4 的产生速率，已有研究表明 CH_4 产生速率随温度升高呈指数增长[32]. 另外，温度升高可降低 CH_4 在水体中溶解度，促使部分储存在水柱中的 CH_4 向外释放[33]. 风力形成的风场能改变表层水体与大气中 CH_4 气体之间的浓度差，加强 CH_4 气体的逸出强度. 并且风速通过风应力对底泥进行扰动，促进沉积物底泥中 CH_4 的释放. 在中国的八大湖泊的研究中均发现风速增大可促进水体 CH_4 排放量[34].

水温是易观测的环境因子，同时驱动着湖泊生态系统生物地球化学过程. 水温改变导致水体的环境参数发生相应变化，从而改变水体 CH_4 产生的条件. 本研究表明，太湖 CH_4 扩散通量的季节变化与水温呈现高度的正相关关系[图 6(b) 和图 7]. 受季风气候的影响，太湖流域温度具有夏高冬低的特征，因此湖泊 CH_4 排放也具有类似季节变化: 峰值排放出现在温度较高的夏季，其它季节尤其是冬季 CH_4 排放量均维持在较低水平，这与其它相关研究的结果一致[11,35]，因此可通过易观测的水温预测湖泊 CH_4 通量的季节变化. 此外，观测数据表明太湖瞬时风速的变异程度大，但太湖 CH_4 扩散通量的时间变化与风速显著正相关[图 6(a)]，说明风速是太湖 CH_4 扩散通量时间变化的敏感因子，这与三峡水库的研究结果一致[36]. 另外本研究表明太湖 CH_4 扩散通量的空间异质性较大，但已有研究表明太湖水温分布很均一，各个区域之间水温的空间差异小于 0.6℃[16,37]，在月均尺度上，不同区域和不同季节的风速差异也不明显[16,38]. 因此，太湖 CH_4 扩散通量的空间变化对风速和水温等气象因素不敏感，风速和水温等气象因素主要驱动太湖水-气界面 CH_4 扩散通量的时间变化.

相关研究指出基质底物的供应对湖泊 CH_4 的排放有重要影响，暖季湖泊的生产力高，其高 CH_4 排放量有可能是因为湖泊聚集了大量的基质底物，而非温度促进作用[39]. 太湖春、秋两季的水温平均值分别为 17.46℃和 18.84℃，无明显差异，但是经历一个生长季后，秋季太湖有大量产 CH_4 生物基质的聚集，理论上太湖秋季 CH_4 排放量要高于春季的排放量[31,39]. 但是 MLW 站点高频连续观测表明，春、秋两季 CH_4 平均通量分别为 0.196 $mmol\cdot(m^2\cdot d)^{-1}$和 0.206 $mmol\cdot(m^2\cdot d)^{-1}$，二者之间的差异性不显著($P=0.74$). 这可能是因为水温是湖泊 CH_4 通量的直接控制因子，春秋两季太湖水温差异不明显，进而导致 CH_4 通量差异不显著. 目前研究表明全球湖泊的变暖速率要快于大气和海洋[40]，鉴于温度对湖泊 CH_4 排放的直接促进作用，快速变暖有可能使得湖泊 CH_4 的排放量持续走高.

3.3　水质参数对 CH_4 扩散通量的影响

湖泊 CH_4 通量和水质参数密切相关，但不同湖泊 CH_4 通量的水质控制因子不同[30,41]. 为更好阐明富营养湖泊 CH_4 排放的控制机制，本研究进一步分析了水-气界面 CH_4 扩散通量与湖泊水质参数之间的关系(表 2 和表 3). 从分析结果可知，CH_4 浓度和排放通量的空间变化主要受水体 DOC 浓度控制，这与很多区域的研究结果相一致[7,30,42]. 在本研究中，富营养化湖区的 DOC 浓度较高(表 1)，因此其 CH_4 排放量较高(图 3 和图 4)，湖岸区最高的 DOC 浓度对应最高的 CH_4 扩散排放量. DOC 为水体 CH_4 的产生提供直接的碳源，较高的 DOC 浓度，为 CH_4 产生提供充足的底物，有利于湖泊 CH_4 的产生和排放[32]. 但本研究也发现 CH_4 通量的时间变化与 DOC 浓度之间的相关性不显著(表 3). 湖泊 DOC 浓度的变化主要受外源输送和内源释放等影响[43,44]，观测数据表明太湖富营养化水体 DOC 浓度无季节变化，其浓度变化范围为 3.05 ~ 6.07 $mg\cdot L^{-1}$，从年初到年末呈现升高趋势. 因此，DOC

?1994-2018 China Academic Journal Electronic Publishing House. All rights reserved.　http://www.cnki.net

浓度对太湖 CH_4 通量时间变化的影响可能受其它因素控制.

本研究表明，富营养化湖泊 CH_4 排放通量与营养盐之间的关系较为复杂. CH_4 通量的空间变化与 TN、TP 和 Chl-a 浓度不相关(表 2)，富营养湖区 CH_4 通量的时间变化与 TP 和 Chl-a 浓度正相关，但与 TN 浓度关系不明显，甚至出现负相关关系(表 3). 营养盐浓度的增加可提高水体初级生产力，为 CH_4 产生供应底物，间接影响 CH_4 的产生和排放[32]. TP 浓度是水体初级生产力的限制因子，Chl-a 浓度则很好地表征出初级生产力的大小[45~47]，因此其时间动态的变化影响 CH_4 通量的时间变化[25]. 在富营养化的城市河流和沼泽湿地研究中，均发现水体 CH_4 的变化与 N 负荷呈现显著正相关关系[48,49]，本研究无此现象可能主要源于以下两个原因: ① CH_4 峰值排放出现在夏季，但夏季较高的水温促进微生物的硝化与反硝化作用，导致大量的 N 素以气体的形式迁移到大气中，水体出现较低的 N 负荷[46]; ② 太湖是一个典型的浅水湖泊，尤其是湖心区受风浪影响大，水体扰动程度厉害，沉积物释放大量的 N 负荷到水体，导致 CH_4 排放水平较低的湖心区具有较高的 N 负荷[20,50]. 此外，本研究还表明不同湖区中 CH_4 通量与水质因子的关系也不尽相同，鉴于内陆湖泊 CH_4 的产生和排放是一个复杂动态的物理化学过程，因此在今后的研究中需综合考虑多种因素(水生态系统自身特性、水体理化性质、水动力因素和生物因素等)，明晰富营养化湖泊 CH_4 排放特征及其具体控制机制.

4 结论

(1) 太湖不同湖区均表现为大气 CH_4 的源，富营养化湖区 CH_4 的扩散排放通量要明显高于中营养化湖心区的排放量，其 CH_4 排放量分别为 0.140 $mmol\cdot(m^2\cdot d)^{-1}$ 和 0.024 $mmol\cdot(m^2\cdot d)^{-1}$. CH_4 通量的空间变化主要受水体 DOC 浓度控制，较高的 DOC 浓度导致富营养化湖区出现高 CH_4 排放量.

(2) 太湖不同湖区水-气界面 CH_4 的扩散排放通量均表现出显著的季节变化，即夏季最高，其次是春季和秋季，冬季最低，季节间的差异可达一个数量级大小. CH_4 扩散通量的时间变化主要受水温和风速等气象因素的驱动.

参考文献:

[1] Kirschke S, Bousquet P, Ciais P, *et al*. Three decades of global methane sources and sinks [J]. Nature Geoscience, 2013, **6**(10): 813-823.

[2] Nisbet E G, Dlugokencky E J, Bousquet P. Methane on the rise-again [J]. Science, 2014, **343**(6170): 493-495.

[3] Stocker B D, Roth R, Joos F, *et al*. Multiple greenhouse-gas feedbacks from the land biosphere under future climate change scenarios [J]. Nature Climate Change, 2013, **3**(7): 666-672.

[4] Bastviken D, Tranvik L J, Downing J A, *et al*. Freshwater methane emissions offset the continental carbon sink [J]. Science, 2011, **331**(6013): 50.

[5] Li S Y, Bush R T. Revision of methane and carbon dioxide emissions from inland waters in India [J]. Global Change Biology, 2015, **21**(1): 6-8.

[6] 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.

[7] Tranvik L J, Downing J A, Cotner J B, *et al*. Lakes and reservoirs as regulators of carbon cycling and climate [J]. Limnology and Oceanography, 2009, **54**(6): 2298-2314.

[8] Marotta H, Pinho L, Gudasz C, *et al*. Greenhouse gas production in low-latitude lake sediments responds strongly to warming [J]. Nature Climate Change, 2014, **4**(6): 467-470.

[9] 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.

[10] Bastviken D, Cole J, Pace M, *et al*. Methane emissions from lakes: Dependence of lake characteristics, two regional assessments, and a global estimate [J]. Global Biogeochemical Cycles, 2004, **18**(4): GB4009. doi: 10.1029/2004GB002238.

[11] 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.

[12] 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.

[13] Paerl H W, Paul V J. Climate change: links to global expansion of harmful cyanobacteria [J]. Water Research, 2012, **46**(5): 1349-1363.

[14] Anderson N J, Bennion H, Lotter A F. Lake eutrophication and its implications for organic carbon sequestration in Europe [J]. Global Change Biology, 2014, **20**(9): 2741-2751.

[15] 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.

[16] Lee X H, Liu S D, 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.

[17] 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.
Qin B Q. Progress and prospect on the eco-environmental research of Lake Taihu [J]. Journal of Lake Sciences, 2009, **21**(4): 445-455.

[18] 肖启涛, 胡正华, Deng J, 等. 杀菌剂对湖泊水体温室气体浓度分析的影响 [J]. 环境科学, 2014, **35**(1): 356-364.

?1994-2018 China Academic Journal Electronic Publishing House. All rights reserved. http://www.cnki.net

Xiao Q T，Hu Z H，Deng J，*et al*. Effects of antiseptic on the analysis of greenhouse gases concentrations in lake water [J]. Environmental Science，2014，**35**(1)：356-364.

[19] Cole J J，Caraco N F. Atmospheric exchange of carbon dioxide in a low-wind oligotrophic lake measured by the addition of SF_6 [J]. Limnology and Oceanography，1998，**43**(4)：647-656.

[20] 朱广伟. 太湖水质的时空分异特征及其与水华的关系 [J]. 长江流域资源与环境，2009，**18**(5)：439-445.
Zhu G W. Spatio-temporal distribution pattern of water quality in Lake Taihu and its relation with cyanobacterial blooms [J]. Resources and Environment in the Yangtze Basin，2009，**18**(5)：439-445.

[21] Furlanetto L M，Marinho C C，Palma-Silva C，*et al*. Methane levels in shallow subtropical lake sediments: Dependence on the trophic status of the lake and allochthonous input [J]. Limnologica-Ecology and Management of Inland Waters，2012，**42**(2)：151-155.

[22] 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.
Long L，Xiao S B，Zhang C，*et al*. Characteristics of methane flux across the water-air interface in subtropical shallow ponds [J]. Environmental Science，2016，**37**(12)：4552-4559.

[23] 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**: 328-337.

[24] Townsend-Small A，Disbennett D，Fernandez J M，*et al*. Quantifying emissions of methane derived from anaerobic organic matter respiration and natural gas extraction in Lake Erie [J]. Limnology and Oceanography，2016，**61**(S1)：S356-S366.

[25] 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**(1-3)：265-279.

[26] Utsumi M，Nojiri Y，Nakamura T，*et al*. Oxidation of dissolved methane in a eutrophic，shallow lake: Lake Kasumigaura，Japan [J]. Limnology and Oceanography，1998，**43**(3)：471-480.

[27] Juutinen S，Rantakari M，Kortelainen P，*et al*. Methane dynamics in different boreal lake types [J]. Biogeosciences，2009，**6**(2)：209-223.

[28] Chen H，Wu N，Yao S P，*et al*. High methane emissions from a littoral zone on the Qinghai-Tibetan Plateau [J]. Atmospheric Environment，2009，**43**(32)：4995-5000.

[29] Wang H J，Lu J W，Wang W D，*et al*. Methane fluxes from the littoral zone of hypereutrophic Taihu Lake，China [J]. Journal of Geophysical Research，2006，**111**(D17)：D17109. doi: 10.1029/2005JD006864.

[30] Rasilo T，Prairie Y T，Del Giorgio P A. Large-scale patterns in summer diffusive CH_4 fluxes across boreal lakes，and contribution to diffusive C emissions [J]. Global Change Biology，2015，**21**(3)：1124-1139.

[31] Natchimuthu S，Sundgren I，Gålfalk M，*et al*. Spatio-temporal variability of lake CH_4 fluxes and its influence on annual whole lake emission estimates [J]. Limnology and Oceanography，2016，**61**(S1)：S13-S26.

[32] 杨平，仝川. 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.

[33] 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.
Zhao X J，Zhao T Q，Zheng H，*et al*. Greenhouse gas emission from reservoir and its influence factors [J]. Environmental Science，2008，**29**(8)：2377-2384.

[34] 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，**19**(1)：11-17.
Chen Y G，Bai X H，Li X H，*et al*. A primary study of the methane flux on the water-air interface of eight lakes in winter，China [J]. Journal of Lake Sciences，2007，**19**(1)：11-17.

[35] Xing Y P，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.

[36] 郝斌，李哲，姚骁，等. 三峡澎溪河水-气界面温室气体模型估算及其敏感性分析 [J]. 湖泊科学，2017，**29**(3)：705-712.
He B，Li Z，Yao X，*et al*. The model estimation and sensitivity analysis of greenhouse gas on water-air interface in Pengxi river，Three Gorges Reservoir [J]. Journal of Lake Sciences，2017，**29**(3)：705-712.

[37] Wang W，Xiao W，Cao C，*et al*. Temporal and spatial variations in radiation and energy balance across a large freshwater lake in China [J]. Journal of Hydrology，2014，**511**: 811-824.

[38] 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.

[39] 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)：99-105.

[40] O'reilly C M，Sharma S，Gray D K，*et al*. Rapid and highly variable warming of lake surface waters around the globe [J]. Geophysical Research Letters，2015，**42**(24)：10773-10781.

[41] Wen Z D，Song K S，Zhao Y，*et al*. Carbon dioxide and methane supersaturation in lakes of semi-humid/semi-arid region，Northeastern China [J]. Atmospheric Environment，2016，**138**: 65-73.

[42] 温志丹，宋开山，赵莹，等. 长春城市水体夏秋季温室气体排放特征 [J]. 环境科学，2016，**37**(1)：102-111.
Wen Z D，Song K S，Zhao Y，*et al*. Seasonal variability of greenhouse gas emissions in the urban lakes in Changchun，China [J]. Environmental Science，2016，**37**(1)：102-111.

[43] Bade D L，Carpenter S R，Cole J J，*et al*. Sources and fates of dissolved organic carbon in lakes as determined by whole-lake carbon isotope additions [J]. Biogeochemistry，2007，**84**(2)：115-129.

[44] 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.

[45] Delsontro T，Boutet L，St-Pierre A，*et al*. Methane ebullition and diffusion from northern ponds and lakes regulated by the

?1994-2018 China Academic Journal Electronic Publishing House. All rights reserved. http://www.cnki.net

interaction between temperature and system productivity [J]. Limnology and Oceanography, 2016, **61**(S1): S62-S77.

[46] Xu H, Paerl H W, Qin B Q, *et al*. Nitrogen and phosphorus inputs control phytoplankton growth in eutrophic Lake Taihu, China [J]. Limnology and Oceanography, 2010, **55**(1): 420-432.

[47] Carpenter S R. Phosphorus control is critical to mitigating eutrophication [J]. Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America, 2008, **105**(32): 11039-11040.

[48] 侯翠翠, 张芳, 李英臣, 等. 卫河新乡市区段春季溶解 CH_4 与 N_2O 浓度特征 [J]. 环境科学, 2016, **37**(5): 1891-1899.
Hou C C, Zhang F, Li Y C, *et al*. Characteristics of dissolved CH_4 and N_2O concentrations of Weihe River in Xinxiang Section in Spring [J]. Environmental Science, 2016, **37**(5): 1891-1899.

[49] 宋长春, 张丽华, 王毅勇, 等. 淡水沼泽湿地 CO_2、CH_4 和 N_2O 排放通量年际变化及其对氮输入的响应 [J]. 环境科学, 2006, **27**(12): 2369-2375.
Song C C, Zhang L H, Wang Y Y, *et al*. Annual dynamics of CO_2, CH_4, N_2O emissions from freshwater marshes and affected by nitrogen fertilization [J]. Environmental Science, 2006, **27**(12): 2369-2375.

[50] Kosten S, Huszar V L M, Bécares E, *et al*. Warmer climates boost cyanobacterial dominance in shallow lakes [J]. Global Change Biology, 2012, **18**(1): 118-126.

《环境科学》连续 6 次荣获 “中国最具国际影响力学术期刊”称号

2017 年 11 月 22 日,中国学术期刊(光盘版)电子杂志社(CNKI)等机构发布“2017 中国最具国际影响力学术期刊”评选结果. 《环境科学》荣获“2017 中国最具国际影响力学术期刊”称号,是唯一入选的环境科学与资源科学类中文期刊,也是自首次评选以来连续 6 次获此殊荣. 评选以期刊国际影响力指数进行排序,遴选出排名前 5%(Top5%)的期刊获评“中国最具国际影响力学术期刊”.

?1994-2018 China Academic Journal Electronic Publishing House. All rights reserved. http://www.cnki.net