山东省东平湖茳草 (*Potamogeton crispus*) 腐烂过程中水体温室气体溶存浓度及扩散通量变化*

邓焕广^{1**}, 刘涛¹, 鲁长娟², 张菊¹, 曹起孟¹, 姚昕¹

(1: 聊城大学环境与规划学院, 聊城 252000)

(2: 山东省德州市自然资源局, 德州 253073)

摘要: 为了解东平湖茳草 (*Potamogeton crispus*) 腐烂分解对水体温室气体溶存浓度和界面扩散通量的影响, 于 2016 年 5—7 月在东平湖茳草腐烂期采集上覆水和沉积物柱样, 测定上覆水和孔隙水中温室气体 (N_2O 、 CH_4 和 CO_2) 的溶存浓度, 采用 Fick 第一定律和双层模型计算沉积物—水—气界面扩散通量, 同时分析上覆水和沉积物的理化性质, 并采用网袋分解法于现场进行茳草腐烂分解试验, 以探究东平湖茳草腐烂过程中温室气体溶存和扩散的主要影响因子及其主要来源。结果表明, 茳草腐烂符合二次指数模型, 分为快速衰减和慢速分解两个阶段; 茳草腐烂过程中上覆水 pH 和亚硝态氮浓度表现为先降低后升高, 而溶解氧、氨氮、硝态氮和可溶性正磷酸盐浓度则为先升高后下降, 沉积物中铵态氮含量表现为先升高后降低, 硝态氮为先降低后显著升高, 有机质和 pH 呈降低—升高—降低的波动变化; 上覆水中各温室气体浓度和水—气界面扩散通量均表现为 $CO_2 > CH_4 > N_2O$, 其扩散通量分别为 5862.9 ± 5441.4 、 31.15 ± 41.3 和 $0.15 \pm 0.57 \mu mol / (m^2 \cdot h)$, 整体表现为大气温室气体的“源”, 并以碳排放为主; 上覆水中 N_2O 浓度和水—气界面扩散通量均先降低后升高, 孔隙水中 N_2O 浓度在快速和慢速分解阶段分别出现极大值 (22.7 和 55.6 nmol/L), 而其沉积物—水界面通量前期持续增加至腐烂结束后迅速降低; 上覆水和孔隙水中 CH_4 浓度及其各界面通量均表现为前期略有降低后持续升高; 上覆水中 CO_2 浓度和水—气界面通量表现为持续升高后降低并趋于稳定, 而孔隙水中 CO_2 呈波动变化, 在茳草腐烂初期向孔隙水扩散, 后期向上覆水扩散。水温是影响上覆水中温室气体浓度和水—气界面通量的主要因素; 沉积物是水体 N_2O 和 CH_4 的主要来源, 孔隙水中浓度是控制其沉积物—水界面扩散的重要因素; 而上覆水中 CO_2 呈现多源性, 但以上覆水中有机物质的矿化为主。

关键词: 温室气体; 溶存浓度; 扩散通量; 茳草; 腐烂; 东平湖

The effect of *Potamogeton crispus* decomposition on the dissolved concentrations and fluxes of greenhouse gases in Lake Dongping, Shandong Province*

DENG Huanguang^{1**}, LIU Tao¹, LU Changjuan², ZHANG Ju¹, CAO Qimeng¹ & YAO Xin¹

(1: School of Environment and Planning, Liaocheng University, Liaocheng 252000, P.R.China)

(2: Dezhou Natural Resources Bureau, Shandong Province, Dezhou 253073, P.R.China)

Abstract: In order to study the effect of *Potamogeton crispus* decomposition on the dissolved concentrations of greenhouse gases (GHGs) and their diffusion fluxes at the sediment-surface water-air interface in the Lake Dongping, surface water and sediment core samples were collected *in situ* seven times from May to July in 2016, and the decomposition experiment was also carried out by using the litterbag method to explore the dynamic of the dry mass loss of *P. crispus*. Dissolved concentrations of carbon dioxide (CO_2), methane (CH_4) and nitrous oxide (N_2O) in the surface water and pore water were concurrently measured, and the diffusion fluxes at the sediment-surface water interface and the surface water-air interface were calculated by using the Fick's first law and the two-layered model respectively. In addition, the physicochemical properties of surface water and sediment were also measured.

* 2019-11-04 收稿; 2020-01-01 收修改稿。

国家自然科学基金项目 (41401563, 41977322, 41807430)、山东省自然科学基金项目 (ZR2014JL028) 和聊城大学科研基金项目 (318011909) 联合资助。

** 通信作者; E-mail: lcdhg@lcu.edu.cn.

ured to explore the main factors that might affect the concentrations and diffusion fluxes of GHGs as well as their sources during the decomposition of *P. crispus*. The results showed that the dry mass loss of *P. crispus* could be described accurately by the double exponential model which suggested two stages (rapid and slow) of *P. crispus* decomposition. The pH and nitrite concentrations in the surface water decreased first and then increased, while the change of the dissolved oxygen, ammonia, nitrate and dissolved inorganic phosphorus concentrations was reversed. In sediment, the ammonium content first increased and then decreased, while the nitrate content first decreased and then significantly increased, the organic matter content and pH of the sediment fluctuated. Both the concentrations and diffusion fluxes of GHGs at the water-air interface were in the order of $\text{CO}_2 > \text{CH}_4 > \text{N}_2\text{O}$, and the average fluxes were 5862.9 ± 5441.4 , 31.15 ± 41.3 and $0.15 \pm 0.57 \mu\text{mol}/(\text{m}^2 \cdot \text{h})$, respectively. Generally, the waterbody acted as the source of the GHGs to the air, dominated by the carbon emission. The concentrations of N_2O in surface water and its diffusion fluxes at the surface water-air interface first decreased and then increased, and N_2O concentrations in pore water presented maximum values of 22.7 and 55.6 nmol/L in the rapid and slow decomposition stage respectively, while its fluxes at the sediment-water interface increased slowly in the early stage and then decreased rapidly at the end of the decomposition. For CH_4 , its concentrations in the surface water and pore water and interface diffusion fluxes all dropped slightly in the initial stage and then continued to rise. The concentrations of CO_2 in surface water and its diffusion fluxes at the surface water-air interface increased continually and then decreased significantly to lower levels at the end of the rapid decomposition and then remain stable; while the concentrations of CO_2 in pore water showed large fluctuations, which diffused to pore water at the initial stage of the decomposition and to surface water at the later stage. The correlation analysis between the concentrations and diffusion fluxes of GHGs as well as the physicochemical properties of surface water and sediment suggested that water temperature was the main factor that influenced the concentrations of GHGs in surface water and their fluxes at the water-air interface. N_2O and CH_4 in the water body mainly originated from sediment, and their concentrations in the pore water was the important factor that could control the sediment-water interface diffusion; while CO_2 in the surface water had multi sources, which were dominated by the mineralization of the organic matter in surface water.

Keywords: Greenhouse gases; dissolved concentrations; diffusion fluxes; *Potamogeton crispus*; decomposition; Lake Dongping

沉水植物作为湖泊生态系统的初级生产者,在维持生态系统结构和功能及生物多样性等方面具有重要作用^[1]. 沉水植物对水中营养物具有较好的吸收作用^[2],但其衰亡后腐烂分解,一方面消耗溶解氧,释放 C、N、S、P 等物质,改变水体理化性质^[3-4],另一方面,营养物质的释放可为微生物活动提供物质基础,也为 CO_2 、 CH_4 和 N_2O 等主要温室气体产生的底物需求提供了质量和数量保障,可影响温室气体的产生和排放^[5-7],但沉水植物衰亡后腐烂分解对水体温室气体产生和排放的影响还鲜有报道. 当前已有关于水生植物对温室气体影响的研究多集中于植物生长对水体中温室气体含量和水—气界面间扩散通量的影响^[8-12],较少关注植物衰亡过程中温室气体的产生和排放,且已有部分主要基于室内模拟研究^[13],而缺乏现场研究结果,同时对沉积物—水界面间温室气体的扩散影响关注不够^[14],没有系统地对水体沉积物—水—气界面间温室气体的迁移进行探讨. 因此,研究沉水植物衰亡腐烂过程中水体沉积物—水—气界面间温室气体产生和排放对于全面了解水体温室气体的来源和评估水体对大气温室气体的贡献具有重要的科学意义.

近年来,对富营养化水体具有较强适应能力和净化作用的沉水植物——菹草 (*Potamogeton crispus*) 已成为北方水体水生植物的优势种,菹草于每年 6 月初会发生集中衰亡,衰亡过程中伴随着营养元素的大量释放,易导致水体理化性质变化和二次污染^[3,15],并促进微生物反应,影响水体中温室气体的产生、溶存和界面间的扩散. 东平湖是山东省第二大湖泊,为典型草型湖泊,菹草是其优势种之一,5 月份衰亡前覆盖面积可达水面的 80% 以上^[16],而关于菹草腐烂分解对东平湖温室气体产生和排放的影响还未见报道. 因此,于 2016 年 5—7 月(菹草衰亡前后)分 7 次对东平湖上覆水和孔隙水中温室气体的溶存浓度进行现场采样监测,结合菹草腐烂分解规律和水体环境理化性质探讨上覆水和孔隙水中温室气体溶存的影响因素,并探究菹草腐烂过程中温室气体在沉积物—水—气界面间的扩散规律,以期为进一步理解水生植物衰亡对水体温室气体排放的影响提供科学数据支撑和理论参考.

1 材料与方法

1.1 采样区域概况

东平湖地处山东省西南部,属暖温带大陆性半湿润季风气候区,常年有水面积为 209 km^2 ,平均水深为

2~3 m,是黄河下游仅存的天然湖泊和中国东部地区典型的浅水湖泊,也是南水北调东线工程的主要调蓄湖和山东省西水东输项目的水源地;1979—1999年,东平湖水生植物物种多样性减少,生物量下降,群落结构趋于简单,呈衰退现象^[17],2003—2004年菹草为伴生种^[18],2008年成为优势种群^[16].据本课题组2016年5月全湖现场调查数据,菹草衰亡前湿生物量为0.87~4.90 kg/m²,平均值为2.63 kg/m²,略低于张金路等2008年5月的调查结果(平均值为3.27 kg/m²,最大生物量达到5.33 kg/m²)^[16].

图1 东平湖及其采样点位置

Fig.1 Location of Lake Dongping and the sampling site

有机玻璃螺纹盖密封,并缓慢补充上覆水至顶部稍有溢出后采用螺纹盖密封,为防止漏水螺纹盖内采用硅胶垫做密封元件(图2d).用铝箔采气袋和100 mL有机玻璃采样管采集现场空气和水面下30 cm水样,每次采集3个平行样品,另取现场水样过0.45 μm滤膜后冷冻保存,用于硝态氮(NO₃⁻-N)、亚硝态氮(NO₂⁻-N)、氨氮(NH₃-N)和溶解态无机磷(DIP)浓度分析.回实验室后,立即采用顶空法测定采样管内水样温室气体浓度^[8, 19];在氮气箱内将原状沉积物表层(0~1 cm)切下,快速放入预先准备好的100 mL有机玻璃采样管中(内含60 mL充分曝过高纯N₂的超纯水)密封(图2d),充分振荡混匀,静置10 min后通过密封螺纹盖中间的圆孔将采样针头穿过硅胶气密垫采集顶空气体样品,测定温室气体浓度^[19],用于计算沉积物孔隙水中温室气体浓度;另取原状沉积物样品测定孔隙度、pH、有机质(OM)和提取态无机氮.

气样中N₂O、CO₂和CH₄浓度采用Agilent 7890A型气相色谱仪(美国Agilent)测定.DO浓度和pH分别采用HI9147型DO仪和IQ150型pH计测定,过滤后水样分别采用紫外分光光度法、N-(1-萘基)-乙二胺光度法、纳氏试剂分光光度法和钼锑抗分光光度法测定NO₃⁻-N、NO₂⁻-N、NH₃-N和DIP浓度^[20].沉积物中有机质(OM)含量采用重铬酸钾-外加热法测定^[21],提取态无机氮含量采用1 mol/L KCl浸提,NO₃⁻-N含量测定方法同水样,铵态氮(NH₄⁺-N)含量采用次溴酸钠氧化法测定^[22].

1.3 数据处理与统计

采用二次指数模型对菹草干物质残留率进行拟合^[3]:

$$\frac{W_t}{W_0} = Ae^{-k_1 \cdot t} + (1 - A)e^{-k_2 \cdot t} \quad (1)$$

式中, W_t 为 t 时刻的残留干量(g), W_0 为菹草初始干量(g), A 和 $1-A$ 分别为初始干菹草中快速分解和慢速分解组分比例, k_1 和 k_2 分别为快速和慢速分解组分的分解常数(d⁻¹).

上覆水中温室气体溶存浓度(C_w)的计算公式为^[8]:

$$C_w = ((C_{Al} - C_A) V_{Al} + \alpha \cdot C_{Al} \cdot V_w) / V_w \quad (2)$$

式中, C_{Al} 为有机玻璃采样管中水-气交换达到平衡时顶空气体样品中温室气体浓度(μmol/L或10⁻⁶ v/v), C_A 为采样点现场大气中温室气体浓度(μmol/L), V_{Al} 和 V_w 分别为采样管内顶空空气和水样体积(L), α 为布

1.2 样品采集与分析

于2016年5月17日,在东平湖北部湖区的典型菹草区(水深0.6 m)(图1)采集即将衰亡的整株菹草样品(菹草形态见图2a),带回实验室后,挑净杂物,用超纯水洗净,置于阴凉通风处自然风干后,整株装入100目尼龙分解袋中(图2b),每袋15 g,每组设3个平行,共设9组.于2016年5月21日(菹草即将大面积衰亡前)将分解袋随机投放到采样区域并固定(图2c),并在投放后第1、5、9、13、18、23、30、36、44天各取回一组(3个),带回实验室后用自来水和去离子水洗去表面附着物,70℃恒重后称重计算干物质残留率.

以2016年的5月21日为第0天,于第4、8、14、20、37、49天上午10点在采样区现场测定湖水pH、DO和水温,并使用自制原状沉积物采样器采集5 cm深原状沉积物于有机玻璃采样管内,底部采用有

图2 菹草分解实验照片及有机玻璃采样管示意图:(a)菹草形态图,(b和c)菹草分解实验图,(d)有机玻璃采样管示意图

Fig.2 Photographs of decomposition experiment of *Potamogeton crispus* and sketch map of the plexiglass sampling tube

氏系数(mol/L).

水—气界面温室气体的扩散通量(F)($\mu\text{mol}/(\text{m}^2 \cdot \text{h})$)采用双层模型计算^[8,19],正值代表向空气扩散,负值为进入上覆水,计算公式为:

$$F = k \cdot \Delta C = K(C_w - C_A) \quad (3)$$

式中, ΔC 为水—气界面温室气体浓度差值($\mu\text{mol/L}$); k 为扩散系数,计算公式为: $k = 1.91e^{0.35\mu}(Sc/600)^{-1/2}$, μ 为现场10 m高处风速(m/s), Sc 为施密特数,为水的运动黏度(ν)与气体分子扩散系数(D)之比. 风速数据来源于东平县气象局观测站,该观测站位于稻屯洼湿地公园南边界处($35^\circ 56' \text{N}$, $116^\circ 24' \text{E}$),距东平湖东岸仅为13 km,周围为种植小麦等低矮作物的农田,地势开阔,没有高大的植物及建筑物,与东平湖开阔的下垫面相似,基本能够代表湖面的风速状况,风速观测高度为10 m.

孔隙水中气体浓度根据泥水混合液中气体浓度、曝气超纯水中气体浓度空白值及表层沉积物含水量计算获得,沉积物—水界面扩散通量根据0~1 cm深度沉积物孔隙水和上覆水体中温室气体浓度差值,应用Fick第一定律计算(公式(4))计算^[19],正值代表向上覆水扩散,负值代表进入孔隙水.

$$F_{s,w} = D_s \cdot \Delta C / \Delta Z = D_s(C_p - C_w) / \Delta Z \quad (4)$$

式中, $F_{s,w}$ 是沉积物—水界面的气体扩散通量($\mu\text{mol}/(\text{cm}^2 \cdot \text{s})$), D_s 是气体的有效扩散系数(cm^2/s), ΔC 是界面间气体浓度差($\mu\text{mol}/\text{cm}^2$); ΔZ 是扩散距离(cm); C_p 是沉积物孔隙水中气体浓度($\mu\text{mol}/\text{cm}^2$); C_w 是上覆水体中的气体浓度($\mu\text{mol}/\text{cm}^2$). 其中扩散系数 D_s 根据水体中气体扩散系数和沉积物孔隙度进行校正,公式为: $D_s = D_w \cdot \varphi^2$, D_w 是水体中的气体扩散系数(cm^2/s); φ 是沉积物孔隙度. D_w 在环境温度为0~35℃范围内根据与温度相关的经验公式进行计算. 扩散通量单位最后均转化为 $\mu\text{mol}/(\text{m}^2 \cdot \text{h})$.

数据的统计分析采用软件 Excel 2013 和 SPSS 18.5 完成,各参数间相关性分析采用 Pearson 相关进行分析检验,图形采用软件 Origin 2015 绘制.

2 结果

2.1 东平湖菹草腐烂分解规律

菹草腐烂分解过程整体上呈现初期(前23天)为快速衰减阶段,随后进入慢速分解阶段,衰减速率变缓(图3). 菹草残留的干物质量在第30天有所上升,然后趋于稳定,这可能与在慢速分解阶段湖水中藻类、细

图3 菹草分解过程中干物质残留率动态及其指数模拟

Fig.3 Dynamic of dry mass remained in *Potamogeton crispus* during its decomposition

菌和有机碎屑等吸附在菹草残留物中使其质量增加有关^[4]. 二次指数模型对菹草残留率的拟合度高 ($R^2 = 0.991$), 由该拟合方程可得 (图3), 菹草易分解组分占比为 83.3%, 分解速率 k_1 为 0.054 d^{-1} , 慢分解组分比例为 16.7%, 分解速率 k_2 为 0.022 d^{-1} .

2.2 菹草腐烂分解过程中水体理化性质的变化

从图4可以看出, 在菹草腐烂过程中, 上覆水 pH 先下降后上升, 第 14 天达到最小值 (7.59), 至实验结束时 (第 49 天) 基本恢复至腐烂前水平 (腐烂前后分别为 8.3 和 8.2). 这是由于在菹草腐烂分解初期产生有机酸^[23], 使上覆水 pH 下降, 随藻类的繁殖与生长, 消耗水中 HCO_3^- 和 CO_2 , 造成水体碱度升高, pH 值上升^[24], 同时随着菹草残体中含氮有机物的释放, 在微生物作用下产生氨气和氨类物质^[25], 也会导致 pH 值的上升. 第 8 天前 DO 浓度无明显变化, 平均浓度为 4.9 mg/L , 接近地表水Ⅲ类水标准 (5 mg/L), 腐烂影响不明显; 第 8 天后, DO 浓度明显上升, 至第 14 天水中其他水生植物生长后可达到 7 mg/L 左右, 并趋于稳定. 水温受气温影响经历了一次先下降后上升的变化, 第 8 天后持续上升至 27.5°C (第 49 天). $\text{NH}_3\text{-N}$ 浓度在 $0.57 \sim 0.80 \text{ mg/L}$ 之间, 平均值为 0.67 mg/L , 达到地表水Ⅲ类水标准 (1.0 mg/L), 在腐烂初期随着菹草体内易释放氮的释放, $\text{NH}_3\text{-N}$ 浓度迅速上升, 第 4 天后持续下降, 至实验结束时与腐烂初期无显著差异; $\text{NO}_3\text{-N}$ 浓度在 $0.50 \sim 1.17 \text{ mg/L}$ 之间, 平均值为 0.83 mg/L , 在腐烂初期无明显变化, 第 4 天和第 37 天出现极大值 ($P < 0.05$), 至实验结束时其浓度低于腐烂前; 上覆水中 $\text{NO}_2\text{-N}$ 浓度较低, 其范围为 $0.004 \sim 0.005 \text{ mg/L}$, 平均值为 0.005 mg/L , 变化不显著; DIP 浓度为 $0.06 \sim 0.14 \text{ mg/L}$, 平均值为 0.10 mg/L , 随菹草体内磷的释放, DIP 浓度持续增加, 第 37 天出现极大值 (0.14 mg/L) 后下降, 但仍高于腐烂前, 这与其他研究结果^[24,26]一致.

图4 菹草腐烂期间上覆水理化指标的变化

Fig.4 Changes of the physicochemical properties of surface water during the decomposition of *Potamogeton crispus*

表层沉积物中 $\text{NO}_3\text{-N}$ 、 $\text{NH}_4\text{-N}$ 、OM 和 pH 分别在 $8.58 \sim 15.3 \text{ mg/kg}$ 、 $95.4 \sim 164.1 \text{ mg/kg}$ 、 $62.2 \sim 69.8 \text{ g/kg}$ 和 $7.37 \sim 7.66$ 之间. 如图5所示, 沉积物中 $\text{NO}_3\text{-N}$ 含量在菹草腐烂分解开始后迅速降低, 这可能是由于菹草在初期快速腐烂分解释放出易溶有机物, 增加了可利用性碳源^[3], 促进了沉积物的反硝化作用和微生物活动, 导致其含量迅速降低^[27], 第 8 天开始含量迅速上升, 试验结束时 (第 49 天) 约为初始值的 1.3 倍; $\text{NH}_4\text{-N}$ 含量在分解初期即出现显著上升, 在第 8 天达到最大值, 之后迅速下降, 试验结束时含量略高于腐烂前; OM

含量在分解初期略有下降后持续上升,至第 37 天时为初始值的 1.08 倍,试验结束时其含量与初始时无显著差异;pH 在茭草腐烂分解初期略有下降后显著上升,第 8 天达到最大值 7.65,随后持续下降,试验结束时和腐烂前基本相当(腐烂前后分别为 7.40 和 7.39)。

图 5 茭草腐烂期间表层沉积物理化指标的变化

Fig.5 Changes of the physicochemical properties of surface sediment during the decomposition of *Potamogeton crispus*

2.3 上覆水中温室气体溶存浓度与水—气界面扩散通量的变化

茭草腐烂分解期间上覆水中温室气体的溶存浓度与扩散通量的变化趋势较为一致(图 6)。N₂O 浓度和扩散通量均呈现先降低后上升的变化趋势;其中,上覆水 N₂O 浓度在 0~29.16 nmol/L 之间,平均浓度为 10.05 nmol/L,与夏季太湖水浓度(11.18 nmol/L)^[28]基本相当,略低于鄱阳湖水体浓度(32.57±17.35 nmol/L)^[29],水—气界面 N₂O 扩散通量在-0.39~1.24 μmol/(m²·h)之间,均值为 0.15 μmol/(m²·h),第 8~14 天快速分解期间为负值,表现为从大气中吸收 N₂O,但值较低。CH₄ 浓度和扩散通量在茭草腐烂前期变化不显著,但在后期均有显著上升;其中,CH₄ 浓度在 0.23~2.23 μmol/L 之间,均值为 0.59 μmol/L,高于夏季太湖水浓度(0.18 μmol/L)^[28],扩散通量在 10.71~123.29 μmol/(m²·h)之间,平均值为 31.15 μmol/(m²·h),均表现为扩散进入空气。CO₂ 浓度和扩散通量随着茭草腐烂分解持续升高,至第 8 天达到峰值后迅速降低,并于快速分解结束后趋于稳定;CO₂ 浓度在 22.09~307.87 μmol/L 之间,均值为 134.21 μmol/L,高于夏季太湖水浓度(32.72 μmol/L)^[28],扩散通量在 469.2~13566.0 μmol/(m²·h)之间,均值为 5862.9 μmol/(m²·h),均表现为扩散进入空气。由此可见,茭草腐烂分解期间,上覆水中各温室气体的浓度和排放通量均表现为 CO₂>CH₄>N₂O,整体表现为大气温室气体的“源”,并以碳排放为主,CO₂ 和 CH₄ 的排放分别集中在腐烂的前期和后期。

图 6 茭草腐烂过程中上覆水中温室气体浓度及扩散通量的变化

Fig.6 Greenhouse gas concentrations in surface water and diffusion fluxes at water-air interface during the decomposition of *Potamogeton crispus*

2.4 沉积物孔隙水中温室气体溶存浓度及沉积物-水界面扩散通量的变化

如图 7 所示,表层沉积物孔隙水中温室气体的浓度与扩散通量除 CH₄外,变化趋势存在着一定的差异. 其中,N₂O 浓度在 14.0~55.6 nmol/L 之间,在快速和慢速分解阶段分别出现极大值(22.7 和 55.6 nmol/L), 呈现先升高后降低再快速升高然后降低的变化趋势,而沉积物-水界面 N₂O 扩散通量在-0.20~0.59 μmol/(m²·h)之间,呈前期缓慢增加后迅速降低的变化趋势,且主要表现为向上覆水中扩散. CH₄浓度和扩散通量分别在 3.02~75.7 μmol/L 和 16.2~517.0 μmol/(m²·h)之间,两者变化趋势较为一致,表现为腐烂前期略有下降,从第 8 天开始上升,第 37 天后迅速升高,为初始值的 6.0~10.0 倍,且均表现为向上覆水中扩散. CO₂ 浓度在 32.7~253.8 μmol/L 之间,表现为波动下降的变化趋势;扩散通量在-1234.5~1331.1 μmol/(m²·h)之间,在菹草腐烂开始后迅速降低,表现为向孔隙水中扩散,直到腐烂后期(第 20 天)再次转变为向上覆水中扩散.

图 7 菹草腐烂过程中表层沉积物孔隙水中温室气体浓度及沉积物-水界面通量的变化
Fig.7 Greenhouse gas concentration in pore water and diffusion fluxes at sediment-water interface during the decomposition of *Potamogeton crispus*

2.5 环境因子、温室气体溶存浓度及各界面通量间的相关关系

在东平湖菹草腐烂期间,上覆水中 N₂O 和 CH₄浓度及其水-气界面通量与水温均呈显著正相关关系($P<0.05$),而 CO₂与水温呈极显著负相关关系($P<0.01$);上覆水中 N₂O 浓度与水体 DO 浓度呈显著负相关关系;上覆水中各温室气体浓度与其水-气界面通量均呈极显著正相关关系;N₂O 和 CH₄浓度及其水-气界面通量间具有显著正相关关系(表 1). 沉积物孔隙水中仅 CH₄浓度和沉积物-水界面扩散通量与水温呈显著正相关关系,且 CH₄浓度与沉积物-水界面扩散通量呈极显著正相关关系(表 2).

表 1 上覆水中温室气体浓度和水-气界面通量与理化指标间的 Pearson 相关系数

Tab.1 The Pearson correlation coefficients between the concentrations and water-air interface fluxes of greenhouse gases and the water physicochemical parameters

		上覆水指标							上覆水中浓度		水-气界面通量		
		NH ₃ -N	NO ₃ ⁻ -N	NO ₂ ⁻ -N	DIP	pH	DO	T	CH ₄	CO ₂	N ₂ O	CH ₄	CO ₂
上覆水 中浓度	N ₂ O	-0.589	-0.733	-0.124	-0.317	0.359	-0.770 *	0.745 *	0.825 *	-0.613	0.999 **	0.827 *	-0.603
	CH ₄	-0.557	-0.554	-0.311	0.059	0.115	0.271	0.757 *	1	-0.507	0.850 *	1.000 **	-0.508
	CO ₂	0.416	0.214	-0.437	-0.407	-0.376	-0.389	-0.895 **		1	-0.623	-0.512	0.998 **
水-气界 面通量	N ₂ O	-0.599	-0.729	-0.131	-0.281	0.340	0.014	0.760 *			1	0.852 *	-0.614
	CH ₄	-0.558	-0.553	-0.304	0.060	0.114	0.275	0.761 *				1	-0.513
	CO ₂	0.435	0.229	-0.408	-0.424	-0.388	-0.383	-0.883 **					1

** 表示 $P < 0.01$; * 表示 $P < 0.05$.

表2 孔隙水中温室气体浓度和沉积物-水界面通量与沉积物理化指标间的 Pearson 相关系数
Tab.2 The Pearson correlation coefficients between the pore water concentrations and the sediment-water interface fluxes of greenhouse gases and the sediment physicochemical parameters

		沉积物指标					孔隙水中浓度		沉积物-水界面通量		
		T	NH ₄ ⁺ -N	NO ₃ ⁻ -N	OM	pH	CH ₄	CO ₂	N ₂ O	CH ₄	CO ₂
孔隙水中 浓度	N ₂ O	0.441	-0.515	-0.003	0.587	-0.067	0.047	-0.512	0.731	0.048	0.232
	CH ₄	0.797 *	-0.120	0.262	0.264	-0.709	1	-0.076	-0.480	1.000 **	0.387
	CO ₂	-0.051	0.061	0.533	0.047	-0.050		1	-0.330	-0.076	0.609
沉积物-水 界面通量	N ₂ O	0.010	-0.399	0.021	0.429	0.420			1	-0.478	-0.030
	CH ₄	0.796 *	-0.126	0.271	0.269	-0.701				1	0.384
	CO ₂	0.654	-0.313	0.503	0.543	-0.549					1

** 表示 $P<0.01$; * 表示 $P<0.05$.

3 讨论

3.1 茳草腐烂过程中温室气体的产生与扩散

茳草腐烂分解会导致水体理化性质发生变化,如 pH 的变化及还原环境的发展,并释放出营养盐等物质^[3],同时也促进异养微生物的生长^[30],加速碳氮转化,使温室气体浓度发生变化,从而影响其源汇效应^[5, 31].

N₂O 产生于微生物硝化和反硝化过程^[32],其浓度受到上覆水及沉积物中氮转化作用强弱的影响. 通常上覆水中以硝化作用为主,沉积物中则以反硝化作用为主. 东平湖茳草腐烂分解过程中,上覆水 DO 浓度均较高(>4 mg/L,图 4),因此上覆水中以硝化作用为主,反硝化作用难以发展,而湿地反硝化主要在沉积物中发生^[33],但在厌氧及低 NO₃⁻-N 浓度下,N₂O 会作为电子受体被反硝化细菌消耗^[31]. 上覆水中 N₂O 浓度和水-气界面扩散通量出现先降低后上升的变化趋势,在快速分解阶段(第 8~14 天)会从大气中吸收 N₂O,这是由于在快速分解过程以释放易分解有机质为主,碳氮比大,微生物从水体中吸收 N₂O 以满足其对氮素的需求,而在茳草腐烂后期则以释放氮、磷为主^[3],增加了水体中氮浓度,促进氮转化和 N₂O 的生成和扩散,同时也促进了沉积物反硝化作用,使 N₂O 产生速率增加,增加了其向上覆水的释放(图 7),使水-气界面扩散通量增加(图 6);随着茳草腐烂分解过程的结束,氮释放减缓,水体中硝态氮浓度降低(图 4),而由于沉积物表层的碳氮比降低,硝化作用增强^[34],沉积物中硝态氮含量增加(图 5),同时孔隙水中 N₂O 被反硝化细菌作为电子受体所消耗,使其从上覆水向孔隙水中少量扩散(图 7).

CH₄和 CO₂分别是在厌氧和好氧下有机质矿化的最终产物. 生物腐烂分解向水体中释放的大量有机物质在微生物作用下发生矿化,同时,沉降在沉积物表面的残体也在微生物作用下分解,产生 CO₂和 CH₄^[5,13]. 在生物体衰亡分解过程中,沉积物是 CH₄产生的主要场所^[5],沉积物产生的 CH₄并不是全部释放到大气中,部分在上覆水中向上迁移的过程中被多种作用损耗,如被 O₂氧化、厌氧氧化等^[35]. 本研究中上覆水中 CH₄浓度和水-气界面扩散通量在茳草腐烂前期变化不明显,后期迅速上升,这是由于茳草前期快速分解过程中释放的易分解有机质溶于上覆水中,DO 浓度较高,不具备生成 CH₄的条件^[8],腐烂后期通量显著增加是由于难降解有机物沉积到沉积物表面,既增加了沉积物的有机质含量又形成厌氧环境,在温度上升时微生物活性增加;由于在茳草腐烂过程中 CH₄沉积物-水界面通量均大于水-气界面(图 6,图 7),因此沉积物是 CH₄的主要来源,并且在上覆水的扩散中存在着 CH₄的损耗. 上覆水中 CO₂浓度和水-气界面扩散通量在茳草衰亡前由于其光合作用均较低,茳草腐烂后快速分解过程中释放的易分解有机质好氧分解产生 CO₂^[36],使上覆水中浓度和水-气界面通量快速上升,在第 8 天左右达到峰值,随着其他水生植物的生长,光合作用增强,导致水中 CO₂溶存浓度降低并趋于稳定;在淡水湖泊中沉积物孔隙水中 CO₂受氢营养性产 CH₄过程的影响而浓度降低^[37],使上覆水中 CO₂向沉积物中扩散,而后期沉积的茳草残留物分解使 CO₂再次扩散进入上覆水;在整个腐烂过程中 CO₂水-气界面扩散通量多大于沉积物-水界面通量,说明上覆水有机碳矿化

是 CO_2 的主要来源之一^[5]。

3.2 环境因子对菹草腐烂期水体温室气体溶存浓度和界面通量的影响

温室气体的产生和扩散多与上覆水和沉积物的理化性质有关^[5,8,35], 在本研究中, 3 种温室气体的产生和排放与水体大多数理化指标不存在显著相关关系, 可能是菹草腐烂分解过程中物质的释放干扰导致的。

上覆水中 N_2O 浓度和水—气界面通量与水温均呈显著正相关关系, 水温可通过影响菹草分解速率使水体营养盐浓度升高和 DO 浓度降低, 从而影响硝化、反硝化作用, 进而影响 N_2O 的产生; 还可通过影响微生物活性和气体溶解度, 间接影响水中 N_2O 浓度^[38]。 N_2O 浓度与 DO 浓度呈显著负相关关系, 这是由于随菹草腐烂分解, 导致残体周围水中 DO 浓度降低, 有利于沉积物反硝化作用发展, 导致 N_2O 浓度增加, 与其他研究一致^[39]。 沉积物—水界面通量与孔隙水中 N_2O 浓度呈非显著性正相关关系(表 2, $R=0.731$), 说明孔隙水中 N_2O 浓度是控制其界面扩散的主要因素之一。

上覆水中 CH_4 浓度与水温呈显著正相关关系, 温度上升会直接促进甲烷产生菌活性^[40]; 另一方面温度上升也会加快菹草腐烂速率, 导致水体中 DO 浓度降低, 厌氧条件也会促进甲烷产生菌活性增强, 从而导致浓度增加, 同时使在水体中 CH_4 浓度与 DO 浓度变化多表现出显著负相关关系^[41], 但在本研究中水体 CH_4 浓度与 DO 浓度呈非显著正相关关系, 相关性较低(表 1, $R=0.271$), 这可能与菹草腐烂分解和物质释放干扰有关。 在碳、氮污染较为严重的水体中, N_2O 和 CH_4 的溶存浓度呈正相关关系^[42], 本研究中两者浓度及其水—气界面扩散通量均呈显著正相关关系(表 1), 可能与菹草腐烂过程中大量碳氮元素的释放促进了反硝化作用和产甲烷作用的发展有关, 说明 N_2O 和 CH_4 可能具有同源性, 均来源于菹草分解释放元素的转化; 同时 CH_4 与 N_2O 浓度及通量均与水温呈显著正相关关系(表 1), 说明水温也是影响二者产生和扩散的共同因子。

湖水中 CO_2 浓度仅与水温呈极显著负相关关系(表 1)。 在菹草腐烂过程中, 湖水中 DO 浓度相对较高, 有机质分解释放大量 CO_2 ^[43], 导致水中 CO_2 浓度上升; 水温上升降低了 CO_2 在水中的溶解度, 同时菹草残留物沉积在沉积物表面腐烂分解过程中会利用 CO_2 产生 CH_4 ^[44], 这些都会导致水中 CO_2 浓度降低^[8], 从而使 CO_2 浓度与水温呈负相关关系。 孔隙水中 CO_2 浓度与沉积物—水界面扩散通量呈正相关关系但不显著(表 2, $R=0.387$), 主要是由于沉积物—水界面扩散通量取决于其界面间两介质中的浓度梯度, 孔隙水与上覆水中 CO_2 浓度的变化规律不一致导致浓度梯度的变化, 因此导致孔隙水中浓度与沉积物—水界面扩散通量间相关关系不显著; 而上覆水中 CO_2 浓度与水—气界面扩散通量呈显著正相关关系(表 1), 说明水体向空气中扩散的 CO_2 既来源于上覆水有机物矿化也来源于沉积物中有机物的矿化作用^[44-45], 但在菹草腐烂分解的过程中以上覆水中有有机物的矿化作用为主。

4 结论

1) 东平湖菹草腐烂分解过程符合二次指数模型, 前 23 天为快速衰减分解阶段, 后为慢速分解阶段。 菹草腐烂过程中, 上覆水 pH 、 NO_2^- -N 浓度和沉积物中 NO_3^- -N 含量先降低后升高, 而上覆水中 DO、 NH_3 -N、 NO_3^- -N 和 DIP 浓度以及沉积物中 NH_4^+ -N 含量则先升高后降低; 沉积物 OM 含量和 pH 呈下降—升高—下降的波动变化。

2) 菹草腐烂过程中, 各温室气体的浓度和水—气界面扩散通量均表现为 $\text{CO}_2 > \text{CH}_4 > \text{N}_2\text{O}$, 整体表现为大气温室气体的“源”, 并以碳排放为主, CO_2 和 CH_4 的排放分别集中于腐烂的前期和后期; 沉积物—水界面 N_2O 和 CH_4 扩散通量均表现为向上覆水中扩散; CO_2 在腐烂初期表现为向孔隙水中扩散, 后期则相反。

3) 水温是影响菹草腐烂过程中水体温室气体浓度及其水—气界面通量的主要因子; 孔隙水中 N_2O 和 CH_4 浓度是控制其沉积物—水界面扩散通量的重要因素; 上覆水中 CO_2 具有多源性, 但以上覆水中有有机物的矿化为主, 而 CH_4 则主要来自于沉积物中有机物的矿化。

5 参考文献

- [1] Wang MY. Decomposition and nutrient release of *Potamogeton crispus* and their influence on anammox bacteria [Dissertation]. Zhenjiang: Jiangsu University, 2016. [王鸣远. 菹草腐烂分解对污染物释放及对沉积物厌氧氨氧化细菌的影响].

- 响[学位论文]. 镇江: 江苏大学, 2016.]
- [2] Wang JQ, Zheng YF, Wang GX. Diurnal variation of water quality around *Potamogeton crispus* population. *Acta Ecologica Sinica*, 2013, **33**(4): 1195-1203. [张菊, 邓焕广, 吴爱琴等. 东平湖菹草腐烂分解及其对水环境的影响. 环境科学学报, 2013, **33**(4): 1195-1203.]
- [3] Zhang J, Deng HG, Wu AQ *et al.* Decomposition of *Potamogeton crispus* and its effect on the aquatic environment of Dongping. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 2013, **33**(9): 2590-2596. [张菊, 邓焕广, 吴爱琴等. 东平湖菹草腐烂分解及其对水环境的影响. 环境科学学报, 2013, **33**(9): 2590-2596.]
- [4] Chen ZG, Lin ZJ, Zhou XH *et al.* Pollutants dynamic release of *Potamogeton crispus* during decomposition process. *Journal of Arid Land Resources and Environment*, 2017, **31**(8): 153-159. [陈志刚, 林志军, 周晓红等. 菹草腐烂分解过程中污染物的动态释放. 干旱区资源与环境, 2017, **31**(8): 153-159.]
- [5] Yan XC, Zhang ZQ, Ji M *et al.* Concentration of dissolved greenhouse gas and its influence factors in the summer surface water of eutrophic lake. *J Lake Sci*, 2018, **30**(5): 1420-1428. DOI: 10.18307/2018.0523. [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. 湖泊科学, 2018, **30**(5): 1420-1428.]
- [6] Brooks A, Shannon R, White J *et al.* Controls on methane production in a tidal freshwater estuary and a peatland: Methane production via acetate fermentation and CO₂ reduction. *Biogeochemistry*, 2003, **62**(1): 19-37.
- [7] Hou CC, Zhang F, Li YC *et al.* Characteristics of dissolved CH₄ and N₂O concentrations of Weihe River in Xinxiang Section in Spring. *Environmental Science*, 2016, **37**(5): 1891-1899. [侯翠翠, 张芳, 李英臣等. 卫河新乡市区段春季溶解 CH₄ 与 N₂O 浓度特征. 环境科学, 2016, **37**(5): 1891-1899.]
- [8] Deng HG, Zhang ZB, Liu T *et al.* Dissolved greenhouse gas concentrations and the influencing factors in different vegetation zones of an urban lake. *J Lake Sci*, 2019, **31**(4): 1055-1063. DOI: 10.18307/2019.0409. [邓焕广, 张智博, 刘涛等. 城市湖泊不同水生植被区水体温室气体溶存浓度及其影响因素. 湖泊科学, 2019, **31**(4): 1055-1063.]
- [9] Liu W, Jiang X, Zhang Q *et al.* Has submerged vegetation loss altered sediment denitrification, N₂O production, and denitrifying microbial communities in subtropical lakes? *Global Biogeochemical Cycles*, 2018, **32**(8): 1195-1207.
- [10] Xing T, Li JX, Li BB *et al.* Effects of macrophytes on gaseous nitrogen emissions and nitrogen removal from sediments in a shallow eutrophic lake. *Chinese Journal of Ecology*, 2018, **37**(3): 771-778. [邢涛, 李俊雄, 李彬彬等. 水生植物对草型富营养化湖泊气态氮排放及沉积物氮去除的影响. 生态学杂志, 2018, **37**(3): 771-778.]
- [11] Gao Y, Zhang F, Liu XH *et al.* Mediation of production and transportation of N₂O in eutrophic water with the free-floating aquatic plant, *Eichhornia crassipes*. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 2017, **37**(3): 925-933. [高岩, 张芳, 刘新红等. 漂浮水生植物对富营养化水体中 N₂O 产生及输移过程的调节作用. 环境科学学报, 2017, **37**(3): 925-933.]
- [12] Yu Z, Li Y, Deng H *et al.* Effect of *Scirpus mariqueter* on nitrous oxide emissions from a subtropical monsoon estuarine wetland. *Journal of Geophysical Research-atmospheres*, 2012, **117**: G02017. DOI: 10.1029/2011JG001850.
- [13] Wang GC. Contribution of carbon sequestration on CH₄ and CO₂ production in coastal wetland of the Yangtze River estuary [Dissertation]. Shanghai: East China Normal University, 2018. [王郭臣. 长江河口湿地植被固碳对 CH₄ 和 CO₂ 产生的贡献[学位论文]. 上海: 华东师范大学, 2018.]
- [14] Diggle R, Tait D, Maher D *et al.* The role of porewater exchange as a driver of CO₂ flux to the atmosphere in a temperate estuary (Squamish, Canada). *Environmental Earth Sciences*, 2019, **78**(11): 336.
- [15] Deng H, Zhang J, Chen S *et al.* Metal release/accumulation during the decomposition of *Potamogeton crispus* in a shallow macrophytic lake. *Journal of Environmental Sciences*, 2016, **42**(4): 71-78.
- [16] Zhang JL, Duan DX, Wang ZZ. Harm and control measures for the decomposition of *Potamogeton crispus* in Lake Dongping. *Environmental Study Monitor*, 2009, **22**(2): 31-33. [张金路, 段登选, 王志忠. 东平湖菹草大面积衰亡的危害及防治对策. 环境研究与监测, 2009, **22**(2): 31-33.]
- [17] Pang QJ. Investigation and analysis of biological community in Dongping Lake. *Journal of Shandong Hydraulic Engineering Institute*, 1999, **11**(3): 37-44. [庞清江. 东平湖水体生物群落的调查与分析. 山东水利专科学校学报, 1999, **11**(3): 37-44.]
- [18] Yu SP, Sun GY, Dou SZ *et al.* The declining of hydrophyte of Dongping Lake and the influence of the south-to-north water transfer project on it. *China Environmental Science*, 2005, **25**(2): 200-204. [于少鹏, 孙广友, 窦素珍等. 东平湖水生植物的衰退及南水北调工程对其影响. 中国环境科学, 2005, **25**(2): 200-204.]
- [19] Tan YJ. The Greenhouse gases emission and production mechanism from river sediment in Shanghai [Dissertation]. Shang-

- hai: East China Normal University, 2014. [谭永洁. 上海市河流沉积物温室气体的排放与产生机制[学位论文]. 上海: 华东师范大学, 2014.]
- [20] Editorial board of "Monitoring and analysis methods of water and wastewater", Ministry of Environmental Protection of the People's Republic of China ed. Monitoring and analysis methods of water and wastewater; fourth edition. Beijing: China Environmental Science Press, 2002. [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: 第4版. 北京: 中国环境科学出版社, 2002.]
- [21] Bao SD ed. Soil agrochemical analysis. Beijing: China Agriculture Press, 2002. [鲍士旦. 土壤农化分析. 北京: 中国农业出版社, 2002.]
- [22] Han WY ed. The investigation manual on chemical elements in sea water. Beijing: Ocean Press, 1986. [韩舞鹰. 海水化学要素调查手册. 北京: 海洋出版社, 1986.]
- [23] Shang LX, Ke F, Li WC *et al.* Laboratory research on the contaminants release during the anaerobic decomposition of high-density cyanobacteria. *J Lake Sci*, 2013, **25**(1): 47-54. DOI: 10.18307/2013.0107. [尚丽霞, 柯凡, 李文朝等. 高密度蓝藻厌氧分解过程与污染物释放实验研究. 湖泊科学, 2013, **25**(1): 47-54.]
- [24] Zhang J, Deng HG, Wang DQ *et al.* Impacts of decomposition of submerged plants on nutrient concentrations in overlying water in Tuhai River under different temperatures. *Water Resources Protection*, 2011, **27**(4): 22-26. [张菊, 邓焕广, 王东启等. 不同温度条件下徒骇河沉水植物腐烂对上覆水体中营养盐浓度的影响. 水资源保护, 2011, **27**(4): 22-26.]
- [25] Wang C, Wang G, Wang Z. Effects of submerged macrophytes on sediment suspension and NH_4^+ -N release under hydrodynamic conditions. *Journal of Hydrodynamic*, 2010, **22**(6): 810-815.
- [26] Wang LZ, Wang GX. Influence of submerged macrophytes on phosphorus transference between sediment and overlying water in decomposition period. *Acta Ecologica Sinica*, 2013, **33**(17): 5426-5437. [王立志, 王国祥. 衰亡期沉水植物对水和沉积物磷迁移的影响. 生态学报, 2013, **33**(17): 5426-5437.]
- [27] Zhong SQ, Yang Y, Tao R *et al.* Carbon releasing characteristics and denitrification effects of five plant materials. *Chinese Journal of Environmental Engineering*, 2014, **8**(5): 1817-1824. [钟胜强, 杨扬, 陶然等. 5种植物材料的水解释碳性能及反硝化效率. 环境工程学报, 2014, **8**(5): 1817-1824.]
- [28] Xiao QT. Study on greenhouse gases (CO_2 , CH_4 , N_2O) fluxes of water-air interface in Lake Taihu [Dissertation]. Nanjing: Nanjing University of Information Science & Technology, 2014. [肖启涛. 太湖水-气界面温室气体(CO_2 、 CH_4 、 N_2O)通量研究[学位论文]. 南京: 南京信息工程大学, 2014.]
- [29] Xu HX, Jiang XY, Yao XL *et al.* Characteristics of nitrous oxide (N_2O) emissions and the related factors in Lake Poyang. *J Lake Sci*, 2016, **28**(5): 972-981. DOI: 10.18307/2016.0506. [徐会显, 姜星宇, 姚晓龙等. 鄱阳湖水体氧化亚氮排放特征及影响因素. 湖泊科学, 2016, **28**(5): 972-981.]
- [30] Komada T, Burdige D, Crispo S *et al.* Dissolved organic carbon dynamics in anaerobic sediments of the Santa Monica Basin. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 2013, **110**(3): 253-273.
- [31] Johansson A, Kasimir KÅ, Klemetsson L *et al.* Nitrous oxide exchanges with the atmosphere of a constructed wetland treating wastewater. *Tellus Series B-chemical & Physical Meteorology*, 2003, **55**(3): 737-750.
- [32] Seitzinger SP. Denitrification in freshwater and coastal marine ecosystems: ecological and geochemical significance. *Limnology and Oceanography*, 1988, **33**(4part2): 702-724.
- [33] Tang CJ, Zhang L, Du YY *et al.* Spatial variations of denitrification in wetland sediments in Poyang Lake and the influencing factors. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 2014, **34**(1): 202-209. [唐陈杰, 张路, 杜应畅等. 鄱阳湖湿地沉积物反硝化空间差异及其影响因素研究. 环境科学学报, 2014, **34**(1): 202-209.]
- [34] Xia S, Li J, Wang R. Nitrogen removal performance and microbial community structure dynamics response to carbon nitrogen ratio in a compact suspended carrier biofilm reactor. *Ecological Engineering*, 2008, **32**(3): 256-262.
- [35] Xiao Q, Zhang M, Hu Z *et al.* Spatial variations of methane emission in a large shallow eutrophic lake in subtropical climate. *Journal of Geophysical Research Biogeosciences*, 2017, **122**(7): 1-18.
- [36] Cai W. Estuarine and coastal ocean carbon paradox: CO_2 sinks or sites of terrestrial carbon incineration? *Annual Review of Marine Science*, 2011, **3**(1): 123-145.
- [37] Li LL, Xue B, Yao SC. The significance and application of the research on reduction and oxidation of methane in lake sediments. *Bulletin of Mineralogy, Petrology and Geochemistry*, 2016, **35**(4): 634-645. [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. 矿物岩石地球化学通报, 2016, **35**(4): 634-645.]
- [38] Schrier-Uijl A, Veraart A, Leffelaar P *et al.* Release of CO₂ and CH₄ from lakes and drainage ditches in temperate wetlands. *Biogeochemistry*, 2011, **102**: 265-279.
- [39] Liu XL, Liu CQ, Li SL *et al.* Production and releasing mechanism of N₂O in cascade reservoirs of Maotiao River in summer. *Resources and Environment in the Yangtze Basin*, 2009, **18**(4): 374-378. [刘小龙, 刘丛强, 李思亮等. 猫跳河流域梯级水库夏季 N₂O 的产生与释放机理. 长江流域资源与环境, 2009, **18**(4): 374-378.]
- [40] Duc N, Crill P, Bastviken D. Implications of temperature and sediment characteristics on methane formation and oxidation in lake sediments. *Biogeochemistry*, 2010, **100**(1/2/3): 185-196.
- [41] Hu BB, Tan YJ, Wang DQ *et al.* Methane and nitrous oxide dissolved concentration and emission flux of plain river network in winter. *Scientia Sinica; Chimica*, 2013, **43**(7): 144-154. [胡蓓蓓, 谭永洁, 王东启等. 冬季平原河网水体溶存甲烷和氧化亚氮浓度特征及排放通量. 中国科学: 化学, 2013, **43**(7): 144-154.]
- [42] Yu ZJ. The temporal and spatial variability and emission flux of soluble nitrous oxide and methane in Shanghai river network [Dissertation]. Shanghai: East China Normal University, 2011. [虞中杰. 上海市河网水体溶存氧化亚氮和甲烷的时空分布及排放通量[学位论文]. 上海: 华东师范大学, 2011.]
- [43] Luo JC, Ni MF, Li SY. Water-air interface CO₂ exchange flux of typical lakes in a mountainous area of the western Chongqing and their influencing factors. *Environmental Science*, 2019, **40**(1): 194-201. [罗佳宸, 倪茂飞, 李思悦. 重庆西部山区典型湖泊水-气界面 CO₂ 交换通量及其影响因素. 环境科学, 2019, **40**(1): 194-201.]
- [44] Yan XC, Wang MY, Xu XG *et al.* Migration of carbon, nitrogen and phosphorus during organic matter mineralization in eutrophic lake sediments. *J Lake Sci*, 2018, **30**(2): 306-313. DOI: 10.18307/2018.0203. [闫兴成, 王明玥, 许晓光等. 富营养化湖泊沉积物有机质矿化过程中碳、氮、磷的迁移特征. 湖泊科学, 2018, **30**(2): 306-313.]
- [45] Høj L, Olsen R, Torsvik V. Effects of temperature on the diversity and community structure of known methanogenic groups and other archaea in high Arctic peat. *The ISME Journal*, 2008, **2**(1): 37-48.