

水力调控对湖泊甲烷扩散通量的影响^{*}

肖启涛^{1**}, 胡正华², 张 弥², 王 伟², 肖 薇²

(1: 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)

(2: 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, 南京 210044)

摘 要: 外源引水等水力调控措施常用于湖泊水环境综合整治中, 作为人类施加到湖泊显著的外界活动, 其对湖泊甲烷(CH_4)扩散通量的影响鲜有报道. 贡湖湾作为“引江济太”工程长江来水进入太湖的第一站, 其 CH_4 通量变化是对水力调控的最好响应. 基于2011年11月至2013年8月逐月的野外观测表明, 贡湖湾平均 CH_4 扩散排放量为 $0.073 \text{ mmol}/(\text{m}^2 \cdot \text{d})$, 显著高于参考水域(湖心区) CH_4 排放量(均值: $0.017 \text{ mmol}/(\text{m}^2 \cdot \text{d})$). 贡湖湾不同站点间 CH_4 通量也表现出显著差异, 但湖心区域无此现象. 贡湖湾和湖心2个区域的 CH_4 扩散通量均有明显的时间变化, 且与水温呈显著正相关. 但因受到外源来水的影响, 贡湖湾 CH_4 通量时间变化的温度依赖性相对较低. 总体上外源引水显著提高了湖体 CH_4 排放量, 考虑到湖泊 CH_4 通量受内部因子和外部因子的综合协调影响, 其潜在的控制机制还需要进一步探讨.

关键词: 甲烷; 扩散通量; 外源引水; 时空变化; 影响因子; 太湖; 贡湖湾

Effects of water diversion on methane diffusion flux across the water-air interface in lakes^{*}

Xiao Qitao^{1**}, Hu Zhenghua², Zhang Mi², Wang Wei² & Xiao Wei²

(1: *Key Laboratory of Watershed Geographic Science, Nanjing Institute of Geography and Limnology, Chinese Academy of Sciences, Nanjing 210008, P.R.China*)

(2: *Collaborative Innovation Center on Forecast and Evaluation of Meteorological Disasters, Nanjing University of Information Science and Technology, Nanjing 210044, P.R.China*)

Abstract: Manual water diversion has been applied to improve the water environment of lake, however, its effects on CH_4 diffusion flux across water-air interface have not been well documented. To improve the water quality of Lake Taihu, the project of water transfers from Yangtze River is a long-term effort. As the first stop that water transfers into Lake Taihu from Yangtze River, Gonghu Bay is the fine place to evaluate the effects of water diversion on lake CH_4 flux. Field measurements from November 2011 to August 2013 showed that, the CH_4 diffusion flux at Gonghu Bay with a mean value of $0.073 \text{ mmol}/(\text{m}^2 \cdot \text{d})$ was significantly higher than at the central zone with a mean value of $0.017 \text{ mmol}/(\text{m}^2 \cdot \text{d})$. Meanwhile, CH_4 flux varied among sites at Gonghu Bay. The CH_4 flux at the two-zone both showed temporal variability, which was regulated by water temperature. However, the role of temperature varied among the two zones, the water diversion may confound the effect of temperature on CH_4 flux at Gonghu Bay, leading to the relatively less temperature dependency of CH_4 flux. Manual water diversion increased the lake CH_4 emission flux as a whole, however, lake CH_4 emission was controlled by multiple, interconnected factors related to internal metabolic activities and external loading, further studies are needed to explore the underlying mechanism.

Keywords: Methane; diffusion flux; water diversion; spatial-temporal variation; influencing factors; Lake Taihu; Gonghu Bay

甲烷(CH_4)是重要的大气温室气体, 目前研究发现大气 CH_4 浓度持续升高, 其浓度增加导致的温室效应

^{*} 2020-04-19 收稿; 2020-07-03 收修改稿.

国家自然科学基金项目(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)和中国科学院南京地理与湖泊研究所交叉创新团队项目(NIGLAS2016TD01)联合资助.

^{**} 通信作者; E-mail: qtxiao@niglas.ac.cn.

可能是全球变暖的重要原因之一^[1-2]. 近年来相关研究表明湖泊等水体是大气 CH_4 的重要排放源, 其 CH_4 排放量对大气 CH_4 浓度的变化及其全球碳循环影响显著^[3-4]. 但是, 目前准确评估内陆湖泊 CH_4 排放还存在一定的挑战, 主要因为 CH_4 生物地球化学循环过程在湖泊水体特别活跃, 影响 CH_4 产生和排放的因素较多^[5-9]. 因此, 为准确评估湖泊 CH_4 排放量及其在全球碳循环中的地位, 需要明晰其环境控制机制. 目前全球大部分湖泊均遭受不同程度的污染, 出现水体富营养等现象^[10-11], 为改善湖泊水环境, 水力调控等措施常用于国内外水环境的综合整治中^[12-14]. 水力调控修复措施主要是通过人工引入优质水源提高目标湖泊水质. 外源引水能够加快湖水流动, 缩短换水周期, 补充水资源, 提高湖泊自净能力, 改变水体生物地球化学循环模式, 从而实现湖泊水质改善的目的, 但其是否影响湖泊 CH_4 等温室气体排放鲜有报道. 水力调控措施在我国湖泊水环境改善中应用较多^[13-15], 其中“引江济太”工程通过引长江水入太湖, 是目前太湖水环境综合整治的一项长期措施. 本研究基于在太湖长期连续(2011年11月至2013年8月)的 CH_4 扩散通量观测, 探讨外源引水对湖泊 CH_4 扩散通量的影响, 以期为进一步理解湖泊 CH_4 排放动态及其环境影响因子提供参考.

1 材料与方法

1.1 研究区域

太湖位于我国东部长三角区域, 是典型的亚热带大型(面积 2400 km^2) 浅水(平均水深 2 m) 湖泊. 受营养盐等外源负荷输入的影响, 太湖出现富营养化, 蓝藻暴发频繁^[16-17]. 根据污染类型等状况, 太湖有不同的分区, 本研究选取贡湖湾湖和湖心两个区域为研究对象(图1). 贡湖湾连接望虞河, 望虞河是太湖流域“引江济太”的重要调水通道, “引江济太”工程通过望虞河将长江水引入, 由望亭水利枢纽进入太湖贡湖湾(图1). 作为“引江济太”工程长江来水进入太湖的第一站, 贡湖湾水环境及其 CH_4 通量变化是对引水工程的最好响应^[15]. 同时, 湖心区受人为活性影响相对较小^[8, 18], 选取贡湖湾为研究对象, 以湖心为参考区域, 探讨其 CH_4 通量变化特征, 有助于厘清“引江济太”等人工调水措施对水体 CH_4 通量的影响.

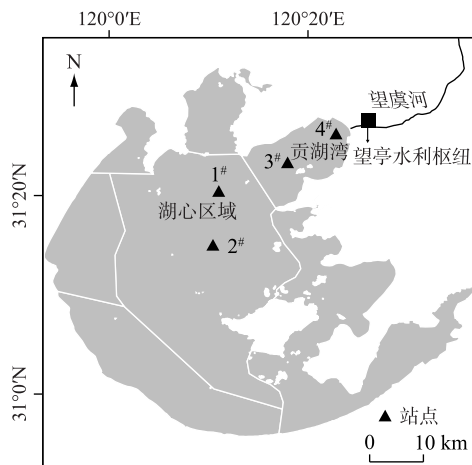


图1 太湖生态分区和观测站点示意

Fig.1 Location of samplings sites in Lake Taihu

1.2 水样采集和分析

本研究在太湖湖心区(1#点位和2#点位)和贡湖湾(3#点位和4#点位)分别选取2个观测站点(图1), 在2011年11月到2013年8月期间, 每月进行一次水样采集, 用于水体溶解 CH_4 浓度分析. 每次采集水样时, 保证水面没有扰动, 采集水表以下 20 cm 的水样, 装入 300 mL 玻璃瓶中, 玻璃瓶在装入水样前用待采湖水清洗 $2\sim3$ 次. 玻璃瓶装满水样后立即用丁基胶塞密封, 并保证瓶中无气泡. 为防止气体逸出, 用封口膜密封瓶塞和玻璃瓶的接口. 野外采集的水样均保存在冷藏箱中, 运到实验室立即进行处理和分析. 在实验里, 每个

水样用 100 mL 的高纯氮气(摩尔分数 $\geq 99.999\%$)顶空,并剧烈摇晃 5 min,然后将玻璃瓶静置,使 CH_4 气体在玻璃瓶的液相(剩余水样)和气相(顶空部分)中达到动态平衡,用带有三通阀的针筒采集玻璃瓶顶空的 CH_4 气样,通过气相色谱仪分析其浓度. 基于顶空部分中 CH_4 浓度(C_g , nmol/L),通过物料平衡法计算得到水样中溶解 CH_4 的原始浓度^[19],计算公式为:

$$C_w = C_g(C_L/C_g + V_g/V_L) \quad (1)$$

式中, C_w 是水样溶解 CH_4 原始浓度(nmol/L); C_L 是玻璃瓶液相(剩余水样)中 CH_4 浓度(nmol/L),由亨利定律计算得到; V_g 和 V_L 分别是玻璃瓶气相和液相部分的体积(mL).

本研究采用经典的湖泊水—气界面扩散模型法计算 CH_4 扩散通量 $[F_m, \text{mmol}/(\text{m}^2 \cdot \text{d})]$,计算公式如下:

$$F_m = 0.001 k(C_w - C_{eq}) \quad (2)$$

式中,0.001 是单位转换系数; C_w 是基于公式(1)计算得到的 CH_4 浓度(nmol/L); 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/L),每次野外调查时,采集大气 CH_4 样品,经气相色谱仪分析其浓度后用于 C_{eq} 的计算; k 是水—气界面 CH_4 气体的交换速率(m/d).

前期研究表明太湖 k 值主要受风速驱动,可以通过风速进行参数化^[20]. 本研究中基于太湖中尺度通量网长期连续的风速观测数据^[18],对 k 值进行计算^[21]:

$$k = 0.24(2.07 + 0.215 U_{10}^{1.7})(S_c/600)^{-n} \quad (3)$$

式中,0.24 是单位转换系数; n 是与风速相关的系数; U_{10} 是 10 m 高度的风速(m/s),根据粗糙度和仪器的观测高度计算得到^[22]; S_c 是无量纲 CH_4 气体施密特数,与水温($T, ^\circ\text{C}$)相关,计算公式为:

$$S_c = 1897.8 - 114.28T + 3.2902T^2 - 0.039061T^3 \quad (4)$$

考虑到太湖风速无显著的空间变化^[8],在计算贡湖湾和湖心两个湖区 k 时,均采用太湖中尺度通量网同一站点的风速观测数据. 另外,计算得到 CH_4 扩散通量为正值时,表征水体向大气释放 CH_4 .

1.3 水环境数据

采样期间用 YSI 6600 多参数水质分析仪原位监测采样点位的水温、溶解氧(DO)、pH 值和电导率(Spc)等指标,同时用测深杆测量采样点位的水深. 另外采集水样用于营养盐、溶解有机碳(DOC)和叶绿素 a (Chl. a)浓度的测定. 营养盐主要包括总氮(TN)、总磷(TP)、氨氮($\text{NH}_3\text{-N}$)和硝态氮($\text{NO}_3\text{-N}$),TN 浓度测定采用过硫酸钾消解紫外分光光度法,TP 浓度测定采用过硫酸钾消解钼酸铵分光光度法, $\text{NH}_3\text{-N}$ 浓度测定采用纳氏试剂光度法, $\text{NO}_3\text{-N}$ 浓度采用流动分析仪测定. 水样经 Whatman GF/F 滤膜过滤后,用总有机碳分析仪测定 DOC 浓度,Chl. a 浓度采用 90% 热乙醇萃取分光光度法测定. 本研究中的营养盐浓度、DOC 浓度和 Chl. a 浓度由太湖湖泊生态系统研究站提供. 另外,采样期间“引江济太”的逐月调水量通过水利部太湖流域管理局水情月报获取.

1.4 数据分析

分时期(所有观测期间、引水期和非引水期)、分站点、分湖区(湖心区和贡湖湾)和分季度(春季:3—5月;夏季:6—8月;秋季:9—11月;冬季:12月—次年2月)统计分析观测数据以及计算得到的数据. 采用相关分析(Pearson correlations)方法分析不同指标之间的相关性. 基于观测的数据以及计算得到的数据,采用 one-way ANOVA 分析比较不同数据组的差异,使用 LSD (least-significant difference)方法检验其差异是否显著($P=0.05$).

2 结果与分析

2.1 环境变量特征

基于太湖水情月报可知,在 2011 年 11 月至 2013 年 8 月期间,望虞河望亭水利枢纽引水入湖共计有 13 个月(图 2a),通过望亭枢纽引水入湖水量共计 15.65 亿 m^3 ,占同期河流总入湖水量的 14%. 已有研究表明太湖水温高度均一化,无空间变化^[8,23],本研究观测数据也表明不同观测站点之间水温无显著差异($P>0.05$). 观测期间平均水温为 17.12 $^\circ\text{C}$,且呈现显著的季节变化(图 2a),高水温出现在夏季(均值 28.23 $^\circ\text{C}$),低水温出现在冬季(均值 6.52 $^\circ\text{C}$). 同时,引水期和非引水期两个时期的平均水温分别为 16.07 和 18.83 $^\circ\text{C}$,

两者无显著差异 ($P > 0.05$). 另外,湖心和贡湖湾平均水深分别为 2.6 和 2.1 m (图 2b). 高频观测数据表明太湖风速无显著的空间变化^[8],观测期间的平均风速为 4.5 m/s.

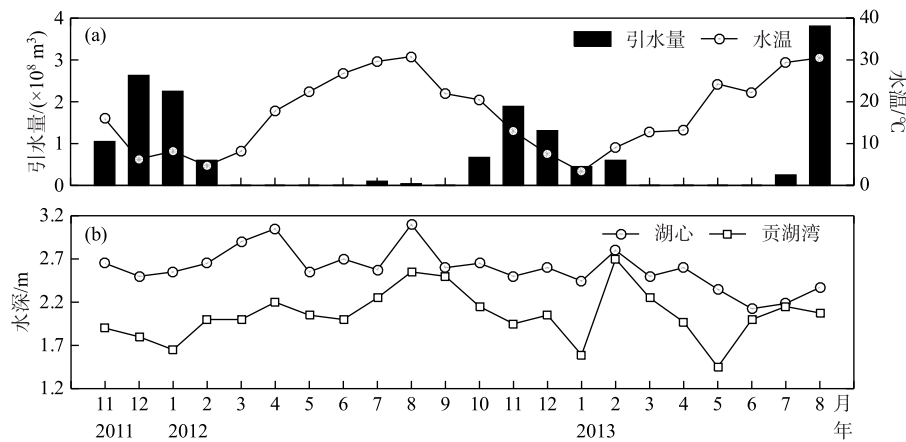


图 2 观测期间“引江济太”入湖水量和水温(a)以及太湖 2 个湖区水深(b)的逐月变化
Fig.2 Monthly variation of input amount of water from the Yangtze River, water temperature (a), and water depth of central zone and Gonghu Bay of Lake Taihu (b) from November 2011 to August 2013

表 1 为两个湖区生化参数的对比分析. 从中可知,在所有观测期间、引水期间和非引水期间,贡湖湾的 DO、 $\text{NH}_3\text{-N}$ 、 $\text{NO}_3\text{-N}$ 、TN、TP、DOC 和 Chl.a 浓度均低于湖心的观测值. 统计分析表明,在所有观测期间和引水期间,除了 DOC 浓度在两个区域表现出显著差异外 ($P < 0.05$),其他指标在两个区域均无显著差异 ($P > 0.05$);在非引水期间,所有观测指标在两个区域间均无显著差异 ($P > 0.05$). 湖心区域引水期间的 $\text{NO}_3\text{-N}$ 浓度和 TN 浓度显著 ($P < 0.05$) 低于非引水期间的浓度,其他指标在两个时期无显著差异 ($P > 0.05$);贡湖湾引水期间的 DOC 浓度和 TN 浓度显著 ($P < 0.05$) 低于非引水期间的浓度,其他指标在两个时期无显著差异 ($P > 0.05$).

表 1 太湖 2 个湖区基本生化参数特征
Tab.1 Basic bio-chemical properties of central zone and Gonghu Bay of Lake Taihu

时期	区域	DO/ (mg/L)	$\text{NH}_3\text{-N}/$ (mg/L)	$\text{NO}_3\text{-N}/$ (mg/L)	TN/ (mg/L)	TP/ (mg/L)	DOC/ (mg/L)	Chl.a/ ($\mu\text{g/L}$)
所有观测期	湖心	9.44 \pm 1.50	0.42 \pm 0.34	0.86 \pm 0.64	2.62 \pm 1.25	0.12 \pm 0.11	4.15 \pm 0.75	14.23 \pm 12.62
	贡湖湾	8.99 \pm 1.76	0.35 \pm 0.10	0.78 \pm 0.46	2.26 \pm 0.78	0.09 \pm 0.03	3.55 \pm 1.11	12.63 \pm 10.08
引水期	湖心	9.72 \pm 1.69	0.39 \pm 0.32	0.62 \pm 0.57	2.12 \pm 1.13	0.12 \pm 0.10	4.21 \pm 0.71	13.61 \pm 8.40
	贡湖湾	9.26 \pm 2.01	0.35 \pm 0.08	0.75 \pm 0.51	2.09 \pm 0.76	0.09 \pm 0.03	3.18 \pm 1.19	13.24 \pm 12.45
非引水期	湖心	9.04 \pm 1.17	0.47 \pm 0.39	1.21 \pm 0.59	3.36 \pm 1.09	0.13 \pm 0.12	4.06 \pm 0.84	15.13 \pm 17.62
	贡湖湾	8.60 \pm 1.32	0.35 \pm 0.12	0.81 \pm 0.40	2.51 \pm 0.81	0.09 \pm 0.02	4.08 \pm 0.78	11.75 \pm 5.69

2.2 CH_4 扩散通量的空间变化

图 3 表征水—气界面 CH_4 扩散通量在不同观测站点不同时期的变化特征. 从中可知,尽管所有观测点平均 CH_4 扩散通量在两个时期(引水期和非引水期)之间相差不明显,但研究结果也表明从调水入湖口到湖心区, CH_4 扩散通量呈现出明显的递减趋势. 在离调水入湖口最近的 4#点位的 CH_4 扩散通量最高[均值: 0.094 $\text{mmol}/(\text{m}^2 \cdot \text{d})$],位于贡湖湾的 3#点位 CH_4 扩散通量次之[均值: 0.052 $\text{mmol}/(\text{m}^2 \cdot \text{d})$],开阔湖心区域两个点位的 CH_4 扩散通量最低[1#点位: 0.019 $\text{mmol}/(\text{m}^2 \cdot \text{d})$; 2#点位: 0.016 $\text{mmol}/(\text{m}^2 \cdot \text{d})$]. 贡湖湾内两个采样点的 CH_4 扩散通量也表明出显著的差异 ($P < 0.05$);与之不同的是,湖心区两个点位的 CH_4 通量无显著 ($P >$

0.05) 差异. 在湖区尺度上, 贡湖湾 CH_4 扩散通量 [均值: $0.073 \text{ mmol}/(\text{m}^2 \cdot \text{d})$] 显著 ($P < 0.01$) 高于湖心的通量 [均值: $0.017 \text{ mmol}/(\text{m}^2 \cdot \text{d})$].

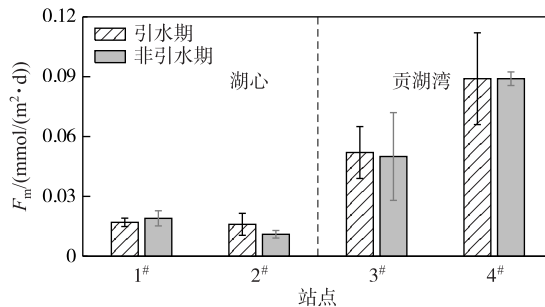


图3 不同时期太湖不同站点 CH_4 扩散通量对比分析

Fig.3 Spatial patterns of CH_4 diffusion flux in different sites of Lake Taihu in different periods

2.3 CH_4 扩散通量时间变化

图4 表征湖心和贡湖湾两个湖区 CH_4 扩散通量的时间变化特征. 在野外采样期间, 所有的观测值均为正值, 说明这两个区域是大气 CH_4 的排放源. 同步观测表明, 贡湖湾 CH_4 通量一般要高于湖心 CH_4 通量. 贡湖湾 CH_4 通量变异程度相对较大, 最高通量 ($0.250 \text{ mmol}/(\text{m}^2 \cdot \text{d})$) 出现在 2011 年 9 月, 最低通量 ($0.003 \text{ mmol}/(\text{m}^2 \cdot \text{d})$) 出现在 2012 年 2 月, 两者之间相差近两个数量级. 湖心区 CH_4 通量表现出明显的季节变化, 夏季 CH_4 通量显著 ($P < 0.01$) 高于春季和冬季, 但贡湖湾湖 CH_4 通量在四季之间无显著 ($P > 0.05$) 差异.

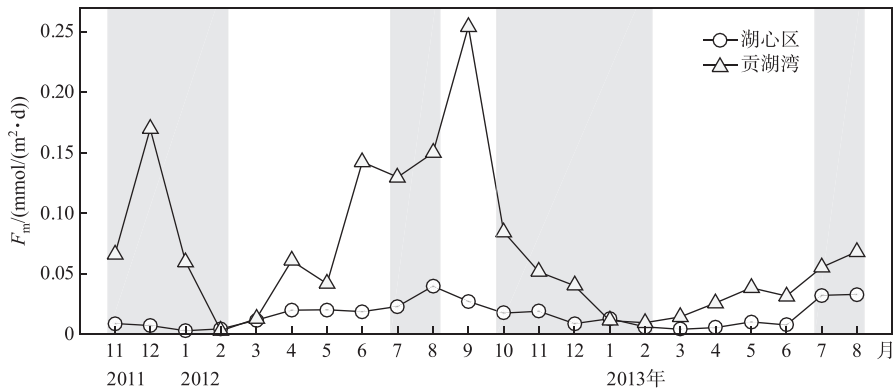


图4 观测期间(2011年11月至2013年8月)太湖湖心区和贡湖湾 CH_4 扩散通量的逐月变化特征 (阴影部分表示引水月份)

Fig.4 Temporal variation of CH_4 diffusion flux from November 2011 to August 2013 in central zone and Gonghu Bay of Lake Taihu (the shaded areas indicated the period of water transfer)

2.4 CH_4 通量影响因子

湖泊 CH_4 的产生和排放对生物化学物理因子较为敏感. 水温作为重要的物理参数, 控制着诸多的代谢过程. 同时, 水体 CH_4 产生是一个温度依赖的过程, 温度升高可激活微生物活性, 促进水体 CH_4 的产生和排放. 本研究结果表明, 太湖湖心和贡湖湾两个区域 CH_4 扩散通量的时间变化与水温呈现显著的正相关关系, 但两个区域 CH_4 通量对温度的依赖程度有所不同 (图5). 在湖心区域, 温度控制 62% 的 CH_4 通量的时间变化 ($R^2 = 0.62, P < 0.01$), 但在贡湖湾, 温度仅控制 21% 的 CH_4 通量的时间变化 ($R^2 = 0.21, P < 0.01$).

水深、DO、pH、营养盐、DOC 和 Chl.a 等是重要的水环境因子. 在本研究中, 湖心 CH_4 通量在时间尺度上

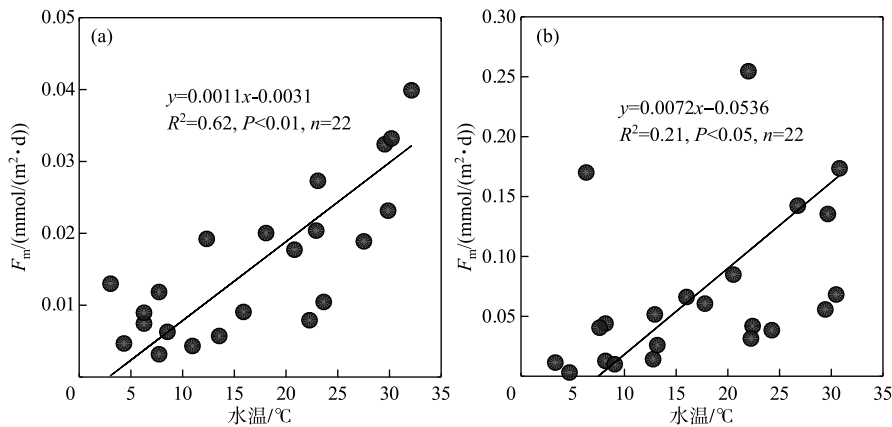


图5 太湖湖心区(a)和贡湖湾(b)CH₄扩散通量与水温的时间相关性

Fig.5 Temporal correlation between CH₄ diffusion flux and water temperature in central zone (a) and Gonghu Bay (b) of Lake Taihu

与 DO、NO₃⁻-N 和 TN 浓度呈现显著的负相关关系,与 Chl. *a* 浓度呈现出显著的正相关关系,但与水深、NH₃-N、TP 和 DOC 浓度的相关性不显著(表 2);贡湖湾 CH₄通量与 NH₃-N、NO₃⁻-N 和 TN 浓度呈现出显著的负相关关系,但与水深、DO、TP、DOC 和 Chl. *a* 浓度的相关性不显著(表 2). 逐步多元统计分析发现,水温(*T*, °C)、溶解氧(DO, mg/L)和总氮(TN, mg/L)共同控制湖心区域 76% 的 CH₄通量时间变化($R^2 = 0.76$, $P < 0.01$),但贡湖湾无类似结果. 湖心 CH₄通量[*y*, mmol/(m²·d)]的逐步多元回归方程为:

$$y = 0.001 T + 0.003 DO - 0.002 TN - 0.031 \tag{5}$$

表 2 太湖 2 个区域 CH₄扩散通量与水体物理生物化学因子的相关性

Tab.2 Pearson correlations between CH₄ diffusion flux and physical-biological-chemical factors in central zone and Gonghu Bay of Lake Taihu

湖区	水深	DO	NH ₃ -N	NO ₃ ⁻ -N	TN	TP	DOC	Chl. <i>a</i>
湖心区	0.45	-0.49 *	-0.43	-0.63 **	-0.61 **	-0.30	0.24	0.48 *
贡湖湾	0.33	-0.41 *	-0.52 *	-0.51 **	-0.59 **	-0.15	0.27	0.13

** 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.

3 讨论

3.1 不同区域 CH₄通量的对比分析

本研究结果表明所有观测站点水-气界面 CH₄扩散通量均为正值,说明水体是大气 CH₄的源. 但在不同点位,CH₄扩散排放强度有所不同,存在空间变化(图 3). 位于贡湖湾的 4[#]点位具有最高的 CH₄通量,其 CH₄平均排放量是湖心点位排放量的近 6 倍多. 4[#]点位位于贡湖湾河口附近,离“引江济太”来水入湖口很近(图 1),外源输入的有机质等易在此处聚集,可促进 CH₄的产生和排放^[24-27]. 另外,4[#]点位的平均水深为 1.9 m,显著($P < 0.05$)偏低,其较浅的水深也有利于湖底产生的 CH₄输送到湖表^[28-30],增加湖表溶解 CH₄浓度,促进水-气界面 CH₄的排放. 观测数据也表明 4[#]点位的 CH₄浓度(平均值 79.33 nmol/L)显著($P < 0.05$)高于其它 3 个点位(1[#]点位:20.09 nmol/L;2[#]点位:14.27 nmol/L;3[#]点位:45.73 nmol/L)的 CH₄浓度.

研究表明湖泊 CH₄排放具有较强的空间异质性^[31]. 本研究发现在同一个湖泊不同湖区以及同个湖区不同观测点位之间,CH₄扩散通量也表现出空间变化(图 3),这与之前的相关研究结果相一致^[8,26,32],例如在欧洲的一些湖泊中也发现类似的现象^[27,32]. 在湖区水平上,本研究结果表明受人工调水影响强烈的贡湖湾

CH₄通量明显高于受调水活动影响较小的湖心区域(图3,图4)。另外,贡湖湾两个不同观测点位之间的CH₄通量也存在显著($P < 0.05$)差异,该结果表明单站点的观测可能不适合用于湖区乃至全湖CH₄排放通量的估算^[8,27,32]。但值得注意的是,在受人为活动干扰较小的湖心区域^[18,29],两个站点之间的CH₄通量无显著($P > 0.05$)的差异。

3.2 CH₄通量时间变化的影响因子

基于22个月(2011年11月至2013年8月)的连续采样调查表明,本研究选取的两个湖区的CH₄扩散通量均有明显的时间变化(图4)。在水域生态系统(湖泊、河流、湿地、河口和海洋等)CH₄排放动态综合研究中发现,湖泊水体CH₄的排放具有极强的时间变化^[31]。水体CH₄的产生和排放对水温的依赖性较强,温度的变化可导致水体CH₄通量发生相应的变化^[4-5,8,33]。受季风气候的影响,本研究区水温表现出显著的季节变化(图2a),统计分析也表明水温与CH₄扩散通量呈现出显著的正相关关系(图5),因此水温是CH₄通量时间变化的重要驱动因子。

温度对CH₄扩散通量的影响可能受到其他因素的制约。本研究发现在湖心区域,温度控制62%的CH₄通量的时间变化,但在贡湖湾,温度仅控制21%的CH₄通量的时间变化(图5)。贡湖湾是外源来水进太湖的第一站,也是外源物质与太湖进行交汇的水域,输入贡湖湾的外源负荷可能会“稀释”掉温度对CH₄排放的直接影响^[8,27,34]。长期控制实验表明外源负荷输入对水体CH₄排放的影响要大于温度的影响^[35],在北方寒带湖泊野外观测中也发现温度对湖泊CH₄通量的影响受到其他湖泊理化因子的制约^[34]。因此,温度可能并不是湖泊水体CH₄通量时间变化的唯一调控因子,在评估全球变暖对湖泊CH₄排放通量影响时需要考虑多因子的综合调控效应。

本研究也发现湖泊生化参数与水-气界面CH₄扩散排放相关(表2)。在湖心和贡湖湾两个区域中,CH₄通量与DO均表现出显著的负影响关系,这主要是因为CH₄是在厌氧状况下产生,有氧条件下CH₄会被氧化消耗掉^[28,36]。观测期间两个区域相对较低的Chl.a浓度(表1)表明无水华发生,但值得注意的是湖心区CH₄通量与Chl.a浓度呈现显著的正相关关系(表2)。相关研究表明Chl.a可以很好地表征出湖泊富营养化及其水华对CH₄排放的影响^[4,34],该结果表明随着湖心区域富营养化程度的升高或者水华的发生,其CH₄排放通量可能也会随之升高^[7]。另外,研究表明不同环境下营养盐与水体CH₄通量的关系较为复杂,总体上营养盐升高可促进水体CH₄的产生和排放^[36-37],但本研究发现两个区域的CH₄通量均与营养盐呈现显著的负相关关系(表2),这可能源于以下两方面原因:第一,CH₄排放通量的峰值一般出现在暖季,但暖季较高的水温可促进水体的硝化和反硝化作用,导致在CH₄排放出现高值的时候水体具有较低的营养盐浓度^[38-39];第二,太湖是个浅水湖泊,开阔湖心区易受风力扰动,促使沉积物释放大量营养盐到水体中,导致CH₄通量较低的湖心区具有较高的营养盐负荷(表1和图3)。另外,营养盐可以促进水体生物呼吸,为CH₄产生创造厌氧环境,另一方面营养盐也可以提高水体初级生产力,其对水体CH₄排放的影响也可能存在多种机制^[36-37]。

3.3 “引江济太”对CH₄通量的影响

众多研究表明人为活动能够显著改变湖泊等内陆水体CH₄的产生和排放,为量化和预测人为活动和自然对水体温室气体排放的相对贡献率,给准确评估湖泊等内陆水体温室气体收支提供参考,需要加快和重点开展人类活动影响下水体温室气体排放特征的研究^[9,36-37]。人工调水等水力调控措施是目前湖泊水环境改善常用的物理修复方法^[13-15],但作为人类施加到湖泊的显著外界胁迫作用,其对湖泊CH₄等温室气体通量的影响鲜有报道。本研究选取的贡湖湾湖区是“引江济太”工程调长江水进太湖的第一站,也是望虞河引长江来水与太湖进行物质和能量交汇的重要水域。研究结果发现贡湖湾CH₄扩散排放通量显著($P < 0.01$)高于湖心的排放通量,考虑到太湖不同区域风速和风生流的均一性^[29,40],以及湖心和贡湖湾两个区域的水体生物化学指标相差不明显(表1),“引江济太”工程可能显著增加湖体CH₄排放量。

人工外源引水也可能改变湖泊CH₄排放的时间动态变化。诸多研究均表明水体CH₄产生和排放的时间变化主要受温度调节^[8,33,36-37]。但本研究发现,与受人类活动干扰较小的湖心区相比,贡湖湾CH₄通量的时间变化对温度的依赖程度相对较小(图5)。进一步分析发现,在引水期间贡湖湾CH₄通量与水温之间的相关性不显著($P > 0.05$),但此时湖心CH₄通量与水温高度正相关($R^2 = 0.76$, $P < 0.01$)。水温是维持暖季或者热带区

域水体高 CH_4 排放的主要机制^[8,37,41]. 但本研究发现湖泊的水力调控措施可能会影响 CH_4 排放的温度依赖性, 因此为科学评估湖泊等内陆水体在全球温室气体循环中的地位, 需要综合考虑水力调控等人为影响活动下湖泊 CH_4 等温室气体排放的变异特征.

同时, 本研究也发现引水期与非引水期之间 CH_4 通量无明显差异 (图 3). 引水调控本身有一定的复杂性, 一方面外源来水会对湖泊的生态环境产生影响, 另一方面来水所携带的外源物质也会直接输入到湖体中^[15], 因此外源调水对湖泊 CH_4 的影响可能也是一个复杂的过程. 例如本研究发现水体 CH_4 通量与 DO 浓度呈现显著的负相关关系 (表 2), 但外源引调的优质水源一般会增加水体的复氧能力, 观测数据也表明贡湖湾在引水期间的 DO 浓度 (9.26 mg/L) 要高于非引水期间 (8.60 mg/L), 其也有可能增加水体 CH_4 的氧化消耗程度. 考虑到湖泊等水体温室气体的产生和排放是一个动态复杂的过程, 受到一系列的内部因子和外部因子直接和间接的综合调控^[23,37], 后续研究需要考虑多因素的综合控制效应, 以明晰水力调控对湖泊 CH_4 排放的具体调控机理. 此外, 尽管本研究结果表明 CH_4 排放通量对引水有显著的响应, 即引水区域 (贡湖湾) CH_4 通量显著高于参考区域 (湖心), 但 CH_4 通量与引水量无直接的相关性, 因此后续研究需综合考虑调水时段、调水频次以及入湖水质等影响, 以期对定量评估出因引水导致的 CH_4 扩散通量的变化提供依据, 并对水力调控方式提出优化建议.

4 结论

1) 太湖贡湖湾和湖心均为大气 CH_4 的排放源, 但贡湖湾 CH_4 扩散排放通量要显著高于湖心区域的排放量, 其排放通量分别为 0.073 和 0.017 mmol/(m²·d). 此外, 贡湖湾不同点位之间的 CH_4 通量也表现出显著差异, 在离引水入湖口较近的点位, 其 CH_4 排放通量较高.

2) 贡湖湾和湖心 CH_4 扩散通量具有明显的时间变化, 且该变化均与水温呈显著的正相关关系, 但因受到外源来水的影响, 贡湖湾 CH_4 通量时间变化的温度依赖性相对较低.

3) 贡湖湾 CH_4 扩散通量对“引江济太”长江来水有一定的响应, 总体上外源引水可促进湖泊 CH_4 扩散排放.

5 参考文献

- [1] Kirschke S, Bousquet P, Ciais P *et al.* Three decades of global methane sources and sinks. *Nature Geoscience*, 2013, **6** (10): 813-823. DOI: 10.1038/ngeo1955.
- [2] Nisbet EG, Dlugokencky EJ, Bousquet P. Methane on the rise—again. *Science*, 2014, **343**(6170): 493-495. DOI: 10.1126/science.1247828.
- [3] Bastviken D, Tranvik LJ, Downing JA *et al.* Freshwater methane emissions offset the continental carbon sink. *Science*, 2011, **331**(6013): 50. DOI: 10.1126/science.1196808.
- [4] Bastviken D, Cole J, Pace M *et al.* Methane emissions from lakes: Dependence of lake characteristics, two regional assessments, and a global estimate. *Global Biogeochemical Cycles*, 2004, **18**(4): GB4009. DOI: 10.1029/2004GB002238.
- [5] Zhang M, Xiao QT, Zhang Z *et al.* Methane flux dynamics in a submerged aquatic vegetation zone in a subtropical lake. *Science of the Total Environment*, 2019, **672**: 400-409. DOI: 10.1016/j.scitotenv.2019.03.466.
- [6] 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. *Journal of Geophysical Research: Biogeosciences*, 2019, **124**(5): 1290-1307. DOI: 10.1029/2019JG005025.
- [7] Yan XC, Xu XG, Ji M *et al.* Cyanobacteria blooms: A neglected facilitator of CH_4 production in eutrophic lakes. *Science of the Total Environment*, 2019, **651**: 466-474. DOI: 10.1016/j.scitotenv.2018.09.197.
- [8] Xiao QT, Zhang M, Hu ZH *et al.* Spatial variations of methane emission in a large shallow eutrophic lake in subtropical climate. *Journal of Geophysical Research: Biogeosciences*, 2017, **122**(7): 1597-1614. DOI: 10.1002/2017JG003805.
- [9] Beaulieu JJ, DelSontro T, Downing JA. Eutrophication will increase methane emissions from lakes and impoundments during the 21st century. *Nature Communications*, 2019, **10**: 1375. DOI: 10.1038/s41467-019-09100-5.
- [10] Ho JC, Michalak AM, Pahlevan N. Widespread global increase in intense lake phytoplankton blooms since the 1980s. *Nature*, 2019, **574**(7780): 667-670. DOI: 10.1038/s41586-019-1648-7.

- [11] Sinha E, Michalak AM, Balaji V. Eutrophication will increase during the 21st century as a result of precipitation changes. *Science*, 2017, **357**(6349): 405-408. DOI: 10.1126/science.aan2409.
- [12] Welch EB, Barbiero RP, Bouchard D *et al.* Lake trophic state change and constant algal composition following dilution and diversion. *Ecological Engineering*, 1992, **1**(3): 173-197. DOI: 10.1016/0925-8574(92)90001-I.
- [13] Zhai SJ, Hu WP, Zhu ZC. Ecological impacts of water transfers on Lake Taihu from the Yangtze River, China. *Ecological Engineering*, 2010, **36**(4): 406-420. DOI: 10.1016/j.ecoleng.2009.11.007.
- [14] Gao XP, Xu LP, Zhang C. Modelling the effect of water diversion projects on renewal capacity in an urban artificial lake in China. *Journal of Hydroinformatics*, 2015, **17**(6): 990-1002. DOI: 10.2166/hydro.2015.004.
- [15] Yang QQ, Wu SQ, Dai JY *et al.* Effects of short-term water diversion in summer on water quality and algae in Gonghu Bay, Lake Taihu. *J Lake Sci*, 2018, **30**(1): 34-43. DOI: 10.18307/2018.0104. [杨倩倩, 吴时强, 戴江玉等. 夏季短期调水对太湖贡湾湖区水质及藻类的影响. 湖泊科学, 2018, **30**(1): 34-43.]
- [16] Zhu GW, Qin BQ, Zhang YL *et al.* Variation and driving factors of nutrients and chlorophyll-a concentrations in northern region of Lake Taihu, China, 2005-2017. *J Lake Sci*, 2018, **30**(2): 279-295. DOI: 10.18307/2018.0201. [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. 湖泊科学, 2018, **30**(2): 279-295.]
- [17] Qin BQ, Paerl HW, Brookes JD *et al.* Why Lake Taihu continues to be plagued with cyanobacterial blooms through 10-years (2007-2017) efforts. *Science Bulletin*, 2019, **64**(6): 354-356. DOI: 10.1016/j.scib.2019.02.008.
- [18] Lee X, Liu SD, Xiao W *et al.* The Taihu eddy flux network: An observational program on energy, water, and greenhouse gas fluxes of a large freshwater lake. *Bulletin of the American Meteorological Society*, 2014, **95**(10): 1583-1594. DOI: 10.1175/bams-d-13-00136.1.
- [19] Xiao QT, Hu ZH, Deng J *et al.* Effects of antiseptic on the analysis of greenhouse gases concentrations in lake water. *Environmental Science*, 2014, **35**(1): 356-364. DOI: 10.13227/j.hjxx.2014.01.051. [肖启涛, 胡正华, Deng James 等. 杀菌剂对湖泊水体温室气体浓度分析的影响. 环境科学, 2014, **35**(1): 356-364.]
- [20] Xiao QT, Zhang M, Hu ZH *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 Lake Sci*, 2018, **30**(3): 790-801. DOI: 10.18307/2018.0321. [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. 湖泊科学, 2018, **30**(3): 790-801.]
- [21] Cole JJ, Caraco NF. Atmospheric exchange of carbon dioxide in a low-wind oligotrophic lake measured by the addition of SF₆. *Limnology and Oceanography*, 1998, **43**(4): 647-656. DOI: 10.4319/lo.1998.43.4.0647.
- [22] Xiao QT. Study on greenhouse gases (CO₂, CH₄, and N₂O) fluxes of water-air interface in Lake Taihu [Dissertation]. Nanjing: Nanjing University of Information Science and Technology, 2014. [肖启涛. 太湖水—气界面温室气体(CO₂、CH₄、N₂O)通量研究[学位论文]. 南京: 南京信息工程大学, 2014.]
- [23] Xiao QT, Xu XF, Duan HT *et al.* Eutrophic Lake Taihu as a significant CO₂ source during 2000-2015. *Water Research*, 2020, **170**: 115331. DOI: 10.1016/j.watres.2019.115331.
- [24] Zhou Y, Xiao Q, Yao X *et al.* Accumulation of terrestrial dissolved organic matter potentially enhances dissolved methane levels in eutrophic Lake Taihu, China. *Environment Science & Technology*, 2018, **52**(18): 10297-10306. DOI: 10.1021/acs.est.8b02163.
- [25] Li SY, Bush RT, Santos IR *et al.* Large greenhouse gases emissions from China's lakes and reservoirs. *Water Research*, 2018, **147**: 13-24. DOI: 10.1016/j.watres.2018.09.053.
- [26] Shang DY, Xiao QT, Hu ZH *et al.* CH₄ emissions characteristics and its influencing factors in an eutrophic lake. *Environmental Science*, 2018, **39**(11): 5227-5236. DOI: 10.13227/j.hjxx.201803128. [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. 环境科学, 2018, **39**(11): 5227-5236.]
- [27] Natchimuthu S, Sundgren I, Gålfalk M *et al.* Spatio-temporal variability of lake CH₄ fluxes and its influence on annual whole lake emission estimates. *Limnology and Oceanography*, 2016, **61**(S1): S13-S26. DOI: 10.1002/lno.10222
- [28] Schrier-Uijl AP, Veraart AJ, Leffelaar PA *et al.* Release of CO₂ and CH₄ from lakes and drainage ditches in temperate wetlands. *Biogeochemistry*, 2011, **102**(1/2/3): 265-279. DOI: 10.1007/s10533-010-9440-7.
- [29] Xiao QT. Spatial pattern of CH₄ flux and its impact factors analysis in Lake Taihu [Dissertation]. Nanjing: Nanjing University of Information Science and Technology, 2017. [肖启涛. 太湖 CH₄通量的空间格局及影响因子分析[学位论文]. 南京: 南京信息工程大学, 2017.]

- [30] Encinas FJ, Peeters F, Hofmann H. On the methane paradox: Transport from shallow water zones rather than *in situ* methanogenesis is the major source of CH₄ in the open surface water of lakes. *Journal of Geophysical Research: Biogeosciences*, 2016, **121**(10): 2717-2726. DOI: 10.1002/2016JG003586.
- [31] Ortiz-Llorente MJ, Alvarez-Cobelas M. Comparison of biogenic methane emissions from unmanaged estuaries, lakes, oceans, rivers and wetlands. *Atmospheric Environment*, 2012, **59**: 328-337. DOI: 10.1016/j.atmosenv.2012.05.031
- [32] Hofmann H. Spatiotemporal distribution patterns of dissolved methane in lakes: How accurate are the current estimations of the diffusive flux path? *Geophysical Research Letters*, 2013, **40**(11): 2779-2784. DOI: 10.1002/grl.50453.
- [33] Yvon-Durocher G, Allen AP, Bastviken D *et al.* Methane fluxes show consistent temperature dependence across microbial to ecosystem scales. *Nature*, 2014, **507**(7493): 488-491. DOI: 10.1038/nature13164.
- [34] Rasilo T, Prairie YT, del Giorgio PA. Large-scale patterns in summer diffusive CH₄ fluxes across boreal lakes, and contribution to diffusive C emissions. *Global Change Biology*, 2015, **21**(3): 1124-1139. DOI: 10.1111/gcb.12741.
- [35] Davidson TA, Audet J, Svenning JC *et al.* Eutrophication effects on greenhouse gas fluxes from shallow-lake mesocosms override those of climate warming. *Global Change Biology*, 2015, **21**(12): 4449-4463. DOI: 10.1111/gcb.13062.
- [36] Yang P, Tong C. Emission paths and measurement methods for greenhouse gas fluxes from freshwater ecosystems: A review. *Acta Ecologica Sinica*, 2015, **35**(20): 6868-6880. DOI: 10.5846/stxb201406231298. [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. 生态学报, 2015, **35**(20): 6868-6880.]
- [37] Wang XF, Yuan XZ, Chen H *et al.* Review of CO₂ and CH₄ emissions from rivers. *Environmental Science*, 2017, **38**(12): 5352-5366. DOI: 10.13227/j.hjlx.201701049. [王晓锋, 袁兴中, 陈槐等. 河流 CO₂ 与 CH₄ 排放研究进展. 环境科学, 2017, **38**(12): 5352-5366.]
- [38] Xu H, Paerl HW, Qin BQ *et al.* Nitrogen and phosphorus inputs control phytoplankton growth in eutrophic Lake Taihu, China. *Limnology and Oceanography*, 2010, **55**(1): 420-432. DOI: 10.4319/lo.2010.55.1.0420.
- [39] Xiao QT, Xu XF, Zhang M *et al.* Coregulation of nitrous oxide emissions by nitrogen and temperature in China's third largest freshwater lake (Lake Taihu). *Limnology and Oceanography*, 2019, **64**(3): 1070-1086. DOI: 10.1002/lno.11098.
- [40] Xiao QT, Duan HT, Zhang M *et al.* Waterside convective velocity in a large and shallow lake: A case of Lake Taihu. *J Lake Sci*, 2020, **32**(4): 1189-1198. DOI: 10.18307/2020.0425. [肖启涛, 段洪涛, 张弥等. 大型浅水湖泊水体对流混合速率分析. 湖泊科学, 2020, **32**(4): 1189-1198.]
- [41] Stanley EH, Casson NJ, Christel ST *et al.* The ecology of methane in streams and rivers: Patterns, controls, and global significance. *Ecological Monographs*, 2016, **86**(2): 146-171. DOI: 10.1890/15-1027.