

鄱阳湖水体氧化亚氮排放特征及影响因素*

徐会显^{1,2}, 姜星宇^{1,2}, 姚晓龙^{1,2}, 张 路^{1**}

(1: 中国科学院南京地理与湖泊研究所湖泊与环境国家重点实验室, 南京 210008)

(2: 中国科学院大学, 北京 100049)

摘要: 于2014年4、7和10月以及2015年1月(分别代表春、夏、秋和冬季)对鄱阳湖13个常规监测点表层水体中氧化亚氮(N_2O)浓度进行测定,并选择合适的模型估算其排放量. 结果表明,鄱阳湖全年 N_2O 平均浓度为 32.57 ± 17.35 nmol/L, 总体处于过饱和状态,平均饱和度为 $256.83\% \pm 129.05\%$. 鄱阳湖 N_2O 年平均交换通量为 0.83 ± 0.69 $\mu\text{mol}/(\text{m}^2 \cdot \text{h})$. 鄱阳湖水体 N_2O 季节性释放规律为春季最高,平均交换通量为 1.71 $\mu\text{mol}/(\text{m}^2 \cdot \text{h})$,其次是夏季和冬季,秋季最低. 从空间上来看,春季北部湖区交换通量显著高于南部湖区. 相关性分析表明,铵态氮浓度是影响夏季和冬季鄱阳湖水体 N_2O 产生的主要因素. 结合水域面积初步估算出全年释放 N_2O 约 1.29×10^7 mol,其中春季和夏季是鄱阳湖水体 N_2O 释放的高峰期,总排放量约占全年的80.40%. 全年通过 N_2O 输出氮素约为361.93 t,对鄱阳湖流域内 N_2O 分布及质量平衡具有一定影响.

关键词: 鄱阳湖; 排放; 氧化亚氮; 季节变化

Characteristics of nitrous oxide(N_2O) emissions and the related factors in Lake Poyang

XU Huixian^{1,2}, JIANG Xingyu^{1,2}, YAO Xiaolong^{1,2} & ZHANG Lu^{1**}

(1: State Key Laboratory of Lake Science and Environment, Nanjing Institute of Geography and Limnology, Chinese Academy of Sciences, Nanjing 210008, P.R. China)

(2: University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, P.R. China)

Abstract: Surface water surveys were carried out seasonally in Lake Poyang from April 2014 to January 2015. Concentrations of nitrous oxide (N_2O) in thirteen sampling sites were measured followed by calculation of N_2O emission fluxes with interface diffusion model. The N_2O concentration in the surface water of Lake Poyang averaged 32.57 ± 17.35 nmol/L with an average saturation of $256.83\% \pm 129.05\%$, which implied a state of N_2O -supersaturated. The N_2O flux from water to air was calculated to be 0.83 ± 0.69 $\mu\text{mol}/(\text{m}^2 \cdot \text{h})$ on the average. The highest N_2O flux appeared in spring with an average level of 1.71 $\mu\text{mol}/(\text{m}^2 \cdot \text{h})$, followed by the summer, winter and autumn in a descending order. In spring, N_2O emission rates were significantly higher in the north part of the lake than in the south part. Regression analysis indicated that ammonium in water column had great control effect on N_2O production in summer and winter. About 1.29×10^7 mol N_2O was emitted from Lake Poyang annually, of which 80.40% emission was in spring and summer. The N_2O -N output of Lake Poyang was estimated in 361.93 t per year, and plays an important role in the N_2O distribution in the Poyang basin.

Keywords: Lake Poyang; emission; nitrous oxide; seasonal variation

氧化亚氮(N_2O)是一种重要的温室气体之一,全球温室效应潜力(GWPs)是 CO_2 的310倍,排放量约占温室气体排放总量的6.2%,并呈逐渐增长的趋势^[1]. 许多研究表明,大气中 N_2O 的持续增加与人类活动对氮循环干扰作用密切相关^[2-3]. 水域生态系统正成为 N_2O 释放的重要区域,其排放量约占全球总释放量的25%~30%^[4]. 特别是随着人类活动的增加,水域生态系统内不断增加的氮负荷不仅使河流水体逐渐成为一

* 国家重点基础研究发展计划“973”项目(2012CB417005)和国家自然科学基金项目(41271468, 41203065)联合资助. 2015-11-24收稿; 2015-12-30收修改稿. 徐会显(1992~), 男, 硕士研究生; E-mail: xvhuixian@163.com.

** 通信作者; E-mail: luzhang@niglas.ac.cn.

个主要排放源^[4,6],与此同时,湖泊水体的 N_2O 排放也日益增强^[6].国外已有针对不同类型湖泊 N_2O 浓度及释放通量的报道,包括受人为活动影响较小的深水湖泊和一些富营养藻型湖泊^[7-9].我国是一个多湖泊国家,尤其是长江中下游地区,更是分布着大量浅水湖泊,其中,80%以上是富营养化湖泊^[10],这些湖泊普遍具有较高的氮负荷.富营养化湖泊的含氮温室气体(如 N_2O 等)的释放规律、影响因素和排放贡献等,既是湖泊氮转化的重要方面,同时还对全球湖泊(包括水库和湿地等)温室气体的排放评估具有重要意义.在我国,针对单个季节和单个湖泊 N_2O 的分布及释放通量的研究已有一定的开展,如太湖^[11]和巢湖^[12]等,但针对大型通江湖泊 N_2O 的研究仍十分缺乏.

鄱阳湖是我国第一大淡水湖,是典型的通江湖泊.随着鄱阳湖营养盐输入强度的持续增大,水体氮污染水平不断提高,也可能造成 N_2O 产生和释放速率的增强.本文以2014年4月—2015年1月鄱阳湖4个季度实测数据为基础,通过对比不同季节鄱阳湖 N_2O 分布特征及释放通量,分析水温、溶解氧和无机氮的影响,以认识鄱阳湖 N_2O 释放规律及潜在的原因,并对 N_2O 释放量进行估算,为区域 N_2O 排放及氮平衡研究提供科学基础.

1 材料和方法

1.1 研究区域

鄱阳湖(28°11'~29°51'N, 115°49'~116°46'E),位于江西省北部,长江中下游地区,与赣江、抚河、信江、饶河、修水5条河流尾间相接,调蓄后经湖口注入长江.以松门山为界,可分为南、北湖区.北部为入江水道,湖面窄且深.南部为湖泊主体,湖面宽而浅.湖区地处亚热带季风气候区,年平均气温为17.1℃,1月平均气温最低(5.1℃),7月平均气温最高(29.5℃).年降雨量约为1500 mm,且三分之二的降雨在夏季.鄱阳湖水位呈现显著的季节性变化,影响着湖泊与水系之间的物质交换通量^[13].而且北部湖区水体与长江季节性交换强烈,4—6月鄱阳湖水体倒灌入长江,7—9月长江水体进入鄱阳湖^[14].

1.2 样品采集和分析方法

于2014年4、7和10月以及2015年1月(分别代表春、夏、秋和冬季)在鄱阳湖湖区13个常规监测点(图1)采集水样,每个采样点设置3个重复.其中PY1~PY5为南部湖区,PY6~PY13为北部湖区.采集表层水样,并将水样缓慢加至38 ml的血清瓶中.为避免气泡产生,达到充分交换,持续溢流约瓶体积的3倍,加入1 ml 50%的 $ZnCl_2$ 溶液以抑制微生物活动,旋紧橡胶硅塞密封.样品低温避光保存,运回实验室后尽快完成测定.用多参数水质测定仪(YSI 6600V2,美国)现场测定表层水温、pH值和溶解氧浓度.硝态氮(NO_3^- -N)浓度采用紫外分光光度法测定,亚硝态氮(NO_2^- -N)浓度采用 α -萘胺比色法测定,铵态氮(NH_4^+ -N)浓度采用纳氏比色法测定^[15].

湖水中溶解的 N_2O 浓度采用静态顶空法测定.先用注射器将约19 ml的氮气加至水样中以置换等体积的水,25℃室温下将样品振荡30 min后,静置30 min使瓶内的气液两相达到平衡状态.然后用1 ml气密注射器抽取顶空气体取样,注入岛津GC-2014C型气相色谱仪中进行测定,并记录 N_2O 的摩尔分数值(ppm).载气为高纯 N_2 (99.999%),进样口温度为60℃,柱温为60℃,附加加热器温度为350℃.电子捕获检测器(ECD)温度为200℃,尾吹气为 CH_4 -Ar(CH_4 浓度为5%,v/v). N_2O 经80/100Hayesep-D(1.0 m)柱分离,被ECD检测器检测(200℃).检测器信号采用 N_2O/N_2 标准气体(国家标准物质研究中心)校正,根据待测样品的色谱峰面积计算出样品顶空气中的 N_2O 浓度.并利用Weiss提供的溶解度数据及公式^[16],换算水样中溶解的 N_2O 浓度,具体参照姚晓龙等^[17]的计算方法.

1.3 鄱阳湖 N_2O 饱和度及水气交换通量估算方法

N_2O 饱和度为 N_2O 测定浓度与相同温度、盐度条件下 N_2O 在水体中的平衡浓度的比值,计算公式为:

$$R_{N_2O} = \frac{N_2O_{obs}}{N_2O_{eq}} \times 100\% \quad (1)$$

$$N_2O_{eq} = k \cdot N_2O_{air} \quad (2)$$

$$\Delta N_2O = N_2O_{obs} - N_2O_{eq} \quad (3)$$

式中, R_{N_2O} 表示 N_2O 饱和度; N_2O_{obs} 表示实测 N_2O 浓度(nmol/L); N_2O_{eq} 表示与大气平衡时表层水中的 N_2O 饱

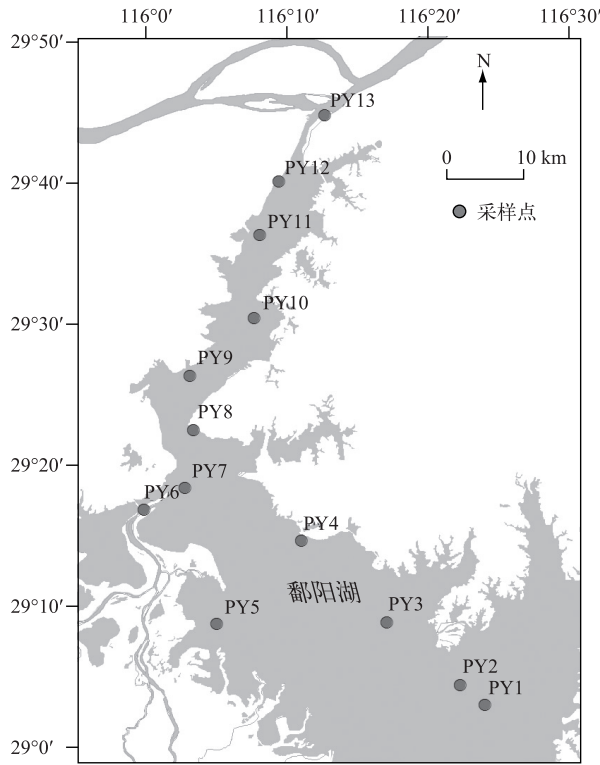


图1 鄱阳湖采样点分布

Fig.1 Distribution of sampling sites in Lake Poyang

和浓度 (nmol/L); N_2O_{air} 表示采样点所测大气中 N_2O 浓度; k 为本森系数, 根据亨利定律可以计算出水体中饱和 N_2O 浓度; ΔN_2O 为净 N_2O 交换量 (nmol/L), 由现场实测浓度与平衡浓度值的差值得得.

N_2O 水-气交换通量通常采用界面扩散模型法^[4], 计算公式为:

$$F = \Delta N_2O \cdot k_{N_2O} \quad (4)$$

$$k_{N_2O} = 0.251U^2 (Sc_{N_2O}/660)^{-0.5} \quad (5)$$

$$Sc_{N_2O} = 2141.2 - 152.56T + 5.8963T^2 - \quad (6)$$

$$0.12411T^3 + 0.0010655T^4$$

式中, F 为表层水体 N_2O 交换通量 ($\mu\text{mol}/(\text{m}^2 \cdot \text{h})$), k_{N_2O} 为 N_2O 在水体中扩散系数 (cm/h). 水流和风速的作用使得水-气交换通量的估算存在较大的不确定性. 但对于风速与流速比值较大的大型湖泊 ($>10 \text{ km}^2$) 而言, 更适合采用风速模型进行估算^[18]. 当风速在 $3 \sim 15 \text{ m/s}$ 时, Wanninkhof 公式模型能够准确估算出气体交换速率^[19]. 采样期间鄱阳湖平均风速可达 4 m/s , 适合选择 Wanninkhof 公式估算鄱阳湖 N_2O 的交换速率. k_{N_2O} 采用 Wanninkhof 校正后得出的估算公式 (公式 (5)) 估算, 同时给出了淡水中 N_2O 气体的施密特系数与温度的关系式 (公式 (6)). 式中, U 表示水面上方 10 m 高度处的风速 (m/s),

本文风速数据取自鄱阳湖蛇山自动监测站. Sc_{N_2O} 为淡水中 N_2O 气体的施密特系数, T 取值为 $-2 \sim 40^\circ\text{C}$.

1.4 数据处理

数据统计分析采用 SPSS 20.0 和 Excel 2013 软件, 数据间的关系采用 Spearman 相关分析, 差异性分析采用 ANOVA (LSD 检验) ($P < 0.05$). 不同变量的回归分析采用一元线性回归方程, 方程拟合通过 ANOVA 进行检验.

2 结果与分析

2.1 水环境参数变化

鄱阳湖 13 个样点水温和溶解氧浓度随季节变化差异显著, 其中水温最高为夏季 (30.5°C), 最低为冬季 (9.8°C). 溶解氧浓度以秋季最高, 夏季最低, 分别为 13.27 和 6.94 mg/L . pH 值以秋季最高 (9.89), 夏季最低 (7.23). 不同季节水体 3 种无机氮浓度差异显著, 为 $\text{NO}_3^- \text{-N} > \text{NH}_4^+ \text{-N} > \text{NO}_2^- \text{-N}$, 且三者均在冬季枯水期浓度最高, 平均浓度分别为 1.54 , 0.84 和 0.058 mg/L . 3 种无机氮在夏季和秋季浓度最低, 其中秋季 $\text{NO}_3^- \text{-N}$ 浓度最低 (0.80 mg/L), 夏季 $\text{NH}_4^+ \text{-N}$ 和 $\text{NO}_2^- \text{-N}$ 平均浓度最低, 分别为 0.43 和 0.016 mg/L (表 1).

2.2 N_2O 浓度与饱和度

鄱阳湖 N_2O 浓度变化范围为 $10.79 \sim 106.54 \text{ nmol/L}$, 平均为 $32.57 \pm 17.35 \text{ nmol/L}$. 春季平均浓度为 $51.84 \pm 22.37 \text{ nmol/L}$, 显著高于其他季节 (ANOVA, $P < 0.01$). 秋季平均浓度最低, 为 $20.07 \pm 4.60 \text{ nmol/L}$. 冬季 N_2O 浓度高于夏、秋季, 夏季和秋季平均浓度差异不显著 (图 2a).

鄱阳湖 N_2O 饱和度变化范围为 $88.87\% \sim 738.75\%$, 均值为 $256.83\% \pm 129.05\%$ (图 2b). 与 N_2O 浓度变化规律相似, 春季 N_2O 饱和度最高 (415.64%), 秋季最低 (165.28%). 夏、秋和冬季 N_2O 平均饱和度分别

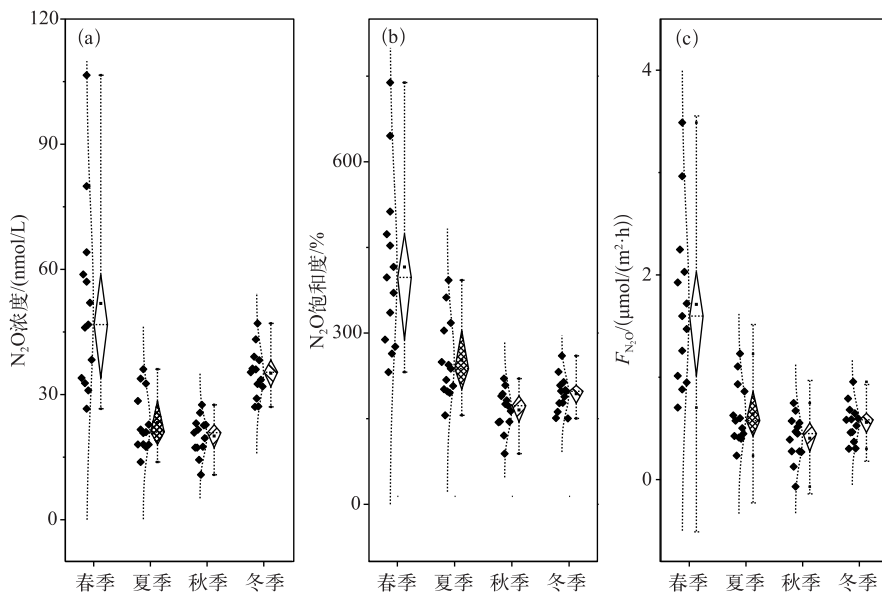
表1 鄱阳湖水环境参数变化*

Tab.1 Environmental variables in water of Lake Poyang

季节(月份)	水温/°C	pH 值	DO/(mg/L)	NO ₃ -N/(mg/L)	NH ₄ ⁺ -N/(mg/L)	NO ₂ -N/(mg/L)
春季	21.5	7.50	9.10	1.16	0.45	0.024
(4月)	(19.1~23.5)	(7.32~7.75)	(6.61~11.36)	(0.52~1.97)	(0.32~0.68)	(0.003~0.064)
夏季	30.5	7.23	6.94	0.98	0.43	0.016
(7月)	(24.3~33.6)	(6.53~7.93)	(5.33~9.48)	(0.77~1.23)	(0.10~1.38)	(0.005~0.045)
秋季	21.6	9.89	13.27	0.80	0.46	0.023
(10月)	(20.2~22.7)	(7.85~11.38)	(8.53~18.62)	(0.52~1.38)	(0.18~0.84)	(0.004~0.055)
冬季	9.8	9.15	10.76	1.54	0.84	0.058
(1月)	(9.1~10.3)	(8.04~10.42)	(9.11~14.30)	(0.75~1.82)	(0.21~1.44)	(0.036~0.108)

* 括号外数据为平均值,括号内数据分别为最大值和最小值;NH₄⁺-N浓度采用2010—2012年相同点位的平均浓度。

为252.67%±70.90%、165.28%±36.38%和193.74%±31.42%,冬季和夏季差异不显著(ANOVA, $P=0.056$)。总体来看,除秋季PY1点位N₂O未达到饱和(饱和度为88.87%)外,4个季节各点位的N₂O饱和度均处于过饱和状态,表明鄱阳湖是大气N₂O的释放源。

图2 鄱阳湖不同季节N₂O浓度、N₂O饱和度及N₂O交换通量的变化Fig.2 Seasonal variation of N₂O concentration, N₂O saturation and N₂O flux in Lake Poyang

2.3 N₂O 交换通量

鄱阳湖N₂O全年平均交换通量为0.83±0.69 μmol/(m²·h)。无论是季节上,还是空间上,N₂O的释放通量均有较大的差异(图3)。从季节来看,鄱阳湖N₂O全年平均交换通量在春季与其他季节差异显著(ANOVA, $P<0.01$)。春季N₂O平均交换通量最高(1.71 μmol/(m²·h)),而秋季最低(0.40 μmol/(m²·h))。夏季和冬季平均交换通量分别为0.64和0.56 μmol/(m²·h),且差异不显著(ANOVA, $P=0.74$,图2c)。从空间来看,4个季节N₂O交换通量的空间变异系数在33.03%~54.81%之间。春季PY7点位交换通量最高,为3.49 μmol/(m²·h),而PY2点位只有0.70 μmol/(m²·h),相差近5倍。在夏季,PY1点位交换通量最高(1.23 μmol/(m²·h)),PY5点位最低(0.23 μmol/(m²·h))。按湖区划分,春季北部湖区(PY6~PY13)平均交

换通量($2.18 \mu\text{mol}/(\text{m}^2 \cdot \text{h})$)显著高于南部湖区(PY1~PY5) (ANOVA, $P < 0.001$), 约为南部湖区的2倍. 无论是夏季还是冬季, 南部湖区平均交换通量均高于北部湖区. 而秋季的南北湖区差异不显著 (ANOVA, $P = 0.784$).

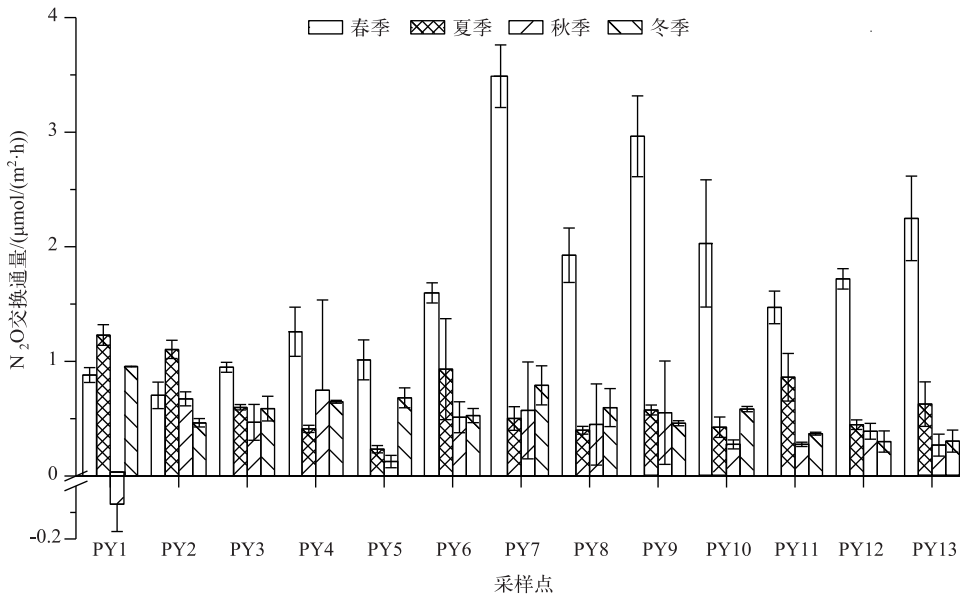


图3 鄱阳湖各采样点 N₂O 交换通量

Fig.3 Annual N₂O flux in each sampling site of Lake Poyang

3 讨论

3.1 N₂O 饱和度的影响因素

水体中硝化过程与反硝化过程是 N₂O 产生的两种重要方式, 与 pH 值、水温、溶解氧以及无机氮浓度密切相关^[20]. 其中无机氮与水体 N₂O 浓度、N₂O 饱和度密切相关^[3,21]. Yu 等^[4]对上海河流水体的研究发现, N₂O 饱和度与 NH₄⁺-N 浓度存在显著正相关, 与 NO₃⁻-N 浓度相关性不显著. 也有研究认为, N₂O 饱和度与 NO₃⁻-N 浓度存在显著的正相关^[3]. N₂O 饱和度与氮浓度相关性的差异, 在一定程度上说明了 N₂O 来源的多样性, 即既可能与硝化过程有关, 又可能受反硝化过程控制.

总体上, 全年鄱阳湖 13 个采样点 N₂O 饱和度与 NO₃⁻-N、NH₄⁺-N 和 NO₂⁻-N 浓度的相关性不显著 (图 4), 这可能与采样点季节性差异有关. 不同季节 N₂O 饱和度与 NH₄⁺-N 和 NO₃⁻-N 浓度的相关性不一致, 可能也体现出了在不同季节 N₂O 来源的差异^[22]. 为了去除季节差异对其来源的影响, 进一步分析单个季节 N₂O 饱和度与 NO₃⁻-N、NH₄⁺-N 浓度的相关性, 发现在单一季节下, N₂O 饱和度与氮营养盐浓度间则显示出某种相关性, 且发生相关的氮形态在不同季节并不相同. 夏季 N₂O 饱和度与 NH₄⁺-N 和 NO₃⁻-N 浓度均表现出显著正相关 ($r = 0.80, P < 0.001, n = 10$; $r = 0.79, P = 0.003, n = 10$; 图 4). 不同季节各因素与饱和度的相关分析见表 2, 可以发现夏季 NO₂⁻-N 和 NH₄⁺-N 浓度与 N₂O 饱和度表现出极显著的正相关. 这也意味着夏季 N₂O 的产生与 NO₂⁻-N 和 NH₄⁺-N 浓度有关, 进一步分析发现, NO₃⁻-N 与 NH₄⁺-N 浓度存在显著的正相关性 ($r = 0.74, P = 0.015, n = 10$), 但与 NO₂⁻-N 浓度相关性不显著 ($r = 0.61, P = 0.079, n = 10$). 因此可以认为夏季 NH₄⁺-N 浓度是影响水体 N₂O 产生的重要因素, 考虑到夏季表层水体仍处于好氧状态 ($\geq 5.33 \text{ mg/L}$), 水体强烈的硝化作用可能促进了 N₂O 的产生. 此外, 冬季 N₂O 饱和度与 NH₄⁺-N 浓度呈显著相关 ($r = 0.66, P < 0.01$), 与溶解氧浓度 ($\geq 9.11 \text{ mg/L}$) 也存在一定的正相关关系 ($r = 0.54, P = 0.071$). 这意味着硝化作用可能是冬季水体 N₂O 释放的重要来源^[2]. 由于夏季和冬季 NH₄⁺-N 浓度与 N₂O 饱和度均存在显著正相关, 因此利用 NH₄⁺-N 浓度可以建

立线性回归方程(表2),对比斜率发现,夏季每1 mol $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 产生的 N_2O 量高于冬季,说明夏季硝化过程产生 N_2O 的速率要高于冬季。

然而,春季和秋季,3种无机氮浓度与 N_2O 饱和度相关性均不显著。春季是全年 N_2O 饱和度最高的季节,理论上无机氮的输入与硝化和反硝化作用释放的 N_2O 存在一定的相关性。但实际上,相同 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 和 $\text{NO}_3^-\text{-N}$ 浓度水平下, N_2O 饱和度差异巨大(图4)。虽然春季水体具有较高的 N_2O 溶存浓度,但由于不同区域环境的差异,且 N_2O 的来源相对复杂,使得 N_2O 饱和度随无机氮浓度变化不显著。值得一提的是,春季水温与 N_2O 饱和度存在显著负相关,水温越低的区域 N_2O 饱和度越高。秋季 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 和 $\text{NO}_3^-\text{-N}$ 浓度均处在较低水平,硝化作用较弱。与此同时高溶解氧浓度和高 pH 值环境抑制了反硝化产生 N_2O 的过程,因此无机氮浓度对 N_2O 饱和度影响不显著。

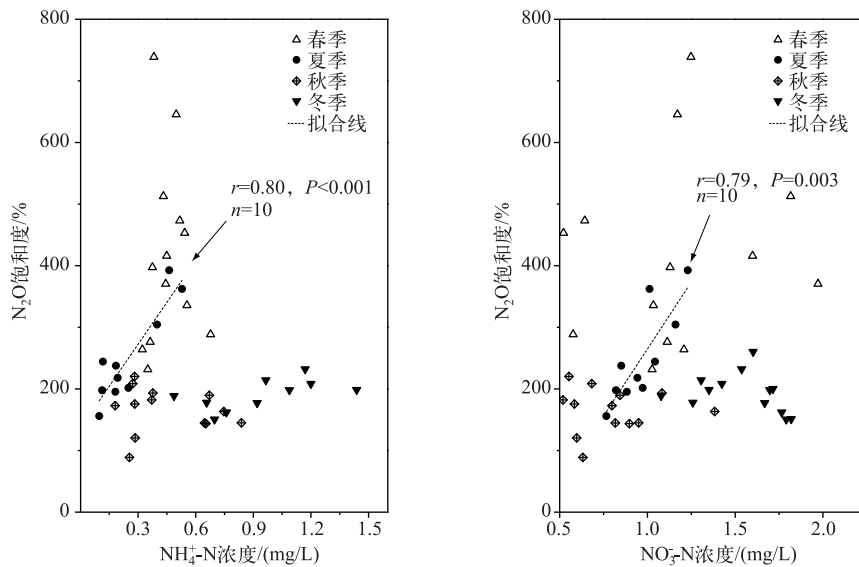


图4 鄱阳湖水体 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 及 $\text{NO}_3^-\text{-N}$ 浓度与 N_2O 饱和度的相关关系

Fig.4 Relationships between N_2O saturation and $\text{NH}_4^+\text{-N}$ and $\text{NO}_3^-\text{-N}$ concentrations in water of Lake Poyang

表2 鄱阳湖水体 N_2O 饱和度与溶解氧、水温及无机氮浓度的 Spearman 相关性分析

Tab.2 Spearman correlation between N_2O saturation and DO concentration, temperature and inorganic nitrogen concentration in water of Lake Poyang

季节	溶解氧	水温	$\text{NH}_4^+\text{-N}$	$\text{NO}_3^-\text{-N}$	$\text{NO}_2^-\text{-N}$	回归方程	r^2	P	n
春季	0.26	-0.77 **	0.33	0.26	-0.27	$y = -96.00T + 2490.76$	0.55	0.006	13
夏季	-0.14	-0.50	0.80 **	0.79 *	0.78 **	$y = 5655.19\text{NO}_2^-\text{-N} + 149.43$ $y = 454.37\text{NH}_4^+\text{-N} + 136.07$	0.94	0.000	10
秋季	0.00	-0.39	-0.40	-0.26	-0.53	—	—	—	13
冬季	0.54	-0.56 *	0.66 **	-0.48	-0.21	$y = 57.19\text{NH}_4^+\text{-N} - 39.75T + 522.17$	0.77	0.012	10
全年	-0.39	0.13	-0.04	0.15	-0.14	—	—	—	46

* 表示在 $\alpha=0.05$ 水平下具有显著性; ** 表示在 $\alpha=0.01$ 水平下具有显著性。

3.2 N_2O 交换通量与 K 值选择

鄱阳湖4个季节 N_2O 交换通量与饱和度存在显著的线性相关关系(图5)。 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 、 $\text{NO}_3^-\text{-N}$ 和水温能够通过影响水体中 N_2O 饱和度,进而影响 N_2O 交换通量的大小。由公式(4)可知, N_2O 交换通量还与 $k_{\text{N}_2\text{O}}$ 的取值密切相关。 $k_{\text{N}_2\text{O}}$ 通常采用风速(U)模型方程计算得出,并在 Wanninkhof (1992) 模型^[23] 基础上建立了适用于

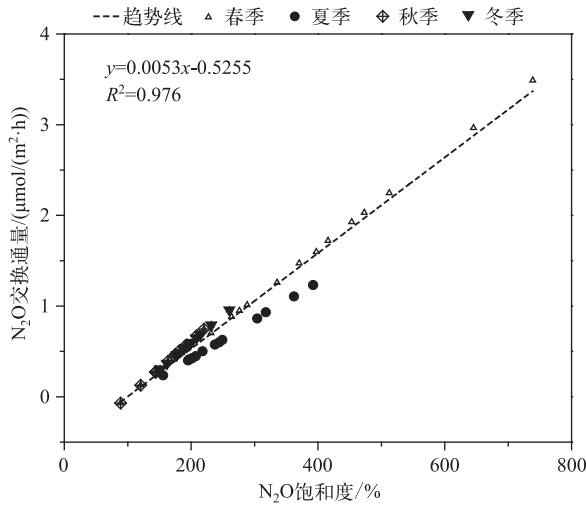


图5 鄱阳湖水体 N₂O 饱和度与 N₂O 释放通量的相关性
Fig.5 Relationship between N₂O saturations and N₂O fluxes in water of Lake Poyang

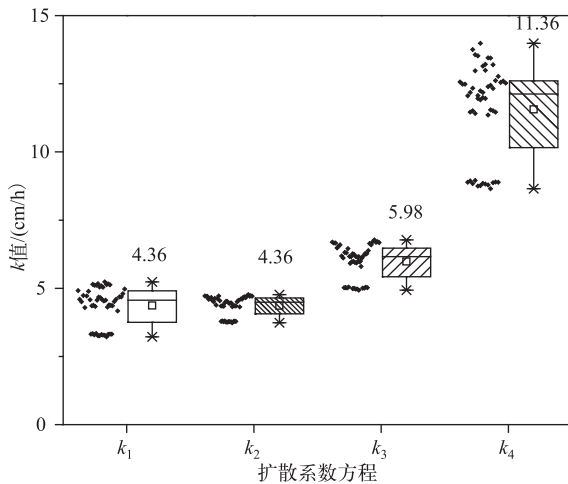


图6 不同模型方程的扩散系数比较
(其中 k₁~k₄ 方程分别取自文献[18,22-24])
Fig.6 Comparison between modeled gas exchange velocities used in this study and others

不同环境条件下水体气体扩散系数估算的经验方程. 一方面, k 值估算方程的选择使 k 值存在一定的不确定性. 本文采用 Wanninkhof (2014) 校正后的 k 值方程 (见公式 (5)), 为了评估该方程用于鄱阳湖水体扩散系数估算的适用性, 将此方程与一些用于淡水湖泊或河流的 k 值估算方程进行了比较. 其中 k_2 方程适用于风速较低的湖泊^[24], k_3 方程被用来估算河口和太湖流域 N₂O 的释放^[10, 25], k_4 方程结合流速和河流深度参数, 用于长江水体 N₂O 的估算^[26]. 结果表明, k_1 方程估算出鄱阳湖全年平均水体 k_{N_2O} 为 4.36 cm/h, 与 k_2 方程估算值相同, 要低于 k_3 方程. 值得注意的是, 采用 k_4 方程估算的扩散系数明显高于 k_1, k_2 和 k_3 (图 6). 根据 Raymond 等基于全球湖泊及水库面积与 k 值建立的经验关系^[27], 得出面积超过 100 km² 的湖泊平均 k 值为 1.15 m/d (即 4.79 cm/h). 考虑到 k 值存在 20% 的误差范围, 由 Wanninkhof 所得出的鄱阳湖 k 平均值亦在变化范围内. 综上所述, 用 k_1 方程对鄱阳湖水体扩散系数进行估算可行的, 且相比其他估算模型总体处于一个低值范围.

另一方面, 风速的选择增加了 k 值估算的不确定性. 本研究采用风速数据为南部湖区蛇山水文站位置的当日平均风速. 风速越大, k 值越高. 考虑到不同湖区风速的差异, 采用该点风速代表全湖区平均风速可能存在一定的不确定性. 比如对于风速较高的鄱阳湖星子站附近 (比如 PY9 和 PY10 样点), 估算值可能偏低. 而对于风速较小的入江湖口地区 (比如 PY13), 估算值可能偏高. 此外, 鄱阳湖湖区风速季节性变化, 也会影响 k 值的计算.

3.3 与其他湖泊、河流对比

鄱阳湖春季饱和度显著高于一些河流的饱和度, 与巢湖流域污染严重的南淝河^[3] 相当, 达到 400% 以上. 夏季鄱阳湖平均 N₂O 饱和度要高于长江 (2009 年)^[28], 低于洪家渡 (2007 年)^[6], 与夏季太湖 (2003 年) 的 N₂O 饱和度水

平^[11] 比较接近. 从季节规律上来看, 鄱阳湖 N₂O 季节性排放特征类似于某些河流 (比如 Colone 河^[24]), 即春季最高, 其次是冬季, 最后是秋季和夏季 (表 3). 由于鄱阳湖汇合了赣江、抚河、信江、饶河、修水 5 条支流, 河流的氮源输入季节性差异可能对湖区 N₂O 释放造成一定的影响. 因此, 鄱阳湖 N₂O 的季节变化规律可能还受到入湖河流 N₂O 季节变化的影响.

按照 N₂O 交换通量计算方法, 初步估算出 2014 年鄱阳湖平均交换通量在 0.40~1.71 μmol/(m²·h) 之间. 与一些水体营养程度较高的河流相比, 该值要低于巢湖入湖河流 (南淝河和杭埠河), 总体处在同季节长江 (2009 年) 的平均交换通量水平; 与国内外其他湖泊相比, 要高于国外一些深水低营养化湖泊 (Lac de Neu-

chatel 湖和 Alpnachersee 湖),甚至超过同季节的太湖(2009 年)和洞庭湖(2008 年).此外,本研究估算的 1 月 N_2O 交换通量要稍高于 2009 年^[25],这也间接反映出鄱阳湖水体 N_2O 饱和度呈升高趋势.

表 3 一些相关河流、湖泊的 N_2O 饱和度和交换通量
Tab.3 N_2O saturations and N_2O fluxes in some related rivers and lakes

河流/湖泊	采样时间	N_2O 饱和度/%	N_2O 交换通量/ $(\mu\text{mol}/(\text{m}^2 \cdot \text{h}))$	参考文献
Colone 河	春/夏/秋/冬	—	1.196/0.611/0.285/0.729	[24]
南淝河 ¹⁾	1—12 月	407±1010	0.018~140	[3]
杭埠河 ¹⁾		90.0~284	0.017~6.2	
洪家渡	7—9 月	201~484	0.10~1.30	[6]
长江	8—10 月	197	0.07~1.46	[28]
Kevaton 湖	夏季	—	0.09~0.50	[8]
Yuqiao 湖	6 月	<100	-0.14~0.89	[21]
洞庭湖	1 月	162	0.19	[28]
鄱阳湖	1 月	152	0.45	
太湖	7—9 月	159~246	0.41~0.58	[11]
鄱阳湖	4 月	414.20	1.71(0.70~3.49)	本研究
	7 月	254.10	0.64(0.23~1.23)	
	10 月	164.35	0.40(-0.07~0.75)	
	1 月	192.58	0.56(0.30~0.96)	

1) 巢湖入湖河流.

3.4 鄱阳湖 N_2O 交换通量估算

由于鄱阳湖 N_2O 释放通量存在显著的季节性特征,本文利用 2014 年 4、7 和 10 月,以及 2015 年 1 月的释放通量平均值,结合不同季节的鄱阳湖平均水域面积^[17],估算得出每年鄱阳湖水体向大气中释放的 N_2O 约为 1.29×10^7 mol(表 4),相当于以 N_2O 的形式输出氮素约 361.93 t. 其中春季和夏季是 N_2O 释放高峰时期,分别占全年 N_2O 释放总量的 46.99% 和 33.41%. 鄱阳湖水体 N_2O 年释放量高于一些城市河流网,比如天津

表 4 鄱阳湖水体 N_2O 释放量的估算

Tab.4 Estimation of N_2O emission in water of Lake Poyang

季节	面积/ km^2	N_2O 交换通量/ $(\mu\text{mol}/(\text{m}^2 \cdot \text{h}))$	N_2O 释放量/ $(\times 10^5 \text{ mol})$
春季	1643	1.71	60.74
夏季	3112	0.64	43.19
秋季	2747	0.40	23.94
冬季	115	0.56	1.39

河流网^[21](5.78 t)和上海河流网^[5](约 290 t). 从流域上来看,农业土壤通常被认为是最主要的 N_2O 释放源,张玉铭等测得江西农田 N_2O 排放通量速率可达 $0.296 \sim 4.696 \mu\text{mol}/(\text{m}^2 \cdot \text{h})$ ^[29],据此估计每年从鄱阳湖流域农田土壤释放的 N_2O 约为 $1 \times 10^3 \sim 15 \times 10^3$ t. 相比之下,鄱阳湖水体 N_2O 释放量约占其释放通量的 2.30%~36.43%. 进一步考虑到估算模型及季节变化的差异,这个值可能存在一定的误差.但至少通过估算,说明鄱阳湖水体 N_2O 释放量存在明显的季节差异,是一个潜在的 N_2O 释放源,对流域内 N_2O 分布及质量平衡具有一定影响.

4 结论

1) 2014 年 4 月—2015 年 1 月,鄱阳湖全年 N_2O 平均浓度和平均饱和度分别为 $32.57 \pm 17.35 \text{ nmol/L}$ 和 $256.83\% \pm 129.05\%$. 其中春季 N_2O 平均浓度最高($51.84 \pm 22.37 \text{ nmol/L}$),秋季最低($20.07 \pm 4.60 \text{ nmol/L}$),夏季和秋季差异不显著,冬季 N_2O 平均浓度显著高于夏、秋季;冬季和夏季 N_2O 饱和度差异不显著. 总体而言,全年鄱阳湖 N_2O 基本处于过饱和状态,是大气 N_2O 的释放源.

2) 各季节 N_2O 饱和度与环境因素的相关性分析结果表明,水温对水体 N_2O 饱和度的影响主要集中在春季和冬季,夏季和秋季相关性不显著. 溶解氧浓度对 N_2O 饱和度的影响不显著,夏季和冬季 NH_4^+-N 与 N_2O

饱和度呈显著正相关,是影响 N_2O 产生的主要因素,另外冬季硝化过程可能是水体 N_2O 的主要来源。

3) 鄱阳湖 N_2O 年平均交换通量为 $0.83 \pm 0.69 \mu\text{mol}/(\text{m}^2 \cdot \text{h})$,在季节和空间上存在显著差异. 其中春季 N_2O 交换通量最高,为 $1.71 \mu\text{mol}/(\text{m}^2 \cdot \text{h})$. 从空间来看,春季北部湖区平均交换通量显著高于南部湖区,但在其他季节差异不显著. 根据各季节 N_2O 交换通量,结合不同季节水域面积,初步估算出鄱阳湖全年释放 N_2O 量约为 $1.29 \times 10^7 \text{ mol}$,其中春季和夏季是 N_2O 释放的高峰时期,总释放量约占全年的 80.40%,全年通过 N_2O 输出氮素约为 361.93 t,显示鄱阳湖对区域 N_2O 分布及质量平衡具有一定影响。

致谢:中国科学院鄱阳湖湖泊湿地生态系统研究站在采样和样品分析等方面给与支持和帮助. 风速数据得到鄱阳湖蛇山自动观测站以及刘元波研究员的帮助,在此一并感谢。

5 参考文献

- [1] Krey V, Masera O, Blanford G *et al.* Annex II: Metrics & Methodology. In: Climate Change 2014: Mitigation of Climate Change. Edenhofer O *et al.* Contribution of Working Group III to the Fifth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change. Cambridge: Cambridge University Press, 2014.
- [2] Garnier J, Cebbron A, Tallec G *et al.* Nitrogen behaviour and nitrous oxide emission in the tidal Seine River estuary (France) as influenced by human activities in the upstream watershed. *Biogeochemistry*, 2006, **77**(3): 305-326.
- [3] Wang Jianing, Yan Weijin, Chen Nengwang *et al.* Variations of river N_2O saturations and emission factors in relation to nitrogen levels in China. *Journal of Agro-Environment Science*, 2012, **31**(8): 1576-1585 (in Chinese with English abstract). [王佳宁, 晏维金, 陈能汪等. 我国河流 N_2O 饱和度与释放系数变化及其与河流氮水平的关系研究. 农业环境科学学报, 2012, **31**(8): 1576-1585.]
- [4] Battle M, Bender M, Sowers T *et al.* Atmospheric gas concentrations over the past century measured in air from firn at the South Pole. *Nature*, 1996, **383**(6597): 231-235.
- [5] Yu ZJ, Deng HG, Wang DQ *et al.* Nitrous oxide emissions in the Shanghai river network: implications for the effects of urban sewage and IPCC methodology. *Global Change Biology*, 2013, **19**(10): 2999-3010.
- [6] Liu XL, Liu CQ, Li SL *et al.* Spatiotemporal variations of nitrous oxide (N_2O) emissions from two reservoirs in SW China. *Atmos Environ*, 2011, **45**(31): 5458-5468.
- [7] Mengis M, Gachter R, Wehrli B. Sources and sinks of nitrous oxide (N_2O) in deep lakes. *Biogeochemistry*, 1997, **38**(3): 281-301.
- [8] Huttunen JT, Juutinen S, Alm J *et al.* Nitrous oxide flux to the atmosphere from the littoral zone of a boreal lake. *Journal of Geophysical Research-Atmospheres*, 2003, **108**(D14): 4421.
- [9] Liu YS, Zhu RB, Ma DW *et al.* Temporal and spatial variations of nitrous oxide fluxes from the littoral zones of three algal-rich lakes in coastal Antarctica. *Atmos Environ*, 2011, **45**(7): 1464-1475.
- [10] Yang Guishan, Ma Ronghua, Zhang Lu *et al.* Lake status, major problem and protection strategy in China. *J Lake Sci*, 2010, **22**(6): 799-810 (in Chinese with English abstract). DOI: 10.18307/2010.0601. [杨桂山, 马荣华, 张路等. 中国湖泊现状及面临的重大问题与保护策略. 湖泊科学, 2010, **22**(6): 799-810.]
- [11] Wang SL, Liu CQ, Yeager KM *et al.* The spatial distribution and emission of nitrous oxide (N_2O) in a large eutrophic lake in eastern China: Anthropogenic effects. *Science of the Total Environment*, 2009, **407**(10): 3330-3337.
- [12] Yang Libiao, Wang Fang, Yan Weijin. N_2O flux across sediment-water interface and its contribution to dissolved N_2O in the Chao Lake tributaries. *Journal of Agro-Environment Science*, 2013, (4): 771-777 (in Chinese with English abstract). [杨丽标, 王芳, 晏维金. 巢湖流域河流沉积物 N_2O 释放对水体溶存 N_2O 贡献研究. 农业环境科学学报, 2013, (4): 771-777.]
- [13] Liu Yuanbo, Zhang Qi, Liu Jian *et al.* eds. Climatic, hydrologic and environmental change in Poyang Lake Basin. Beijing: Science Press, 2012: 4-15 (in Chinese). [刘元波, 张奇, 刘健等. 鄱阳湖流域气候水文过程及水环境效应. 北京: 科学出版社, 2012: 4-15.]
- [14] Gao JH, Jia JJ, Kettner AJ *et al.* Changes in water and sediment exchange between the Changjiang River and Poyang Lake under natural and anthropogenic conditions, China. *Science of the Total Environment*, 2014, **481**: 542-553.
- [15] Jin Xiangcan, Tu Qingying eds. Survey Standards of lake eutrophication (2nd Edition). Beijing: China Environmental Science Press, 1990: 164-178 (in Chinese). [金相灿, 屠清瑛. 湖泊富营养化调查规范. 北京: 中国环境科学出版社,

- 1990: 164-178.]
- [16] Wiesenburg DA, Guinasso NL. Equilibrium solubilities of methane, carbon-monoxide and hydrogen in water and sea-water. *Journal of Chemical and Engineering Data*, 1979, **24**(4): 356-360.
- [17] Yao Xiaolong, Xu Huixian, Tang Chenjie *et al.* Denitrification potential of high suspend sediments in Poyang Lake, China. *China Environmental Science*, 2015, (3): 846-855(in Chinese with English abstract).[姚晓龙, 徐会显, 唐陈杰等. 鄱阳湖水体悬浮物反硝化潜力模拟研究. *中国环境科学*, 2015, (3): 846-855.]
- [18] Read JS, Hamilton DP, Desai AR *et al.* Lake-size dependency of wind shear and convection as controls on gas exchange. *Geophysical Research Letters*, 2012, **39**(9): L09405. DOI: 10.1029/2012GL051886.
- [19] Wanninkhof R. Relationship between wind speed and gas exchange over the ocean revisited. *Limnology and Oceanography-Methods*, 2014, **12**: 351-362.
- [20] Beaulieu JJ, Shuster WD, Rebholz JA. Nitrous oxide emissions from a large, impounded river: The Ohio River. *Environmental Science & Technology*, 2010, **44**(19): 7527-7533.
- [21] Liu XL, Bai L, Wang ZL *et al.* Nitrous oxide emissions from river network with variable nitrogen loading in Tianjin, China. *Journal of Geochemical Exploration*, 2015, **157**: 153-161.
- [22] Garnier J, Billen G, Vilain G *et al.* Nitrous oxide (N₂O) in the Seine river and basin: Observations and budgets. *Agriculture Ecosystems & Environment*, 2009, **133**(3/4): 223-233.
- [23] Wanninkhof R. Relationship between wind-speed and gas-exchange over the ocean. *Journal of Geophysical Research-Oceans*, 1992, **97**(C5): 7373-7382.
- [24] 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.
- [25] De Wilde HPJ, De Bie MJM. Nitrous oxide in the Schelde estuary: production by nitrification and emission to the atmosphere. *Marine Chemistry*, 2000, **69**(3/4): 203-216.
- [26] Yan WJ, Yang LB, Wang F *et al.* Riverine N₂O concentrations, exports to estuary and emissions to atmosphere from the Changjiang River in response to increasing nitrogen loads. *Global Biogeochemical Cycles*, 2012, **26**: 64-72. DOI: 10.1029/2010GB003984.
- [27] Raymond PA, Hartmann J, Lauerwald R *et al.* Global carbon dioxide emissions from inland waters. *Nature*, 2013, **503**(7476): 355-359.
- [28] Zhang Jing, Zhang Guiling, Wu Ying. Distribution and emission of nitrous oxide from the Changjiang River. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 2009, **29**(9): 1995-2002(in Chinese with English abstract).[赵静, 张桂玲, 吴莹等. 长江溶存氧化亚氮的分布与释放. *环境科学学报*, 2009, **29**(9): 1995-2002.]
- [29] Zhang Yuming, Hu Chunsheng, Dong Wenxu *et al.* The influencing factors of production and emission of N₂O emission. *Chinese Journal of Eco-Agriculture*, 2004, **12**(3): 119-123(in Chinese with English abstract).[张玉铭, 胡春胜, 董文旭等. 农田土壤 N₂O 生成与排放影响因素及 N₂O 总量估算的研究. *中国生态农业学报*, 2004, **12**(3): 119-123.]