J. Lake Sci.(湖泊科学),2023,**35**(2):483-492
DOI 10.18307/2023.0216

藻型湖区氧化亚氮排放特征及其影响因素*

廖远珊[1,2,3],肖启涛[3**],刘臻婧[4,5],胡正华[5],张 弥[5],肖 薇[5],段洪涛[1,2**]
(1:西北大学城市与环境学院,西安 710127)
(2:西北大学陕西省地表系统与环境承载力重点实验室,西安 710127)
(3: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)
(4:湖南省气候中心,长沙 410000)
(5:南京信息工程大学气候与环境变化国际合作联合实验室大气环境中心,南京 210044)

摘 要: 湖泊等内陆水体是大气 N_2O 潜在的重要排放源,也是全球 N_2O 收支估算的重要组成部分。目前全球湖泊普遍面临富营养化和蓝藻暴发等问题,明晰藻型湖泊 N_2O 排放强度及其环境影响因子对准确估算湖泊 N_2O 排放和预测其未来变化至关重要。本研究选择太湖藻型湖区为研究对象,同时选取人为活动影响较小的湖心区作为对比区域,基于 2011 年 8 月至 2013 年 8 月为期 2 年的逐月连续观测,探讨藻型湖区 N_2O 排放特征及其影响因素。结果表明,藻型湖区呈现极强的 N_2O 排放,其排放通量为(4.88±3.05) mmol/(m^2·d),是参考区域(湖心:(2.10±4.31) mmol/(m^2·d))的 2 倍多。此外,在藻型湖区中不同点位 N_2O 排放差异显著,受河流外源输入影响,近岸区是 N_2O 的热点排放区,其年均排放通量高达 10.93 mmol/(m^2·d)。连续观测表明 N_2O 排放具有显著的季节变化模式,但在不同区域调控 N_2O 排放时间变化的因子有所不同。其中,近岸区 N_2O 排放主要受氮负荷影响,其他区域 N_2O 排放变化受水温和氮负荷等多因子影响。氮素富集是藻型湖区 N_2O 高排放的直接原因,水体氮负荷可以作为 N_2O 排放热点的重要指示因子。但藻型湖泊 N_2O 排放极其显著的时空变异等在未来研究中应得到更多关注。
关键词: 太湖;藻型湖区;N_2O 通量;空间变化;时间变化;影响因子

Nitrous oxide emission and its influencing factors at the cyanobacteria-dominated lake*

Liao Yuanshan[1,2,3], Xiao Qitao[3**], Liu Zhenjing[4,5], Hu Zhenghua[5], Zhang Mi[5], Xiao Wei[5] & Duan Hongtao[1,2**]
(1: *College of Urban and Environmental Sciences*, *Northwest University*, *Xi'an* 710127, *P.R.China*)
(2: *Shaanxi Key Laboratory of Earth Surface System and Environmental Carrying Capacity*, *Northwest University*, *Xi'an* 710127, *P.R.China*)
(3: *Key Laboratory of Watershed Geographic Sciences*, *Nanjing Institute of Geography and Limnology*, *Chinese Academy of Sciences*, *Nanjing* 210008, *P.R.China*)
(4: *Hunan Climate Center*, *Changsha* 410000, *P.R.China*)
(5: *Yale-NUIST Center on Atmospheric Environment*, *International Joint Laboratory on Climate and Environment Change* (*ILCEC*), *Nanjing University of Information Science & Technology*, *Nanjing* 210044, *P.R.China*)

Abstract: Inland lakes potential emit large nitrous oxide (N_2O) to atmosphere and play significant role in global N_2O budget estimation. Widespread global increase in lake phytoplankton blooms have been found, identifying the N_2O flux and its influencing factors at the cyanobacteria-dominated lake is essential to being able to accurate estimate the N_2O emissions from lakes and predict future change. In order to identify N_2O flux characteristics and its influencing factors in the cyanobacteria-dominated zone of Lake

---

* 2022-06-06 收稿;2022-06-21 收修改稿。
国家自然科学基金项目(42271114, 41801093, 41971309)和农业生态大数据分析与应用技术国家地方联合工程研究中心开放课题项目(AE202205)联合资助。
** 通信作者;E-mail: qtxiao@niglas.ac.cn,htduan@niglas.ac.cn。

Taihu, the N_2O emission was observed based on the two-year field measurements. Results showed the annual mean N_2O flux from the cyanobacteria-dominated zone ((4.88±3.05) mmol/(m^2·d)) was about twice higher than that in the central zone with less cyanobacteria blooms ((2.10±4.31) mmol/(m^2·d)). Meanwhile, the N_2O emissions varies spatially within the cyanobacteria-dominated zone, peak N_2O emission (10.93 mmol/(m^2·d)) occurred in littoral zone due to the large external loadings input via river discharge. Continuous filed measurement showed that the N_2O emission varied seasonally, but the factors influencing the seasonal patterns varied among sub-zones. Generally, the temporal variation of N_2O emission were regulated by N loadings in littoral zone, and were regulated by multiple environment variables, such as temperature and N loadings, in Meiliang Bay and the central zone. High nitrogen loadings contributed to large N_2O emission from cyanobacteria-dominated zone, indicating that N loadings can be used as proxy of N_2O emission from lakes. Considering significant temporal and spatial variation of N_2O emission from cyanobacteria-dominated zones, more attention should be paid in future research.

Keywords: Lake Taihu; cyanobacteria-dominated lake; N_2O flux; temporal variation; spatial variation; influencing factors

氧化亚氮(N_2O)是重要的温室气体之一,最新研究表明 N_2O 排放量的持续升高正在威胁巴黎协定的气候目标[1]。因此,目前大气 N_2O 的源和汇研究受到了广泛的关注,研究人为活动和自然过程的 N_2O 排放已成为氮循环研究的重要内容[2-4]。其中,以湖泊为代表的淡水生态系统是陆源及人为源氮素的重要"汇",是全球氮素地球化学循环的"生物反应器",并向大气中排放大量 N_2O[5-7]。湖泊氮素富集致使其为 N_2O 排放的潜在热点区域[8-10],明确湖泊 N_2O 排放量对全球 N_2O 收支的贡献已成为全球温室气体循环研究中亟待解决的重要科学问题。

湖泊水体 N_2O 产生是多个生物转换的综合过程。湖泊水体接收和累积大量氮负荷在微生物参与下通过生物地球化学循环过程,产生 N_2O 并排放到大气中[8,10]。湖泊水体 N_2O 主要是不同形态氮在硝化和反硝化等过程中发生转化的产物,首先,N_2O 是硝化过程的中间产物,但因硝化作用是耗氧过程,当溶解氧不足时,微生物的硝化活性受到制约;其次,在厌氧条件下,反硝化作用是水体 N_2O 产生的主要途径[8,10]。目前湖泊 N_2O 排放得到了大量研究,但准确估算湖泊 N_2O 排放量还存在一定挑战。主要是因为湖泊中 N_2O 的来源和迁移转化过程较为复杂,不同湖泊 N_2O 排放特征及其数量级大小差异很大[10-13]。全球湖泊普遍面临富营养化和蓝藻扩张的环境问题[14-16]。据估算全球近 63% 的水体都遭遇到了不同程度的富营养化问题[17]。调查数据表明我国长江经济带约 69% 的湖泊已处于富营养化状态,湖泊藻类生物量增高,水华频繁暴发[18]。湖泊富营养化及蓝藻暴发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[19]。因此本研究于 2011 年 8 月至 2013 年 8 月基于对太湖藻型湖区进行为期 2 年的 N_2O 通量观测,揭示 N_2O 排放的变化特征及其影响因素,以期明确藻型湖区 N_2O 的排放特征,为准确估算湖泊 N_2O 排放量提供参考和基础。

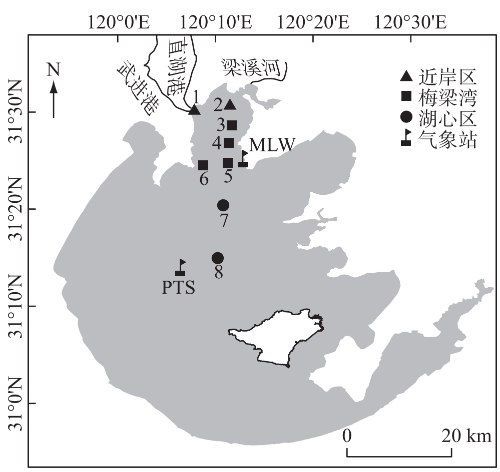

图 1 观测点位示意
Fig.1 Location of sampling sites

1 材料与方法

1.1 研究区域

太湖水域面积为 2388 km^2,平均水深为 1.9 m,是典型的亚热带大型浅水湖泊。梅梁湾是位于太湖北部的一个半封闭湖湾,水域面积 120 km^2,周边连接有梁溪河、直湖港和武进港等入湖河流(图 1),入湖河流给该区域输入了大量的污染物和有机质,使其富营养化严重,蓝藻水华频繁暴发并大量聚集,是 N_2O 等温室气体排放的热点区域[20-21]。同时,梅梁湾湖区频繁的蓝藻暴发致使该区域 N_2O 通量变化受到了广泛关注[22]。在梅梁湾区域共设置 6 个站点(图 1),分为近岸区(1、2 号)和梅梁湾湖区(3~6 号),其中,近岸区受河流外源输入影响显著。同时,在富营养化程低、受人为活动影响较少的湖心区设置 2 个站点(7、8 号),作为对比

分析。

1.2 水样采集和分析

在 2011 年 8 月至 2013 年 8 月,每月中旬对上述 8 个站点进行水样采集,用于 N_2O 溶存浓度分析计算。每次在各样点采集水样时,保持水面无扰动,用待测湖水清洗玻璃瓶 2~3 次,采集水体表层以下 20 cm 深的水样装入 300 mL 的玻璃瓶中,并立即用丁基胶塞密封,保证瓶内没有气泡。同时,为防止气体逃逸,用封口膜密封瓶塞和玻璃瓶的接口处。采集完的水样立即放入 4℃的保温箱中保存,运回实验室进行处理和分析。水样运回实验室后,每个样品用 100 mL 的高纯氮气(摩尔分数≥99.999%)顶空后剧烈摇晃 5 min,然后静置,待玻璃瓶中的 N_2O 气体在液相(剩余水样)和气相(顶空部分)中达到动态平衡,然后抽取顶空部分 N_2O 气体,用气相色谱仪分析其浓度。基于气相色谱仪测定的 N_2O 浓度,通过顶空平衡方法计算出水体 N_2O 的原始溶解浓度[23]。

基于获取的水体 N_2O 原始溶解浓度(C_w,nmol/L),利用水-气界面扩散模型法计算水-气界面 N_2O 排放通量(F_n),计算公式如下[24]:

$$F_n = k(C_w - C_{eq}) \tag{1}$$

式中,C_{eq}为特定温度下水体表层 N_2O 气体与大气 N_2O 达到平衡后的浓度(nmol/L);k 为水-气界面 N_2O 气体交换速率(m/d)。已有研究表明太湖 k 值主要受风速驱动[25],因此本研究参考 Cole 等[24]基于风速建立的模型,计算水-气界面 N_2O 气体交换速率 k:

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

式中,U_{10}为高度为 10 m 的风速(m/s),根据粗糙度和风速仪器观测高度计算得到[26];n 是与风速相关的系数,$U_{10}<3.7$ m/s,$n=2/3$,$U_{10}>3.7$ m/s,$n=0.5$;S_c是无量纲 N_2O 气体施密特数,通过水温计算得到。本研究中用于 k 值计算的风速来源于太湖中尺度通量网的长期观测值[22],且已有研究表明太湖风速无显著空间变化,进而导致水-气界面 k 值也无空间变化[25]。在公式(1)中,F_n为正值,表征水体向大气排放 N_2O;反之,从大气吸收 N_2O。

1.3 环境变量获取

野外采样通过多参数水质检测仪原位监测水温、pH、溶解氧(DO)。同时,另外采集水样,用于水体营养盐和叶绿素 a(Chl.a)浓度测定。采集的原水样用来测定总氮(TN)和总磷(TP)浓度, 其中 TN 浓度使用过硫酸钾消解紫外分光光度法测定,TP 浓度使用过硫酸钾消解钼酸铵分光光度法测定。经 GF/F 膜过滤后的水样用于测定溶解无机氮(氨氮(NH_3-N)和硝态氮(NO_3^--N)),NH_3-N 浓度采用纳氏试剂光度法测定,NO_3^--N 浓度采用流动分析仪测定。此外,先用 GF/C 膜对水样进行过滤,然后用 90%热乙醇对滤膜进行萃取,最后采用分光光度法测定 Chl.a 浓度。营养盐浓度和 Chl.a 浓度由中国科学院太湖湖泊生态系统研究站提供,野外观测期间的风速等气象数据由太湖中尺度通量 2 个观测站点(PTS 和 MLW)提供[22,27]。

1.4 数据处理

本研究分站点(1~8 号点)、分季节(春季:3-5 月;夏季:6-8 月;秋季:9-11 月;冬季:12-次年 2 月)和区域(近岸区、梅梁湾、湖心区)对 2011 年 8 月-2013 年 8 月观测和计算出的数据进行处理分析。采用单因素方差分析(One-way ANOVA)方法和相关性分析(Pearson correlations)方法分析数据之间的差异性和相关性,使用 LSD(Least-significant difference)方法检验数据差异性是否显著,其中 $P<0.05$ 为显著性水平,$P<0.01$ 为极显著水平。另外,因蓝藻水华堆集,1 号点位出现个别异常高 Chl.a 浓度,在分析中该部分数据作为异常值剔除。

2 结果与分析

2.1 水环境因子变化特征

由表 1 可知,在采样期间,3 个区域的年均水温(近岸:(18.6±9.4)℃;梅梁湾:(18.6±9.4)℃;湖心:(18.0±9.4)℃)无显著($P>0.05$)差异,在同月份 3 个区域的水温也无显著($P>0.05$)差异,但 3 个区域的水温均表现出明显的季节变化特征(图 2a)。近岸区、梅梁湾和湖心区最高温度均出现在夏季,分别为 31.6、31.9 和 32.2℃;最低温度均出现在冬季,分别为 3.5、3.3 和 3.0℃。

与水温不同,3个区域的生化参数不尽相同。其中,pH在近岸区最低,在梅梁湾和湖心区相差不大。NO_3^--N和NH_3-N浓度沿湖心区、近岸区和梅梁湾呈梯度变化。受外源输入的影响,TP和TN浓度在近岸区均呈现最高值。DO在梅梁湾浓度最高,在湖心区浓度最低。pH、NO_3^--N、NH_3-N、TP、TN和DO均无显著($P>0.05$)差异。作为表征富营养程度的一个直接指标Chl.*a*,其在富营养化严重的近岸区((28.58±31.41) μg/L)和梅梁湾((28.67±23.99) μg/L)显著($P<0.01$)高于中营养的湖心区((14.44±12.00) μg/L),且Chl.*a*和水温在月变化时间尺度上具有极高的相似性,均表现为暖季高、冷季低的变化特征(图2)。TN也具有季节变化特征,梅梁湾和湖心区的TN峰值一般出现春季。

表1 观测期间3个区域基本生物化学参数特征*

Tab.1 Basic bio-chemical properties in the three sub-zones during sampling period

区域	水温/℃	pH	DO/(mg/L)	NO_3^--N/(mg/L)	NH_3-N/(mg/L)	TP/(mg/L)	TN/(mg/L)	Chl.*a*/(μg/L)
近岸区	18.6±9.4	8.18±0.26	9.40±1.62	0.71±0.56	0.41±0.25	0.15±0.13	2.98±1.21	28.58±31.41^b
梅梁湾	18.6±9.4	8.27±0.28	9.78±1.54	0.63±0.50	0.39±0.17	0.12±0.05	2.64±0.83	28.67±23.99^b
湖心区	18.0±9.4	8.28±0.25	9.27±1.52	0.81±0.62	0.41±0.33	0.12±0.10	2.53±1.22	14.44±12.00^a

* 表格中的数据为平均值±标准偏差,不同字母表示$P<0.05$差异性显著。

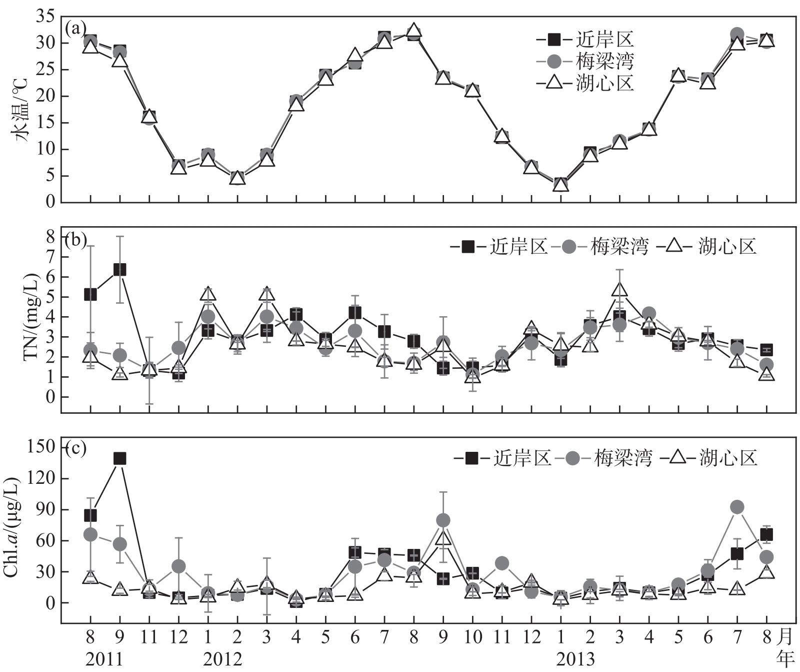

图2 观测期间水温(a)、TN(b)和Chl.*a*(c)在3个区域逐月变化特征

Fig.2 Temporal variation of water temperature (a), TN (b), and Chl.*a* (c) in the three sub-zones during sampling period

2.2 N_2O排放时间变化

图3为近岸区、梅梁湾和湖心区3个区域N_2O排放通量时间变化特征。近岸区和梅梁湾N_2O排放通量最高值均出现在2012年4月,分别为36.48和14.28 mmol/(m²·d);最低值均出现在2013年8月,分别为−9.43和−8.45 mmol/(m²·d)。4个季节(春、夏、秋、冬)近岸区N_2O排放通量平均值分别为15.78、4.49、2.08、8.21 mmol/(m²·d),梅梁湾N_2O排放通量平均值分别为6.52、0.45、0.84、6.07 mmol/(m²·d),2个区域

均表现为春季 N_2O 排放通量显著($p<0.05$)高于夏季和秋季。湖心区 N_2O 排放通量最高值为 18.73 mmol/($m^2 \cdot d$),出现在 2012 年 3 月,最低值为-6.60 mmol/($m^2 \cdot d$),出现在 2013 年 8 月。春、夏、秋、冬 4 个季节 N_2O 排放通量平均分别为 3.60、-0.49、0.50、4.81 mmol/($m^2 \cdot d$),表现为冬季>春季>秋季>夏季。

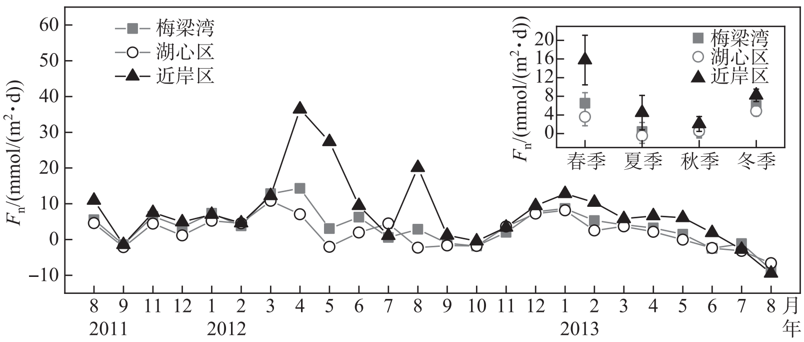

图 3 观测期间 N_2O 通量在 3 个区域逐月变化特征

Fig.3 Temporal variation of N_2O flux in the three sub-zones during sampling period

2.3 N_2O 排放空间变化

观测数据表明 N_2O 排放具有明显的空间变化特征(图 4)。由图 4 可知,近岸区、梅梁湾和湖心区 N_2O 排放通量均值分别为(7.74±11.45)、(3.41±5.10)、(2.10±4.31)mmol/($m^2 \cdot d$),随着富营养化的降低,呈现由近岸区到湖心区逐渐递减的趋势。其中,近岸区平均 N_2O 扩散通量显著($P<0.05$)高于梅梁湾和湖心区。同时,近岸区 1 号点作为武进港和直湖港的入湖口,其 N_2O 排放通量不仅显著($P<0.05$)高于位于同一富营养区域的 2 号点位,也显著($P<0.05$)高于其他区域的 6 个点位,但其余各站点之间无显著性($P>0.05$)差异。另外,基于近岸区和梅梁湾观测表明,本研究中藻型湖区 N_2O 排放通量为(4.88±3.05)mmol/($m^2 \cdot d$)。

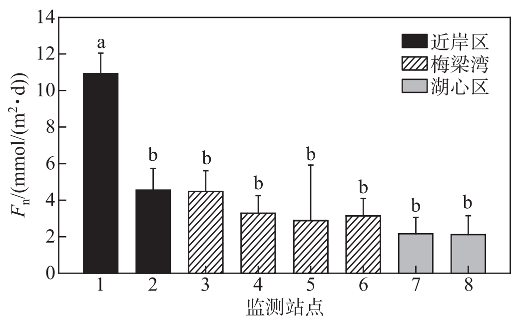

图 4 观测期间 N_2O 通量空间变化特征
(a、b 为方差性检验结果,不同字母表示具有显著性差异,$P<0.05$)

Fig.4 Spatial variation of N_2O flux during sampling period

2.4 N_2O 排放影响因子

基于为期 2 年的野外实测数据,将 N_2O 排放通量与各水环境参数进行相关性分析。研究发现,水温是影响水-气界面 N_2O 排放通量时间变化的重要环境变量(图 5)。受外源负荷影响较弱的湖心区,其 N_2O 扩散通量与水温呈显著负相关关系($R^2=0.43$,$P<0.01$),但在梅梁湾 N_2O 扩散通量与水温的相关性相对偏低($R^2=0.29$,$P<0.01$),温度仅控制了 29% 的 N_2O 扩散通量时间变化。值得注意的是,在入湖口的近岸区,N_2O 扩散通量与水温无显著相关性($R^2=0.02$,$P>0.05$),因此,在近岸区,需重点考虑外源负荷输入等其他因素对 N_2O 扩散排放时间变化的影响。

湖泊水体富营养对水-气界面 N_2O 扩散通量的空间变化影响显著。本研究发现,N_2O 排放通量与影响太湖富营养化的重要因素 TN 浓度呈显著正相关关系($R^2=0.76$,$P<0.01$),同时,也与表征水体富营养程度的直接指标 Chl.*a* 呈显著正相关系($R^2=0.78$,$P<0.01$)(图 6)。这说明,富营养化是驱动水体 N_2O 排放空间变化的重要因素,随着表征富营养化程度的 TN 和 Chl.*a* 浓度升高,湖泊 N_2O 排放通量显著升高。

3 个区域 N_2O 通量的时间变化受其它环境因子驱动,其中,DO、pH、NO_3^--N、NH_3-N、TP 也是重要的环境因子,由表 2 可知,湖心区 N_2O 排放通量时间变化与 DO、NO_3^--N、TP、TN 呈显著正相关关系;梅梁湾 N_2O 排放通量与 TP 和 Chl.*a* 呈显著负相关关系,与 NO_3^--N 和 TN 呈显著正相关系,但与 DO 无显著相关性;而近岸

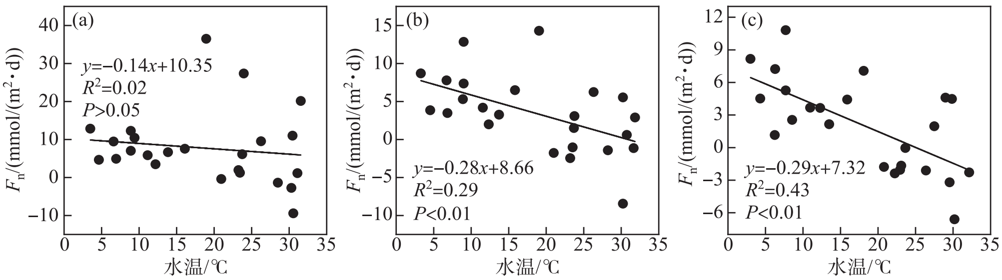

图 5 近岸区(a)、梅梁湾(b)和湖心区(c)N_2O 通量与温度的时间相关性

Fig.5 Temporal variation of N_2O flux and water temperature in littoral zone (a), Meiliang Bay(b), and central zone(c)

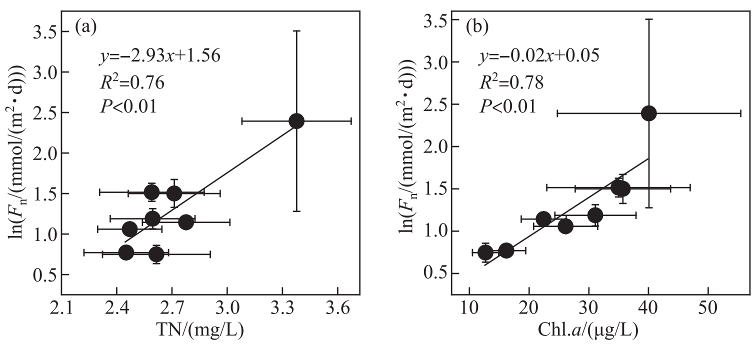

图 6 N_2O 排放通量与 TN (a)和 Chl.a (b)的相关性

Fig.6 Spatial correlations between TN (a), Chl.a (b) and N_2O emission flux

区 N_2O 扩散通量只与 NO_3^--N 呈显著正相关关系,与其余各参数均无明显相关性。

表 2 3 个区域 N_2O 扩散通量与水体理化指标时间相关性

Tab.2 Pearson correlations between N_2O diffusion flux and physical-chemical factors in the littoral zone, Meiliang Bay and central zone

区域	水温	pH	DO	NO_3^--N	NH_3-N	TP	TN	Chl.a
近岸区	−0.14	−0.37	−0.08	0.54**	0.25	−0.35	0.18	−0.22
梅梁湾	−0.54**	−0.23	0.30	0.65**	0.30	−0.60**	0.53**	−0.52*
湖心区	−0.66**	0.07	0.55**	0.57**	0.34	0.44*	0.54**	−0.25

* 为在 P<0.05 水平显著相关; ** 为在 P<0.01 水平显著相关。

3 讨论

3.1 N_2O 排放空间变异分析

研究结果表明不同湖区 N_2O 通量均为正值,说明其是大气 N_2O 的排放源。但是,不同区域 N_2O 排放通量却有所不同,沿着近岸、梅梁湾、湖心呈现梯度降低的趋势(图 4)。以往研究发现在不同区域,湖泊 N_2O 排放呈现显著变异[7,11,28]。本研究结果表明,在同一湖泊不同湖区,N_2O 排放呈显著差异(P<0.05)。太湖湖心区处于中营养状态,受人为活动影响相对偏低,其 N_2O 排放通量(2.10 mmol/(m^2·d))要低于藻型湖区(4.88 mmol/(m^2·d))。N_2O 通量的空间变化与表征湖泊富营养化状态的 TN 和 Chl.a 浓度呈现显著正相关

关系(图 6),藻型湖区高氮负荷和高 Chl.a 浓度可能是其高 N_2O 排放的最主要原因。湖泊等水体 N_2O 主要是氮循环的中间产物或者副产物,因此,高氮负荷直接促进 N_2O 的产生和排放[8,29-30]。另外,大量氮负荷可促进湖泊藻类暴发,而大量藻类可为 N_2O 的产生提供新鲜有机质,致使其成为 N_2O 的排放热点区域[8,31]。

对比分析表明,在两个藻型湖区(近岸区和梅梁湾)不同点位 N_2O 也呈现出显著的空间变化,随着采样点位离入湖河流距离增加,N_2O 排放通量呈现显著降低趋势(图 4)。其中,N_2O 峰值排放(10.93 mmol/(m^2·d))出现在河口最近的 1 号点位。N_2O 峰值排放出现可能主要源于两方面原因,第一,外源碳氮负荷等易在河流入湖口聚集,有利于 N_2O 的产生进而导致河口出现高 N_2O 排放[30-32];第二,连接梅梁湾的入湖河流(武进港和直湖港等,图 1)接收了大量的生活污水和工业废水[33],导致这些河流富含 N_2O[29,34-35],其在输送过程中直接导致河口区域排放大量 N_2O[8,36]。值得注意的是,在受人为活动干扰小的湖心区域,不同点位间 N_2O 通量无显著($P>0.05$)差异。综上,人为活动可能是导致湖泊内部 N_2O 排放出现空间变化的最直接原因[9,30]。

3.2 N_2O 排放通量的季节模式

深入理解 N_2O 通量季节模式及其对环境因子的响应是进行 N_2O 准确收支估算的基础。2011 年 8 月至 2013 年 8 月连续野外观测表明近岸、梅梁湾和湖心 3 个区域 N_2O 通量均具有显著的季节变化(图 3)。其中,梅梁湾和湖心区 2 个区域 N_2O 排放通量季节变化趋势高度一致,均表现为冷季高暖季低的变化特征,甚至湖心区在夏季表现为大气 N_2O 的吸收汇(-0.49 mmol/(m^2·d))。相关研究表明水温升高可显著增加N_2O 的产量[8,30],但本研究分析表明梅梁湾和湖心两个区域的 N_2O 排放通量与水温呈现显著负相关关系(图 5),即温度升高降低了 N_2O 的排放。这与北方湖泊的研究结果相一致[11],同时,也有研究表明暖季高水温一方面降低了水体 N_2O 溶存浓度,另一方面导致反硝化比较彻底,减少了中间产物 N_2O 的累积,进而导致 N_2O 通量与水温呈现显著负相关关系[13,30]。

观测数据也表明水温不是调控 N_2O 通量季节变化的唯一因子。其中,最为直接的证据是在受外源输送影响显著的近岸区,N_2O 通量的季节变化与水温无显著相关性(表 2)。近岸区接收了大量外源污染物负荷,大量外源负荷可能会“稀释”掉温度对 N_2O 排放的影响[36-37]。长期控制实验表明大量外源氮负荷添加对 N_2O 排放的影响要大于温度的影响[37]。值得注意的是,近岸区 N_2O 排放通量与 NO_3^--N 浓度呈显著正相关关系,且该相关性也出现在其他两个湖区(表 2)。因此,本研究结果表明 N_2O 的产生和排放对 NO_3^--N 增加较为敏感,水体中氮负荷能够较好指示 N_2O 的排放强度[38-39]。多数研究也表明,随着人为 NO_3^--N 输入量增加,水体 N_2O 排放通量也随之显著升高[40-41]。综上,湖泊 N_2O 排放的时间变化受多种因素影响,温度可能不是唯一影响因素,在预测湖泊水体 N_2O 排放对气候变暖响应时要综合考虑多因子的调控效用。

3.3 藻型湖区 N_2O 排放强度及其关键影响因素

全球湖泊普遍面临着富营养化和蓝藻暴发等问题[16-17],深入理解藻型湖泊 N_2O 排放强度及其关键环境影响因素是构建湖泊 N_2O 排放理论框架及预测模型的基础。本研究结果表明,藻型湖区具有极强的 N_2O 排放,其排放通量(4.88 mmol/(m^2·d))是湖心区域的 2 倍多(2.10 mmol/(m^2·d))。另外,本研究中藻型湖区 N_2O 排放通量是全湖湖泊均值(1.09 mmol/(m^2·d))的 4.5 倍多[12]。更为重要的是,在富营养化的近岸区,受外源输入和藻类暴发共同影响,其年均 N_2O 排放通量可达到 10.93 mmol/(m^2·d)。相关数据表明我国东部湖泊河口处 N_2O 排放通量是湖心区域的 5 倍多[32],本研究中河口处 N_2O 排放通量也是湖心区域的 5 倍多(图 3)。此外本研究中的入湖河流的总氮浓度大于 3 mg/L,外源氮负荷高[42]。综上,引起 N_2O 等温室气体排放通量空间异质性的关键驱动机制是受外源输入影响所致[43-44]。富营养化藻型湖区具有较强的 N_2O 排放通量,对湖泊 N_2O 收支估算等具有重要贡献,未来需要重点关注。

氮素富集是藻型湖区 N_2O 高排放的主要原因。统计分析表明 N_2O 排放通量的时间变化和空间变化均与氮负荷呈显著正相关关系(图 6 和表 2),因此,水体中氮负荷是决定 N_2O 排放强度的关键因子,可以作为 N_2O 排放热点的重要指示因子[29,39]。其中,NO_3^--N 对水体 N_2O 排放影响较大,而 NH_3-N 几乎没有影响(表 2)。表明该浅水湖泊水体中 N_2O 可能主要来自反硝化作用,这也与其他相关研究结果相一致[39]。值得注意的是,梅梁湾湖区 N_2O 通量时间变化与 Chl.a 呈显著负相关关系(表 2),可能源于太湖蓝藻暴发一般是出

现在暖季[9],进而导致 Chl.a 与 N_2O 通量出现相反的季节变化趋势。此外,蓝藻暴发可改变水体生境条件,进而也可能影响 N_2O 的产生和排放。湖泊等水体 N_2O 的产生、消耗和排放是一个复杂过程,受到生物、化学和物理等多因子影响[8],藻型湖区 N_2O 排放过程可能更加复杂,受 N_2O 产生速率和水—气界面 N_2O 扩散速率等多过程共同影响,未来还需开展更多的研究工作。

湖泊水体 N_2O 排放通量的观测方法主要有扩散模型法和静态箱法。本研究采用的扩散模型法具有劳动成本及耗时小、样品收集步骤简便、测定区域广阔、适用于多点观测等优点。已有研究表明扩散模型法观测得到的 N_2O 排放通量与静态箱法观测得到的排放通量有差异,但两种方法观测的 N_2O 通量有相同的变化趋势,且基于这两种方法观测得到的 N_2O 通量有相同的环境驱动因子[45]。因此,扩散模型法可捕捉到 N_2O 排放的变化特征及其影响因子。

4 结论

1)藻型湖区呈现极强的 N_2O 排放,其排放通量(4.88 mmol/(m^2·d))是参考区域(湖心区 2.10 mmol/(m^2·d))的 2 倍多。此外,在藻型湖区中不同点位 N_2O 排放差异显著,入湖河口是 N_2O 的热点排放区。

2)连续观测表明 N_2O 排放具有显著的季节变化模式,但调控不同区域 N_2O 排放时间变化的因子有所不同。其中,近岸区 N_2O 排放的时间变化主要受氮负荷影响,但在梅梁湾和湖心区,N_2O 排放的时间变化受水温和氮负荷等多因子影响。

3)氮素富集是藻型湖区 N_2O 高排放的直接原因,水体氮负荷可以作为 N_2O 排放热点的重要指示因子。但是,为准确构建藻型湖泊 N_2O 排放理论框架,未来还需重点关注其 N_2O 排放的时空变异规律及其对环境变化的响应。

5 参考文献

[1] Tian HQ, Xu RT, Canadell JG *et al*. A comprehensive quantification of global nitrous oxide sources and sinks. *Nature*, 2020, **586**(7828): 248-256. DOI: 10.1038/s41586-020-2780-0.

[2] Zhang LW, Zhang SB, Xia XH *et al*. Unexpectedly minor nitrous oxide emissions from fluvial networks draining permafrost catchments of the East Qinghai-Tibet Plateau. *Nature Communications*, 2022, **13**: 950. DOI: 10.1038/s41467-022-28651-8.

[3] Webb JR, Hayes NM, Simpson GL *et al*. Widespread nitrous oxide undersaturation in farm waterbodies creates an unexpected greenhouse gas sink. *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America*, 2019, **116**(20): 9814-9819. DOI: 10.1073/pnas.1820389116.

[4] Griffis TJ, Chen Z, Baker JM *et al*. Nitrous oxide emissions are enhanced in a warmer and wetter world. *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America*, 2017, **114**(45): 12081-12085. DOI:10.1073/pnas.1704552114.

[5] Yuan JJ, Xiang J, Liu DY *et al*. Rapid growth in greenhouse gas emissions from the adoption of industrial-scale aquaculture. *Nature Climate Change*, 2019, **9**(4): 318-322. DOI: 10.1038/s41558-019-0425-9.

[6] Yao YZ, Tian HQ, Shi H *et al*. Increased global nitrous oxide emissions from streams and rivers in the Anthropocene. *Nature Climate Change*, 2020, **10**(2): 138-142. DOI: 10.1038/s41558-019-0665-8.

[7] Soued C, Giorgio P, Maranger R. Nitrous oxide sinks and emissions in boreal aquatic networks in Québec. *Nature Geoscience*, 2016, **9**: 116-120. DOI: 10.1038/NGEO2611.

[8] Liu TT, Wang XF, Yuan XZ *et al*. Review on N_2O emission from lakes and reservoirs. *J Lake Sci*, 2019, **31**(2): 319-335. DOI:10.18307/2019.0202. [刘婷婷, 王晓锋, 袁兴中等. 湖、库水体 N_2O 排放研究进展. 湖泊科学, 2019, **31**(2): 319-335.]

[9] 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.

[10] McCrackin ML, Elser JJ. Greenhouse gas dynamics in lakes receiving atmospheric nitrogen deposition. *Global Biogeochemical Cycles*, 2011, **25**(4): GB4005. DOI: 10.1029/2010GB003897.

[11] Kortelainen P, Larmola T, Rantakari M *et al*. Lakes as nitrous oxide sources in the boreal landscape. *Global Change Biology*, 2020, **26**(3): 1432-1445. DOI: 10.1111/gcb.14928.

[12] Lauerwald R, Regnier P, Figueiredo V *et al*. Natural lakes are a minor global source of N_2O to the atmosphere. *Global Biogeochemical Cycles*, 2019, **33**(12): 1564-1581. DOI: 10.1029/2019GB006261.

[13] Liu ZJ, Xiao QT, Hu ZH *et al*. Effects of water diversion from Yangtze River to Lake Taihu on N_2O flux in Gonghu Bay, Lake Taihu. *China Environmental Science*, 2020, **40**(12): 5229-5236. [刘臻婧, 肖启涛, 胡正华等. 引江济太对太湖贡湖湾氧化亚氮通量的影响. 中国

环境科学, 2020, **40**(12): 5229-5236.]

[14] Paerl HW, Paul VJ. Climate change: Links to global expansion of harmful cyanobacteria. *Water Research*, 2012, **46**(5): 1349-1363. DOI: 10.1016/j.watres.2011.08.002.

[15] 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.

[16] Hou XJ, Feng L, Dai YH *et al*. Global mapping reveals increase in lacustrine algal blooms over the past decade. *Nature Geoscience*, 2022, **15**(2): 130-134. DOI: 10.1038/s41561-021-00887-x.

[17] Wang SL, Li JS, Zhang B *et al*. Trophic state assessment of global inland waters using a MODIS-derived Forel-Ule index. *Remote Sensing of Environment*, 2018, **217**: 444-460. DOI: 10.1016/j.rse.2018.08.026.

[18] Yang XD, Dong XH, Chen X *et al*. Past environmental changes and management suggestions for lakes in the Yangtze River economic belt. *Bulletin of Chinese Academy of Sciences*, 2020, **35**(8): 977-987. DOI: 10.16418/j.issn.1000-3045.20200429004. [羊向东, 董旭辉, 陈旭等. 长江经济带湖泊环境演变与保护、治理建议. 中国科学院院刊, 2020, **35**(8): 977-987.]

[19] 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.

[20] Xie YH, Zhang M, Xiao W *et al*. Analysis of nitrous oxide flux from lakes and reservoirs. *China Environmental Science*, 2018, **38**(9): 3481-3493. [谢燕红, 张弥, 肖薇等. 湖泊和水库氧化亚氮通量分析. 中国环境科学, 2018, **38**(9): 3481-3493.]

[21] Yang H, Andersen T, Dörsch P *et al*. Greenhouse gas metabolism in Nordic boreal lakes. *Biogeochemistry*, 2015, **126**(1/2): 211-225. DOI: 10.1007/s10533-015-0154-8.

[22] Lee XH, 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.

[23] 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.hjkx.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.]

[24] Cole JJ, Caraco NF. Atmospheric exchange of carbon dioxide in a low-wind oligotrophic lake measured by the addition of SF_6. *Limnology and Oceanography*, 1998, **43**(4): 647-656. DOI: 10.4319/lo.1998.43.4.0647.

[25] 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.]

[26] 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.

[27] 肖启涛. 太湖 CH_4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.

[28] Zhou YW, Xu XG, Song K *et al*. Nonlinear pattern and algal dual-impact in N_2O emission with increasing trophic levels in shallow lakes. *Water Research*, 2021, **203**: 117489. DOI: 10.1016/j.watres.2021.117489.

[29] Xiao QT, Hu ZH, Fu CS *et al*. Surface nitrous oxide concentrations and fluxes from water bodies of the agricultural watershed in Eastern China. *Environmental Pollution*, 2019, **251**: 185-192. DOI: 10.1016/j.envpol.2019.04.076.

[30] Miao YQ, Huang J, Duan HT *et al*. Spatial and seasonal variability of nitrous oxide in a large freshwater lake in the lower reaches of the Yangtze River, China. *Science of the Total Environment*, 2020, **721**: 137716. DOI: 10.1016/j.scitotenv.2020.137716.

[31] Wang HJ, Wang WD, Yin CQ *et al*. Littoral zones as the "hotspots" of nitrous oxide (N_2O) emission in a hyper-eutrophic lake in China. *Atmospheric Environment*, 2006, **40**(28): 5522-5527. DOI:10.1016/j.atmosenv.2006.05.032.

[32] 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.

[33] Xu H, Paerl HW, Zhu GW *et al*. Long-term nutrient trends and harmful cyanobacterial bloom potential in hypertrophic Lake Taihu, China. *Hydrobiologia*, 2017, **787**(1): 229-242. DOI: 10.1007/s10750-016-2967-4.

[34] Hu BB, Wang DQ, Zhou J *et al*. Greenhouse gases emission from the sewage draining rivers. *Science of the Total Environment*, 2018, **612**: 1454-1462. DOI: 10.1016/j.scitotenv.2017.08.055.

[35] Tang MY, Hu XK, Wang HW *et al*. Diffusive fluxes and controls of N_2O from coastal rivers in Tianjin City. *Environmental Science*, 2022, **43**(3): 1481-1491. DOI: 10.13227/j.hjkx.202106144. [汤梦瑶, 胡晓康, 王洪伟等. 天津市滨海河流 N_2O 扩散通量及控制因子. 环境科学, 2022, **43**(3): 1481-1491.]

[36] Yuan SF, Wang WD. Characteristics of nitrous oxide(N_2O) emission from a headstream in the upper Taihu Lake Basin. *Acta Ecologica Sinica*, 2012, **32**(20): 6279-6288. [袁淑方, 王为东. 太湖流域源头溪流氧化亚氮(N_2O)释放特征. 生态学报, 2012, **32**(20): 6279-6288.]

[37] 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.

[38] Whitfield CJ, Aherne J, Baulch HM. Controls on greenhouse gas concentrations in polymictic headwater lakes in Ireland. *Science of the Total Environment*, 2011, **410/411**: 217-225. DOI: 10.1016/j.scitotenv.2011.09.045.

[39] Pang JL, Wang XF, Liu TT *et al*. Spatiotemporal variations and influencing factors of N_2O concentration and flux from urban small landscape waters. *Acta Ecologica Sinica*, 2021, **41**(22): 8991-9007. [庞吉丽, 王晓锋, 刘婷婷等. 城市小型景观水体溶存 N_2O 浓度及排放通量特征. 生态学报, 2021, **41**(22): 8991-9007.]

[40] Beaulieu JJ, Tank JL, Hamilton SK *et al*. Nitrous oxide emission from denitrification in stream and river networks. *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America*, 2011, **108**(1): 214-219. DOI:10.1073/pnas.1011464108.

[41] Wu S, Yang WT, Sheng YY *et al*. Characteristics and influencing factors of the dissolved methane and nitrous oxide concentrations and emissions from a rice paddy drainage river in China. *Environmental Science*, 2021, **42**(12): 6014-6024. DOI: 10.13227/j.hjkx.202104100. [吴双, 杨蔚桐, 盛扬悦等. 稻田灌溉河流 CH_4和 N_2O 排放特征及影响因素. 环境科学, 2021, **42**(12): 6014-6024.]

[42] Xiao QT, Xu XF, Duan HT *et al*. Eutrophic Lake Taihu as a significant CO_2 source during 2000-2015. *Water Research*, 2020, **170**: 115331. DOI: 10.1016/j.watres.2019.115331.

[43] Hong Y, Zhang YF, Yang P *et al*. Spatiotemporal variations in dissolved CH_4 concentration in Wenwusha Reservoir from Min River Estuary, southeast China. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 2022, **42**(5): 304-313. DOI: 10.13671/j.hjkxxb.2021.0439. [洪妍, 张逸飞, 杨平等. 闽江河口区文武砂水库水体溶存 CH_4浓度时空变化特征. 环境科学学报, 2022, **42**(5): 304-313.]

[44] Yang P, Yang H, Sardans J *et al*. Large spatial variations in diffusive CH_4 fluxes from a subtropical coastal reservoir affected by sewage discharge in southeast China. *Environmental Science & Technology*, 2020, **54**(22): 14192-14203. DOI: 10.1021/acs.est.0c03431.

[45] Tang C, Yang P, Zhan PF *et al*. Comparison of floating chamber and diffusion model methods in determining diffusive N_2O fluxes across water-atmosphere interface in estuary aquaculture ponds. *China Environmental Science*, 2021, **41**(3): 1074-1085. [唐晨, 杨平, 展鹏飞等. 河口区养殖塘水-气界面 N_2O 扩散通量比较. 中国环境科学, 2021, **41**(3): 1074-1085.]