

巢湖水-气界面 N₂O 通量排放特征及影响因素*

杨帆^{1,2}, 苗雨青^{1,3**}, 叶爱中², 崔乾¹, 孙奕琳¹, 罗浩¹, 洪炜林¹, 孙方虎¹

(1: 安徽师范大学地理与旅游学院, 芜湖 241002)

(2: 北京师范大学地理科学学部, 地表过程与资源生态国家重点实验室, 陆地表层系统科学与可持续发展研究院, 北京 100875)

(3: 江淮流域地表过程与区域响应安徽省重点实验室, 芜湖 241002)

摘要: 湖泊是温室气体氧化亚氮(N₂O)的潜在排放源,但由于自然环境以及人类活动的差异,其N₂O排放规律也存在特殊性和地域性。为探究巢湖N₂O排放通量的时空特征,利用静态暗箱-气相色谱法于2018年3月至2019年12月对巢湖不同区域(东、中、西)N₂O的排放进行观测。结果表明,巢湖水体N₂O年均排放通量为(25.14±55.01) μg/(m²·h),表现为N₂O的“源”,且具有较为明显的时空分布规律。在时间分布上,季节变化趋势呈现“M”形模式,7月出现最小值且表现为N₂O的“汇”((-12.97±16.32) μg/(m²·h)),在6月和8月为峰值,全年最大值出现在8月((68.25±78.05) μg/(m²·h)),极值均出现在夏季。在空间分布上,东、中、西3个湖区N₂O排放通量差异显著(P=0.03),N₂O排放通量最大值((43.32±79.96) μg/(m²·h))出现在西巢湖,最小值((10.37±19.31) μg/(m²·h))出现在东巢湖,整体上呈现从湖岸向湖中心逐渐降低的趋势,但从不同湖区来看仅西巢湖呈现出相似的规律,中巢湖和东巢湖在距湖岸4 km时分别出现最大值和最小值,主要受外源输入影响。巢湖N₂O排放通量总体上与pH呈显著负相关,但在不同季节及不同湖区,环境因子与N₂O排放通量的相关性不同,营养盐输入及温度变化对N₂O的产排都会产生不同程度影响。湖泊N₂O排放并不只受单一或固定环境因子控制,而是多种环境因素综合作用的结果。

关键词: 巢湖;氧化亚氮;时空特征;影响因素

Characterization of N₂O emission at the water-gas interface and influences of Lake Chaohu*

Yang Fan^{1,2}, Miao Yuqing^{1,3**}, Ye Aizhong², Cui Qian¹, Sun Yilin¹, Luo Hao¹, Hong Weilin¹ & Sun Fanghu¹

(1: School of Geography and Tourism, Anhui Normal University, Wuhu 241002, P.R.China)

(2: State Key Laboratory of Earth Surface Processes and Resource Ecology, Institute of Land Surface System Science and Sustainable Development, Faculty of Geographical Science, Beijing Normal University, Beijing 100875, P.R.China)

(3: Key Laboratory of Land Surface Processes and Regional Response in Jianghuai Basin, Anhui Province, Wuhu 241002, P.R.China)

Abstract: Lakes are potential sources of nitrous oxide (N₂O). The N₂O emission pattern of lakes also has special and regional characteristics due to the differences in natural environment as well as human activities. In order to explore the spatial and temporal characteristics of N₂O flux from Lake Chaohu, this study observed N₂O emissions from different regions (east, middle, and west) of the lake from March 2018 to December 2019 using a dark floating chamber. The results showed that the annual average N₂O flux from Lake Chaohu was (25.14 ± 55.01) μg/(m²·h), which behaved as a “net source” of N₂O and had a obvious spatial and temporal distribution pattern. In terms of temporal variation, the seasonal trend showed an “M” pattern, with a minimum value in July ((-12.97±16.32) μg/(m²·h)), a peak in June and August, and a maximum value in August ((68.25±78.05) μg/(m²·h)).

* 2022-11-16 收稿;2023-03-22 收修改稿。

安徽省自然科学基金项目(2108085MD126)和国家自然科学基金项目(41601083,41601103)联合资助。

** 通信作者; E-mail: miaoyqjh@ahnu.edu.cn。

h)). The extreme values all happened over the summer. Maximum N₂O emission flux ($(43.32 \pm 79.96) \mu\text{g}/(\text{m}^2 \cdot \text{h})$) occurred in the west sub-lake zone and the minimum ($(10.37 \pm 19.31) \mu\text{g}/(\text{m}^2 \cdot \text{h})$) occurred in the east sub-lake zone, showing an overall trend of gradually decreasing from the shore to the center of the lake. However, only the west sub-lake zone showed a similar pattern from different lake areas, the central sub-lake zone had a maximum value of 4 km from the lake shore and the east sub-lake zone had a minimum value of 4 km from the lake shore, which were mainly influenced by exogenous input. The N₂O emission from Lake Chaohu was significantly negatively correlated with pH, but the relationships between environmental factors and N₂O emission varied depending on the season and region of the lake. The flux of N₂O from lakes is not controlled by a single or fixed environmental factor, but is a combination of multiple environmental factors.

Keywords: Lake Chaohu; nitrous oxide; spatial and temporal characteristics; influencing factors

联合国政府间气候变化专门委员会(IPCC)在2022年4月发布的《气候变化2022:减缓气候变化》报告显示,2010—2019年全球温室气体年平均排放量达到历史最高水平,过去10年平均每年增长1.3%。氧化亚氮(N₂O)是《京都议定书》认定的6种温室气体之一,虽然在大气中的含量低于二氧化碳(CO₂)和甲烷(CH₄),但其在百年尺度的增温潜势是CO₂的298倍^[1]。最新研究也表明在过去的30年中全球N₂O由于人类活动而加速排放,其排放增长已经开始威胁巴黎协议设定的目标^[2]。水体的内源生成和外源输入共同影响N₂O的产排。近年来由于人类生产生活的加剧,致使流域活性氮负荷的增加,河流湖泊等陆地水体正成为潜在的N₂O释放源^[3-6]。

湖泊N₂O的排放通量受生产和排放两方面因素影响。从生产机制来看,一部分是湖泊自身生产的N₂O,主要来自于湖泊沉积物中微生物过程硝化作用和反硝化作用^[7],水生植物以及其他微生物的生长过程会影响硝化、反硝化作用的速率和强度;另一部分是由于工业生产污水、农业灌溉径流等外部输入^[8-9],其携带的溶解性N₂O会影响N₂O排放的空间分布,外源物质的输入又为水生植物及微生物提供能量来源。N₂O的生产和排放的过程同时受到环境因素的影响,可进一步的概括为理化因子(包括温度、营养盐、DO、C/N等)和生物因子(包括水生植物、藻类和微生物等)^[10],但不同研究关于环境因子对N₂O排放的影响的正负效应存在差异。

国内外已有针对不同类型湖泊N₂O排放的研究,包括富营养化湖泊、特殊水文区(水陆交错带、水生植物生长地带等)、城市湖泊以及受人类影响较小的自然湖泊^[11-13]。研究内容为上述不同类型湖泊N₂O的产排模式^[14-15]、时空异质特征^[11,16]、影响因素^[17-18]、总量的估算与比较^[19-20]等。但从全球来看,湖泊研究集中分布在北欧、北美等地区,其他地区则较为薄弱。我国自然湖泊数量众多^[21],近年来在湖泊温室气体领域的研究也取得了一定的进展,但研究大多关注CH₄和CO₂2种温室气体^[22-24]。有关N₂O的研究还在探索阶段,在太湖^[15,23]、鄱阳湖^[25]以及青藏高原区湖泊^[26-27]开展了相关研究。闫兴成等^[28]用顶空平衡法对太湖表层水体N₂O浓度进行测定,发现入湖河流河口区域N₂O浓度较高。王洪君等^[29]研究表明,湖滨带N₂O排放显著高于临近的开阔水体,N₂O排放通量随着气温下降和水生植物衰亡逐渐降低。Li等^[30]利用同位素技术证实了巢湖超过76.8%的溶解N₂O是通过微生物过程产生的,溶解态N₂O主要通过硝化作用和反硝化作用产生。距湖岸不同距离、植物微生物等对湖泊N₂O排放均会产生影响,但由于人类活动的差异,湖泊的地域差异性以及N₂O产排机制较为复杂,需要更多的研究进行填补说明。

由于研究数据及直接观测数据的缺乏,导致对湖泊N₂O的时空变异特征及调控因素认识受到明显限制。巢湖位于经济活动频繁的长江中下游地区,大量污染物质的输入使得巢湖已成为一个典型的富营养化湖泊,但我国目前关于巢湖的研究多集中在富营养化、氮磷浓度变化以及农业施肥和种植方面,对温室气体尤其是N₂O的相关研究非常短缺。杨丽标等^[31]在巢湖两条支流开展了关于沉积物N₂O释放对水体溶存N₂O的影响的研究,结果表明两条入湖河流均为大气N₂O的潜在释放源。蔡林颖^[32]对巢湖流域3种不同污染类型河流N₂O溶存浓度进行采样观测,结果表明城市废水污染型河流N₂O溶存浓度高于乡镇和农业。大多研究的关注点在于巢湖的入湖河流而不是巢湖本身,因此为了厘清巢湖N₂O排放时空规律及影响因素,本研究于2018—2019年对巢湖水体N₂O排放特征进行观测,对比不同时空背景下巢湖N₂O的排放通量,分析人类活动及环境因子对N₂O时空变异的影响规律,为同类型湖泊N₂O的排放研究提供借鉴。

1 材料与方

1.1 研究区域概况和采样点布

巢湖(31°25'~31°43'N, 117°16'~117°51'E)位于安徽省中部,是中国五大淡水湖之一,属长江下游左岸水系,湖泊面积784 km²。研究区地处亚热带湿润性季风气候区,多年平均气温为16℃,相对湿度76%,多年平均年降水量1215 mm,其中汛期5—8月降水量占全年约51%,水位因此也呈现明显的季节变化,进而影响着湖泊与水系之间的物质交换通量。主要入湖河流有9条,其中南淝河、十五里河、派河、杭埠河、白石山河5条河流均从西巢湖入湖,3条河流从东巢湖入湖,仅有1条河流从中巢湖入湖^[33],80%以上的污染负荷来自于外源农业生产和生活排水^[21],受人类活动影响强烈。

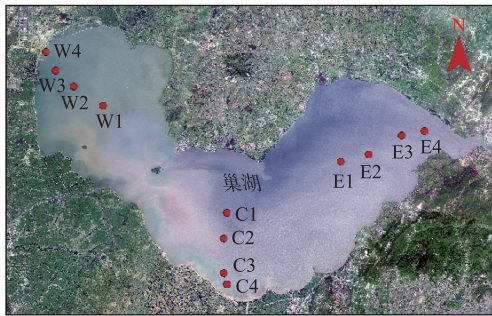


图1 巢湖采样点分布

Fig.1 Sampling points distribution in Lake Chaohu

本研究根据巢湖的自然形态和水质差异,将其分为东部(E)、中部(C)和西部(W)3个湖区,每个湖区布置4个观测点位。具体布点方法如下:垂直于岸带,分别距岸带1、4、7和10 km布置1个采样点,每个采样点设置3个重复(图1)。采样自2018年3月—2019年12月,观测时间为2018年3月、5月、7—12月,2019年1月、5—12月,基本覆盖了春、夏、秋、冬4个季节,每次采样2~3 d。

1.2 样品采集与分析方法

采用静态密闭箱法采集气体样品。漂浮箱的上底直径37 cm,下底直径31.5 cm,高15.5 cm,入水深度4 cm。漂浮箱连接一个浮标置于水面,浮标的另一段系于船身以固定其浮于水面。样品采集用100 mL注射器,分别在第0、10、20和30 min分别采集30 mL箱内气体置于铝箔气袋中,每个点位每次采集4个样品。气袋带回实验室内在48 h内用气相色谱仪(岛津2014C,日本)分析N₂O浓度并计算气体排放通量。同步采集水样,用1 L白色和500 mL棕色的聚四氟乙烯棕色塑料瓶,在每个样点采集2瓶水样。在每次取样前用水样采集器采集表层水样,然后用水样冲洗采样瓶2次后再采集水样。

所有的样点采集完毕后,将水样送回实验室保存,用于相关水质指标的测定。总氮(TN)、总磷(TP)浓度分别采用钼锑抗光度法和过硫酸钾氧化-紫外分光光度法进行测定^[34]。为了确保数据的准确性、缩小误差,所有的样品均做3个平行样,取3次结果的平均值作为实验结果。使用水质仪(HQ40d, HACH, 美国)观测水体溶解氧(DO)浓度和酸碱度(pH),使用温度计观测现场气温(T_a)、水温(T_w)、底泥温度(T_s),使用风速仪观测距水面2 m处风速。

1.3 通量计算

水体N₂O通量是指单位时间内单位水体面积N₂O的变化量,通量为正表示N₂O从水体排向大气,即水体表现为N₂O的源;通量为负表示N₂O被水体吸收,即水体表现为N₂O的汇。N₂O通量(*F*)的计算公式如下^[35]:

$$F = \frac{dc}{dt} \times \frac{M}{V_0} \times \frac{P}{P_0} \times \frac{T_0}{T} \times h \quad (1)$$

式中:*F*为N₂O通量(μg/(m²·h));*c*为N₂O浓度(μg/m³); $\frac{dc}{dt}$ 为采样时气体浓度随时间变化的直线斜率;*M*为N₂O摩尔质量;*P*为采样点气压(kPa);*T*为采样时绝对温度(K);*V*₀、*T*₀、*P*₀分别为标准状态下的摩尔体积(m³/mol)、空气绝对温度(K)和气压(kPa);*h*为水面以上采样箱高(m)。

1.4 数据分析方法

根据样本数量大小选择Shapiro-Wilk检验数据是否服从正态分布,其中全湖平均排放通量、西巢湖N₂O排放通量以及水体深度呈现偏态分布,用平方根变换使其正态化校正后使用。采用Pearson相关分析N₂O

排放通量与环境因子之间的关系,采用方差分析评估 N_2O 排放通量不同组之间的差异,使用 LSD (Least-significant difference) 方法检验其差异是否显著 ($P < 0.05$ 认为具有显著差异)。统计分析采用 SPSS 20.0 和 Excel 2013 软件完成,采用 SigmaPlot 14.0 软件作图。

2 结果

2.1 水环境参数时空变化

2018—2019 年研究区气温和水温的季节变化特征十分相似(图 2a, 2b)。气温总体上比水温高 1°C 左右,全年波动范围在 $2.67\sim 33.33^\circ\text{C}$ 。气压变化特征与气温相反(图 2c)。在空间上,东、中、西 3 个湖区的温压变化特征基本重合。巢湖平均溶解氧浓度为 $(10.41\pm 2.79)\text{mg/L}$ 。全年变化整体趋势表现为“单峰型”,夏季最低 ($7.91\pm 2.33\text{mg/L}$),冬季最高 ($13.39\pm 1.52\text{mg/L}$) (图 2d)。就不同湖区来看,西巢湖的溶解氧浓度最高 ($10.91\pm 3.62\text{mg/L}$) 且波动最大,东巢湖最低 ($10.05\pm 2.35\text{mg/L}$)。湖泊整体上呈碱性 ($\text{pH} = 8.76\pm 0.67$),全年波动不大但季节差异显著,春秋季节高于夏冬季节(图 2e)。西巢湖的 pH 值在 3 个湖区中最高 (8.84 ± 0.85) 且年内波动最大,东巢湖最低 (8.67 ± 0.55)。

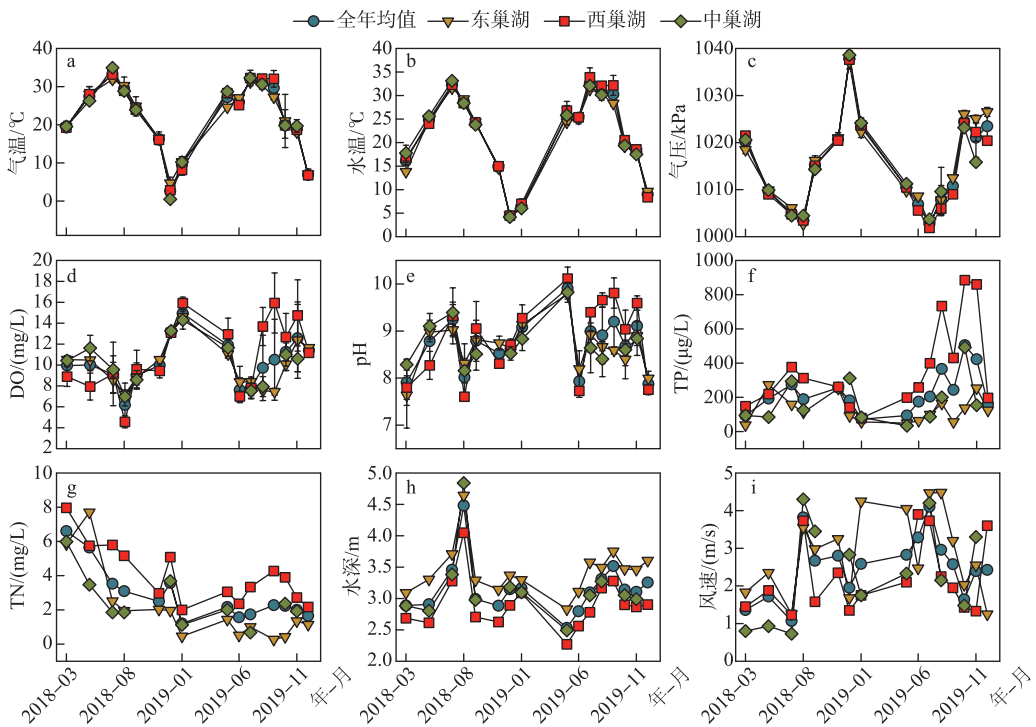


图 2 环境参数时空变化(文中所有的误差棒为平行样之间的标准差)

Fig.2 Spatial and temporal variation of environmental parameters
(all error bars in this paper are the standard deviation between parallel samples)

湖泊总氮和总磷浓度反映了湖泊的营养盐状况。巢湖平均总磷浓度为 $(231.74\pm 272.59)\mu\text{g/L}$,随季节变化显著,秋季最高 ($377.89\pm 433.15\mu\text{g/L}$),春季最低 ($126.27\pm 111.89\mu\text{g/L}$),年内变化特征表现为 1—7 月单向上升,7—11 月波动剧烈但整体上仍是升高,11—12 月浓度迅速下降(图 2f)。巢湖平均总氮浓度为 $(2.95\pm 2.33)\text{mg/L}$,季节变化趋势表现表现为春季最高 ($4.80\pm 2.69\text{mg/L}$),夏秋冬 3 季差异不大,变化曲线整体上是波动下降(图 2g)。与总磷浓度的季节变化趋势相反,主要是由于在蓝藻非优势季节,湖泊的氮磷会比较高^[36]。空间分布上,总氮和总磷浓度均表现为西巢湖>中巢湖>东巢湖。

水深年内变化主要受降水量影响。观测期内,水体深度变化范围为 $2.53\sim 4.48\text{m}$,年内表现为单峰变

化,夏季最高((3.47 ± 0.79) m),春季最低((2.77 ± 0.64) m)(图 2h)。在空间上,东巢湖年均水深最大((3.45 ± 0.47) m),西巢湖最小((2.92 ± 0.63) m)。年平均风速为(2.46 ± 1.32) m/s,夏季风速最高((2.99 ± 1.51) m/s),但由于风速受天气状况影响较大所以季节变化规律不明显。在空间上,西巢湖因与合肥市相邻,建筑物多且密集,受地物阻挡所以风速最低,东巢湖周边主要为村镇分布,对风的阻挡削弱作用小,风速最高(图 2i)。

2.2 巢湖水体 N_2O 排放通量时间变化

巢湖水体 N_2O 的排放通量波动较大($-15.15 \sim 138.23$) $\mu\text{g}/(\text{m}^2 \cdot \text{h})$,平均排放通量为(25.14 ± 55.01) $\mu\text{g}/(\text{m}^2 \cdot \text{h})$,虽然在 7 月表现为 N_2O 的吸收,但总体仍表现为 N_2O 的源。全年变化曲线基本上呈“M”形,夏季波动最为明显,每年的 7 月均表现为 N_2O 的汇,6 月和 8 月分别为两个峰值(图 3a)。2018 年 N_2O 排放通量最高值出现在 8 月份(138.23 $\mu\text{g}/(\text{m}^2 \cdot \text{h})$),也是 2 a 内出现的最高值,2018 年最低值出现在 7 月份(-15.15 $\mu\text{g}/(\text{m}^2 \cdot \text{h})$);2019 年为双峰单谷变化趋势,双峰分别为 6 月份(72.80 $\mu\text{g}/(\text{m}^2 \cdot \text{h})$)和 11 月份(22.60 $\mu\text{g}/(\text{m}^2 \cdot \text{h})$),谷值同样出现在 7 月份(-10.33 $\mu\text{g}/(\text{m}^2 \cdot \text{h})$)。在季节变化上表现为夏秋季节的平均通量高于冬春季节,这与 Roland 等^[37]的研究结果一致。夏季的平均排放通量为 32.16 $\mu\text{g}/(\text{m}^2 \cdot \text{h})$,夏秋冬 3 季呈递减的趋势,其中秋季为 29.33 $\mu\text{g}/(\text{m}^2 \cdot \text{h})$,冬季为 25.01 $\mu\text{g}/(\text{m}^2 \cdot \text{h})$,春季的平均排放通量显著低于其他季节,为 9.98 $\mu\text{g}/(\text{m}^2 \cdot \text{h})$,这可能与较高的细菌活性有关,即反硝化效率提高导致 N_2O 生产量增加^[38]。

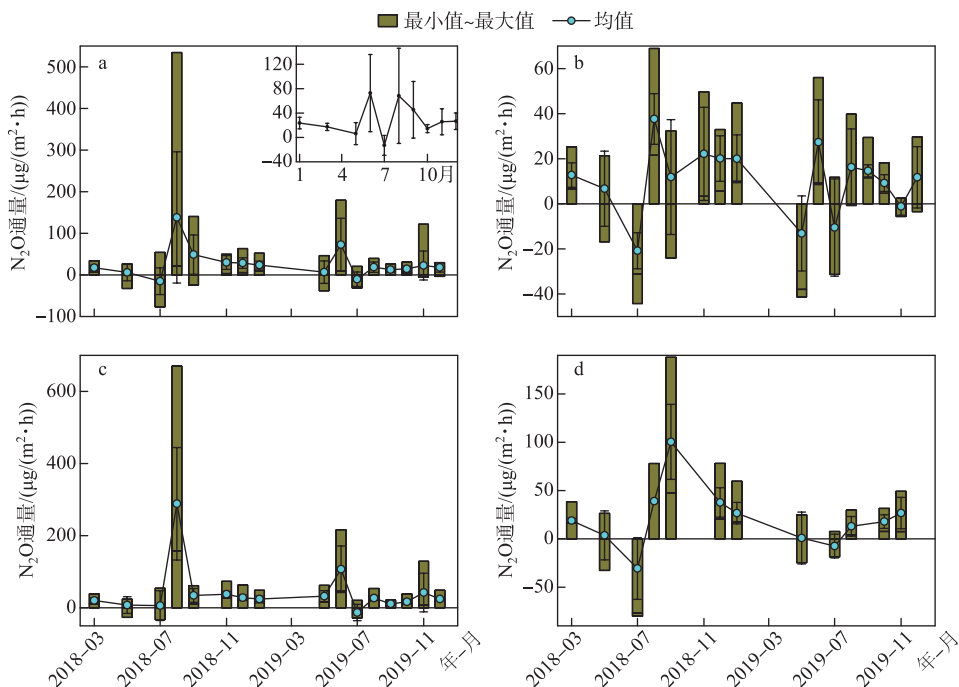


图 3 巢湖水体 N_2O 排放通量时间变化(a:全湖平均;b:东巢湖;c:西巢湖;d:中巢湖)

Fig.3 Temporal variation of N_2O emission fluxes from Lake Chaohu water bodies

(a: average for the whole lake; b: East Lake Chaohu; c: West Lake Chaohu; d: Middle Lake Chaohu)

3 个湖区的年变化趋势基本上符合“M”形,但也存在差异。东巢湖的 N_2O 排放通量曲线虽然波动较大,但月际波动小,时间变化比较稳定。但不仅在 7 月份出现负值,2019 年 5 月也表现为 N_2O 的汇(图 3b)。西巢湖的 N_2O 排放通量在从 9 月到次年 5 月基本在稳定在 30 $\mu\text{g}/(\text{m}^2 \cdot \text{h})$ 上下,但进入夏季之后出现突增突减变化,尤其在 2018 年 8 月出现异常高值(288.43 $\mu\text{g}/(\text{m}^2 \cdot \text{h})$)(图 3c)。中巢湖 N_2O 排放通量曲线在 2018 年和 2019 年均表现为 7 月最低值,但变化趋势不同。2018 年表现出 7 月为谷值(-30.67 $\mu\text{g}/(\text{m}^2 \cdot \text{h})$),9 月为

峰值(100.44 μg/(m²·h))的“单峰单谷”形式;2019年则是以7月为谷值(-7.41 μg/(m²·h))的“单谷”形式(图3d)。从总体上来看,2018年N₂O的平均排放通量高于2019年,二者的差异主要体现在西巢湖。

2.3 巢湖水体 N₂O 排放通量空间变化

巢湖水体 N₂O 排放通量在空间上以西巢湖((43.32±79.96) μg/(m²·h))最高且年内波动大,中巢湖((19.76±36.12) μg/(m²·h))次之,东巢湖((10.37±19.31) μg/(m²·h))最低(图4a),3个湖区 N₂O 排放通量存在显著差异(P=0.03)。排放通量总体上还是呈现自湖岸向湖中心不断降低的趋势,其中距湖岸1 km 处 N₂O 排放通量最高((36.72±86.91) μg/(m²·h)),距湖岸4 km 和7 km 处 N₂O 排放通量大致相似,距湖岸带10 km 处 N₂O 排放通量最低((19.42±30.12) μg/(m²·h))。但从不同湖区来看,仅西巢湖符合自湖岸向湖中心逐渐降低的趋势。中巢湖表现为先升后降,在距湖岸4 km 处排放通量最高((26.05±29.39) μg/(m²·h))。东巢湖表现为先降后升,在4 km 处排放通量最低((2.46±19.99) μg/(m²·h)),在7 km 处排放通量最高((14.95±17.70) μg/(m²·h))(图4b)。

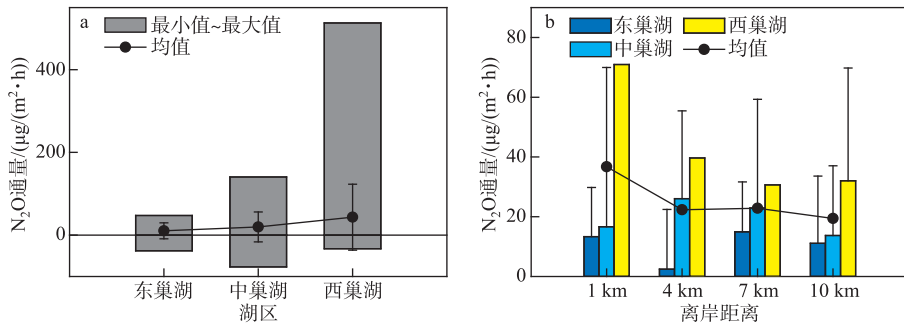


图4 巢湖水体 N₂O 排放通量空间差异(a:不同湖区;b:不同离岸距离)

Fig.4 Spatial differences in N₂O emission fluxes from water bodies in Lake Chaohu

(a: different lake areas; b: different offshore distances)

2.4 N₂O 排放通量与环境因子的相关性分析

水体中的硝化和反硝化反应是 N₂O 产生的重要途径,与水温、pH、溶解氧浓度等环境因子密切相关^[38]。相关性分析显示,2018—2019年巢湖12个采样点 N₂O 排放通量与水体的 pH 值存在显著负相关关系(P=0.03)(表1)。不同湖区而言,东巢湖 N₂O 排放通量同样与 pH 存在显著负相关关系(P=0.03)。西巢湖 N₂O 排放通量与风速存在显著负相关关系(P=0.02),即风速较低时,N₂O 排放通量较高,主要是由于风速较高

表1 N₂O 排放通量与环境因子 Pearson 相关性

Tab.1 Pearson correlation between N₂O emission fluxes and environmental factors in different seasons

环境因子	巢湖整体	东巢湖	中巢湖	西巢湖	春季通量	夏季通量	秋季通量	冬季通量
气温	-0.18	-0.26	-0.40	0.12	0.23	-0.48	-0.19	-0.39
水温	-0.18	-0.30	-0.36	0.04	0.25	-0.21	-0.19	-0.54*
气压	0.07	0.19	0.34	0.02	0.32	-0.52	-0.73**	0.42
DO	-0.26	-0.16	-0.05	0.16	-0.03	0.34	0.08	0.44
pH	-0.56*	-0.54*	-0.51	0.07	-0.09	0.02	-0.03	0.34
TP	-0.11	-0.11	0.05	-0.02	0.42	0.85**	0.55	0.53
TN	-0.10	-0.11	0.23	0.43	0.21	0.84**	0.53	-0.19
水深	0.33	0.28	-0.12	0.10	-0.21	-0.11	-0.55	-0.19
风速	0.43	0.08	0.44	-0.57*	-0.36	0.18	0.28	0.08

* 表示在 0.05 级别(双尾)相关性显著;** 表示在 0.01 级别(双尾)相关性显著。

时水体形成向下的泵吸作用,进而促使水体对 N_2O 的吸收^[39]。不同季节,巢湖 N_2O 排放通量与各环境参数的相关性并不一致。春季 N_2O 排放通量与环境参数无明显相关性。夏季 N_2O 排放通量与 TP 和 TN 存在显著正相关关系($P < 0.01$)。秋季 N_2O 排放通量与气压成显著负相关关系($P < 0.01$)。冬季 N_2O 排放通量与水温之间存在负相关关系($P = 0.04$)。

3 讨论

3.1 营养盐输入间接促进 N_2O 排放

虽然氮磷等营养盐对湖泊 N_2O 排放是否有直接影响尚不清楚^[10],但人为氮磷输入可以间接影响 N_2O 排放。本研究结果显示巢湖在夏季 N_2O 排放通量与 TP 和 TN 存在显著正相关关系,进一步证实了营养物质的输入会促进 N_2O 的排放。Davidson 等^[40]通过控制实验也发现,高浓度的氮磷等营养盐的添加能够显著增加 N_2O 的排放量。氮、磷等营养物质过多输入会引起湖泊水体环境污染。尤其是进入 21 世纪以来,人类活动强度的增加使得氮磷过度输入,再加上全球气候的变化^[41],我国的湖泊富营养化现象日益严重,巢湖整体都处于富营养化状态^[42]。湖区周围生活、工农业废水污水的排放造成氮磷的过量输入,是促进巢湖 N_2O 排放的重要原因^[10]。巢湖入湖河流分布特点使得西巢湖相比东巢湖而言要获得更多的外源输入物质。氮磷等营养物质作为微生物生存和水生植物生长必不可少的营养元素,通过影响植物和微生物的生长代谢从而作用于 N_2O 产生与排放。营养物质的输入会使得湖泊沉积层堆积的有机物质增加,为反硝化细菌的代谢作用提供了能量来源,再加上沉积层的缺氧/厌氧环境^[43],反硝化作用增强,进而使 N_2O 的排放量增加^[30]。从西巢湖 N_2O 的整体排放量上来看,其内源产生主要是由于反硝化作用。营养盐的输入促进了水生植物的生长进而消耗大量 CO_2 ,致使水中氢离子减少,水体 pH 值升高,从而对反硝化作用起到了制约作用^[44],进而限制 N_2O 的产生与排放。本研究发现巢湖 N_2O 排放通量与湖泊 pH 值存在负相关关系,这与徐会显等^[45]发现高 pH 环境抑制湖泊 N_2O 排放的研究结果一致。

3.2 温度对 N_2O 排放存在正负效应

在本研究中,巢湖夏秋季节 N_2O 排放通量要高于冬春季节,冬季 N_2O 排放通量与水温存在负相关关系,具有明显的季节性。通常情况下,因为温度升高会刺激水体中的微生物,增强硝化细菌和反硝化细菌的活性^[46-47],水体中 N_2O 的饱和溶解度也会随温度升高而降低,从而促进 N_2O 的排放,使得 N_2O 排放量与温度之间成正相关关系,这与代谢理论所表达的内涵一致。此外,无脊椎动物作为湖泊沉积物中 N_2O 的生产源之一,水温升高时动物活动会增加,通过其摄食、呼吸、代谢从而间接影响 N_2O 的产生^[48]。多位学者对我国太湖 N_2O 生成的观测研究发现,水-气界面 N_2O 通量呈现随温度上升而升高的趋势^[15,49]。但温度对 N_2O 排放的影响并不都是正向的。在本研究中,冬季 N_2O 排放通量与水温存在显著负相关关系,意味着温度升高时 N_2O 排放通量反而会降低,这是因为水温较高时水体会缺氧,进而抑制沉积物的硝化作用,而且过度的厌氧环境可能使得反硝化更彻底,使 N_2O 的产生和排放减少。林海等^[50]通过观测池塘温室气体排放特征,发现水温过高会导致水体缺氧,进而抑制硝化作用降低 N_2O 的产排量。生物的硝化作用在 25~35℃ 的范围内进行^[51],反硝化细菌在 15~25℃ 范围内活性最高^[52]。温度对于 N_2O 的产生与排放的影响并不是单独的正向或负向,要在一定阈值的前提下加以判定。同时还要考虑由温度变化引起其他因素的变化,进而间接影响到 N_2O 排放。值得关注的是,温度虽然是影响温室气体排放的重要因素,但目前对于湖泊内部水温与 N_2O 产生排放的关系研究较为匮乏,未来可以考虑通过室内模拟实验进行探究。

3.3 距湖岸不同距离对 N_2O 排放的影响

水体 N_2O 排放通量的空间差异受多种因素的影响,例如水生植物的类型^[15,29]、海水的潮汐活动^[53]等。受人类活动及污染物输入以及水生生物影响,近岸区的水体理化性质变化最为剧烈,低氧的特征为反硝化作用创造了有利环境,因此水体 N_2O 排放通量一般表现为自湖岸向湖心逐渐降低,富营养化程度较高的巢湖也呈现这一特点,表明湖泊近岸带具有较大的 N_2O 排放潜力。汪青等^[53]通过观测崇明岛东滩湿地发现 N_2O 排放通量越靠近海端,排放通量越小;闫兴成等^[28]发现太湖近岸带点位 N_2O 的浓度及饱和度均要高于开阔湖区点位。这是因为湖泊近岸带容易发生蓝藻水华聚集,藻类分解会改变周边水体的理化性

质^[54]、释放营养盐及有机物质^[55],再加上外源氮素的输入^[56],为微生物的硝化和反硝化作用创造有利条件,导致水体 N₂O 的富集。本研究中,西巢湖的入湖河流南淝河、十五里河及派河流经合肥市^[33,56],大量营养物质的输入导致该区域蓝藻水华暴发频繁,因此西巢湖 N₂O 排放通量自湖岸向湖心递减的特征最为明显。

4 结论

1) 巢湖水体 N₂O 的年均排放通量为 (25.14±55.01) μg/(m²·h),整体上表现为 N₂O 的源,但在 7 月则为 N₂O 的汇。

2) N₂O 排放具有明显的时间变化规律,全年变化曲线基本上呈“M”形,从 11 月到次年 5 月基本上处于稳定下降趋势,7 月份出现最低值,6 月份和 8 月份分别为两个峰值。季节变化上主要表现为夏秋季节高,冬春季节低,其中夏季的平均排放通量为 32.16 μg/(m²·h)。

3) N₂O 排放的空间变异特征表现为西巢湖 N₂O 排放通量显著高于中巢湖和东巢湖,且整体上自湖岸向湖心排放通量逐渐降低,但各个湖区表现有所差异。

4) 影响巢湖 N₂O 排放的主要环境因子为水体的 pH 值,但不同湖区以及不同季节的主导因子有所不同。受人类活动影响较大导致的氮磷营养物质过量输入是造成 N₂O 排放的重要原因。此外,温度对 N₂O 排放的影响存在正负效应,温度过高和过低都会抑制 N₂O 排放。

5 参考文献

- [1] Amaral V, Ortega T, Romera-Castillo C *et al.* Linkages between greenhouse gases (CO₂, CH₄, and N₂O) and dissolved organic matter composition in a shallow estuary. *Science of the Total Environment*, 2021, **788**: 147863. DOI: 10.1016/j.scitotenv.2021.147863.
- [2] 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.
- [3] Wang JN, Yan WJ, Chen NW *et al.* Variations of river N₂O saturations and emission factors in relation to nitrogen levels in China. *Journal of Agro-Environment Science*, 2012, **31**(8): 1576-1585. [王佳宁, 晏维金, 陈能汪等. 我国河流 N₂O 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] Hu MP, Chen DJ, Dahlgren RA. Modeling nitrous oxide emission from rivers: A global assessment. *Global Change Biology*, 2016, **22**(11): 3566-3582. DOI: 10.1111/gcb.13351.
- [5] 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.
- [6] Sun WW, Wang DQ, Chen ZL *et al.* Dissolved CH₄ and N₂O concentrations and their emission fluxes in river network waters of the Yangtze River Delta Plain. *Scientia Sinica: Chimica*, 2009, **39**(2): 165-175. DOI: 10.1360/972009-470. [孙玮玮, 王东启, 陈振楼等. 长江三角洲平原河网水体溶解 CH₄ 和 N₂O 浓度及其排放通量. 中国科学: B 辑: 化学, 2009, **39**(2): 165-175.]
- [7] Tan YJ, Wang DQ, Zhou LM *et al.* Review on the production and emission of nitrous oxide from rivers. *Earth and Environment*, 2015, **43**(1): 123-132. [谭永洁, 王东启, 周立旻等. 河流氧化亚氮产生和排放研究综述. 地球与环境, 2015, **43**(1): 123-132.]
- [8] Atkins ML, Santos IR, Ruiz-Halpern S *et al.* Carbon dioxide dynamics driven by groundwater discharge in a coastal floodplain creek. *Journal of Hydrology*, 2013, **493**: 30-42. DOI: 10.1016/j.jhydrol.2013.04.008.
- [9] Zhang GL, Zhang J, Xu J *et al.* Distributions, land-source input and atmospheric fluxes of methane in Jiaozhou Bay. *Water Air and Soil Pollution: Focus*, 2007, **7**(6): 645-654. DOI: 10.1007/s11267-007-9126-x.
- [10] Liu TT, Wang XF, Yuan XZ *et al.* Review on N₂O 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 N₂O 排放研究进展. 湖泊科学, 2019, **31**(2): 319-335.]
- [11] 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解浓度及其影响因素. 湖泊科学, 2019, **31**(4): 1055-1063.]
- [12] Huttunen JT, Alm J, Liikanen A *et al.* Fluxes of methane, carbon dioxide and nitrous oxide in boreal lakes and potential anthropogenic effects on the aquatic greenhouse gas emissions. *Chemosphere*, 2003, **52**(3): 609-621. DOI: 10.1016/S0045-6535(03)00243-1.
- [13] 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.
- [14] Wang HJ, Yang LY, Wang WD *et al.* Nitrous oxide (N₂O) fluxes and their relationships with water-sediment characteristics in a hyper-eu-

- trophic shallow lake, China. *Journal of Geophysical Research Biogeosciences*, 2015, **112**(G1): 129-137. DOI: 10.1029/2005JG000129.
- [15] Zheng XL, Wen SL, Li X *et al.* Characteristics of N₂O release and influencing factors in grass-type and algae-type zones of Taihu Lake during summer. *Environmental Science*, 2018, **39**(5): 2306-2315. DOI: 10.13227/j.hjxx.201709212. [郑小兰, 文帅龙, 李鑫等. 夏季太湖草/藻型湖区 N₂O 生成与迁移特征及其影响因素. 环境科学, 2018, **39**(5): 2306-2315.]
- [16] Yang M, Geng XM, Grace J *et al.* Responses of N₂O flux to water level fluctuation and other environmental factors at littoral zone of Miyun Reservoir: A comparison with CH₄ fluxes. *Biogeosciences Discussions*, 2015, **12**(7). DOI: 10.5194/bgd-12-5333-2015.
- [17] Liikanen A, Martikainen PJ. Effect of ammonium and oxygen on methane and nitrous oxide fluxes across sediment-water interface in a eutrophic lake. *Chemosphere*, 2003, **52**(8): 1287-1293. DOI: 10.1016/S0045-6535(03)00224-8.
- [18] Peacock M, Audet J, Jordan S *et al.* Greenhouse gas emissions from urban ponds are driven by nutrient status and hydrology. *Ecosphere*, 2019, **10**(3): e02643. DOI: 10.1002/ecs2.2643.
- [19] 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.
- [20] Pickard A, White S, Bhattacharyya S *et al.* Greenhouse gas budgets of severely polluted urban lakes in India. *Science of the Total Environment*, 2021, **798**: 149019. DOI: 10.1016/j.scitotenv.2021.149019.
- [21] 中国科学院南京地理与湖泊研究所. 中国湖泊调查报告. 北京: 科学出版社, 2019.
- [22] Chen YG, Li XH, Hu ZX *et al.* Carbon dioxide flux on the water-air interface of the eight lakes in China in winter. *Ecology and Environmental Sciences*, 2006, (4): 665-669. [陈永根, 李香华, 胡志新等. 中国八大湖泊冬季水-气界面 CO₂ 通量. 生态环境, 2006, (4): 665-669.]
- [23] Ji XY, Cui GB, Yang LY *et al.* Measurement of the CO₂ flux on the water-air interface of Taihu Lake. *Environmental Science*, 2006, **27**(8): 1479-1486. DOI: 10.13227/j.hjxx.2006.08.002. [嵇晓燕, 崔广柏, 杨龙元等. 太湖水-气界面 CO₂ 交换通量观测研究. 环境科学, 2006, **27**(8): 1479-1486.]
- [24] Jia L, Pu YN, Yang SJ *et al.* Analysis of greenhouse gas emission characteristics and their influencing factors in the algae zone of Lake Taihu. *Environmental Science*, 2018, **39**(5): 2316-2329. DOI: 10.13227/j.hjxx.201708123. [贾磊, 蒲旖旎, 杨诗俊等. 太湖藻型湖区 CH₄、CO₂ 排放特征及其影响因素分析. 环境科学, 2018, **39**(5): 2316-2329.]
- [25] Wang HX, Zhang L, Yao XL *et al.* Dissolved nitrous oxide and emission relating to denitrification across the Poyang Lake aquatic continuum. *Journal of Environmental Sciences*, 2017, **52**: 130-140. DOI: 10.1016/j.jes.2016.03.021.
- [26] Lin PL, Du ZH, Wang L *et al.* Hotspots of riverine greenhouse gas (CH₄, CO₂, N₂O) emissions from Qinghai Lake Basin on the northeast Tibetan Plateau. *Science of the Total Environment*, 2023, **857**: 159373. DOI: 10.1016/j.scitotenv.2022.159373.
- [27] Chen H, Wang M, Wu N *et al.* Nitrous oxide fluxes from the littoral zone of a lake on the Qinghai-Tibetan Plateau. *Environmental Monitoring and Assessment*, 2011, **182**(1/2/3/4): 545-553. DOI: 10.1007/s10661-011-1896-y.
- [28] 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.]
- [29] Wang HJ, Wang WD, Lu JW *et al.* N₂O emissions from the littoral zone. *Ecology and Environmental Sciences*, 2006, (2): 270-275. [王洪君, 王为东, 卢金伟等. 湖滨带温室气体氧化亚氮(N₂O)排放研究. 生态环境, 2006, (2): 270-275.]
- [30] Li QQ, Wang F, Yu QB *et al.* Dominance of nitrous oxide production by nitrification and denitrification in the shallow Chaohu Lake, Eastern China; Insight from isotopic characteristics of dissolved nitrous oxide. *Environmental Pollution*, 2019, **255**: 113212. DOI: 10.1016/j.envpol.2019.113212.
- [31] Yang LB, Wang F, Yan WJ. N₂O flux across sediments-water interface and its contribution to dissolved N₂O in the Chao Lake Tributaries, China. *Journal of Agro-Environment Science*, 2013, **32**(4): 771-777. DOI: 10.11654/jaes.2013.04.017. [杨丽标, 王芳, 晏维金. 巢湖流域河流沉积物 N₂O 释放对水体溶存 N₂O 贡献研究. 农业环境科学学报, 2013, **32**(4): 771-777.]
- [32] 蔡林颖. 巢湖流域不同污染类型河流 N₂O 溶存浓度及释放通量研究[学位论文]. 保定: 河北农业大学, 2014.
- [33] Wang SH, Jiang X, Jin XC. Classification and pollution characteristic analysis for inflow rivers of Chaohu Lake. *Environmental Science*, 2011, **32**(10): 2834-2839. DOI: 10.13227/j.hjxx.2011.10.024. [王书航, 姜霞, 金相旭. 巢湖入湖河流分类及污染特征分析. 环境科学, 2011, **32**(10): 2834-2839.]
- [34] 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.
- [35] Song CC, Wang YY, Wang YS *et al.* Dynamics of CO₂, CH₄ and N₂O emission fluxes from mires during freezing and thawing season. *Environmental Science*, 2005, **26**(4): 7-12. [宋长春, 王毅勇, 王跃思等. 季节性冻融期沼泽湿地 CO₂、CH₄ 和 N₂O 排放动态. 环境科学, 2005, **26**(4): 7-12.]
- [36] Smith VH. Low nitrogen to phosphorus ratios favor dominance by blue-green algae inlake phytoplankton. *Science*, 1983, **221**(4611): 669-671. DOI: 10.1126/science.221.4611.669.
- [37] Fleur AE, Roland. Emission and oxidation of methane in a meromictic, eutrophic and temperate lake (Dendre, Belgium). *Chemosphere*,

- 2017, **168**: 756-764. DOI: 10.1016/j.chemosphere.2016.10.138.
- [38] Beaulieu JJ, Shuster WD, Rebolz JA. Nitrous oxide emissions from a large, impounded river: The Ohio River. *Environmental Science & Technology*, 2010, **44**(19): 7527-7533. DOI: 10.1021/es1016735.
- [39] Han Y, Zheng YF, Wu RJ *et al.* Nitrous oxide flux at the water-air interface of the rivers in Nanjing during summer. *Environmental Science*, 2014, **35**(1): 348-355. DOI: 10.13227/j.hjkk.2014.01.072. [韩洋, 郑有飞, 吴荣军等. 南京河流夏季水-气界面 N₂O 排放通量. 环境科学, 2014, **35**(1): 348-355.]
- [40] 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.
- [41] Liu J, Yang XD, Wang SM. Study on the nutrient evolution and its controlling factors of Longgan Lake for the last 200 years. *Science in China Series D*, 2006, **49**(1): 193-202. DOI: 10.1007/s11430-006-8119-3. [刘健, 羊向东, 王苏民. 近两百年来龙感湖营养演化及其控制因子研究. 中国科学(D辑:地球科学), 2006, **49**(1): 193-202.]
- [42] Qi TC, Xiao QT, Miao YQ *et al.* Temporal and spatial variation of carbon dioxide concentration and its exchange fluxes in Lake Chaohu. *J Lake Sci*, 2019, **31**(3): 766-778. DOI: 10.18307/2019.0315. [齐天赐, 肖启涛, 苗雨青等. 巢湖水体二氧化碳浓度时空分布特征及其水-气交换通量. 湖泊科学, 2019, **31**(3): 766-778.]
- [43] Watson SB, Miller C, Arhonditsis G *et al.* The re-eutrophication of Lake Erie: Harmful algal blooms and hypoxia. *Harmful Algae*, 2016, **56**: 44-66. DOI: 10.1016/j.hal.2016.04.010.
- [44] Ueda S, Go CSU, Yoshioka T *et al.* Dynamics of dissolved O₂, CO₂, CH₄, and N₂O in a tropical coastal swamp in southern Thailand. *Biogeochemistry*, 2000, **49**(3): 191-215. DOI: 10.1023/A: 1006393214432.
- [45] Xu HX, Jiang XY, Yao XL *et al.* Characteristics of nitrous oxide (N₂O) 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.]
- [46] Silvennoinen H, Liikanen A, Torssonen J *et al.* Denitrification and N₂O effluxes in the Bothnian Bay (northern Baltic Sea) river sediments as affected by temperature under different oxygen concentrations. *Biogeochemistry*, 2008, **88**(1): 63-72. DOI: 10.1007/s10533-008-9194-7.
- [47] Hemond HF, Duran AP. Fluxes of N₂O at the sediment-water and water-atmosphere boundaries of a nitrogen-rich river. *Water Resources Research*, 1989, **25**(5): 839-846. DOI: 10.1029/wr025i005p00839.
- [48] Wang FY, Tessier A, Hare L. Oxygen measurements in the burrows of freshwater insects. *Freshwater Biology*, 2001, **46**(3): 317-327. DOI: 10.1046/j.1365-2427.2001.00678.x.
- [49] 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.
- [50] Lin H, Zhou G, Li XG *et al.* Greenhouse gases emissions from pond culture ecosystem of Chinese mitten crab and their comprehensive global warming potentials in summer. *Journal of Fisheries of China*, 2013, **37**(3): 417-424. DOI: 10.3724/SP.J.1231.2013.38282. [林海, 周刚, 李旭光等. 夏季池塘养殖中华绒螯蟹生态系统温室气体排放及综合增温潜势. 水产学报, 2013, **37**(3): 417-424.]
- [51] Haung YZ, Feng ZW, Zhang FZ. Study on loss of nitrogen fertilizer from agricultural fields and countermeasure. *Journal of the Graduate School Academia Sinica*, 2000, (2): 49-58. [黄益宗, 冯宗炜, 张福珠. 农田氮损失及其阻控对策研究. 中国科学院研究生院学报, 2000, (2): 49-58.]
- [52] Mitsch WJ, Reeder BC. Modelling nutrient retention of a freshwater coastal wetland: Estimating the roles of primary productivity, sedimentation, resuspension and hydrology. *Ecological Modelling*, 1991, **54**(3/4): 151-187. DOI: 10.1016/0304-3800(91)90075-C.
- [53] Wang Q, Liu M, Hou LJ *et al.* Characteristic sand influencing factors of CO₂, CH₄ and N₂O emissions from Chongming eastern tidal flat wetland. *Geographical Research*, 2010, **29**(5): 935-946. DOI: 10.11821/yj2010050018. [汪青, 刘敏, 侯立军等. 崇明东滩湿地 CO₂、CH₄和 N₂O 排放的时空差异. 地理研究, 2010, **29**(5): 935-946.]
- [54] Wang HJ, Lu JW, Wang WD *et al.* Methane fluxes from the littoral zone of hypereutrophic Taihu Lake, China. *Journal of Geophysical Research*, 2006, **111**(D17): D17109. DOI: 10.1029/2005jd006864.
- [55] Yan XC, Xu XG, Wang MY *et al.* Climate warming and cyanobacteria blooms: Looks at their relationships from a new perspective. *Water Research*, 2017, **125**: 449-457. DOI: 10.1016/j.watres.2017.09.008.
- [56] Liu S, Kong FX, Cai YF *et al.* Nitrogen stable isotope study on nitrate nitrogen pollution of four inflowing rivers of Lake Chaohu. *J Lake Sci*, 2012, **24**(6): 952-956. DOI: 10.18307/2012.0619. [刘姝, 孔繁翔, 蔡元锋等. 巢湖四条入湖河流硝态氮污染来源的氮稳定同位素解析. 湖泊科学, 2012, **24**(6): 952-956.]