

一种气泡释放过程连续监测方法及其在三峡水库香溪河 CH₄ 通量监测的应用*

陈思祥^{1,2}, 杨正健^{1,2**}, 王从锋^{1,2}, 魏辰宇^{1,2}, 刘德富^{2,3}

(1: 三峡大学水利与环境学院, 宜昌 443002)

(2: 三峡大学三峡水库生态系统湖北省野外科学观测研究站, 宜昌 443002)

(3: 湖北工业大学河湖生态修复及藻类利用湖北省重点实验室, 武汉 430068)

摘要: 气泡释放是天然水体释放 CH₄ 的主要途径之一, 准确量化水体气泡释放量对于辨析其“汇、源”特性至关重要。自然水体释放气泡的不连续性、不确定性使得监测其过程较为困难。本研究针对水体气泡释放监测难题, 通过改进倒置漏斗型气泡通量监测装置提出了一种气泡释放过程连续监测方法。本方法测量对象为定长时间监测水域释放气泡的体积, 经室内外实验验证, 其理论量程为 3.6~132 mL/(m²·min), 测量结果能够较好的表征 10~40 m 水深缓流水体气泡体积通量变化特征。运用该方法于 2021 年 6—11 月对三峡水库支流香溪河库湾开展 CH₄ 气泡通量连续监测, 并分析不同环境因子对其产生的影响。结果表明: 监测期间, 研究水域 CH₄ 气泡通量变化范围为 0.02~8.13 mg/(m²·d), 且各采样点间 CH₄ 气泡通量呈现较高的时空变异性; CH₄ 气泡通量与水温、水体 pH 呈显著正相关关系, 与水深及水体电导率呈显著负相关关系。其中, 水深可能是决定水体是否通过气泡形式释放 CH₄ 的重要影响因素, 水深超过 38.35 m 后水体可能不再通过气泡形式释放 CH₄。然而, 这一水深阈值是否同样适用于三峡水库其它支流还需要更多实验验证。本研究对于揭示三峡水库典型支流气泡态 CH₄ 排放过程具有重要意义。

关键词: 气泡释放; 监测方法; 三峡水库; 香溪河库湾; CH₄ 气泡通量

A method for continuous monitoring of the ebullition process and application to methane flux variations in Xiangxi Bay, Three Gorges Reservoir*

Chen Sixiang^{1,2}, Yang Zhengjian^{1,2**}, Wang Congfeng^{1,2}, Wei Chenyu^{1,2} & Liu Defu^{2,3}

(1: *College of Hydraulic & Environmental Engineering, China Three Gorges University, Yichang 443002, P.R.China*)

(2: *Three Gorges Reservoir Ecosystem Field Scientific Observation and Research Station, China Three Gorges University, Yichang 443002, P.R.China*)

(3: *Key Laboratory of Ecological Remediation of Lakes and Rivers and Algal Utilization of Hubei Province, Hubei University of Technology, Wuhan 430068, P.R.China*)

Abstract: Ebullition is one of the main pathways for the release of CH₄ from natural water bodies. It is important to accurately quantify the amount of ebullition in water bodies in order to distinguish between their ‘sink’ and ‘source’ characteristics. However, the discontinuity and uncertainty of ebullition in natural waters make it difficult to monitor the process. To meet the challenge of ebullition monitoring, a method for continuous monitoring of the ebullition process has been proposed by improving the inverted funnel bubble flux monitor. The measurement object of this method is the volume of bubbles released in the monitored water area during a fixed period of time. The theoretical range of this method is 3.6–132 mL/(m²·min) through indoor and outdoor experiments, and the measurement results can better characterize the variation characteristics of ebullitive flux in the slow-flowing water body with the depth of 10–40 m. This method was applied to continuously monitor methane ebullitive flux in Xiangxi Bay, Three Gorges Reservoir, and the influences of various environmental factors on methane ebullitive flux were analyzed. The results showed that during

* 2022-11-21 收稿; 2023-03-11 收修改稿。

国家自然科学基金项目(52079075)资助。

** 通信作者; E-mail: 656637841@qq.com。

the measurement period, the variation range of methane ebullitive flux was 0.02–8.13 mg/(m²·d), and the ebullitive flux between sampling points showed high spatial-temporal variability. The ebullitive flux was positively correlated with water temperature and pH, and negatively correlated with water depth and conductivity; moreover, water depth might be an important factor in determining whether CH₄ was released by ebullition; after the water depth exceeded 38.35 m, the ebullitive flux was below 0.38 mg/(m²·d). However, whether the threshold value (38.35 m) was applicable to other tributaries of the Three Gorges reservoir requires further experimental verification. This study is useful to reveal the emission process of CH₄ bubbles in typical tributaries of the Three Gorges Reservoir.

Keywords: Ebullition; monitoring method; Three Gorges Reservoir; Xiangxi bay; methane ebullitive flux

甲烷(Methane, CH₄)是引起全球变暖的重要温室气体之一,在百年尺度上其分子增温潜势是二氧化碳(CO₂)的28~34倍^[1]。湖库淡水水域是重要的CH₄自然排放源^[2]。其面积仅占全球陆地面积的3.7%^[3],CH₄排放量却高达67 Tg C/a(按其增温潜势为CO₂的34倍折算,相当于828.4 Tg C/a的碳排放)^[4],可抵消近27%的全球生态系统年净吸收碳量^[5]。自然水体中,CH₄传输的主要方式为扩散、气泡释放、植物运输^[6-9]。其中,气泡释放是湖库排放CH₄的重要方式^[10-11]。近期研究表明,热带及亚热带浅水湖库中,以气泡形式释放的CH₄可占其释放总量的约10%~86%^[12]。因此,研究湖库气泡态CH₄排放对于估算未来全球陆地CH₄的收支具有重要意义。

湖库中形成于水底的CH₄等气体,在特定物化条件下形成气泡聚集于沉积物表面。这些气泡在适宜条件下(水位降低、水温升高等)脱附,做无规律运动移移至水面破裂,所携带CH₄释放至大气^[13]。气泡的形成、释放过程极其复杂,不仅受产气水域静水压力、水流速度、水温及风速等物理条件影响,亦与水体pH、沉积物有机质含量等化学条件密切相关^[14-15]。根据已有研究经验,水温较高、有机质含量丰富的浅层(10~40 m)缓流(<0.1 m/s)水域产泡几率较高^[16-17]。尽管如此,同相对均质的扩散过程相比,气泡的形成、释放具有极高的不确定性、不连续性及偶然性,致使湖库CH₄气泡释放通量表现出明显的时间、空间变异特性^[10-11]。

目前,湖库CH₄气泡释放通量通常采用倒置漏斗法、浮箱法进行监测^[18-19]。但这两种方法难以满足监测需求。浮箱法根据箱体内气体定长时间的变化斜率推求气体通量。但气泡的瞬时释放会对箱内稳定状态造成干扰,从而对其测量结果的准确性造成较大影响^[15]。由于浮箱法监测时长有限,在湖库中气泡释放的时间、空间未知的情况下,其结果可能无法反映气泡通量的变化特征。倒置漏斗法通过收集研究区域水体所产生的气泡,评估气泡通量水平^[7]。其结果仅反映监测时间内的气泡收集总量^[16],无法表征CH₄气泡通量的动态变化过程。现有监测手段存在的缺陷致使湖库气泡态CH₄释放通量的时空异质特性得到广泛讨论^[12-24],但有关其动态变化过程的研究相对较少^[10-11, 25-26]。

三峡水库蓄水以来,水库建设引起潜在的温室效应问题已成为国内研究热点^[27-29]。虽然现有研究已充分掌握了三峡库区的CH₄扩散通量及其变化规律^[27-28],但受制于监测手段的局限性,其气泡通量及变化规律仍不明确。针对已有监测手段在监测时长、数据准确性及监测频率等方面存在的缺陷,本研究基于倒置漏斗型气泡通量监测装置^[6, 27],结合红外对管测定技术^[30],拟设计一种适用于三峡水库支流水域的CH₄气泡通量连续监测方法。验证其可靠性后,基于该方法开展三峡支流香溪河库湾CH₄气泡通量监测,并同步监测环境因子。初步探讨香溪河库湾CH₄气泡通量变化特征并分析环境因子对其产生的影响。本研究旨在克服已有监测手段无法针对CH₄气泡通量进行高频次、长时间连续监测的难题,为研究三峡水库典型支流气泡态CH₄排放及其影响因素提供理论及技术支持。

1 材料与方法

1.1 装置设计及监测原理

1.1.1 装置设计 本装置外形与国际常用倒置漏斗状气泡收集装置^[6]类似(图1)。装置垂直布设于水下,漏斗顶部开口与气泡记录仪中的玻璃导管相连,导管顶端连接于集气瓶。气泡由漏斗底部进入,流经玻璃导管,最终进入集气瓶内。气泡记录仪中的红外光束收发器以固定频率发射光束脉冲,并根据水体和气泡在经过玻璃导管时对光束的吸收差异辨识并记录气泡信息,同时通过上下两个激光记录仪参数计算气泡

体积。

1.1.2 监测原理 计算气泡通量的具体步骤为:假设玻璃导管内,第 i 个气泡的顶端及底端通过第一个红外光线收发器的时间分别为 $t_{i,1}$ 及 $t'_{i,1}$,通过第二个光线收发器的时间分别为 $t_{i,2}$ 及 $t'_{i,2}$,单位均为 s;玻璃导管内径为 d (cm);两光线收发器间距离为 L (cm);倒置漏斗的底部横截面积为 S (m²)。则气泡在玻璃导管内的运动速度 ω_i (cm/s)可表征为:

$$\omega_i = \frac{L}{t_{i,2} - t_{i,1}} \text{ 或 } \omega_i = \frac{L}{t'_{i,2} - t'_{i,1}} \quad (1)$$

为提高精度,气泡通过两光束收发器的速度及时间取平均值,则该气泡体积 V_i (mL)可表示为:

$$V_i = \frac{\pi d^2}{16} \cdot \left[\frac{L}{(t_{i,2} - t_{i,1})} + \frac{L}{(t'_{i,2} - t'_{i,1})} \right] \cdot (t'_{i,2} - t_{i,2} + t'_{i,1} - t_{i,1}) \quad (2)$$

在时间 T 内探测到的气泡数目为 n ,则该时间内区域气泡体积通量 F_{bubble} (mL/(m²·d))可表示为:

$$F_{\text{bubble}} = \frac{\sum_{i=1}^n V_i}{T \cdot S} \quad (3)$$

气泡流经玻璃导管,最终汇聚于顶部集气瓶内,定期测定收集气泡中的 CH₄ 浓度 C_{methane} (mg/m³),则监测区域内 CH₄ 气泡通量 F_{methane} (mg/(m²·d))为:

$$F_{\text{methane}} = \frac{C_{\text{methane}} \cdot F_{\text{bubble}}}{1000000} \quad (4)$$

1.2 实验设计

1.2.1 室内验证实验 1) 不同玻璃导管内径筛选实验:式(2)表明,玻璃导管内径 d 的大小对测量气泡体积产生影响。故针对装配不同玻璃导管(内径 $d=3、4、5、6$ mm)的装置进行可靠性测试。利用魏辰宇等开发的产泡泵^[31]在定长时间内以一定产泡速率(装置时间精度为秒,故设置为每秒一个气泡)向每组装置输送等大气泡。按 0.6~6 mL/min 组间距 0.6 mL/min、6~60 mL/min 组间距 6 mL/min 分 19 组进行实验,每组实验重复 25 次,每次时长 1 min,实验示意图见图 2。对比不同装置测量结果的可靠性及稳定性,确定最优导管内径。

2) 装置检出限测定实验:确定最优玻璃导管内径后,探究装置在定长时间内监测气泡体积的上、下限。实验步骤同上,产泡速率设置为 60、66 mL/min……直至装置测定结果可靠度无法满足监测需求,每组实验重复 25 次,结合上述实验结果确定装置的检出限。

1.2.2 野外研究区域与监测方案 香溪河是三峡水库湖北库区的最大支流,干流长 94 km,随坝前水位抬升在距离河口 32 km 范围内形成回水区。河流流向自北向南,在秭归香溪汇入长江干流,河口距三峡大坝 34.5 km。三峡水库生态系统湖北省野外科学观测研究站于香溪河中段峡口镇附近架设水上平台(图 3)。三峡库区蓄水前该平台所处水域淹没区为大面积农用耕地,有机质含量较高。其水深大致变化范围为 10~40 m,流速极小(<0.1 m/s)^[32]。且在前期观测发现,自 2 月开始平台附近水域时常发生气泡释放现象。综合考察后决定于平台附近开展气泡监测,监测时间为 2020 年 6—11 月及 2021 年 6—11 月。

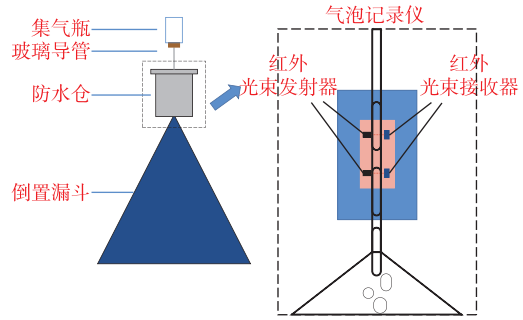


图 1 定点气泡监测装置整体示意
Fig.1 Sketch of bubbles detector in situ

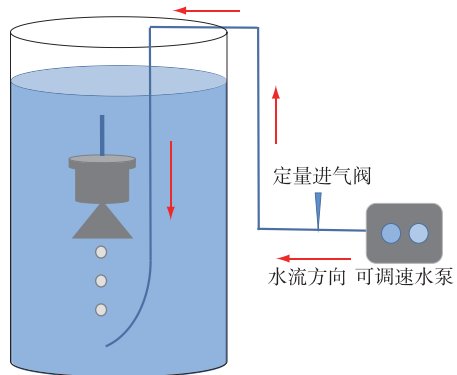


图 2 不同内径玻璃导管筛选实验示意
Fig.2 Sketch of screening experiment for glass catheter with different inner diameters



图3 实验平台位置

Fig.3 The location of platform

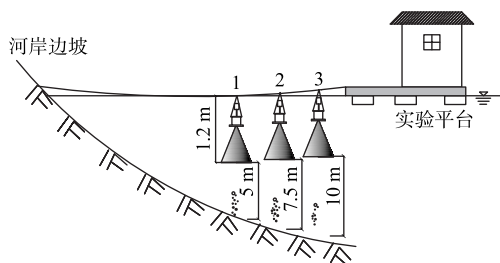


图4 各采样点装置布置示意

Fig.4 Sketch of bubble detector
in situ at each sampling site

2020年6—11月,为验证装置野外实测性能,开展原位监测实验。将3组装置固定于实验平台附近水域,其倒置漏斗部分敞口直径800 mm、高1000 mm,顶部集气瓶容量为1 L,敞口放置处水深1.2 m。监测期间,每日记录倒置漏斗法(顶部集气瓶中气泡体积)测定的气泡体积通量,并与本方法测量结果进行对比分析,以确定装置野外实测数据的可靠性。

完成数据可靠度测试后,于2021年6—11月在相同点位开展 CH_4 气泡通量连续监测。河岸与实验平台间固定有一锚绳,将3组监测装置由浅至深栓于锚绳下方。监测初期,装置1*、2*、3*(下文统称为采样点1*、2*、3*)垂向断面水深分别约为5、7.5、10 m(图4)。因研究区域水深受水库运行影响陡落陡涨,故每月初调整3个采样点水平位置,确保其所在处水深自近岸处往实验平台依次递增。监测期间,每间隔1天使用手持风速仪(pH-HB-CJ2,中国)记录水面风速(WS),同时利用EXO2多参数水质分析仪(YSI,美国)监测实验平台垂向断面水温(WT)、溶解氧浓度(DO)、电导率(EC)及水体pH等水环境因子。水深(Depth)数据则由实验平台垂向断面底部放置的HOBO水位计(U20L-1,美国)记录。此外,每月下旬将各采样点收集气泡快速转移至铝箔气袋内,48 h内使用Picarro温室气体分析仪(model:G4301)分析测定 CH_4 浓度。综合每日气泡体积通量及收集气泡中的 CH_4 浓度通过式(4)计算每日 CH_4 气泡通量。

2 结果与分析

2.1 装置可靠度验证实验分析

2.1.1 不同内径玻璃导管筛选实验分析 实验结果见图5,横坐标为产泡速率 V_a ,纵坐标为1 min内装置监测到的气泡体积 V_m 。图5a表明,导管内径为3 mm的

装置在产泡速率小于1.2 mL/min及大于24 mL/min时,监测数据明显偏离拟合曲线,且各组数据离散系数 C_v 值均大于0.15;配备4 mm内径导管的装置,其 V_a-V_m 线性回归方程为 $y = 0.9983x + 0.00187$ ($R^2 = 0.99903$),斜率最接近于1,且相关系数最大。同时仅在产泡速率低于1.2 mL/min时 C_v 值大于0.15(图5b);而配备5 mm、6 mm内径导管的装置分别在产泡速率低于3 mL/min、5.4 mL/min时,监测数据稳定性、准确性较低(图5c、5d)。综上可知,装置配备 $d=4$ mm的导管时,其对于产泡速率处于0.6~60 mL/min范围内的气泡监测性能最佳。故最优玻璃导管内径 $d=4$ mm。

2.1.2 装置检出限测定实验分析 选定最优玻璃导管内径 $d=4$ mm后,装配该导管的检出限测定结果见图6。结果表明,产泡速率高于66 mL/min后各组数据明显偏离1:1标准直线,且 C_v 值均超过0.15。则装置的检测上限为66 mL/min。而前述结果表明,装置检测下限为1.8 mL/min。结合漏斗面积,可计算得出装置对于水体气泡体积通量的理论量程为3.6~132 mL/($\text{m}^2 \cdot \text{min}$)。

在产泡速率为1.8 mL/min情况下,产泡泵每秒向装置输送单个体积为0.03 mL的气泡,其直径为3.8 mm。而装置依式(2)计算气泡体积,将玻璃导管内径视作气泡直径。实际气泡直径小于玻璃导管内径时,监测结果偏大,且其在导管内作横移、螺旋等不规则运动对于监测结果产生影响(图5b)。而在产泡速率高

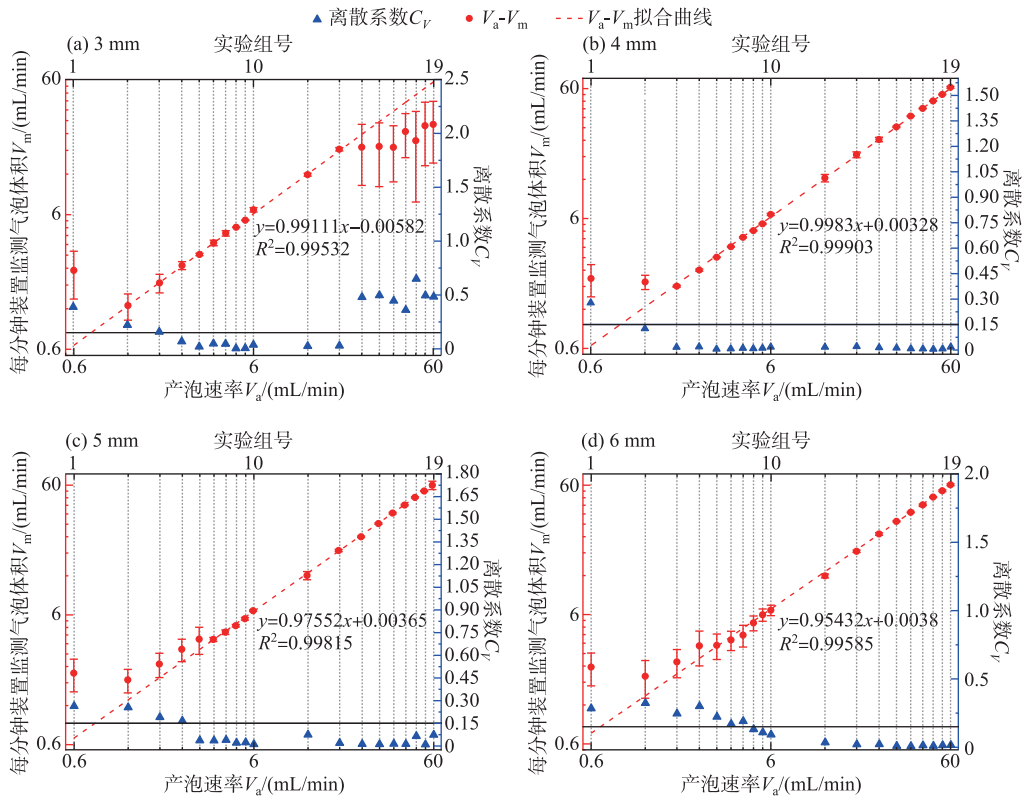


图5 配备不同内径导管时装置在不同产泡速率情况下测量结果的对照分析
 Fig.5 Comparison and analysis of device different inner catheters measurement results under different bubble production rates (with different inner catheters)

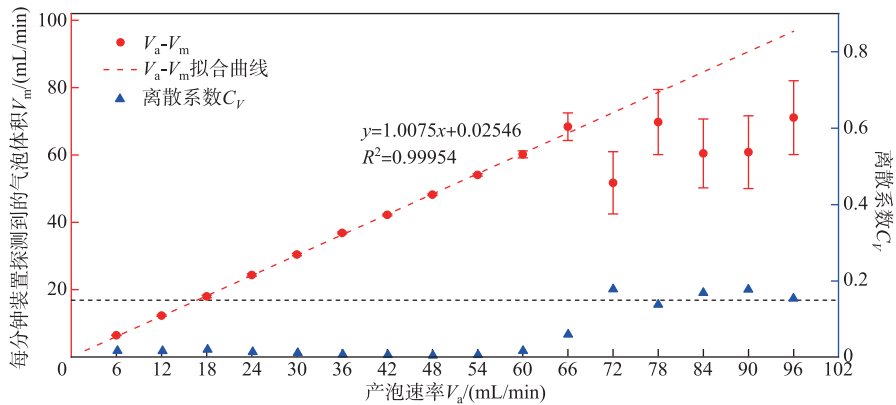


图6 装配4 mm内径导管装置检出限测定实验结果分析
 Fig.6 Analysis figure of test results of detection limit measurement for bubble detector with 4 mm inner catheter

于66 mL/min时,单个气泡体积超过1.1 mL。其直径(≥ 15.5 mm)远超玻璃导管内径(4 mm),在进入玻璃导管的过程中可能发生了破裂形成多个气泡,导致监测结果准确性、稳定性较低。但已有研究表明,10~40 m水深的缓流水域所产生的气泡体积主要分布于0~0.4 mL间^[31,33-34],故本方法测量结果能够满足后续监测需求。

2.1.3 野外实测数据可靠度分析 2020年6—11月期间,本方法与倒置漏斗法测得的每日气泡体积对比分析结果表明,二者测量结果吻合度较高(图7a)。倒置漏斗法结果均值为 (6.83 ± 7.67) mL/($\text{m}^2 \cdot \text{d}$),本方法为 (6.75 ± 7.47) mL/($\text{m}^2 \cdot \text{d}$)。对二者数据序列进行配对样本检验,其差值为 (0.20 ± 0.41) mL/($\text{m}^2 \cdot \text{d}$),误差较小。但每日气泡收集体积超过 38.33 mL/($\text{m}^2 \cdot \text{d}$)后二者差值超过5%,表明该情况下本方法监测结果不再可靠(图7b)。而为期183 d的监测过程中,该情况仅占总体情况的3.8%,且两种方法测得的气泡体积总量差值不超过2.5%。表明本方法测量结果能较好的表征香溪河库湾气泡释放体积变化特征。

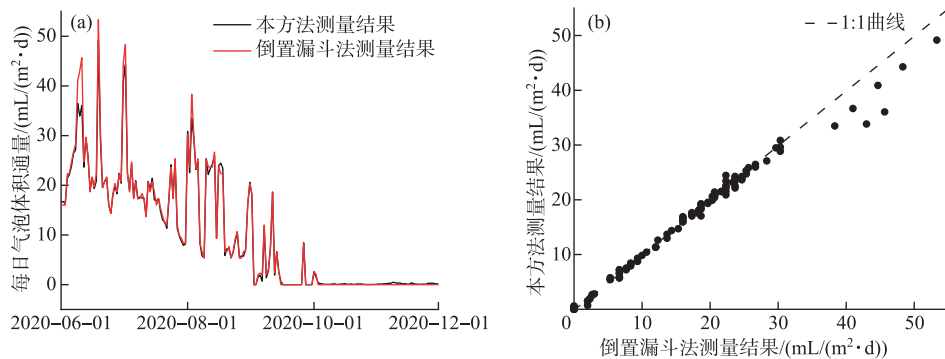


图7 2020年6月—2021年5月期间两种方法测得单日气泡体积通量逐日变化(a)和两方法测量结果同1:1标准直线对比(b)

Fig.7 Variation of daily ebullitive flux obtained by different methods during the research (a) and comparison of results obtained by two methods with 1:1 standard line (b)

2.2 香溪河库湾 CH_4 气泡通量监测分析

2.2.1 香溪河库湾 CH_4 气泡浓度及通量变化特征 研究期间,所收集气泡中 CH_4 浓度变化范围为 $144626.82 \sim 295406.64$ mg/m^3 ,变幅较大。各采样点 CH_4 浓度具有显著的时空变化特征。从逐月变化特征来看,6—8月 CH_4 浓度缓慢稳定上升,8月达到峰值,峰值期间浓度均超过 265302.07 mg/m^3 。9月开始, CH_4 浓度逐渐下降,至11月后降至 175134.06 mg/m^3 以下(图8)。

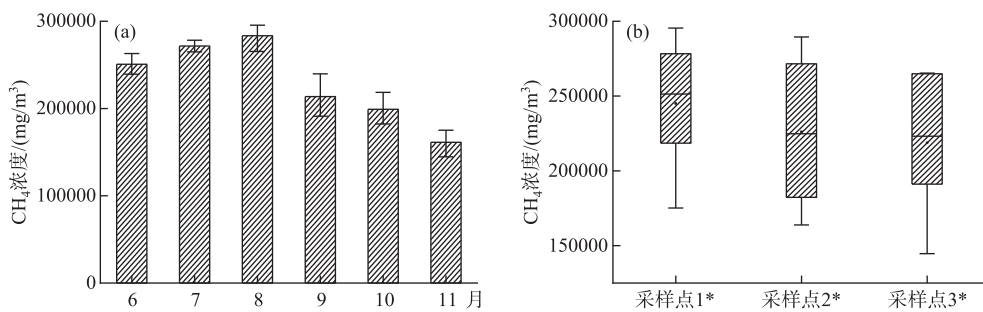


图8 研究期间采样点气泡 CH_4 浓度逐月变化和空间变化

Fig.8 Monthly and spatial changes of CH_4 concentrations in bubbles at each site during the research

根据2021年6—11月不同采样点收集气泡中的 CH_4 浓度,综合装置每日记录的气泡体积通量按式(4)估算得到的 CH_4 气泡通量结果见图9a,相应统计结果见表1。研究期间,各采样点 CH_4 气泡日通量均值为 (2.15 ± 2.01) $\text{mg}/(\text{m}^2 \cdot \text{d})$,变化范围为 $0.02 \sim 8.13$ $\text{mg}/(\text{m}^2 \cdot \text{d})$,最大值为 11.93 $\text{mg}/(\text{m}^2 \cdot \text{d})$ 出现于2021年8月10日的采样点1*。从空间变化特征来看,各采样点通量总体呈随水深增加逐渐降低的趋势。对各采样点数据序列进行单因素方差分析,其结果呈显著差异性($P=0.00 < 0.05$);从时间变化特征来看,不同样点气泡通量都展现出较大的变异性(图9a)。其变化特征同气泡中的 CH_4 浓度基本一致,总体呈下降趋势,6—8

月缓慢增长,出现峰值后迅速下降,11月基本归零(0.02~0.38 mg/(m²·d))(表1)。结果表明,香溪河库湾 CH₄ 气泡通量具有较高的时空异质特性,亦表明在该水域对其进行大范围、高频次连续监测的必要性。

表1 各采样点 CH₄ 气泡日通量(mg/(m²·d))逐月统计结果Tab.1 Monthly statistical results of methane ebullitive flux (mg/(m²·d) at each sampling site

月份	采样点1*		采样点2*		采样点3*		各采样点日通量均值	变化范围
	均值	变化范围	均值	变化范围	均值	变化范围		
6	4.81±1.29	3.06~7.77	3.33±1.08	1.61~5.47	2.75±1.10	1.21~5.13	3.63±1.06	2.34~5.83
7	4.71±2.18	1.74~9.90	3.24±1.70	0.85~7.97	2.19±1.54	0.04~5.34	3.38±1.51	1.42~6.99
8	6.22±2.70	1.50~11.93	3.82±2.65	0.14~9.19	2.71±1.43	0.30~5.83	4.25±2.12	0.79~8.13
9	1.38±0.59	0.64~2.76	0.79±0.57	0.00~2.33	0.49±0.35	0.00~1.46	0.89±0.30	0.34~1.37
10	0.63±0.47	0.00~1.81	0.43±0.41	0.00~1.37	0.55±0.37	0.01~1.46	0.54±0.20	0.05~0.85
11	0.10±0.12	0.00~0.31	0.21±0.19	0.00~0.70	0.07±0.09	0.00~0.36	0.14±0.11	0.02~0.38
全期	2.99±2.81	0.00~11.93	1.98±2.05	0.00~9.19	1.46±1.48	0.00~5.83	2.15±2.01	0.02~8.13

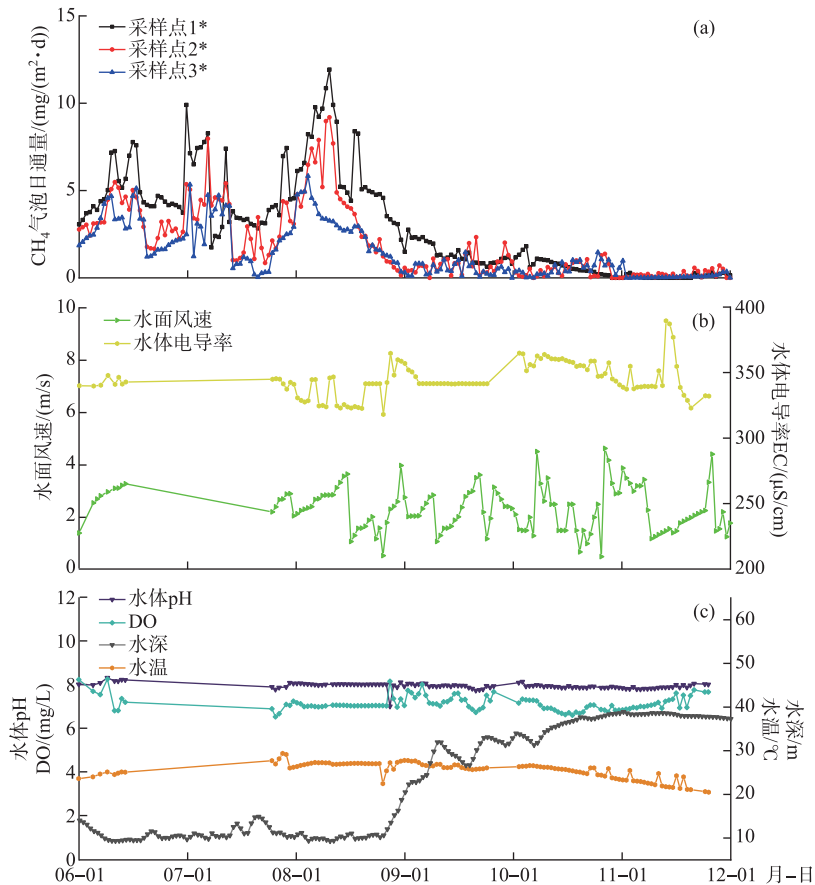
图9 不同采样点 CH₄ 气泡通量逐日变化(a);研究区域环境因子逐日变化(b,c)

Fig.9 Daily change of methane ebullitive flux at each sample site during the research(a); Daily variation of environmental factors inresearch area (b,c)

2.2.2 CH₄ 气泡通量与环境因子间的关系 2021年6—11月,研究区域不同环境因子变化见图9b、9c。对各

采样点 CH₄ 气泡通量均值与研究水域不同环境因子进行逐步回归分析, 结果表明: CH₄ 气泡通量主要受水温 (WT)、水体 pH、水体电导率 (EC) 和 水深 (Depth) 影响 ($P < 0.01$; 表 2)。进一步线性回归分析表明: CH₄ 气泡通量与 WT 和 水体 pH 呈正相关, 同 水体电导率与 水深 (Depth) 呈负相关 (图 10)。其中水深是影响气泡态 CH₄ 释放的关键因子。以上结果表明, 水深及 水体电导率的增加抑制了气泡态 CH₄ 的释放, 而 水体 pH 及 WT 的升高对 CH₄ 气泡释放具有促进作用。

表 2 不同环境因子同 CH₄ 气泡通量间相关性分析结果

Tab.2 Correlation analysis between different environmental factors and methane ebullitive flux

		水面风速	EC	水深	水体 pH	WT	DO
CH ₄ 气泡通量	Pearson 相关系数	0.01	-0.47 **	-0.81 **	0.42 **	0.45 **	0.10
	P (双尾)	0.52	0.01	0	0	0	0.05

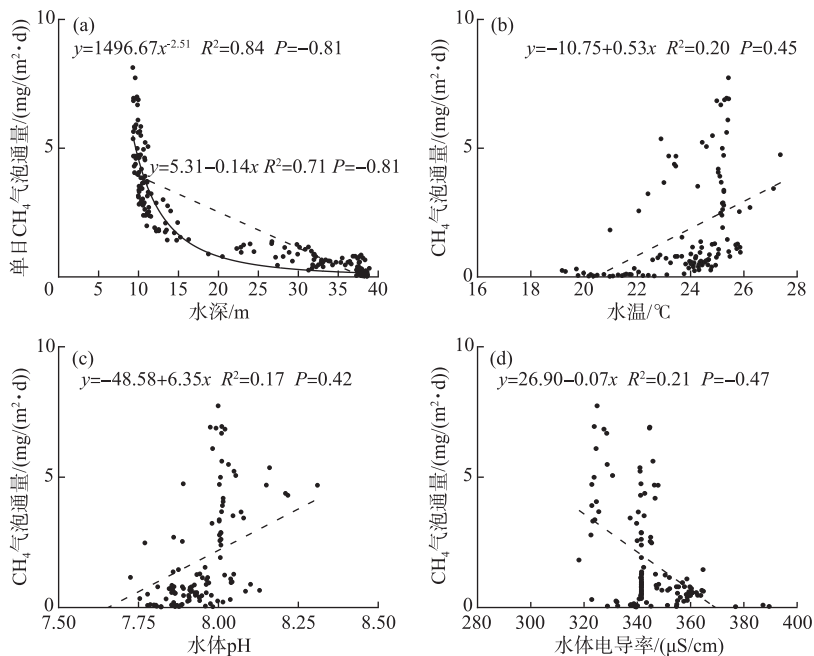


图 10 关键环境因子与 CH₄ 气泡通量之间的关系

Fig.10 Relationship between key environmental factors with methane ebullitive flux

3 讨论

3.1 相较于倒置漏斗法的优缺点及优化思路

2021 年 6—11 月监测结果表明, 香溪河库湾 CH₄ 气泡通量具有较高的时间变异性。倒置漏斗法结果仅反映其放置时间内水体气泡释放总量^[7], 在无人值守的情况下无法实现对研究区域内气泡通量的连续、高频次监测, 从而无法表征 CH₄ 气泡通量的连续变化特征。本方法所记录的气泡释放时间弥补了该缺陷 (图 9a)。但 2020 年 6—11 月的监测结果表明, 研究水域气泡体积通量高于 38.33 mL/(m²·d) 后本方法不再可靠。分析该情况下的气泡序列发现, 约 0.3% 的气泡体积测量结果作为异常值被剔除, 同时约有 0.5% 的气泡受制于时间精度 (s) 未被记录。出现这两种情况的原因可能为: (1) 气泡尺寸过大, 其破裂后形成的多个小气泡同时进入玻璃导管, 致使气泡记录仪报错; (2) 气泡释放速率超出本方法检测限过多, 致使部分气泡未被记录。针对这两种情况, 后期可能需要重新设计气泡记录仪使其包含微型摄像机, 将摄像法^[35]与本方法

结合使用,以记录多个气泡同时进入玻璃导管情况下的数据,减少气泡作为异常值被剔除的情况。此外,需要适当提高气泡记录仪中光束收发频率以提高装置的时间精度,从而增加装置的检出上限。

3.2 环境因子对气泡态 CH₄ 释放的影响

水深是影响自然水体中气泡态 CH₄ 释放的重要因素之一^[16]。已有研究表明,浅层缓流水体为气泡的形成、释放提供有利条件^[17],水深(静水压力)突变亦对该过程具有促进作用^[11]。同时,沉积物表面脱附的气泡在运移至水面的过程中会部分溶解至周围水体,其溶解比例与气泡尺寸呈负相关关系,与静水压力呈正相关关系^[23-24]。本研究中,水深与 CH₄ 气泡通量间的拟合曲线为 $y = 1496.67x^{-2.51}$ ($R^2 = 0.84, P = -0.81$) (图 10a)。气泡态 CH₄ 集中于 6—8 月释放(通量均值 (3.76 ± 1.65) mg/(m²·d)),变化范围 0.79~8.13 mg/(m²·d),期间水深变化范围为 6.82~18.01 m,在水深超过 38.35 m 后 CH₄ 气泡通量基本归零(通量范围为 0.02~0.33 mg/(m²·d)) (图 9a、9c)。表明香溪河库湾在水深高于 38.35 m 后可能不再通过气泡形式释放 CH₄。该现象产生的原因应为:(1)2021 年 6—8 月监测区域静水压力较低,水深受水库运行的影响陡涨陡落,为气泡的形成、释放提供了较好的条件;(2)水深超过 38.35 m 时静水压力较高,不利于沉积物表面气泡的形成。同时,其运移至水气界面过程中的溶解比例更高。因此,水深可能是决定水体是否以气泡形式释放 CH₄ 的关键因素之一。

本研究中 CH₄ 气泡通量还受到水温、水体 pH、水体电导率的影响。水温同样是影响 CH₄ 气泡释放的重要因素^[36-37]。水温升高会增加产甲烷菌的活性与 CH₄ 产生速率,降低水体 CH₄ 饱和浓度,从而促进气泡的形成^[38-39]。同时,水温低于阈值 11.7℃ 时,水体几乎不通过气泡形式释放 CH₄^[40]。但研究区域水温均值为 (23.84 ± 1.73) °C,变幅较小,且距离 11.7℃ 这一阈值尚远,故对 CH₄ 气泡通量的影响不太明显 ($R^2 = 0.20$) (图 10b);CH₄ 排放还受到产甲烷菌与甲烷氧化菌活性的影响,而产甲烷菌及甲烷氧化菌的活性与水体 pH 相关^[41],大部分产甲烷菌在 pH 值为 6~8 的环境中才能进行产甲烷活动^[42]。研究区域水体 pH 变化范围为 7.69~8.37,几乎处于 6~8 范围内且其变幅较小(图 9c)。因此,水体 pH 对气泡态 CH₄ 释放通量的影响较小 ($R^2 = 0.17$) (图 10c);水体电导率表征水体中电子受体的数量,电导率越高表明水体中的电子受体越多。电子受体会与产甲烷菌争夺电子,从而抑制 CH₄ 的产生^[43]。同时,水体电导率升高对水体中发生的反硝化型甲烷厌氧氧化反应具有促进作用^[44]。故水体电导率增加对气泡态 CH₄ 的释放具有抑制作用 ($R^2 = 0.21$) (图 10d)。

3.3 研究不确定性分析

室内实验仅验证本方法在测定释放速率一定的等大气泡时数据的稳定性及准确性。在野外验证过程中,仅通过倒置漏斗法的结果来验证本方法结果是否准确,对其具体量程及适用范围仅有基本的估计。后续仍需要进行大量的室内外实验对其普适性及数据准确性进行验证。CH₄ 气泡通量的监测过程中,CH₄ 浓度测定频率为每月一次。但气泡中 CH₄ 的浓度并非一成不变,在气泡收集过程中其重新溶解至水体亦会使结果产生偏差^[13]。因此,最终估算的 CH₄ 气泡通量可能存在一定误差。同时,由于香溪河库湾地形特征、沉积物底质和水体理化性质等诸多方面的非均质性^[45],其沿程不同断面的气体通量特征具有一定差异^[46-47],本文结果可能无法表征整个香溪河库湾的 CH₄ 气泡通量及其变化特征。此外,水深阈值(38.35 m)是否适用于三峡水库其它支流还需要更多实验验证。

4 结论

本研究以倒置漏斗型气泡监测装置为基础,构建了一种 CH₄ 气泡通量连续监测方法。基于该方法的验证实验结果及野外监测结果,得到以下几点结论:

1) 本方法测量对象为定长时间监测水域内的气泡体积通量(最高时间精度为秒)。其理论量程为 3.6~132 mL/(m²·d),实际测量上限为 38.33 mL/(m²·d),测量结果可较好的表征 10~40 m 缓流水体气泡释放通量变化特征。

2) 2021 年 6—11 月期间香溪河库湾 CH₄ 气泡释放通量为 (2.15 ± 2.01) mg/(m²·d),变化范围为 0.02~8.13 mg/(m²·d),不同采样点间气泡通量呈现较高的时空异质性。表明对湖库气泡态 CH₄ 释放过程进行大

范围、高频次连续监测的必要性。

3) 水体 pH、水温的升高促进气泡态 CH₄ 的释放, 而水深及水体电导率的升高对气泡态 CH₄ 的释放具有抑制作用。其中, 水深可能是决定水体是否以气泡形式释放 CH₄ 的重要因素之一。水深高于 38.35 m 时, 水体几乎不再以气泡形式释放 CH₄。

致谢: 徐刘德、刘毅、李亮、陈成等同志在采样、监测等方面给予了支持帮助, 在此一并致谢!

5 参考文献

- [1] IPCC. Climate change: Synthesis report. In: Team CW, Pachauri RK, Meyer LA eds. Contribution of Working Groups I, II and III to the Fifth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change. IPCC, Geneva, Switzerland, 2014; 151.
- [2] Tranvik LJ, Downing JA, Cotner JB *et al.* Lakes and reservoirs as regulators of carbon cycling and climate. *Limnology & Oceanography*, 2009, **54**(6-2): 2298-2314. DOI: 10.4319/lo.2009.54.6_part_2.2298.
- [3] Verpoorter C, Kutser T, Seekell DA *et al.* A global inventory of lakes based on high-resolution satellite imagery. *Geophysical Research Letters*, 2014, **41**(18): 6396-6402. DOI:10.1002/2014GL060641.
- [4] Deemer BR, Harrison JA, Li SY *et al.* Greenhouse gas emissions from reservoir water surfaces: A new global synthesis. *BioScience*, 2016, **66**(11): 949-964. DOI: 10.1093/biosci/biw117.
- [5] 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.
- [6] St Louis VL, Kelly CA, Duchemin E *et al.* Reservoir surfaces as sources of greenhouse gases to the atmosphere: A global estimate. *BioScience*, 2000, **50**(9): 766-775. DOI:10.1641/0006-3568(2000)050[0766:RSASOG]2.0.CO;2.
- [7] Keller M, Stallard RF. Methane emission by bubbling from Gatun Lake, Panama. *Journal of Geophysical Research*, 1994, **99**(D4): 8307. DOI: 10.1029/92jd02170.
- [8] Casper P, Maberly SC, Hall GH *et al.* Fluxes of methane and carbon dioxide from a small productive lake to the atmosphere. *Biogeochemistry*, 2000, **49**(1): 1-19. DOI: 10.1023/A: 1006269900174.
- [9] Kankaala P, Huotari J, Peltomaa E *et al.* Methanotrophic activity in relation to methane efflux and total heterotrophic bacterial production in a stratified, humic, boreal lake. *Limnology & Oceanography*, 2006, **51**(2): 1195-1204. DOI:10.4319/lo.2006.51.2.1195.
- [10] Walter KM, Zimov SA, Chanton JP *et al.* Methane bubbling from Siberian thaw lakes as a positive feedback to climate warming. *Nature*, 2006, **443**(7107): 71-75. DOI:10.1038/nature05040.
- [11] Liu L, Yang ZJ, Delwiche K *et al.* Spatial and temporal variability of methane emissions from cascading reservoirs in the Upper Mekong River. *Water Research*, 2020, **186**: 116319. DOI:10.1016/j.watres.2020.116319.
- [12] Santos MA, Matvienko B, Rosa LP *et al.* Gross greenhouse gas emissions from Brazilian hydro reservoirs. In: Tremblay A ed. Greenhouse gas emissions—fluxes and processes. Berlin: Springer-Verlag, 2005: 266-291. DOI: 10.1007/978-3-540-26643-3_12.
- [13] Li Z, Zhang C, Liu L *et al.* Ebullitive fluxes of CO₂ and CH₄ in Pengxi River, Three Gorges Reservoir. *J Lake Sci*, 2014, **26**(5): 789-798. DOI:10.18307/2014.0518. [李哲, 张呈, 刘靓等. 三峡水库澎溪河 CO₂、CH₄ 气泡释放通量初探. 湖泊科学, 2014, **26**(5): 789-798.]
- [14] Kelly CA, Rudd JWM, Bodaly RA *et al.* Increases in fluxes of greenhouse gases and methyl mercury following flooding of an experimental reservoir. *Environmental Science & Technology*, 1997, **31**(5): 1334-1344. DOI: 10.1021/es9604931.
- [15] Duchemin E, Lucotte M, Canuel R *et al.* Production of the greenhouse gases CH₄ and CO₂ by hydroelectric reservoirs of the boreal region. *Global Biogeochemical Cycles*, 1995, **9**(4): 529-540. DOI:10.1029/95GB02202.
- [16] 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): 1-12. DOI: 10.1029/2004GB002238.
- [17] Matvienko B, Sikar E, Pinguelli R *et al.* Gas release from a reservoir in the filling stage. *Verh Int Verein Limnol*, 2000, **27**: 1415-9. DOI: 10.1080/03680770.1998.11901469.
- [18] Delmas R, Galy-Lacaux C, Richard S. Emissions of greenhouse gases from the tropical hydroelectric reservoir of Petit Saut (French Guiana) compared with emissions from thermal alternatives. *Global Biogeochemical Cycles*, 2001, **15**(4): 993-1003. DOI: 10.1029/2000GB001330.
- [19] DelSontro T, Kunz MJ, Kempton T *et al.* Spatial heterogeneity of methane ebullition in a large tropical reservoir. *Environmental Science & Technology*, 2011, **45**(23): 9866-9873. DOI:10.1021/es2005545.
- [20] Ostrovsky I. Methane bubbles in Lake Kinneret: Quantification and temporal and spatial heterogeneity. *Limnology & Oceanography*, 2003, **48**: 1030-1036.
- [21] Varadharajan C, Hemond HF. Time-series analysis of high-resolution ebullitive fluxes from a stratified, freshwater lake. *Journal of Geophysical Research*, 2012, **117**: 2004. DOI:10.1029/2011jg001866.
- [22] McGinnis DF, Greinert J, Artemov Y *et al.* Fate of rising methane bubbles in stratified waters: How much methane reaches the atmosphere? *Journal of Geophysical Research*, 2006, **111**(C9): 1-15. DOI: 10.1029/2005JC003183.
- [23] DelSontro T, McGinnis DF, Wehrli B *et al.* Size does matter: Importance of large bubbles and small-scale hot spots for methane transport. *Environmental Science & Technology*, 2015, **49**(3): 1268-1276. DOI: 10.1021/es5054286.

- [24] Ostrovsky I, McGinnis DF, Lapidus L *et al.* Quantifying gas ebullition with echosounder; The role of methane transport by bubbles in a medium-sized lake. *Limnology & Oceanography Methods*, 2008, **6**(2): 105-118. DOI: 10.4319/lom.2008.6.105
- [25] Maeck A, Delsontro T, McGinnis DF *et al.* Sediment trapping by dams creates methane emission hot spots. *Environmental Science & Technology*, 2013, **47**(15): 8130-8137. DOI: 10.1021/es4003907.
- [26] Leifer I, Patro RK. The bubble mechanism for methane transport from the shallow sea bed to the surface; A review and sensitivity study. *Continental Shelf Research*, 2002, **22**(16): 2409-2928. DOI: 10.1016/S0278-4343(02)00065-1.
- [27] Zhao Y, Zeng Y, Wu BF *et al.* Observation on greenhouse gas emissions from Xiangxi River in Three Gorges Region. *Advances in Water Science*, 2011, **22**(4): 546-553. [赵炎, 曾源, 吴炳方等. 三峡水库香溪河支流水域温室气体排放通量观测. 水科学进展, 2011, **22**(4): 546-553.]
- [28] Wang L, Xiao SB, Liu DF *et al.* Fluxes of greenhouse gases from Xiangxi River in summer and their influencing factors. *Environmental Science*, 2012, **33**(5): 1471-1475. DOI: 10.13227/j.hjxx.2012.05.020. [王亮, 肖尚斌, 刘德富等. 香溪河库湾夏季温室气体通量及影响因素分析. 环境科学, 2012, **33**(5): 1471-1475.]
- [29] 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, **15**(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. 生态环境学报, 2006, **15**(4): 665-669.]
- [30] Li XM, Feng QK, Bi QC *et al.* Experimental study on undisturbed measurement of gas bubble rising velocity using infrared emitting diode and photodiode. *Journal of Xi'an Jiaotong University*, 2004, **38**(11): 1110-1113, 1118. [李小明, 冯全科, 毕勤成等. 利用红外对管进行无干扰气泡上升速度测量的实验研究. 西安交通大学学报, 2004, **38**(11): 1110-1113, 1118.]
- [31] 魏辰宇, 杨正健, 王从锋等. 基于声学探测方法的沉积物气泡释放通量研究: 一种新型的水下气泡产生装置. 中国水利学会 2021 学术年会会议论文集, 2021: 293-298.
- [32] Ji DB, Liu DF, Yang ZJ *et al.* Analysis of hydrodynamic characteristics of Xiangxi Bay in the Three Gorges Reservoir. *Science China Physics, Mechanics and Astronomy*, 2010, **40**(1): 101-112. [纪道斌, 刘德富, 杨正健等. 三峡水库香溪河库湾水动力特性分析. 中国科学: 物理学, 力学, 天文学, 2010, **40**(1): 101-112.]
- [33] Delwiche KB, Hemond HF. Methane bubble size distributions, flux, and dissolution in a freshwater lake. *Environmental Science & Technology*, 2017, **51**(23): 13733-13739. DOI: 10.1021/acs.est.7b04243.
- [34] Bussmann I, Damm E, Schluter M *et al.* Fate of methane bubbles released by pockmarks in Lake Constance. *Biogeochemistry*, 2013, **112**: 613-623. DOI: 10.1021/acs.est.7b04243.
- [35] Thoroddsen ST, Etoh TG, Takehara K. High-speed imaging of drops and bubbles. *Ann Rev Fluid Mech*, 2008, **40**: 257-285. DOI: 10.1007/s10533-012-9752-x.
- [36] Palma-Silva C, Marinho CC, Albertoni EF *et al.* Methane emissions in two small shallow neotropical lakes; The role of temperature and trophic level. *Atmospheric Environment*, 2013, **81**(12): 373-379. DOI: 10.1016/j.atmosenv.2013.09.029.
- [37] Room EI, Noges P, Feldmann T *et al.* Years are not brothers: Two-year comparison of greenhouse gas fluxes in large shallow Lake Võrtsjarv, Estonia. *Journal of Hydrology*, 2014, **519**: 1594-1606.
- [38] Delsontro T, Boutet L, St-Pierre A *et al.* Methane ebullition and diffusion from northern ponds and lakes regulated by the interaction between temperature and system productivity. *Limnology & Oceanography*, 2016, **61**(S1): S62-S77. DOI: 10.1002/lno.10335.
- [39] Borrel G, Jezequel D, Biderre-Petit C *et al.* Production and consumption of methane in freshwater lake ecosystems. *Research in Microbiology*, 2011, **162**(9): 832-847. DOI: 10.1016/j.resmic.2011.06.004.
- [40] Ren YJ, Deng ZM, Xie YH *et al.* Estimation of methane diffusion and ebullitive flux and water environmental controls during flooding period in Lake Dongting wetlands. *J Lake Sci*, 2019, **31**(4): 1075-1087. DOI: 10.18307/2019.0418. [任艺洁, 邓正苗, 谢永宏等. 洞庭湖湿地洪水期甲烷扩散和气泡排放通量估算及水环境影响分析. 湖泊科学, 2019, **31**(4): 1075-1087.]
- [41] Chen H, Zhou S, Wu N *et al.* Advance in studies on production, oxidation and emission flux of methane from wetlands. *Chinese Journal of Applied and Environmental Biology*, 2006, **12**(5): 726-733. [陈槐, 周舜, 吴宁等. 湿地甲烷的产生、氧化及排放通量研究进展. 应用与环境生物学报, 2006, **12**(5): 726-733.]
- [42] Yang SS, Chen IC, Ching-Pao L *et al.* Carbon dioxide and methane emissions from Tanswei River in northern Taiwan. *Atmospheric Pollution Research*, 2015, **6**(1): 52-61. DOI: 10.5094/APR.2015.007.
- [43] Schlesinger WH, Bernhardt ES. Biogeochemistry: An analysis of global change. *Quarterly Review of Biology*, 1997, **54**(4): 353-423. DOI: 10.1016/C2012-0-01654-7.
- [44] Tang Q, Xue XF, Wang H *et al.* New knowledge of methanogens and methanotrophs in lake ecosystems. *J Lake Sci*, 2018, **30**(3): 597-610. DOI: 10.18307/2018.0302. [唐千, 薛校风, 王惠等. 湖泊生态系统产甲烷与甲烷氧化微生物研究进展. 湖泊科学, 2018, **30**(3): 597-610.]
- [45] Zhao Y, Wu BF, Zeng Y. Spatial and temporal patterns of greenhouse gas emissions from Three Gorges Reservoir of China. *Biogeosciences*, 2013, **10**(2): 1219-1230. DOI: 10.5194/bg-10-1219-2013.
- [46] Chen H, Yuan XZ, Chen ZL *et al.* Methane emissions from the surface of the Three Gorges Reservoir. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 2011, **116**(D21). DOI: 10.1029/2011JD016244.
- [47] Yang L, Lu F, Wang XK *et al.* Spatial and seasonal variability of diffusive methane emissions from the Three Gorges Reservoir. *Journal of Geophysical Research: Biogeosciences*, 2013, **118**(2): 471-481. DOI: 10.1002/jgrg.20049.