

Impact de la variation du niveau d'eau d'un marais du lac Saint-Pierre (Québec, Canada) sur les concentrations et les flux d'hydrogène, monoxyde de carbone, méthane et dioxyde de carbone

Water level fluctuations of a Lake Saint-Pierre wetland's (Québec, Canada) and their impact on hydrogen, carbon monoxide, methane and carbon dioxide tropospheric concentrations and fluxes

P. CONSTANT^{1,2}, L. POISSANT^{1*}, R. VILLEMUR²

Reçu le 27 janvier 2004, accepté le 11 janvier 2005**.

SUMMARY

Wetlands are known for their great biodiversity and the important carbon reservoir that they represent. Moreover, in the global warming context, these ecosystems represent net sources or sinks for different greenhouse gases depending of their conditions. For instance, flooded conditions favour methane production whereas they prevent hydrogen and carbon monoxide soil consumption. Baie Saint-François is a freshwater wetland that opens onto Lake Saint-Pierre (St. Lawrence River) where water levels are subject to important fluctuations due to natural processes and human activities (hydroelectricity and navigation). This study was done in order to assess the impact of the Lake Saint-Pierre water level variations on the tropospheric methane, carbon monoxide, hydrogen and carbon dioxide dynamics over the wetland. Knowledge of these dynamics should provide indications about the possible effects of the decreasing or increasing water level associated with the global warming on the production or consumption of these trace gases.

Studies were carried out between June and August 2003 in Baie Saint-François where soil was subjected to successions of flooded and dry conditions. Water and carbon dioxide fluxes were obtained with a *Bowen ratio* micrometeorological station including a high frequency single infrared gas analyser. Hydrogen, carbon monoxide and methane fluxes were estimated with the modified Bowen method, their vertical concentration gradients

1. Section sur les processus atmosphériques des toxiques, Service météorologique du Canada, Environnement Canada, 105, rue McGill, 7^e étage, Montréal, Québec, Canada, H2Y 2E7.
2. Centre de recherche en Microbiologie Appliquée, INRS Institut Armand-Frappier, 531, boul. des Prairies, Laval, Québec, Canada, H7V 1B7.

* Correspondance: Laurier.Poissant@EC.GC.CA - Tél. : (514) 283-1140 - Fax. : (514) 283-8869.

** Les commentaires seront reçus jusqu'au 30 août 2006.

(1.5 m) were measured over the plant canopy. The *Bowen Ratio* station was equipped with different probes to measure parameters such as net radiations, soil heat fluxes and vertical temperature gradients. The turbulent transfer coefficient (k) obtained every 20 min was assumed equal for heat, water vapour and trace gases. Hence, fluxes calculations were done by the multiplication of the turbulent transfer coefficients with the vertical concentration gradients of hydrogen, carbon monoxide and methane.

The instrument used to detect hydrogen, carbon monoxide and methane was a RGA5. This analyser has two detectors: the reductive gas detector (RGD) for hydrogen and carbon monoxide and a flame ionisation detector (FID) for methane. The RGD contains an HgO bed wherein oxygen reacts with reductive gases resulting in Hg⁰ releases detectable by differential UV absorbance. Chemicals were detected continuously in 10 min cycles with an analytical reproducibility of ± 0.2 , 0.3 and 2% for hydrogen, carbon monoxide and methane. Generally, vertical concentration gradients measured were greater than these limits. A calibration gas containing hydrogen, carbon monoxide and methane at 4940, 1000 and 1000 ppbv respectively in nitrogen was analysed daily to verify calibration. To ensure data integrity, linearity of the instrument was assayed by several dilutions of the standard gas and the integration of the curves gave a correction factor for hydrogen (18%) and carbon monoxide (13%). An intercomparison with NOAA (*National Oceanic and Atmospheric Administration*) was done to corroborate these correction factors.

Background carbon monoxide, methane and carbon dioxide levels were in agreement with literature values. However, hydrogen was low, as observed by other investigators in summertime, since this season is related to minimal concentrations. Methane followed a diurnal cycle where maximum levels were observed during nighttime. In wet conditions, these nocturnal peaks reached occasionally 4000 ppbv and could be explained by specific production mechanisms and diurnal changes of vertical mixing in the boundary layer. Sensitivity of the processes responsible for methane and carbon monoxide cycling was seen between July 21st and 26th where a rain episode (total precipitation of 33.2 mm) increased their background concentrations. It seems that this precipitation was enough to favour methanogenesis and inhibit tropospheric carbon monoxide and methane consumptions by a reduction of the diffusion of these chemicals into the soil.

Our results demonstrated that four to eleven days following a variation of the Lake Saint-Pierre water level, a change in the tropospheric hydrogen, carbon monoxide and methane concentrations was observed. This lag might be explained by the distance between the lake and the research station (about 1.5 km) and the required time for the adaptation of soil microorganisms to the disruption of their environment. The concentration variations of these chemicals resulted from the inhibition of the processes responsible for their consumption or the activation of the processes accountable for their production.

In June, the wetland was flooded and the carbon dioxide median flux was $-56.5 \text{ g m}^{-2} \text{ d}^{-1}$. Fluxes increased significantly (Mann-Whitney, $\alpha = 0.01$) in July to $5.30 \text{ g m}^{-2} \text{ d}^{-1}$, possibly due to dry conditions. Indeed, absence of water favours the activity of soil aerobic microorganisms which might produce more carbon dioxide than the quantity used by plants during photosynthesis.

Methane was produced in June where the median flux was $54 \text{ mg m}^{-2} \text{ d}^{-1}$. These emissions were caused by the presence of water which maintained anaerobic conditions in the sediments, a suitable environment for methanogenic microorganisms. July was characterised by dry conditions, which generated aerobic environments in soils, an unfavourable microniche for methanogens. Therefore, methane median fluxes decreased significantly

(Mann-Whitney, $\alpha = 0.05$) to $0.011 \text{ mg m}^{-2} \text{ d}^{-1}$ in July. In August, before the end of the investigation period, water levels had increased but methane fluxes were not significantly higher than in July. Moreover, in this period, methane concentrations tended to increase, showing that after an augmentation of the Lake Saint-Pierre water level, Baie Saint-François flooding area could represent a methane source.

During summer 2003, Baie Saint-François acted as a net source of carbon monoxide. In June, the median flux was $21 \text{ } \mu\text{g m}^{-2} \text{ d}^{-1}$ due to presence of water which inhibited consumption by soil. Emissions were significantly (Mann-Whitney, $\alpha = 0.05$) lower in July ($15 \text{ } \mu\text{g m}^{-2} \text{ d}^{-1}$) due to the absence of water, which represented a suitable environment for micro-organisms consuming tropospheric carbon monoxide. In August, the median carbon monoxide flux attained $65 \text{ } \mu\text{g m}^{-2} \text{ d}^{-1}$ due to an increase of the Lake Saint-Pierre water level. Net carbon monoxide emissions observed in wet and dry conditions might be due to the high organic content in soil and water in addition to the presence of plants since all of these are subjected to photooxidation, generating this trace gas. Therefore, an increase of the Lake Saint-Pierre water level is associated with an augmentation of tropospheric carbon monoxide due to the inhibition of the processes responsible of its consumption.

A decline in the water level might result in the activation of the soil micro-organisms (or abiotic hydrogenases) able to consume tropospheric hydrogen. At the beginning of the campaign (June), the median hydrogen flux was weak ($-1.37 \text{ mg m}^{-2} \text{ d}^{-1}$) due to the presence of water. However, a net soil consumption was seen in July, where the median hydrogen flux decreased to $-125 \text{ mg m}^{-2} \text{ d}^{-1}$. The Lake Saint-Pierre water level increase observed in August was associated with a significant (Mann-Whitney, $\alpha = 0.05$) augmentation of the hydrogen median flux to $299 \text{ mg m}^{-2} \text{ d}^{-1}$. Consequently, a rise in the Lake Saint-Pierre water levels induced an inhibition of the processes responsible of the tropospheric hydrogen consumption.

This study illustrated that the water level fluctuations of the Lake Saint-Pierre have an impact on the hydrogen, carbon monoxide, methane and carbon dioxide dynamics over the surrounding wetlands. When the Lake Saint-Pierre water level decreased, the wetlands acted as a carbon monoxide and carbon dioxide source, but as a consumer of tropospheric hydrogen and a minor source of methane.

Keywords: *hydrogen, carbon monoxide, methane, carbon dioxide, wetland.*

RÉSUMÉ

Le but de la présente étude était d'étudier l'impact de la variation des niveaux d'eau d'un marais d'eau douce (Baie Saint-François, Québec) sur l'évolution des concentrations et des flux d'hydrogène, monoxyde de carbone, méthane et dioxyde de carbone. Une approche originale impliquant l'association d'un gradient de concentration de ces composés sur un profil vertical de 1,5 m au transfert de flux turbulent micrométéorologique fut utilisée pour la détermination des flux. L'étude démontre qu'une hausse du niveau d'eau d'un bassin versant alimentant une zone humide influence les flux de méthane, de monoxyde de carbone d'hydrogène et de dioxyde de carbone. En conditions submergées, le marais émettait du méthane et du monoxyde de carbone et consommait moins d'hydrogène troposphérique qu'en conditions sèches. Ainsi, cette étude démontre que des mesures *in situ* peuvent servir à inférer des scénarios d'impacts possibles des changements climatiques et des variations des niveaux d'eau sur les émissions des gaz à effets de serre dans l'écosystème du fleuve Saint-Laurent.

Mots clés : *hydrogène, monoxyde de carbone, méthane, dioxyde de carbone, marais.*

1 – INTRODUCTION

En plus de constituer des zones privilégiées pour l'habitat des poissons, batraciens et oiseaux aquatiques, les milieux humides jouent le rôle de réservoirs importants de carbone puisque leur sol recèle 20 % de la quantité totale de carbone organique de la biosphère (KUSLER, 1999). Comme 10 % des quelque 127 millions d'ha des terres humides au Canada se trouvent au Québec et qu'une portion non négligeable de ces écosystèmes est recensée le long du fleuve Saint-Laurent (HUDON, 1997), il est important et intéressant d'étudier ces milieux afin de nous renseigner sur les perspectives et scénarios des changements du climat.

En plus de la gestion du fleuve et son marnage dû à la régulation des niveaux d'eau pour des fonctions de navigation et de production électrique, ses fluctuations naturelles peuvent être d'excellents modulateurs permettant d'étudier leurs impacts sur la production de gaz à effet de serre des zones humides. Cette connaissance permettrait une transposition des impacts éventuels dans un contexte de changements climatiques et d'une baisse ou une hausse des niveaux d'eau associée escomptée selon les scénarios envisagés (MORTSCH et QUINN, 1996).

Il est connu que les changements du milieu ainsi que certains stress peuvent perturber les dynamiques biotiques et abiotiques des milieux humides. Par exemple, SVENSSON (1980) estimait que pour chaque degré Celsius d'augmentation, la production de dioxyde de carbone (CO_2) augmente de 12 %. Également, des interactions existant entre l'humidité disponible, la température et les flux de méthane (CH_4) présents dans les milieux humides ont fait l'objet d'études (e.g. CHANG et YANG, 2003) montrant que le flux de CH_4 est modérément sensible aux variations de température et très sensible aux changements d'humidité et au contenu du sol en carbone organique. Finalement, il fut démontré qu'un sol humide perd son rôle de consommateur d'hydrogène (H_2) et de monoxyde de carbone (CO) troposphériques (CONRAD et SEILER, 1985), phénomène qui pourrait être dû à la diminution de la diffusivité de ces composés dans le sol engendrée par la présence d'eau (YONEMURA *et al.*, 2000).

Cet article vise à déterminer l'impact des fluctuations du niveau d'eau du fleuve Saint-Laurent (lac Saint-Pierre) sur la réponse d'un marais fluvial aux gaz à effet de serre. Il sera démontré qu'un effet rebours est mesuré entre les changements du niveau d'eau du lac Saint-Pierre et la dynamique de certains gaz à effet de serre tels que l' H_2 , le CO , le CH_4 et le CO_2 dans les marécages avoisinants.

2 – MÉTHODOLOGIE

L'expérimentation s'est déroulée du début juin à la mi-août 2003 à la Baie Saint-François (46,10°N et 75,93°O ; Québec, Canada). Des mesures atmosphériques (météorologiques et micrométéorologiques), hydrologiques et chimiques ont été réalisées au cours de l'expérimentation telles que décrites ci-dessous.

2.1 Description du site

La Baie Saint-François (Québec, Canada) est un marais ouvert d'une superficie de 16 km² localisé au confluent des rivières Yamaska et Saint-François et au cœur de l'écosystème fluvial du Saint-Laurent, qui fait partie de la mosaïque de plus de 110 km² de terre humide du lac Saint-Pierre (figure 1).

Une station de mesure dédiée aux recherches sur les échanges et les processus atmosphériques de polluants atmosphériques y est installée (POISSANT *et al.*, 2004a). Cette station est pourvue d'instruments météorologiques, micro-météorologiques et d'analyseurs chimiques automatiques. De plus, le suivi du niveau d'eau du lac Saint-Pierre est réalisé continuellement depuis 1978 à la station 15930 (46,05°N; 73,12°O) par le Service d'Hydrologie du Canada. La Baie Saint-François constitue donc un endroit privilégié pour étudier l'impact de la variation du niveau d'eau du lac Saint-Pierre (fleuve Saint-Laurent) sur la dynamique des gaz à effet de serre d'un marais fluvial. En été 2000, la flore du site fut inventoriée et trois espèces principales furent observées : *Scirpus fluviatilis* (51-75 %), *Sagittaria latifolia* (11-25 %) et *Butomus umbellatus* (11-25 %) (POISSANT *et al.*, 2004b).

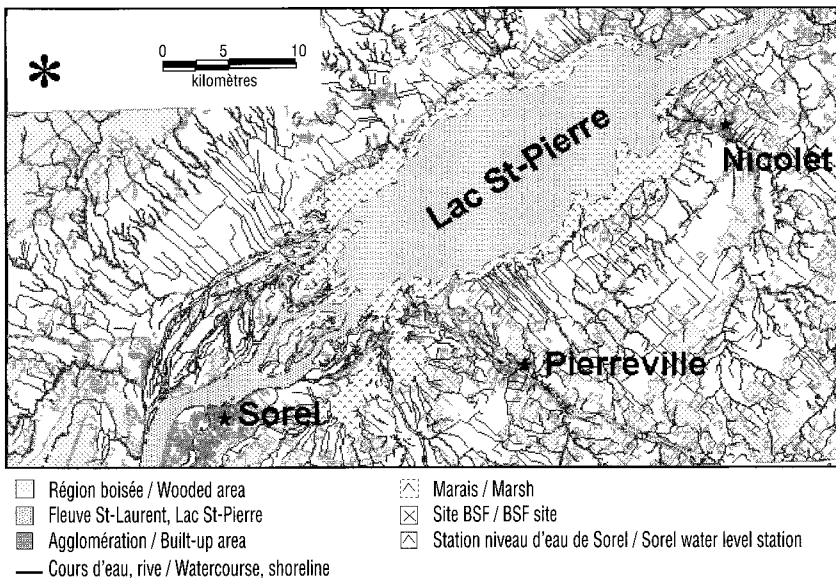


Figure 1 (A) Situation géographique de la Baie Saint-François par rapport au lac Saint-Pierre (Fleuve Saint-Laurent). La station satellitaire où ont été mesurés les flux des composés à l'étude (site BSF) et la station de jaugeage du service d'hydrologie du Canada où ont été mesurés les niveaux d'eau du lac Saint-Pierre sont identifiées.

Localisation of Baie Saint-François and Lake Saint-Pierre (St. Lawrence River). The site where chemicals fluxes were measured (site BSF) and the Lake Saint-Pierre water level station (Hydrological service of Canada) are identified.

Afin d'accommoder spécifiquement au besoin de l'expérimentation de cette étude, une station satellitaire localisée à environ 1,5 km au sud de la station de recherche fut établie (figure 1). Les instruments de mesures chimiques et d'acquisition de données étaient installés dans un abri ventilé situé à une distance d'environ 10 m des prises d'échantillonnage alors que les senseurs micrométéorologiques et environnementaux étaient déployés au-dessus de la canopée. Cette station satellitaire était équipée de tous les instruments nécessaires selon la règle de l'art à la mesure des flux des composés à l'étude. Lors de la période de mesure, les conditions du sol ont été caractérisées par des successions d'inondations (juin) et de sécheresse (juillet) où le niveau de l'eau pouvait atteindre les 20 cm au site de mesure.

2.2 Analyseur de l'H₂, CO et CH₄

Un instrument automatique de mesure pour l'H₂, le CO et le CH₄ gazeux de marque RGA5 (*Trace Analytical*[®]) fut utilisé. Dans cet analyseur, deux détecteurs sont installés en série : le détecteur réactif gazeux (DRG) détectant l'H₂ et le CO et le détecteur à ionisation de flamme (DIF) pour le CH₄. Le DRG est constitué d'un lit de HgO réactif avec lequel l'H₂, le CO ou autres réducteurs s'associent à l'oxygène libérant ainsi du mercure élémentaire (Hg⁰) qui est détecté par la différence d'absorption du rayonnement UV. Le DIF est plutôt basé sur le principe de l'ionisation de la flamme d'hydrogène. L'instrument est alimenté par divers gaz : pour l'opération générale (ouverture et fermeture de vannes internes), de l'air zéro (60-80 psig) est utilisé tandis que pour le DRG, le vecteur utilisé est l'azote de qualité 5.5 (30-70 psig) et pour le DIF, de l'hydrogène qualité 5.5 (20-40 psig) ainsi que de l'air zéro de type *vehicule emission* (20-50 psig) sont aussi nécessaires. Tous ces gaz ont été obtenus de la compagnie BOC gaz[™] à Montréal. L'entrée d'air de l'analyseur était liée à une vanne solénoïde permettant un échantillonnage séquentiel à deux hauteurs en continu (débit de 40 cm³/min) et donnait la concentration de chacun d'eux à des intervalles de 10 min avec une reproductibilité analytique de $\pm 0,2, 0,3$ et 2 % pour l'H₂, le CO et le CH₄ respectivement. Ces reproductibilités analytiques ont été obtenues expérimentalement où une série de lectures consécutives d'un gaz standard ont été faites pour ensuite vérifier la stabilité des résultats (CONSTANT *et al.*, soumis au journal *Environmental Science and Technology*). Les gradients de concentrations verticaux des composés étaient généralement supérieurs à ces limites de reproductibilité analytique.

Quotidiennement, un mélange de gaz standard certifié (4940 ppbv d'H₂, 1000 ppbv de CO et de CH₄, dilués dans de l'azote, BOC gaz, Montréal) était analysé pour vérifier la calibration. Les lectures de calibration pouvaient avoir un écart jusqu'à 2 % des valeurs théoriques. Afin d'ajuster et préciser les données mesurées, des essais de linéarités instrumentales ont été réalisés en laboratoire en diluant le mélange standard. L'intégration des droites ainsi obtenues a permis de corriger les données avec un facteur de correction (18 et 13 % pour l'H₂ et le CO respectivement). Également, des intercomparaisons ont été réalisées avec des gaz standards certifiés par le groupe *Climate Monitoring and Diagnostics Laboratory* du NOAA (*National Oceanic and Atmospheric Administration*).

2.3 Micrométéorologie

Les flux micrométéorologiques d'eau ainsi que de CO₂ ont été mesurés à l'aide d'une station micrométéorologique de type *Bowen Ratio* (Campbell Scientific®) pourvue d'un appareil de mesure à haute fréquence LICOR® alors que les flux d'H₂, de CO et de CH₄ ont été estimés à l'aide de la méthode Bowen modifiée (BOWEN, 1926). Pour ces derniers, la concentration de chacun des composés fut déterminée en gradient de hauteur (1,5 m). L'utilisation de cette technique se réalise en assumant que la diffusion du produit mesuré est uniforme à son gradient de concentration. La station *Bowen Ratio* comporte également des sondes mesurant entre autres les radiations nettes, les flux de chaleur du sol, et les gradients verticaux (1,5 m) de température, d'eau et de dioxyde de carbone (ces deux derniers paramètres étant analysés par le LICOR®). Le coefficient de transfert turbulent (k) est assumé identique pour ces trois dernières constituantes (NEUMANN et DEN HARTOG, 1985 ; MEYERS *et al.*, 1996). À partir de ces paramètres, le coefficient de transfert turbulent est déterminé toutes les 20 min pour les autres gaz et le calcul des flux est réalisé selon la 1^{re} loi de Fick :

$$\text{Flux } \alpha = k \Delta \text{ concentration } \alpha \quad (1)$$

Puisque le gradient des composés à l'étude était aussi obtenu toutes les 20 min, leur flux pouvait être estimé selon l'équation 1 en ce même intervalle.

3 – RÉSULTATS ET DISCUSSION

3.1 Variation des concentrations de CH₄, CO, H₂ et CO₂

Le tableau 1 présente les sommaires statistiques de chacun des composés à l'étude au cours de la période d'investigation. Les niveaux d'H₂ détectés sont bas, mais des concentrations estivales de l'ordre de 300 ppbv ont déjà été rapportées en saison estivale (NOVELLI *et al.*, 1999). La concentration de l'H₂ troposphérique diminue en été puisque sa consommation par le sol est responsable de 95 % de sa destruction globale (SEINFELD et PANDIS, 1998) et que ce processus est influencé par la température et l'humidité du sol, paramètres étant généralement optimums lors de cette saison (CONRAD et SEILER, 1985). Le CH₄ est le composé qui avait la plus grande variation où ses pointes maximales étaient observées la nuit, pouvant ainsi atteindre les 4000 ppbv en conditions humides. Ce dernier phénomène pourrait être associé à des mécanismes de production spécifiques ainsi qu'à l'effet de modulation de la couche limite nocturne (WORTHY *et al.*, 1998).

Les processus responsables de la dynamique du CH₄ et du CO peuvent être affectés par le passage de précipitations. En effet, lors de la période du 21 au 26 juillet, où il y eut au total 33,2 mm de précipitations, les concentrations de CH₄ et CO mesurées tendaient à augmenter (figure 2). Cet apport en eau au sol aurait suffi pour favoriser la méthanogénèse (MOORE et KNOWLES, 1989 ; DING *et al.*, 2002) tout en inhibant les micro-organismes responsables de la consommation du CO et du CH₄ troposphériques en limitant la diffusivité de l'oxygène et de ces composés dans le sol (CONRAD, 1988 ; YONEMURA *et al.*, 2000).

Tableau 1 Variation statistique des concentrations des composés à l'étude lors de la période d'investigation s'étant déroulée de juin jusqu'en août 2003 à la Baie Saint-François.

Table 1 Statistical variation of the chemical concentrations from June to August 2003 at the Baie Saint-François site.

Composés	Nb	Concentration médiane (ppbv)	Écart type	Coefficient de variation (%)
H ₂	8 524	266	21	8
CO	8 624	96	31	30
CH ₄	7 657	1 551	641	37
CO ₂	3 982	393 000	54	13

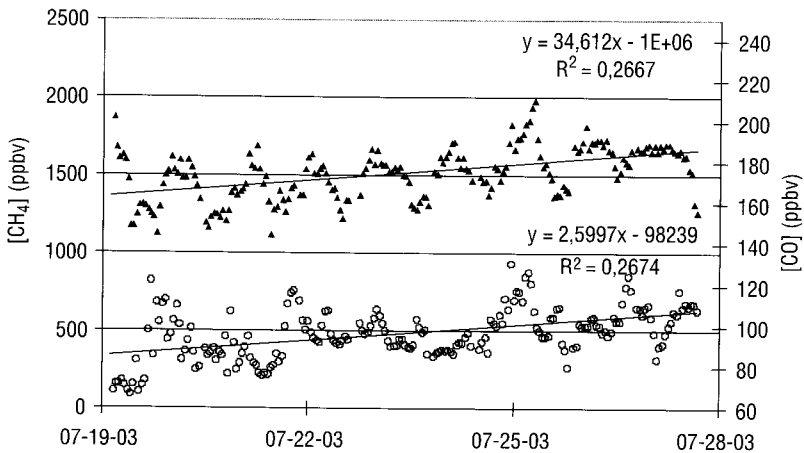


Figure 2 Variations diurnes des concentrations de CH₄ (▲) et de CO (○) troposphériques en fonction du temps. Les courbes de régression linéaires sont illustrées pour montrer l'augmentation du CH₄ et du CO durant cette période. Un long épisode de pluie fut observé entre le 21 et le 27 juillet (33,2 mm de précipitations).

Diurnal cycle of tropospheric CH₄ (▲) and CO (○) concentrations. The linear regression shows the CH₄ and CO increase over the study period. A lengthy rain episode occurred between July 21st and July 27th (total precipitation of 33.2 mm).

La Baie Saint-François étant ouverte sur le lac Saint-Pierre, l'impact de la variation du niveau d'eau de ce dernier est important sur la dynamique des composés à l'étude. Une comparaison des niveaux d'eau de la Baie Saint-François avec ceux du lac Saint-Pierre, mesurés à Sorel (Station 15930 : 46,05°N; 73,12°O) confirme que la dynamique du fleuve Saint-Laurent influence celle de la Baie Saint-François (figure 3). Cette comparaison montre que lorsque le niveau d'eau du lac Saint-Pierre descend sous les 420 cm, la station satellitaire de la Baie Saint-François s'assèche dans les 1 à 5 jours suivants, autrement il y a débordement dans la baie. Contrairement à celui de la Baie Saint-François, le niveau d'eau du lac Saint-Pierre est suivi continuellement à la Station 15930 depuis 1978 (Service d'Hydrologie du Canada). Une analyse

impliquant la dynamique des gaz à effet de serre mesurés à la Baie Saint-François avec l'hydrologie du lac Saint-Pierre est donc importante dans une optique de modélisation visant à inférer des scénarios possibles suite au réchauffement de la planète.

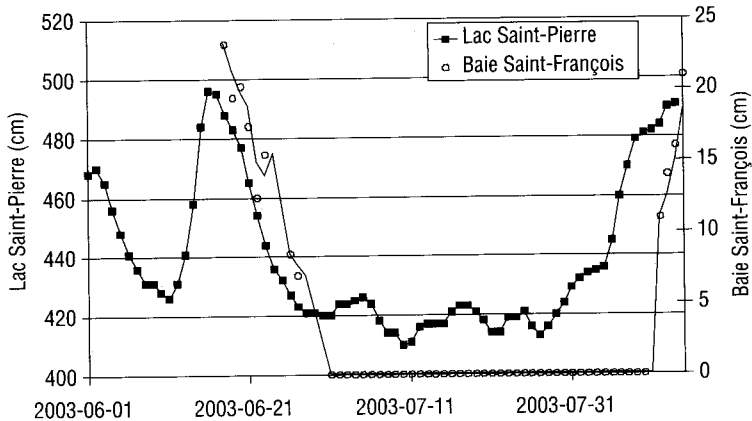


Figure 3 Variation du niveau d'eau du lac Saint-Pierre (■) parallèlement à celui de la Baie Saint-François (○) au cours de la période d'investigation.

Water level fluctuations of Lake Saint-Pierre (■) and Baie Saint-François (○) during the investigation period.

La figure 4 met en évidence la variation des concentrations médianes quotidiennes du CH_4 , CO , H_2 et CO_2 avec celle du niveau d'eau du lac Saint-Pierre à Sorel. Étant donné la distance séparant la station de mesure du lac ainsi que le temps nécessaire à la réactivation des micro-organismes suivant un stress à leur environnement, il y a un certain décalage entre l'action - réaction de l'écosystème de la Baie Saint-François aux conditions des niveaux d'eau du lac Saint-Pierre (figure 4). Afin de mesurer cet effet à rebours, des corrélations croisées ont été calculées pour les différents gaz. Les corrélogrammes croisés de la figure 5 montrent que les concentrations d' H_2 , de CO et de CH_4 étaient affectées après $n = 4$ à 11 jours suivant une variation du niveau d'eau du lac, où les coefficients de corrélations maximums obtenus étaient significatifs (au seuil $\alpha = 0,001$ pour le CO et le CH_4 et $\alpha = 0,01$ pour l' H_2). Compte tenu de l'importance de la photosynthèse dans le cycle du CO_2 , la corrélation entre les concentrations de CO_2 et le niveau de l'eau était non significative. La dynamique du marais (marnage) n'aurait pas d'influence sur le budget local de ce gaz à effet de serre, tel que discuté dans la prochaine section. Les résultats suggèrent qu'un apport en eau au marais par débordement, suite à une hausse du niveau d'eau du lac Saint-Pierre, module la concentration du CH_4 , du CO et de l' H_2 soit en favorisant les processus responsables de leur production ou en inhibant ceux de leur consommation. Ces hypothèses sont discutées dans la prochaine section en étudiant les fines structures des flux des composés en relation avec le niveau d'eau.

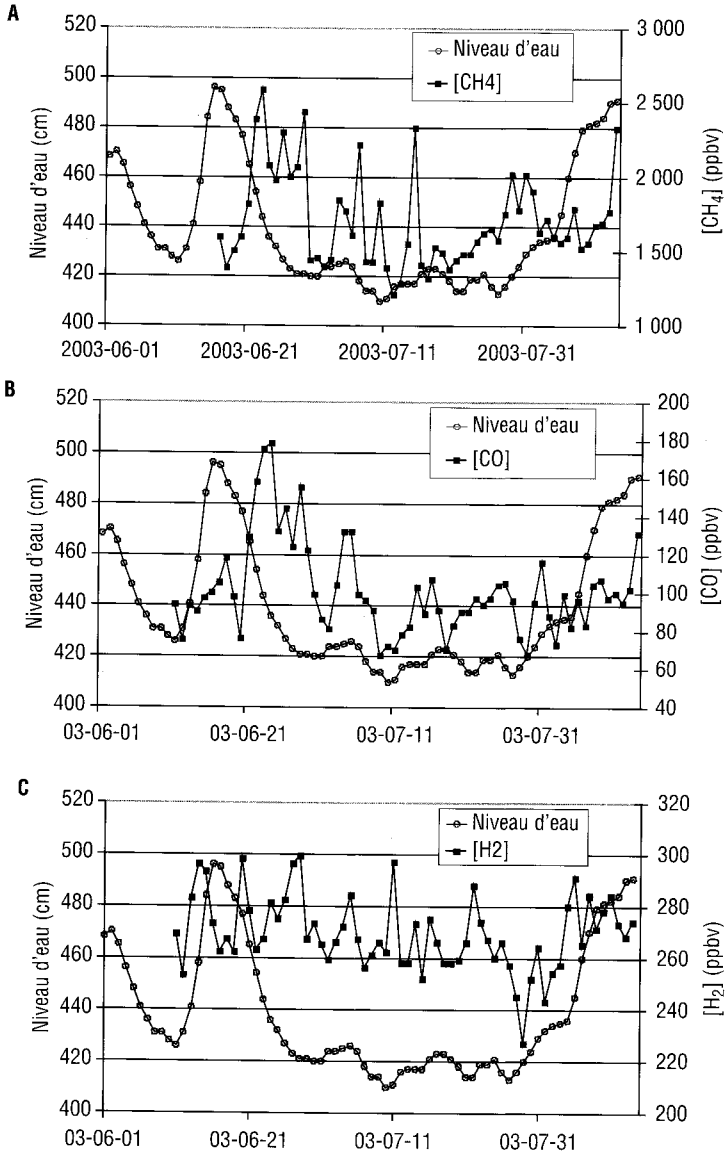


Figure 4

Variation de la concentration du (A) CH_4 , (B) CO , (C) H_2 et (D) CO_2 (■) parallèlement à celle du niveau d'eau du lac Saint-Pierre (○). Chacun des points représente la concentration médiane quotidienne des composés tandis que les niveaux d'eau ont été pris de manière ponctuelle. Les conditions du sol de la Baie Saint-François étaient sèches durant la période du 1^{er} juillet au 9 août.

(A) CH_4 , (B) CO , (C) H_2 and (D) CO_2 concentration variations (■) linked to Lake Saint-Pierre water level fluctuations (○). Each dot represents the daily median concentration for the chemical and a point measurement for the water level. Baie Saint-François soil conditions were dry from July 1st to August 9th.

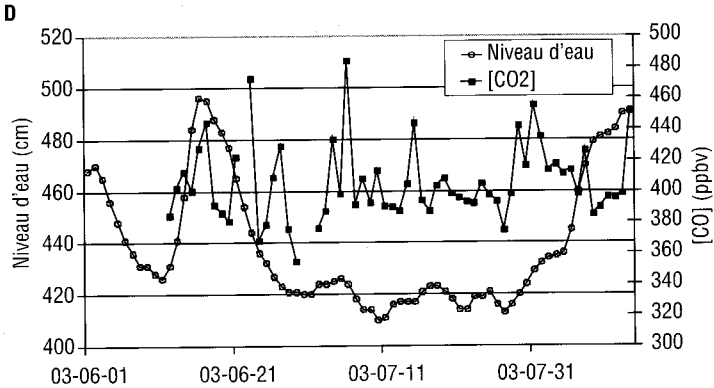


Figure 4 (Suite).

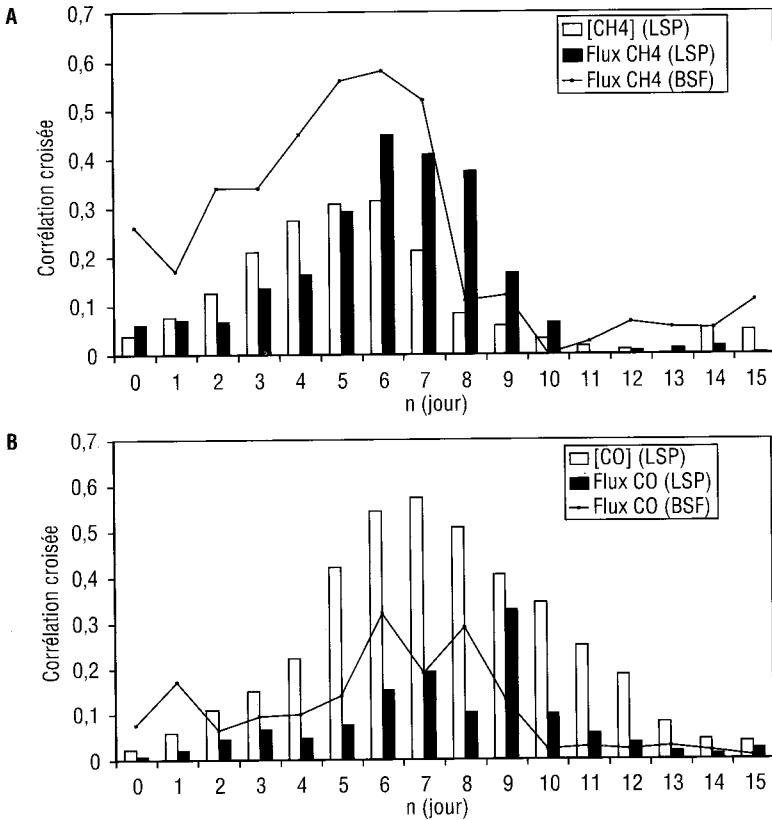


Figure 5 Corrélations croisées entre les concentrations (□) et les flux (■) de (A) CH₄, (B) CO₂, (C) H₂ et (D) CO₂ en fonction du niveau du lac Saint-Pierre (LSP) et de la Baie Saint-François (BSF).

Cross-correlation between (A) CH₄, (B) CO₂, (C) H₂ and (D) (CO₂) daily median concentrations (□) and fluxes (■) as a function of the Lake Saint-Pierre (LSP) and Baie Saint-François (BSF) water levels.

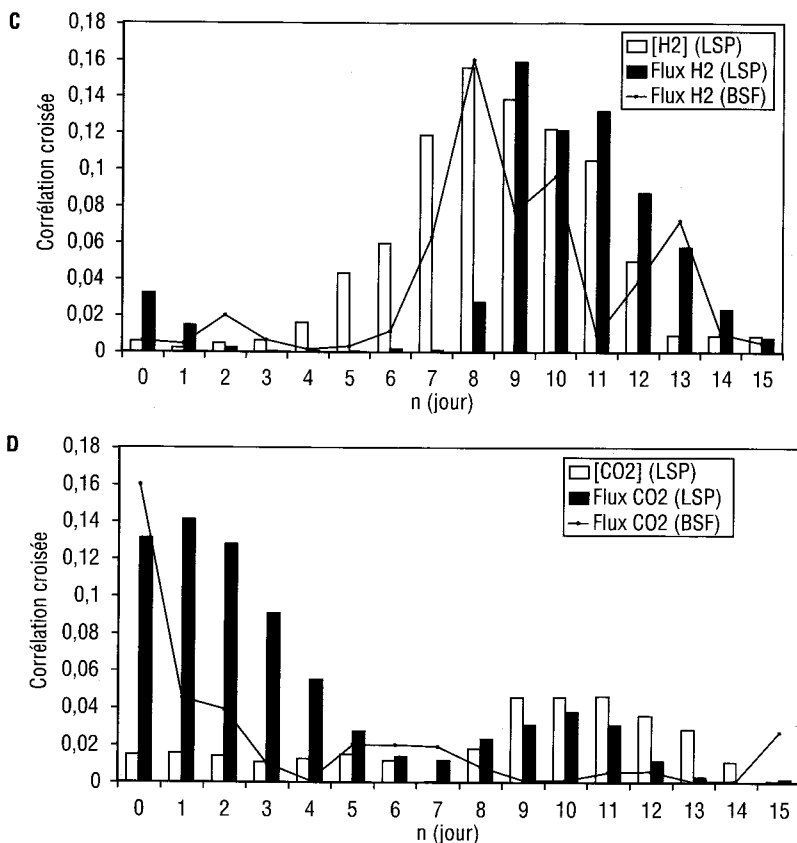


Figure 5 (Suite).

3.2 Variation des flux de CH₄, CO, H₂, et CO₂

Le tableau 2 présente les sommaires statistiques des flux de chacun des composés à l'étude au cours de la période d'investigation. Les écarts type élevés obtenus sont le résultat de la variation du régime hydrologique du lac Saint-Pierre (et de la Baie Saint-François) qui modulait la dynamique des composés. Les corrélogrammes croisés associant les fluctuations du niveau d'eau du lac Saint-Pierre mesurées à Sorel avec les flux des composés à l'étude corroborent les observations réalisées précédemment, soit une réponse à rebours du marais suite à une fluctuation du niveau d'eau du lac Saint-Pierre (figure 5). Pour appuyer la présence de cet effet à rebours, des corrélations croisées ont aussi été réalisées entre les flux des composés et les niveaux d'eau mesurés directement à la station satellitaire (figure 5). Cette dernière analyse suggère qu'il est raisonnable de s'attendre à une variation de la dynamique des composés à l'étude dans le marais suite à une modification du régime hydrologique du lac Saint-Pierre. La dynamique des flux de CH₄ est affectée de n = 6 à 8 jours suivant une variation du niveau d'eau du lac Saint-Pierre ($\alpha = 0,001$), tandis que les flux de CO et d'H₂ le sont après 7 à 9 jours ($\alpha = 0,001$) et 9 à

12 jours ($\alpha = 0,01$) respectivement. Contrairement aux concentrations de CO_2 , le régime hydrologique du lac Saint-Pierre semble avoir une influence sur les flux de ce dernier (figure 5D) puisque sa dynamique est affectée de $n = 0$ à 2 jours ($\alpha = 0,01$) suivant une variation du régime hydrologique du lac Saint-Pierre. Malgré cette influence, le rôle du marais sur les niveaux de CO_2 troposphérique n'est pas dominant à l'échelle régionale puisque les concentrations de ce dernier demeurent constantes (figure 4D).

Tableau 2 Variation statistique des flux des composés à l'étude lors de la période d'investigation s'étant déroulée de juin jusqu'en août 2003 à la Baie Saint-François.

Table 2 Statistical variation of the chemical fluxes from June to August 2003 at the Baie Saint-François site.

Composés	Nb	Flux médian	Écart type
H_2	947	- 6,41 $\mu\text{g m}^{-2} \text{j}^{-1}$	3 550
CO	986	11 $\mu\text{g m}^{-2} \text{j}^{-1}$	2 282
CH_4	938	0,40 $\text{mg m}^{-2} \text{j}^{-1}$	133
CO_2	1 075	0,068 $\text{g m}^{-2} \text{j}^{-1}$	141

Il est à noter que l'influence à rebours du régime hydrologique du lac Saint-Pierre sur les flux des composés n'est pas équivalente à celle observée pour leurs concentrations. La concentration des composés semble affectée avant l'observation d'un changement de dynamique de leurs flux respectifs (figure 5). Ce phénomène pourrait être expliqué par l'hétérogénéité du site de mesure : une augmentation du niveau d'eau du lac Saint-Pierre aurait affecté plus rapidement certaines régions adjacentes à la station satellitaire, ces dernières auraient alors émis plus de CH_4 et de CO et consommé moins d' H_2 , causant alors une augmentation de leur concentration.

La figure 6A montre l'évolution des flux de CH_4 au cours de la campagne de mesure en association avec les niveaux d'eau du lac Saint-Pierre. Un sol submergé favorise l'émanation du CH_4 (HARRIS *et al.*, 1982) et ces conditions furent observées dès le début de la période d'investigation, en juin où le flux médian était de l'ordre de $54 \text{ mg m}^{-2} \text{j}^{-1}$. Deux principaux facteurs pourraient avoir contribué à l'importance de ces fortes émissions de CH_4 : (1) l'anoxie du sol causée par son immersion favorisant l'activité des micro-organismes méthanogènes au détriment des méthanotrophes (SCHNELL et KING, 1996) ; et (2) l'immaturité des végétaux, le faible réseau de racines y étant associé, défavorisant ainsi l'émergence des méthanotrophes y trouvant généralement refuge (ELLER et FRENZEL, 2001). Des flux aussi élevés que $340 \text{ mg de CH}_4 \text{ m}^{-2} \text{j}^{-1}$ furent obtenus pour cette période, émissions du même ordre de grandeur que celles rapportées dans la littérature pour des marécages en conditions humides (NAKANO *et al.*, 2000). Pour le mois de juillet, la diminution du niveau de l'eau et le développement des végétaux pourraient expliquer la diminution significative (Mann-Whitney, $\alpha = 0,05$) des flux de CH_4 (médiane de $0,011 \text{ mg m}^{-2} \text{j}^{-1}$). Cependant, malgré la hausse du niveau d'eau du lac observée en août, les émissions de CH_4 n'ont pas augmenté de manière significative. Néanmoins, tel qu'illustré à la figure 4A, les concentrations de CH_4 tendaient à augmenter à la fin de la campagne, appuyant toujours l'idée que

lors d'une hausse du niveau d'eau du lac Saint-Pierre, la Baie Saint-François devient une source de CH₄. Une prolongation de la campagne aurait pu mieux illustrer des émissions de CH₄ plus fortes que celles observées en juillet et aurait étayé cette tendance à la hausse du CH₄. Malgré le fait que le CO₂ soit un gaz à effet de serre majeur impliqué dans le réchauffement de la planète, le sort de la dynamique du CH₄ suivant un changement de régime hydrologique du lac Saint-Pierre est non négligeable puisque ce dernier démontre un potentiel à effet de serre de 25 à 30 fois supérieur à celui du CO₂ (DICKENSON et CICERONE, 1986 ; BOUCHER *et al.*, 2001).

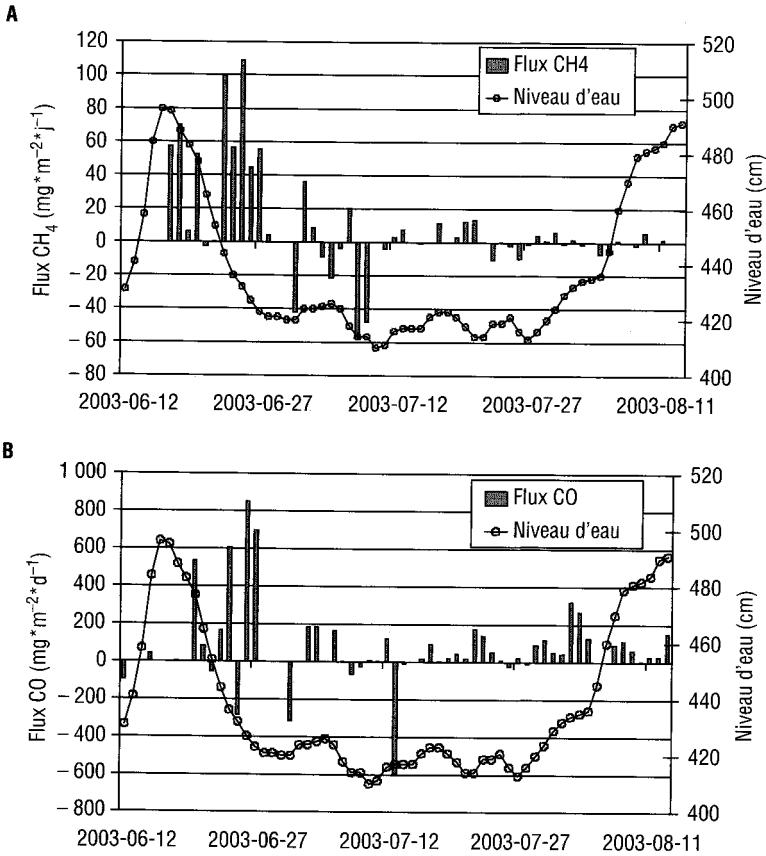


Figure 6 Variation des flux de (A) CH₄, (B) CO₂, (C) H₂ et (D) CO₂ (■) ainsi que du niveau d'eau du lac Saint-Pierre (○) au cours de la période d'investigation. Chacun des points représente le flux médian quotidien des composés tandis que les niveaux d'eau ont été pris de manière ponctuelle. Les conditions du sol de la Baie Saint-François étaient sèches durant la période du 1^{er} juillet au 9^{er} août.

Flux variations of (A) CH₄, (B) CO₂, (C) H₂ and (D) CO₂ (■) with the Lake Saint-Pierre water level (○) during the investigation period. Each dot represents the daily median chemical fluxes and a point measurement for the water level. Baie Saint-François soil conditions were dry from July 1st to August 9th.

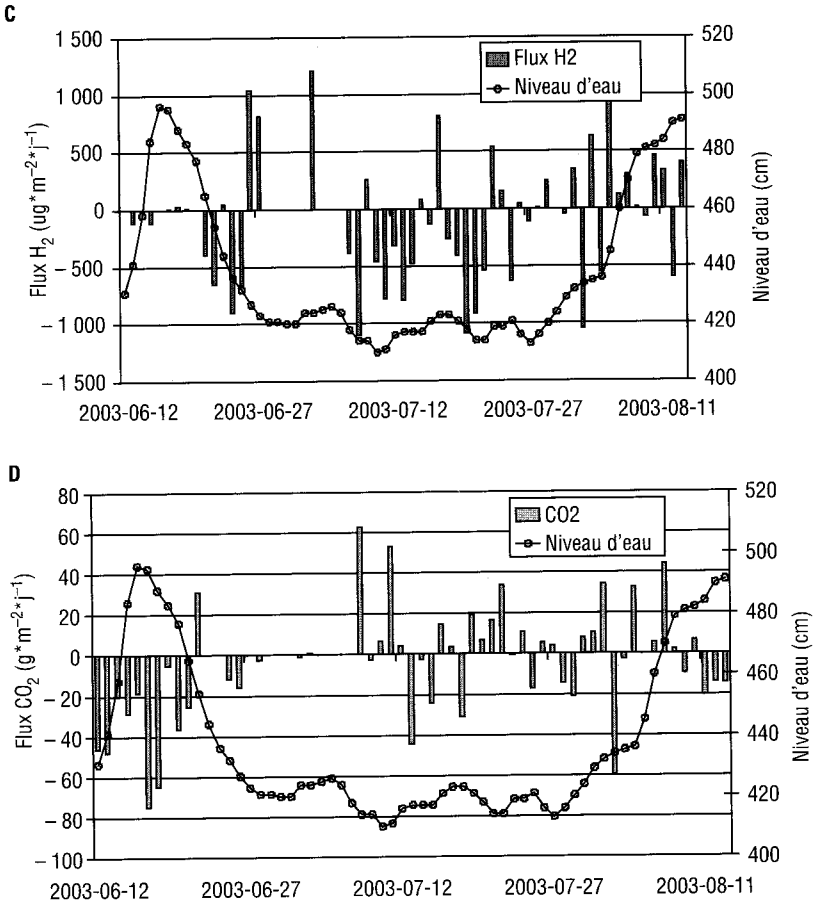


Figure 6 (Suite).

Le sol est reconnu pour être un consommateur du CO troposphérique (CONRAD, 1988). Toutefois, le marais représentait une source nette de ce composé qui pourrait provenir des réactions photochimiques impliquant le matériel cellulaire des plantes et de la matière organique du sol (MOXLEY et SMITH, 1998 ; YONEMURA *et al.*, 1999). En début de campagne (juin), où le sol était submergé, le flux médian de CO mesuré était de $21 \mu g \cdot m^{-2} \cdot j^{-1}$. Suite à l'assèchement du sol, les flux de ce composé ont diminué de manière significative (Mann-Whitney, $\alpha = 0,05$) en juillet où ils étaient de l'ordre de $15 \mu g \cdot m^{-2} \cdot j^{-1}$ (figure 6B). Cette diminution pourrait avoir été causée par l'activation des micro-organismes du sol ayant la capacité de métaboliser le CO troposphérique, puisque la présence d'oxygène leur est nécessaire (CONRAD, 1988). Finalement, la montée d'eau du mois d'août a causé une augmentation non négligeable (Mann-Whitney, $\alpha = 0,05$) du flux médian de CO qui a atteint les $65 \mu g \cdot m^{-2} \cdot j^{-1}$. Ainsi, une augmentation du niveau d'eau du lac Saint-Pierre induirait une augmentation des émissions de CO provenant de la Baie Saint-François et par extension de l'ensemble des marécages du lac Saint-Pierre.

Le sol est reconnu pour son rôle de consommateur important d' H_2 troposphérique (CONRAD, 1988). Les processus impliqués dans cette consommation ne sont pas encore connus, mais seraient optimums dans les sols ayant un contenu en eau d'environ 20 % (CONRAD et SEILER, 1985) et impliqueraient certains micro-organismes non caractérisés ou l'activité de déshydrogénases abiotiques (CONRAD et SEILER, 1985 ; CONRAD, 1988). La présence d'eau a vraisemblablement ralenti les processus responsables de la consommation de ce composé (figure 6C). En effet, en début de campagne (juin), où le sol était submergé, les flux d' H_2 étaient faibles (médiane de $-1,37 \mu\text{g m}^{-2} \text{j}^{-1}$). L'évaporation de l'eau a rétabli la consommation de l' H_2 troposphérique par le sol puisque le flux médian de juillet était de $-125 \mu\text{g m}^{-2} \text{j}^{-1}$ (figure 6C). De plus, la crue d'eau observée en août a causé une augmentation significative (Mann-Whitney, $\alpha = 0,05$) des émissions d' H_2 qui sont passées à $299 \mu\text{g m}^{-2} \text{j}^{-1}$. Une augmentation du niveau d'eau du lac Saint-Pierre induirait par débordement une diminution de la consommation de l' H_2 troposphérique par le sol inondé de la Baie Saint-François. Comme le démontre le corrélogramme croisé de la figure 5C, d'autres paramètres, en plus de l'hydrologie du site, seraient susceptibles de moduler la dynamique de l' H_2 . Cependant, l'état actuel des connaissances ne nous permet pas d'identifier ces paramètres ; l'étude du cycle biogéochimique de ce gaz devra être approfondie pour comprendre davantage les processus responsables de sa consommation au niveau des sols.

Tel que déjà observé lors d'études antérieures (MOORE et DALVA, 1993), les flux de CO_2 tendaient à augmenter avec l'assèchement du site observé suivant une diminution du niveau d'eau du lac Saint-Pierre. Le flux médian de juin était de $-20,2 \text{ g m}^{-2} \text{j}^{-1}$ et augmenta de façon significative (Mann-Whitney, $\alpha = 0,01$) à $1,97 \text{ g m}^{-2} \text{j}^{-1}$ en juillet. Tel qu'observé précédemment, les flux de CO_2 semblent répondre rapidement à un changement du régime hydrologique du site. La figure 6D appuie les résultats du corrélogramme croisé du CO_2 (figure 5D) où le niveau d'eau du marais (ou du lac Saint-Pierre) et le flux de CO_2 sont corrélés avec un décalage de $n = 0$ à 2 jours. Les processus responsables de la production de CO_2 en conditions sèches semblent plus sensibles que ceux intervenant dans la dynamique des autres composés à l'étude. Ces derniers résultats suggèrent qu'une diminution du niveau d'eau du lac Saint-Pierre induirait une hausse de production de CO_2 par l'assèchement de la Baie Saint-François. Le marais non submergé favoriserait l'activité des micro-organismes aérobies, générant un surplus de CO_2 par rapport à ce qui est consommé par les plantes lors de la photosynthèse, résultant ainsi en une émission nette de gaz carbonique. Cependant, tel que discuté précédemment, une hausse de la production de CO_2 par le marais ne signifie pas nécessairement une augmentation de sa concentration troposphérique, d'autres processus générant ou consommant ce gaz (e.g., photosynthèse) pourraient dominer son budget local.

4 – CONCLUSION

L'étude réalisée à la Baie Saint-François a permis de démontrer que l'hydrologie du lac Saint-Pierre et du marais a une incidence importante sur la dynamique du CH_4 , du CO , de l' H_2 et du CO_2 . Cette influence a un rôle important à jouer puisque leur concentration locale (à l'exception du CO_2) est affectée. Les résultats démontrent qu'une diminution du niveau d'eau d'un bassin versant alimentant une zone humide influence les flux de ces composés. En conditions sèches, lorsque le niveau d'eau du lac Saint-Pierre mesuré à Sorel était inférieur à 420 cm, le marais émettait du CO et CO_2 , représentait une source mineure de CH_4 et consommait l' H_2 . Ainsi, il est démontré que des mesures *in situ* peuvent servir à inférer des scénarios d'impacts possibles des changements climatiques et des variations des niveaux d'eau sur les émissions des gaz à effets de serre dans l'écosystème du fleuve Saint-Laurent.

Des travaux sont maintenant en cours dans nos laboratoires pour tenter d'associer à la variation des flux et des niveaux d'eau observés l'activité des micro-organismes susceptibles d'avoir un rôle dans le cycle biogéochimique de l' H_2 , CO et CH_4 .

REMERCIEMENTS

Les auteurs voudraient remercier le Service Météorologique du Canada pour son support financier et logistique. Des remerciements spéciaux sont adressés à Messieurs Martin Pilote et Conrad Beauvais (Assistants de recherche à la Section sur les processus Atmosphériques des Toxiques- Environnement Canada) pour leurs contributions logistiques et techniques. Également, des remerciements sont adressés à Messieurs Guy Morin (section hydrologie d'Environnement Canada) et Bernard Labrecque (Institut Maurice Lamontagne) pour les données de niveaux d'eau.

RÉFÉRENCES BIBLIOGRAPHIQUES

- BOUCHER O., Haigh J., Hauglustaine D., Haywood J., Myhre G., Nakajima T. Shi G. Y., Solomon S., 2001. Radiative forcing of climate change. In "Climate change 2001: the scientific basis. Contribution of working group I to the third assessment report of the Intergovernmental Panel on Climate Change", Houghton J. T., Ding Y., Griggs D. J., Noguer M., van der Linden P. J., Dai X., Maskell K. and Johnson C. A. [Ed.], 881 pages.
- BOWEN I. S., 1926. The ratio of heat losses by conduction and by evaporation from any water surface, *Phys. Rev.*, 27, 779-787.
- CHANG T.-C., YANG S.-S., 2003. Methane emissions from wetlands in Taiwan, *Atm. Environ.*, 37, 4551-4558.
- CONRAD R., 1988. Biogeochemistry and ecophysiology of atmospheric CO and H₂, *Adv. Microb. Ecol.*, 10, 231-283.
- CONRAD R., SEILER W., 1985. Influence of temperature, moisture, and organic carbon on the flux of H₂ and CO between soil and atmosphere: field studies in subtropical regions, *J. Geophys. Res.*, 90, 5699-5709.
- DICKENSON, R. E., CICERONE, R.J., 1986. Future Global Warming from Atmospheric Trace Gases, *Nature*, 319, 109-115.
- DING W., CAI Z., TSURUTA H., LI X., 2002. Effect of standing water depth on methane emissions from freshwater marshes in northeast China, *Atm. Environ.*, 36, 5149-5157.
- ELLER G., FRENZEL P., 2001. Changes in activity and community structure of methane-oxidizing bacteria over the growth period of rice, *Appl. Environ. Microbiol.*, 67, 2395-2403.
- HARRIS R. C., SEBACHER D. I., DAY F. P. Jr., 1982. Methane flux in the great dismal swamp, *Nature*, 297: 673-674.
- HUDON, C., 1997. Impact of water level fluctuations on St. Lawrence River aquatic vegetation, *Can. J. Fish. Aquat. Sci.*, 54, 2853-2865.
- KUSLER J., 1999. Climate Change in Wetland Areas Part II: Carbon Cycle Implications, US Global Change Research Program, *Acclimatations*, May-June.
- MEYERS T. P., HALL M. E., LINDBERG S. E., KIM K., 1996. Use of the modified Bowen-ratio technique to measure fluxes of trace gases, *Atm. Environ.*, 30, 3321-3229.
- MOORE T. R., DALVA M., 1993. The influence of temperature and water table position on carbon dioxide and methane emissions from laboratory columns of peatland soils, *J. Soil Sci.*, 44, 651-664.
- MOORE T. R., KNOWLES R., 1989. The influence of water table levels on methane and carbon dioxide emissions from peatland soils, *Can. J. Soil. Sci.*, 69, 33-38.
- MORTSCH L., QUINN F. H., 1996. Climate change scenarios for Great Lakes Basin ecosystem studies, *Limnol. Oceanogr.*, 41, 903-911.
- MOXLEY J. M., SMITH K. A., 1998. Carbon monoxide production and emission by some Scottish soils, *Tellus*, 50B, 151-162.
- NAKANO T., KIYOSHI S., FUKUDA M., 2000. Temporal variation in methane emission from tundra wetlands in a permafrost area, northeastern Siberia, *Atm. Environ.*, 34, 1205-1213.
- NEUMANN H. H., DEN HARTOG G., 1985. Eddy correlation measurements of atmospheric flux of ozone, sulphur, and particles during the Champaign inter-comparison study, *J. Geophys. Res.*, 90, 2097-2110.
- NOVELLI P. C., LANG P. M., MASARIE K. A., HURST D. F., MYERS R., ELKINS J. W., 1999. Molecular hydrogen in the troposphere: global distribution and budget, *J. Geophys. Res.*, 104(D23), 30 427-30 444.
- POISSANT L., PILOTE M., CONSTANT P., BEAUVAIS C., ZHANG H. H., XU X. (2004a). Mercury gas exchanges over selected bare soil and flooded sites in the Bay St. François Wetlands (Québec, Canada), *Atm. Environ.*, 38, 4205-4214.
- POISSANT L., PILOTE M., XU X., ZHANG H. H., BEAUVAIS C., 2004b. Atmospheric mercury speciation and deposition

- in the bay St. François wetlands, *J. Geophys. Res.*, 109, D11301, doi:10.1029/2003JD004364.
- SCHNELL S., KING G. M., 1996. Responses of methanotrophic activity in soils and cultures to water stress, *Appl. Environ. Microbiol.*, 62(9), 3203-3209.
- SEINFELD J. H., PANDIS S. N., 1998. Atmospheric chemistry and physics (From air pollution to climate change), John Wiley & Sons Inc, New York, 1326 pages.
- SVENSSON B. H., 1980. Carbon dioxide and methane fluxes from the ombrotrophic parts of a subarctic mire, *Ecol. Bull.*, 30, 235-250.
- WORTHY D. E. J., LEVINE I., TRIVET N. B. A., KUHLMANN A. J., HOPPER J. F., ERNST M. K., 1998. Seven years of continuous methane observations at a remote boreal site in Ontario, Canada, *J. Geophys. Res.*, 103(D13), 15 995-16 007.
- YONEMURA S., MOROKUMA M., KAWASHIMA S., TSURUTA H., 1999. Carbon monoxide photoproduction from rice and maize leaves, *Atm. Environ.*, 33, 2915-2920.
- YONEMURA S., YOKOZAMA M., KAWASHIMA S., TSURUTA H., 2000. Model analysis of the influence of gas diffusivity in soil on CO and H₂ uptake, *Tellus*, 52B, 919-933.