

# 三峡库区万州段河流水一气界面 $CO_2$ 通量支干流对比及影响机制初探

秦宇1,欧阳常悦1,王雨潇1,方鹏2

(1.重庆交通大学河海学院,环境水利工程重庆市工程实验室,重庆 400074; 2.重庆交通大学机电与车辆工程学院,重庆 400074)

摘要: 以三峡库区万州段干流及典型支流澎溪河为研究对象,监测 2019 年 4~9 月水华期间水体中  $CO_2$  浓度以及 12 个环境指标,估算水-气界面  $CO_2$  通量并进行支干流对比. 将 12 个环境指标分为气候因子、水环境因子、碳源因子、营养因子和沉积物因子,探讨 5 类因子对  $CO_2$  通量的影响途径和贡献率,进一步为控制水库温室气体排放提供数据积累和理论支持. 结果表明,监测期间内高阳、黄石和万州平均  $CO_2$  通量分别为  $(1.445\pm1.739)$ 、 $(3.118\pm2.963)$  和  $(2.899\pm1.144)$  mmol· $(m^2\cdot h)^{-1}$ ,表现为: 澎溪河支流高阳 < 干流万州 < 澎溪河支流黄石. 从变化幅度来看,支流水体  $CO_2$  通量变幅较大,干流水体变化幅度则相对较小,是较稳定的  $CO_2$  "源".长江干流作为陆地向海洋的生源物质运输枢纽,相比其支流碳含量和流速更高,这使得通常情况下干流  $CO_2$  通量大于支流. 但水文情势的不同使得同一支流不同点位  $CO_2$  通量具有明显空间差异,支流高阳点位位于库湾处利于浮游植物生长使  $CO_2$  通量较低,支流黄石点位位于流速较快的河道,受干流回水顶托和倒灌作用使  $CO_2$  通量显著大于干流万州点位. 各指标对  $CO_2$  通量的影响在支干流也存在较大差异,水温(T)、溶解氧(T)、溶解有机碳(T)、溶解氧(T)、溶解有风碳(T)、溶解有风碳(T)、溶解氧(T)、溶解有风碳(T)、溶解有风碳(T)、溶解有风碳(T)、溶解有风碳(T)、溶解有风碳(T)、溶解有风碳(T)、溶解有层(T)、溶解有风碳(T)、溶解有层(T)、混构的层(T)、

关键词: 三峡库区; CO<sub>2</sub> 通量; 支干流对比; 随机森林算法; 影响机制

中图分类号: X16 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2022)01-0377-10 **DOI**: 10.13227/j. hjkx. 202104107

# Comparison Between Tributary and Main Stream and Preliminary Influence Mechanism of CO<sub>2</sub> Flux Across Water-air Interface in Wanzhou in the Three Gorges Reservoir Area

QIN Yu<sup>1</sup>, OUYANG Chang-yue<sup>1</sup>, WANG Yu-xiao<sup>1</sup>, FANG Peng<sup>2</sup>

(1. Engineering Laboratory of Environmental Hydraulic Engineering of Chongqing Municipal Development and Reform Commission, College of River and Ocean Engineering, Chongqing Jiaotong University, Chongqing 400074, China; 2. School of Mechatronics and Vehicle Engineering, Chongqing Jiaotong University, Chongqing 400074, China) Abstract: The main stream of the Three Gorges Reservoir area in Wanzhou and its tributary (the Pengxi River) were selected as a survey area to monitor the CO, concentration. Twelve related indicators were selected during the blooming period from April to September 2019, which were divided into Climate factors, Water environment factors, Carbon source factors, Nutrient factors, and Sediment factors. These factors were considered for further discussion of the impact pathways and contribution to CO<sub>2</sub> flux. The average CO<sub>2</sub> fluxes of Gaovang (the Pengxi River), Huangshi (the Pengxi River), and Wanzhou (the main stream) were (1.445 ± 1.739), (3.118 ± 2.963), and (2.899 ± 1.144) mmol·(m²·h) -1, respectively, showing that Gaoyang < Wanzhou < Huangshi. The CO<sub>2</sub> flux of tributary showed a large variation, while the main stream had a relatively small variation, which is a stable "source" of CO<sub>2</sub>. The main stream of the Yangtze River, as a hub for the transportation of biomass from land to sea, has higher carbon concentration and higher flow rate than its tributaries, which makes the CO<sub>2</sub> flux of the main stream usually larger than that of the tributary. However, the difference in hydrological conditions result in spatial differences in CO2 flux at different points of the same tributary. Gaoyang is located in the reservoir bay, which is conducive to the growth of phytoplankton and the CO2 flux is lower; Huangshi is located in a river with a faster flow rate. The backwater support and backflow of the main stream make the CO2 flux significantly greater than that at Wanzhou. The effects of various indicators on the CO2 flux are also markedly different in the tributary and main stream. Temperature (T), DO, dissolved organic carbon (DOC), and dissolved inorganic carbon (DIC) have significant effects on CO2 fluxes in the tributary, while NH<sub>4</sub> -N has a significant impact on CO<sub>2</sub> fluxes in the main stream. Nutrient factors and carbon source factors contribute 32.37% and 27.25%, respectively, to CO<sub>2</sub> flux, accounting for more than half of the total, followed by climate factors, water environment factors, and sediment factors, which contribute 18.81%, 13.49%, and 8.08%, respectively. Reservoir CO<sub>2</sub> emission control can focus on controlling the eutrophication and carbon sources; phenomena such as global warming and sedimentation will also have a certain impact on the CO<sub>2</sub> emission of reservoirs.

Key words: Three Gorges Reservoir area; CO, flux; comparison of tributary and main stream; random forest algorithm; influence mechanism

全球变暖已经成为如今世界各国普遍关注的环境问题之一,其主要原因是大气中温室气体浓度增加. 水电一直以来被认为是清洁的能源,直到 Rudd

收稿日期: 2021-04-12; 修订日期: 2021-06-29 基金项目: 国家自然科学基金项目(51609026)

作者简介:秦宇(1981~),女,博士,教授,主要研究方向为水生态治

理,E-mail: qinyu54001@163.com

等<sup>[1]</sup> 发布了南美热带雨林地区水库 CO<sub>2</sub> 和 CH<sub>4</sub> 释放通量的数据,水库温室气体释放成为了国际学术界争论的核心问题.

三峡水库自2003年蓄水以来,在防洪、发电和供水等各个方面发挥重要作用,拦河筑坝改变了河流的水文环境及水动力条件等,使得以前的河流型生态系统演变为水库型生态系统<sup>[2]</sup>.水库蓄水后,三峡库区江段从天然河道变成了河道型和季调型水库.作为一个典型的河道型水库,三峡水库水动力特性在空间上存在显著的差异,库区干流一维流动特征显著,仍然保持着天然河流的特性,流速基本不满足藻类水华形成的必要条件.而在支流库湾,蓄水改变了水文水动力条件及河道地形,难以简单概化为一维特征,在深度上长期具有复杂的分层异向流动特征<sup>[3]</sup>,三峡水库支干流水体理化性质和水文水动力条件的差异性明显.

近年来,大量关于水库温室气体通量研究的重心在于宏观监测及其时空变化规律上<sup>[4~7]</sup>,而对于温室气体通量的支干流空间对比研究较少<sup>[8~10]</sup>,对其影响机制的研究更为罕见.本研究以三峡库区万州段干流和典型支流澎溪河为研究对象,监测 4~9月期间水体中 CO<sub>2</sub> 浓度以及 12 个环境指标,估算水-气界面 CO<sub>2</sub> 通量,分析其支干流的空间差异性,再利用相关性分析和随机森林算法分析其主要影响因子,并对 CO<sub>2</sub> 通量的影响途径及机制进行初步探讨,以期为水库温室气体的控制提供一定的数据积累和理论支持.

## 1 材料与方法

## 1.1 研究区域概况

三峡水库是举世瞩目的超大型水利工程,兼顾防洪、发电和航运等多种功能.水库东起湖北省宜昌市,西至重庆江津区,范围包括了重庆、长寿、涪陵、丰都、忠县、万州、云阳和奉节等 21 个市县,属于河道型水库.水库正常蓄水水位高程为 175 m,水域面积1 084 km²,总库容 393 × 108 m³. 大坝建成后,库区反季节的蓄水与泄水,改变了库区支干流的天然水流条件.一些库湾以及长期处于三峡水库回水淹没区的支流,受干流顶托作用,水流流速减缓,水体滞留时间变长,营养物质及有机质含量升高,富营养化趋势增加.而库区干流一维流动特征显著,仍然保持着天然河流的特性.

## 1.2 样品采集

根据前期相关研究资料与实地考察,结合三峡 水库调度运行方案和水生态特征等,本研究选择了 位于三峡水库万州段的3个采样监测点:高阳 (N31°06′14″, E108°40′26″)、黄石(N30°59′50″, E108°40′51″)和万州(N30°54′40″, E108°31′18″),如图1所示.其中高阳点位位于长江支流澎溪河145m回水区中段,是较具独特性的水域,其上下游河段均为峡谷型河道,而高阳平湖水域则是在上述两峡谷之间面积为4~5km²的开阔水域,近似于过水型湖泊,是澎溪河流域水华暴发最严重的区域之一,采样点位设于高阳库湾处.黄石点位则位于高阳下游的峡谷型河道,采样点设于黄石镇沿河处.万州点位位于长江上游地区、重庆东北部,处三峡库区腹心,采样点位于万州中部小周镇沿河处.

本研究采样为 2019 年 4~9 月的逐月跟踪监测,所有采样点监测时间控制在每月的下旬(20~22日),3 个断面的样品采集工作在 1~2 d 内完成.由于温室气体通量存在时空差异,在同一点位不同时间的温室气体通量也会发生变化,为获得较为准确的数据,本研究采样时间尽量控制在 09:00~11:00. 采样周期处于春夏季,正是容易暴发水华时期,且水库调度运行处于泄水期向低水位转变过程.

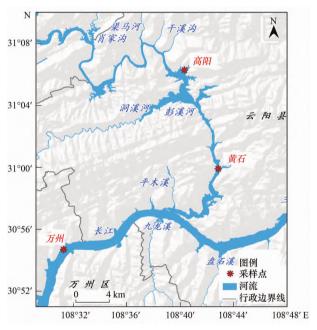


图 1 三峡库区万州段采样点位示意

Fig. 1 Sampling points in the Wanzhou section in the Three Gorges reservoir area

采样时到达河道深泓线处(航标船附近),采用5 L分层采水器采集表层水体(0.5 m以下),水温(T)、pH和溶解氧(DO)使用多参数水质分析仪现场测定.将50 mL顶空瓶置于采水器中,以淹没状态进行密封,剩余的水样装入聚乙烯瓶(用采集水样润洗多次),最后用彼德森采泥器采集表层沉积物样品,装入聚乙烯密封袋中.为了保证采集样品的代表性和准确性,样品采集与保存均按照文献[11]

中相关规范进行,且所有采样点都会在周围采集3个平行样品.在整个采样过程同时记录相关环境指标:气温、气压和风速等(用于薄边界模型法估算水-气界面温室气体通量).野外测量仪器在采样工作前都已经过标准校正程序.所有现场采集完成的样品(水样、顶空瓶和沉积物)用保温箱低温保存,当天运回实验室等待进一步处理.水样样品带回实验室后在2d内完成溶解性总氮(DTN)、溶解性总磷(DOC)、氨氮(NH<sub>4</sub><sup>+</sup>-N)、溶解性有机碳(DOC)和溶解性无机碳(DIC)的测定.沉积物去除动物残体和植物碎屑后自然风干,再装入聚乙烯密封袋中,测定总有机碳(TOC)、总氮(TN)

和总磷(TP).

## 1.3 样本处理与分析方法

## 1.3.1 水样、表层沉积物

水样低温运回实验室,过 47  $\mu$ m 的 Whatman® GF/F 玻璃纤维滤膜(450℃烘干 4 h),对滤液进行相关指标测定.自然风干后的沉积物用瓷研钵将其研磨成粉末,分别过 100 目和 200 目的不锈钢筛,最后将处理后的样品分别装入聚乙烯密封袋中,用于化学分析,所有土样指标采样测试方法均参照文献 [12]进行.本文将所采集的 12 个指标归为 5 类因子,方便探讨  $CO_2$  通量的影响途径,分类结果及测定方法如表 1 所示.

表 1 相关指标分类与测定方法

Table 1 Classification and methods for measurement of related indicators

相关指标	相关指标分类	测定方法	
CO <sub>2</sub> 通量	因变量	见 1. 3. 2 节	
T(水温)	气候因子	DZB-718 多参数分析仪现场测定	
DO( 溶解氧); pH	水环境因子 DZB-718 多参数分析仪现场测定		
DOC( 溶解有机碳); DIC( 溶解无机碳)	碳源因子	启鲲 CD-800 总有机碳分析仪	
NH <sub>4</sub> -N( 氨氮)		纳氏试剂分光光度法	
NO <sub>3</sub> -N( 硝态氮)	营养因子	紫外分光光度法	
DTN(溶解总氮)	日77日 1	碱性过硫酸钾消解紫外分光光度法	
DTP(溶解总磷)		钼酸铵分光光度法	
沉积物中 TOC( 沉积物中总有机碳)		水合热重铬酸钾氧化-比色法	
沉积物中 TN( 沉积物中总氮)	沉积物因子	碱性过硫酸钾氧化-紫外分光光度计法	
沉积物中 TP( 沉积物中总磷)		硫酸钾氧化-分光光度计法	

### 1.3.2 气样

# 1.3.2.1 水体 CO<sub>2</sub> 浓度及分压

将充满水样的顶空瓶从保温箱中取出,放至室温.首先倒置顶空瓶,并同时插入两支注射针头,其中一支为装有确定量 20 mL 高纯氮的针管(带有三通阀),在向顶空瓶中注入氮气后,从而产生压力差,使多余水样通过另一支针头排出(注射氮的针头应略高于排水针头),待高纯氮完全注入后,顶空瓶中为 30 mL 测水样和 20 mL 高纯氮(顶空气液体积比为 2:3).密封顶空瓶,将其放入摇床内振荡 20 min;最后待顶空瓶中的气相和液相达到平衡后,用针管(带有三通阀)抽取顶空瓶内上方的气体,送入气相色谱仪测定 CO<sub>2</sub> 浓度.经 TDX-01 色谱柱分离,用 FID 检测器进一步检验得到 CO<sub>2</sub> 浓度,再根据顶空平衡法得到待测水体中 CO<sub>2</sub> 分压,其计算公式为<sup>[13]</sup>:

$$\begin{split} p(\text{ Gas}) &= \frac{p_{\text{final}} \cdot K_{\text{equilibrium}}}{K_{\text{sample}}} + \\ &= \frac{(\text{ H/S}) (p_{\text{final}} - p_{\text{initial}}) / V_{\text{m}}}{K_{\text{sample}}} \end{split} \tag{1}$$

式中, p(Gas) 为测水样中气体分压(Pa);  $p_{initial}$ 和  $p_{final}$ 为平衡前后瓶内上方空气中待测气体分压(Pa); H/S 为瓶内气体与水体体积比;  $V_m$  为气体

浓度( $\operatorname{mol} \cdot \operatorname{L}^{-1}$ );  $K_{\operatorname{sample}}$  和  $K_{\operatorname{equilibrium}}$  为采样时和样品分析前瓶内水温条件下对应的待测气体溶解度  $\lceil \operatorname{mol} \cdot (\operatorname{L} \cdot \operatorname{Pa})^{-1} \rceil$ .

气体亨利系数  $K_0$  可通过下式计算[14]:

$$\ln K_0(\text{ CO}_2) = -58.0931 + 90.5069 \frac{100}{T_k} +$$

$$22.294 \ln \left(\frac{T_k}{100}\right) + S\left(0.027766 - 0.02588 \frac{T_k}{100} + 0.0050578 \frac{T_k^2}{100}\right)$$
 (2)

式中,  $T_k$  为水体绝对温度(K); S 为盐度( $mg \cdot L^{-1}$ ),在淡水中该值可为0.

# 1.3.2.2 水-气界面 CO, 通量

目前水-气界面温室气体监测常用两种方法,一种是静态箱法-气相色谱法,另一种是顶空平衡法-气相色谱法与TBL模型估算法结合.但静态箱-气相色谱法在有风或流动水体的观测条件下,箱体与表层水体的摩擦引起的扰动,可能导致额外的温室气体排放,影响观测结果的准确性,且劳动强度大,不适宜开展大区域、长期的观测.考虑本研究采样点位之间距离较远以及长江干流点位水流较为湍急,因此采用薄边界模型(TBL)估算法研究水-气界面

CO<sub>2</sub> 通量<sup>[15]</sup>. 根据 Fick 定律,对于淡水水体,水-气界面气体交换通量(正为释放、负为吸收)可由下式计算得出:

$$F_{\text{CO}_2} = k_{\text{x}} (c_{\text{water}} - c_{\text{air}}) \tag{3}$$

式中, $F_{CO_2}$ 为  $CO_2$  扩散通量  $[\text{mmol}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{h})^{-1}]; k_x$  为气体交换系数 $(\text{cm}\cdot\text{h}^{-1}); c_{\text{water}}$ 为气体在水中的浓度 $(\text{mmol}\cdot\text{L}^{-1}); c_{\text{air}}$ 为现场温度及压力下大气中 $CO_2$  的饱和浓度 $(\text{mmol}\cdot\text{L}^{-1})$ ,参考长江流域的相关研究[16],本研究取大气  $CO_2$  浓度 390. 5  $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ .

对于交换系数  $k_x$  的估算,绝大多数采用的是 1989 年 Jähne 等 [17] 建立的数学经验公式:

$$k_{\rm x} = k_{600} \times 600/S_c$$
 (4)

式中,  $k_{600}$  为六氟化硫(SF<sub>6</sub>) 气体的交换系数 (cm·h<sup>-1</sup>);  $S_c$  为 t(°C)下 CO<sub>2</sub>的 Schmidt 常数.

考虑采样点均属于已建成水电站的库区范围, 本研究采用对于湖泊、水库生态系统的交换系数, 选用 Cole 等在 1998 年建立的经验公式<sup>[18]</sup>:

$$k_{600} = 2.07 + 0.215 U_{10}^{1.7}$$
 (5)

式中,  $U_{10}$ 为水面上方 10 m 处的风速.

通常水体上方 1 m 风速  $U_1$  可用下式进行换算  $^{[19]}$ ,参考三峡库区风速的相关研究  $^{[20]}$ ,取平均风速  $1.5~\mathrm{m}\cdot\mathrm{s}^{-1}$ :

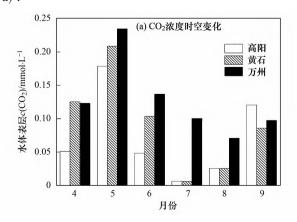
$$U_{10} = 1.22U_1 \tag{6}$$

对于淡水而言,可按下式进行计算  $S_c^{[21,22]}$ :  $S_c = 1\,911.\,1 - 118.\,11t + 3.\,452\,7t^2 - 0.\,041\,32t^3 \eqno(7)$ 

监测得到的温室气体在水中的分压乘以亨利系数,就可以得到温室气体在水中的饱和浓度( $c_{water}$ ),计算公式为 $^{[20,23]}$ :

$$c_{\text{water}} = K_0 \cdot p(\text{Gas})$$
 (8)

式 中,  $K_0$  为 亨 利 系 数,即 气 体 溶 解 度  $[\text{mol}\cdot(\text{L}\cdot\text{Pa})^{-1}]; p(\text{Gas})$  为当前水温下的气体分压(Pa).



# 1.4 数据处理

将现场监测数据、化学实验数据及计算数据输入 Origin9. 0 软件绘制 CO<sub>2</sub> 浓度及通量的时空变化图;输入 JASP 软件绘制干支流 CO<sub>2</sub> 通量相关性热图;输入 Python3. 6 编程软件(软件框架为基于Keras 深度学习工具的 Tensorflow 框架) 计算各因子的贡献百分比,最后用 Visio 软件将分析结果绘制成CO<sub>2</sub> 通量影响机制图.

43 卷

# 2 结果与分析

# 2.1 CO<sub>2</sub> 浓度及通量时空变化

监测期间内 3 个观测点 CO<sub>2</sub> 的浓度和通量时 空变化如图 2 所示. 监测期间内高阳、黄石和万州 平均 c(CO<sub>2</sub>) 分别为(0.072 ± 0.065)、(0.092 ± 0.073) 和(0.127 ± 0.057) mmol·L<sup>-1</sup>,平均 CO, 通量 分别为(1.445 ± 1.739)、(3.118 ± 2.963)和 (2.899 ± 1.144) mmol·(m<sup>2</sup>·h) <sup>-1</sup>, 两者的时间变化 趋势基本一致,CO2通量表现为: 澎溪河支流高阳 < 干流万州 < 澎溪河支流黄石. 4、5 和 6 月水体 CO, 的浓度和通量处于相对较高水平,库区呈现出 CO。 "源"的特征; 7月和8月水体 CO。的浓度和通量明 显减少,高阳和黄石 CO<sub>2</sub> 通量在 7 月达到监测期内 的最低值 - 0.372 mmol·(m²·h) -1 和 - 0.427 mmol·(m<sup>2</sup>·h)<sup>-1</sup>,表现为CO<sub>2</sub>"汇",万州在8月达到 监测期内最低值 1.811 mmol·(m²·h)<sup>-1</sup>,表现为 CO<sub>2</sub>"源"; 9月三峡水库开始进入蓄水期,水位抬升 同时气温降低,水华逐渐消失,水体 CO。的浓度和 通量回升至同一水平. 从变化幅度来看, 支流水体 CO<sub>2</sub>的浓度和通量变幅较大,尤其在5、6和7月内 CO<sub>2</sub> 通量变幅较猛,支流两点位5月处于整个研究 期内 CO2 "源"的最大值,而在7月均达到负值,处于 CO<sub>2</sub> "汇"的状态. 干流水体变化幅度则相对较小,是 较稳定的 CO2 "源".

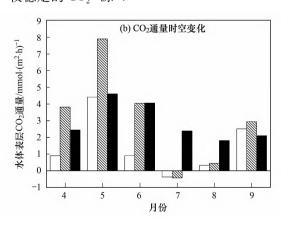


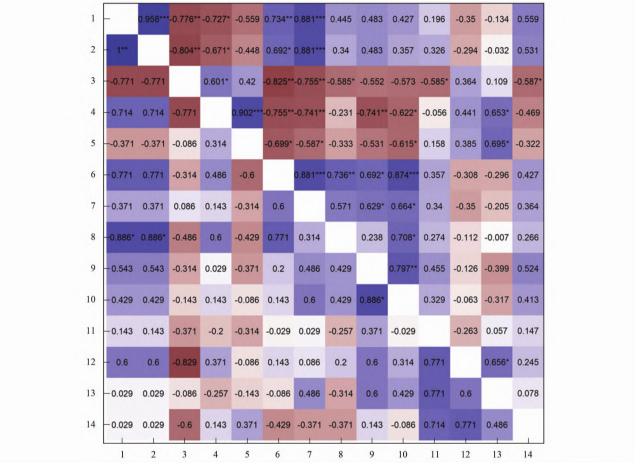
图 2 CO<sub>2</sub> 的浓度和通量时空变化

Fig. 2 Spatio-temporal changes in CO2 concentration and fluxes

### 2.2 相关性分析

将支流、干流数据分别导入 JASP 软件进行 Spearman 相关系数计算,将得到相关系数矩阵和显 著性检验结果进行可视化分析,生成相关性热图如图 3 所示.

从图3的逐月变化情况来看,可能因为受到风



 $1. CO_2$  通量, $2. CO_2$  浓度,3. 水温( T),4. 溶解氧( DO),5. pH,6. 溶解有机碳( DO),7. 溶解无机碳( DIC),8. 氨氮(  $NH_4^+$ -N),9. 硝态氮(  $NO_3^-$ -N),10. 总溶解氮( DIN),11. 总溶解磷( DIP),12. 沉积物中 TOC,13. 沉积物中 TN,14. 沉积物中 TP; 上三角区域为支流,下三角区域为干流;\*表示 Sig. <0.05,\*\*表示 Sig. <0.01,\*\*\*表示 Sig. <0.001

# 图 3 支干流 CO<sub>2</sub> 通量与各指标相关性分析

Fig. 3 Correlation analysis of tributary and main stream CO2 fluxes and other indicators

速等其他因素影响,造成水体中 $c(CO_2)$ 相近条件下, $CO_2$  通量也会出现较大差异 [5 月高阳、黄石表层水体 $c(CO_2)$  相接近,通量却差异较大,很有可能是因为风速影响了水-气界面 $CO_2$  的扩散],因此本研究主要分析水体 $CO_2$  通量与其他水环境指标的关系.

各指标对  $CO_2$  通量的影响在支干流存在较大差异,T、DO、DOC 和 DIC 对支流  $CO_2$  通量的影响显著, $NH_4^+$ -N则对干流  $CO_2$  通量影响显著. 这可能是因为通常情况下,支流流速相对缓慢,而干流流速较大,受水力扰动较强,大部分指标对  $CO_2$  通量的影响后支流更突出. 而 $NH_4^+$ -N对于  $CO_2$  通量的影响与藻类有很大的关系,监测期间干流万州、支流高阳和支流黄石的平均  $\rho(DTN)$  分别为(2.476 ± 0.607)、(1.115 ± 0.628) 和(1.139 ± 0.463)

 $mg \cdot L^{-1}$ ,干流总氮浓度超过国际公认富营养化阈值标准  $[\rho(TN) = 1.5 mg \cdot L^{-1}]$ ,对藻类繁殖的影响远大于支流,从而进一步显著影响了  $CO_2$  通量.

# 3 讨论

## **3.1** 支干流 CO<sub>2</sub> 通量对比

三峡水库蓄水后,三峡库区河流从天然河道变成了河道型及季调型水库,且三峡水库水动力特性在空间上存在显著的差异.三峡库区不同河流的CO<sub>2</sub>通量如表 2 所示.李双等<sup>[8]</sup>的研究表明梅溪河支流地区受干流顶托及地形限制,为浮游植物的生长创造了条件,水体光合作用得到增强,显著降低了水体中溶解 CO<sub>2</sub> 分压,库区支流因此表现为大气CO<sub>2</sub> 的"汇",而干流水体往往有着很高流速与湍流度,加速了水体中 CO<sub>2</sub> 分压向大气的扩散速率,因

此表现为明显的"源". 吴学谦等[9] 的研究发现夏季 三峡坝区干流 CO、释放通量明显高于支流草堂河 也是类似的原因. 程瑶等[10]的研究表明三峡库区3 月 CO, 通量表现为: 朱衣河支流 < 库区干流 < 草堂 河支流,推测是因为朱衣河与长江干流呈60°角,可 顺势汇入,而草堂河的流向为240°与长江干流相 逆,干流水体倒灌量大,对草堂河扰动较强不利于浮 游植物的形成从而影响 CO<sub>2</sub> 通量. 李哲等<sup>[24]</sup>的研究 表明三峡库中回水区澎溪河 CO。通量显著低于三 峡库尾回水区龙溪河,且由两方面造成:①澎溪河回 水区云阳段经过4 a 季节性调蓄后水体滞留时间较 长,为浮游植物生长创造了相对于龙溪河回水区更 为适宜的条件. ②龙溪河流域的污染负荷水平与淹 没陆域 SOM 和 STN 等重要指标均显著高于澎溪河 流域,有机污染负荷增加势必提高细菌对有机质的 降解,刺激龙溪河的温室气体通量水平总体上显著 高于澎溪河.

本研究中2019年4~9月三峡中段河流CO,通 量表现为: 澎溪河支流高阳 < 干流万州 < 澎溪河支 流黄石,推测主要由以下两点原因造成: ①DIC 和 DOC 都是表明水中含碳量的指标, DIC 包含许多无 机碳例如 CO<sub>2</sub>、H<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>、HCO<sub>3</sub><sup>-</sup> 和 CO<sub>3</sub><sup>2</sup> 等,DOC 则 为大部分细菌和微生物的代谢提供了有机碳源,从 元素转换和物质守恒角度来说,碳源对 CO。的影响 是最根本的.长江干流作为陆地生源要素向海洋输 送的重要枢纽,携带了大量流域内有机质,为最终转 化为 CO, 提供了重要碳源. 研究期间内高阳、黄石 和万州的水体平均ρ(DOC)分别为19.009、21.972 和 24. 187 mg·L<sup>-1</sup>, 平均 ρ(DIC) 分别为 10. 690、 11. 267 和 11. 732 mg·L<sup>-1</sup>,均表现为干流大于支流, 且万州段干流由于流速较大加强了水体 CO<sub>2</sub> 向大 气的扩散速率,这与大部分学者研究的干流 CO<sub>2</sub> 通 量通常大于支流结论相符. ②高阳平湖是澎溪河 145 m 回水区中段较具独特性的水域,其上游(养鹿杨家 坝-小江电站)、下游(代李子-牛栏溪)河段均为峡谷 型河道,高阳平湖水域则是在上述两峡谷之间水域面 积为4~5 km²的开阔水域,湖沼特征上近似于过水 型湖泊,流速相对缓慢,黄石点位虽然也位于澎溪河 支流,但其河道相对狭长,水流流速更快,更靠近干 流,且澎溪河支流与长江干流呈 180°夹角逆向汇入, 干流的回水顶托和倒灌作用明显,对黄石点位影响较 大,不利于浮游植物的形成,导致支流黄石点位水文 情势复杂,CO2浓度及通量高于干流万州.

# 3.2 影响因子探讨

# 3.2.1 气候因子

水温(T) 与  $CO_2$  通量的相关系数在支流中为

-0.776( Sig. <0.01),在干流相关性不显著. 国内外许多学者研究了水温对  $CO_2$  通量的影响: Rantakari 等<sup>[25]</sup>的研究表明较高的水温能提高微生物酶的活性,促进有机质加速分解,引起水体  $CO_2$  分压升高,增加水体  $CO_2$  向大气释放. 曹玉平等<sup>[26]</sup>的研究表明马岭河河口段的  $CO_2$  分压( $pCO_2$ ) 与水温相关性为 -0.57,表现为显著负相关(P<0.05). 赵登忠等<sup>[5]</sup>的研究表明隔河岩水库水体温度是影响水气界面  $CO_2$  交换的主要因素,呈现为反相关关系( $R^2=0.49$ ),且该水库夏季  $CO_2$  通量较低而秋冬季较高.

#### 表 2 三峡库区不同河流 CO, 通量

Table 2 CO2 fluxes of different rivers in the Three

Gorges Reservoir area				
研究地点	研究时间	CO <sub>2</sub> 通量 /mmol·( m <sup>2</sup> · d) <sup>-1</sup>	文献	
澎溪河支流高阳	4~9月	34.68		
澎溪河支流黄石	4~9月	74.832	本研究	
三峡万州段干流	4~9月	69.576		
梅溪河支流	5 月	-7.487	[8]	
三峡坝区干流	5 月	39.585	[0]	
草堂河支流	5~7月	14.13	[9]	
干流	5~7月	45.827	[9]	
朱衣河支流	3 月	-51.07		
草堂河支流	3 月	102.577	[10]	
毗邻干流	3 月	85.01		
澎溪河支流	2010~2011年	17.04	[24]	
龙溪河支流	2010~2011年	175.2	[4- <b>f</b> ]	

本研究认为水温对 CO<sub>2</sub> 通量的影响分为 3 个方面: ①温度会影响水中 CO<sub>2</sub> 的溶解度, CO<sub>2</sub> 溶解度随温度升高而降低,水温较高时溶解的 CO<sub>2</sub> 以气泡的形式逸出水面. ②DOC 为微生物代谢提供了有机碳,当温度较高时微生物活性增加,代谢增强使水体 CO<sub>2</sub> 浓度上升. ③水温较高时多为夏季,光照强度较强,藻类与水生植物光合作用吸收 CO<sub>2</sub> 释放氧气使得 CO<sub>2</sub> 浓度减少. 本文研究区域为光能资源丰富的三峡库区,且研究时间为 4~9 月春夏季水华期间,较强太阳辐射引发藻类强光合作用对 CO<sub>2</sub> 通量的影响可能占主导地位,使水温与 CO<sub>2</sub> 通量总体而言呈反相关.

# 3.2.2 水环境因子

支流 DO 与 CO<sub>2</sub> 通量相关性为 - 0.727( Sig. < 0.05),而支流 pH、干流 DO 和干流 pH 与 CO<sub>2</sub> 通量相关性不显著.本研究认为 DO 与 CO<sub>2</sub> 通量的关系主要受水生植物和水生生物活动的共同影响,可以进一步地理解为呼吸作用与光合作用的关系.一方面植物与微生物呼吸作用氧化分解有机物生成 CO<sub>2</sub>,另一方面植物的光合作用会将水中 CO<sub>2</sub> 转化为氧气,两者显然呈反向变动,文献 [16,27]有类似

的研究结果. 另外,水中的无机碳构成水体碳酸盐平衡( $CO_2 + H_2O \longrightarrow H_2CO_3 \longrightarrow H^+ + HCO_3^- \longrightarrow 2H^+ + CO_3^-$ ),理论上 pH 可以通过改变该平衡从而影响水体  $CO_2$  浓度.

## 3.2.3 碳源因子

DOC 和 DIC 与 CO<sub>2</sub> 通量相关性在支流分别为 0.734(Sig. < 0.01) 和 0.881(Sig. < 0.001),在干流相关性不显著. DIC 和 DOC 都是表明水中含碳量的指标,DIC 包含许多无机碳例如 CO<sub>2</sub> 和 H<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>等,DOC 则为大部分细菌和微生物代谢产生的 CO<sub>2</sub> 提供了有机碳源. 从元素转换和物质守恒角度来说,虽然碳素转化为 CO<sub>2</sub> 的途径受许多因素共同影响,但碳源对其影响是最根本的.

水体中 DIC 主要来源于 3 个方面 [28]: ①土壤  $CO_2$ (包括土壤有机质和硅酸盐分解); ②碳酸盐岩矿物; ③降雨输入,而大气降水中 DIC 含量通常很低(1~50  $\mu$ mol·L<sup>-1</sup>) [29],因此本研究忽略降水的贡献. 植物呼吸作用和土壤有机质分解产生  $CO_2$  时没有分馏现象产生,而当  $CO_2$  通过土壤气孔时,由于  $^{1}$ 它 和  $^{1}$ 它 的扩散系数有差异,从而导致  $^{1}$ 它 大量富集  $^{[28]}$ ,因此可通过  $\delta^{13}$ C 来确定库区水体碳来源. 本课题组团队在 2020 年 6 月监测了三峡库区水体的  $\delta^{13}$ C  $_{DIC}$ 、 $\delta^{13}$ C  $_{DOC}$ 、 $\rho$ (DIC) 和  $\rho$ (DOC) (另文数据),其变化范围分别为 -8.57%~ -6.60%~ -28.20%~ -24.12%~ 94.28~ 126.73  $mg·L^{-1}$  和 1.31 ~ 2.57  $mg·L^{-1}$ ,平均值分别为 -7.22%~ -27.10%~ 113.11  $mg·L^{-1}$ 和 1.74  $mg·L^{-1}$ . 库区水体 DIC 来源贡献可根据  $^{12}$ C 质量平衡原则计算:

$$\delta^{13}C_{car} \times R_{c} - \delta^{13}C_{CO_{2}} \times R_{s} = \delta^{13}C_{DIC}$$
 (9)  
$$R_{c} + R_{s} = 1$$
 (10)

式中, $\delta^{13}C_{car}$ 、 $\delta^{13}C_{Co_2}$ 和  $\delta^{13}C_{DIC}$  依次表示碳酸盐岩溶解、土壤  $CO_2$  和库区水体的  $\delta^{13}C$  值; $R_c$  和  $R_s$  分别表示碳酸盐矿物和土壤产生的 DIC 所占比例,取土壤的年均  $\delta^{13}C_{DIC}$  值约为  $-17com^{[30,31]}$ 、碳酸盐溶解形成的 DIC 同位素值为  $0cm^{[32]}$ . 计算得到土壤  $CO_2$  和碳酸盐岩对三峡库区水体 DIC 贡献占比分别为 42. 98%和 57. 02%,且支流碳酸盐岩的贡献度平均值为 50. 15%,明显低于干流 58. 74%,很可能是由于长江干流流速较大带来的沉积岩冲刷效应导致.

水库河流 DOC 可以分为外源 DOC 和内源 DOC,外源 DOC 的主要输入途径有降雨径流带来的土壤侵蚀、岸线污水输入等,而内源 DOC 一般指的是 POC 的降解产物等  $^{[33,34]}$ . 三峡库区水体  $\delta^{13}C_{DOC}$  组成的分布范围为 -28.20% -24.12%,河岸土壤  $\delta^{13}$   $C_{DOC}$  组成的分布范围为 -28.9%  $\sim$ 

 $-24.3\%^{[35]}$ ,重叠区域基本处于土壤有机质的优势范围内,反映库区水体 DOC 主要来源于土壤有机质侵蚀. 污水厂出厂生活污水的  $\delta^{13}C_{DOC}$ 范围一般为  $-25\%\sim-27\%$ ,表明生活污水排放也是 DOC 的重要贡献源. 而水体 DOC 含量与 POC 含量、 $\delta^{13}C_{POC}$ 并无显著相关性,证明 POC 的转化不是三峡库区水体 DOC 的主要来源.

## 3.2.4 营养因子

在干流,NH<sub>4</sub>+N与CO<sub>2</sub>通量相关系数为0.886 (Sig. < 0.05), NO, -N、DTN 和 DTP 与 CO, 通量相 关性不显著; 而在支流,所有营养指标与 CO, 通量 相关性均不显著. 监测期间干流万州平均  $\rho$ ( DTN) 为(2.476 ± 0.607) mg·L<sup>-1</sup>, 富营养化状态的水体给 浮游植物的加速繁殖提供了有利条件. 本研究认为 浮游植物对 CO, 通量表现为促进或抑制主要取 决于以下两方面:一是水体总光合作用和总呼吸 作用的强度差,二是浮游植物的存活状态.一般 认为藻类能够通过初级生产固定大量 CO2 成为 水体的碳汇,富营养化通过增加藻类生物量促进 碳汇也有报道[36,37]. 但这些研究只关注了藻类生 长阶段所固定的 CO,,忽视了藻类死亡被细菌分 解后所释放的 CO<sub>2</sub>、CH<sub>4</sub>. 秦宇等<sup>[38]</sup> 在高阳平湖 的原位实验研究表明,水华期间采集的大部分水 样从第2d开始水中藻类逐渐死亡,沉积在实验 桶的底部或附着在侧面,淤积的藻类尸体为微生 物代谢提供了充足的有机物,藻类越多产生的温 室气体就越多.

Huttunen 等<sup>[39]</sup>的研究通过对芬兰不同营养水平的湖泊调查发现,富营养湖泊 CO<sub>2</sub> 的释放量变化幅度很大,且其中大多数比贫营养、中营养湖泊的 CO<sub>2</sub> 释放量都多. 水体中生源物质浓度改变,会影响水生植物初级生产力和浮游生物新陈代谢过程,从而间接影响水体中 CO<sub>2</sub> 浓度和水气界面 CO<sub>2</sub> 释放通量<sup>[40]</sup>. 张丽华等<sup>[41]</sup>的研究也表明,氮素输入加强水生态系统 CO<sub>2</sub> 的释放强度.

# 3.2.5 沉积物因子

本研究中沉积物因子与 CO<sub>2</sub> 通量的相关性在支干流均不显著,但理论上沉积物释放的 CH<sub>4</sub> 可能对水体 CO<sub>2</sub> 有一定的影响. 水体中的 CH<sub>4</sub> 来自水底淤泥中厌氧环境下的产甲烷菌,通过植物传输、气泡排放和扩散等方式进入大气<sup>[41]</sup>. 底泥有机碳在厌氧分解时会为产甲烷菌提供反应底物: 乙酸和 H<sub>2</sub>/CO<sub>2</sub>,一般认为沉积物有机碳含量与CH<sub>4</sub>产量呈正相关性<sup>[42]</sup>. Bastviken 等<sup>[43]</sup>的研究发现,沉积物产生的 CH<sub>4</sub> 通过扩散方式上升到水面

的过程中,大部分 CH<sub>4</sub> 被甲烷氧化菌氧化,文献 [44] 也有类似的研究结论. 基于上述学者的研究 结论可以推测出,当沉积物 TOC 含量越高产生的 CH<sub>4</sub> 越多,而甲烷在上升过程被甲烷氧化菌大量 氧化,导致水环境因子中的 DO 减少,最终影响 CO,通量.

## 3.3 水-气界面 CO, 通量影响机制初探

相关性分析能很好地表现各指标分别与 CO<sub>2</sub> 通量的相关程度,但难以较全面地表明其对 CO<sub>2</sub> 通量的贡献大小,本研究采用随机森林算法计算各指标对 CO<sub>2</sub> 通量的贡献率,即特征重要性评估,其实质即计算每个特征在随机森林中的每颗决策树上的贡献值.在 Python3.6 编程软件中(软件框架为基于 Keras 深度学习工具的 Tensorflow 框架),从 skleam 库里调用 RandomForestClassifier 算法,对相关指标及 CO<sub>2</sub> 通量进行敏感因子路径解析,可得到各指标

对其重要性百分比.

随机森林算法中,自变量数据集间的自相关性越大,随机森林的错误率越高,因此需要适当筛选独立特征. T、DO、DOC、DIC 和NH<sub>4</sub><sup>+</sup>-N与 CO<sub>2</sub> 通量呈显著相关,但 DOC 与 DIC 自相关性过高,考虑到DIC 相较于 DOC 是 CO<sub>2</sub> 更直接的来源,保留 T、DO、DIC 和NH<sub>4</sub><sup>+</sup>-N. 考虑到微生物通常以 5:1的比例进行代谢 N 和 P,增加 DTP 指标. 沉积物因子与CO<sub>2</sub> 通量相关性不显著,但 3.2.5 节分析表明沉积物中 TOC 对 CO<sub>2</sub> 通量可能存在一定的影响,故增加沉积物 TOC 指标. 将 T、DO、DIC、NH<sub>4</sub><sup>+</sup>-N、DTP 和沉积物中 TOC 这 6 个指标作为自变量,CO<sub>2</sub> 通量作为因变量输入随机森林算法,得到这 6 个指标对CO<sub>2</sub> 通量的贡献百分比分别为: 18.81%、13.49%、27.25%、22.58%、9.79% 和 8.08%,将所有分析整理后绘制图 4.

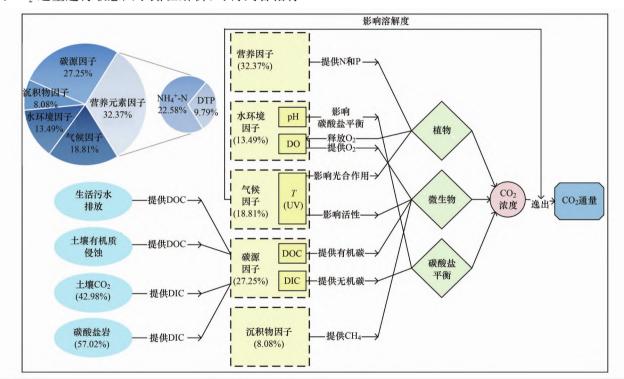


图 4 三峡库区水-气界面 CO<sub>2</sub> 通量影响机制

Fig. 4 Influence mechanism of CO<sub>2</sub> fluxes at the water-gas interface in the Three Gorges reservoir area

生活污水排放和土壤有机物侵蚀、土壤 CO<sub>2</sub> 和碳酸盐岩分别为三峡库区水体提供了 DOC 和 DIC 的主要来源,为水体 CO<sub>2</sub> 排放提供物质基础,而其余4类因子通过影响藻类植物光合作用、细菌微生物代谢作用和碳酸盐电离平衡这3条途径从而影响水体 CO<sub>2</sub> 浓度,气候因子还可以影响 CO<sub>2</sub> 的溶解度从而影响水-气界面 CO<sub>2</sub> 通量. 营养元素因子和碳源因子对 CO<sub>2</sub> 通量的贡献百分比分别为 32. 37% 和 27. 25%,总占比过半,之后依次为气候因子、水环

境因子和沉积物因子,分别为 18.81%、13.49% 和 8.08%. 这表明水库 CO<sub>2</sub> 的排放控制可以着重从控制水体富营养化和控制碳来源入手,全球变暖和底泥淤积等宏观现象也会对 CO<sub>2</sub> 通量有一定的影响.

## 4 结论

(1) 监测期间内高阳、黄石和万州平均  $CO_2$  通量为(1.445 ± 1.739)、(3.118 ± 2.963)和(2.899 ± 1.144)  $mmol \cdot (m^2 \cdot h)^{-1}$ ,表现为: 澎溪河支流高阳

- <干流万州<澎溪河支流黄石.从变化幅度来看,支流水体 CO<sub>2</sub> 的浓度和通量变幅较大,干流水体变化幅度则相对较小,是较稳定的 CO<sub>2</sub> "源".
- (2) 相关性分析表明,各指标对  $CO_2$  通量的影响在支干流存在较大差异,T、DO、DOC 和 DIC 对支流  $CO_2$  通量的影响显著, $NH_4^+$ -N对干流  $CO_2$  通量影响显著.
- (3)由于长江干流碳含量和流速一般比支流更高,通常情况下干流 CO<sub>2</sub>通量大于支流.但水文情势的不同使得同一支流不同点位 CO<sub>2</sub>通量具有明显空间差异,支流高阳点位位于库湾处利于浮游植物生长使 CO<sub>2</sub>通量较低,支流黄石点位位于流速较快的河道,受干流回水顶托和倒灌作用使 CO<sub>2</sub>通量显著大于干流万州点位.
- (4) 营养元素因子和碳源因子对 CO<sub>2</sub> 通量的贡献率分别为 32.37% 和 27.25%,总占比过半,其后依次为气候因子、水环境因子和沉积物因子,分别为 18.81%、13.49% 和 8.08%,这表明水库 CO<sub>2</sub> 的排放控制可以着重从控制水体富营养化和控制碳来源入手,全球变暖、底泥淤积等宏观现象也会对水库 CO<sub>2</sub> 排放有一定的影响.

### 参考文献:

- [1] Rudd J W M, Harris R, Kelly C A, et al. Are hydroelectric reservoirs significant sources of greenhouse gases? [J]. AMBIO, 1993, 22(4): 246–248.
- [2] 杨正健, 刘德富, 纪道斌, 等. 防控支流库湾水华的三峡水库潮汐式生态调度可行性研究 [J]. 水电能源科学, 2015, 33(12): 48-50, 109.

  Yang Z J, Liu D F, Ji D B, et al. Feasibility study on tide-type ecological operation method to control algal bloom in tributaries of Three Gorges Reservoir [J]. Water Resources and Power, 2015,

**33**(12): 48-50, 109.

- [3] 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[J]. 中国科学: 物理学 力学 天文学, 2010, 40 (1): 101-112.

  Ji D B, Liu D F, Yang Z J, et al. Hydrodynamic characteristics of Xiangxi bay in Three Gorges Reservoir [J]. Scientia Sinica (Physica, Mechanica & Astronomica), 2010, 40 (1): 101-
- [4] 秦宇, 苏友恒, 李哲, 等. 三峽水库中段库底水体 CH<sub>4</sub> 浓度变化及其主要影响因素 [J]. 湖泊科学, 2021, **33**(1): 299-308. Qin Y, Su Y H, Li Z, *et al*. CH<sub>4</sub> variation and main influencing factors of bottom water column in the middle section of Three Gorges Reservoir [J]. Journal of Lake Sciences, 2021, **33**(1): 299-308.
- [5] 赵登忠,谭德宝,李翀,等。隔河岩水库二氧化碳通量时空变化及影响因素[J]. 环境科学, 2017, 38(3): 954-963.

  Zhao D Z, Tan D B, Li C, et al. Tempo-spatial variations and influential factors of carbon dioxide emissions from the Geheyan Reservoir over the Qingjiang River basin, China [J]. Environmental Science, 2017, 38(3): 954-963.
- [6] 秦宇, 蒋成勇, 张渝阳, 等. 三峡水库不同运行工况下中段 干流碳源气体释放通量研究[J]. 重庆大学学报, 2020, **43** (8): 97-106.

- Qin Y, Jiang C Y, Zhang Y Y, et al. Study on the release fluxes of carbon source gases under different operating conditions in the middle reach of the main stream of the Three Gorges Reservoir [J]. Journal of Chongqing University, 2020, 43(8): 97–106.
- [7] 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[J]. 环境科学, 2012, **33**(5): 1471-1475. Wang L, Xiao S B, Liu D F, *et al.* Fluxes of greenhouse gases from Xiangxi River in summer and their influencing factors [J]. Environmental Science, 2012, **33**(5): 1471-1475.
- [8] 李双,王雨春,操满,等.三峡库区库中干流及支流水体夏季二氧化碳分压及扩散通量[J].环境科学,2014,35(3):885-891.
  - Li S, Wang Y C, Cao M, et al. Partial pressure and diffusion flux of dissolved carbon dioxide in the mainstream and tributary of the central Three Gorges Reservoir in summer  $[\mathtt{J}]$ . Environmental Science, 2014, 35(3): 885–891.
- [9] 吴学谦,操满,傅家楠,等. 三峡水库夏季干流、支流( 草堂河) 水体的二氧化碳分压及扩散通量 [J]. 上海大学学报( 自然科学版), 2015, **21**(3): 311-318.

  Wu X Q, Cao M, Fu J N, *et al.* Partial pressure and diffusion flux of dissolved carbon dioxide in the main stream of the Three Gorge Reservoir and the Caotang River in summer [J]. Journal of Shanghai University ( Natural Science), 2015, **21**(3): 311-318
- [10] 程瑶,王雨春,胡明明. 三峡水库支流水文情势差异对水气 界面二氧化碳释放通量特征的影响[J]. 生态学杂志, 2017, 36(1): 216-223.

  Cheng Y, Wang Y C, Hu M M. Influence of different water regimes of tributaries in Three Gorges Reservoir on air-water interface CO<sub>2</sub> fluxes [J]. Chinese Journal of Ecology, 2017, 36 (1): 216-223.
- [11] 国家环境保护总局. 水和废水监测分析方法 [M]. (第四版). 北京: 中国环境科学出版社, 2002. 243-285.
- [12] 鲁如坤. 土壤农业化学分析方法[M]. 北京: 中国农业科学技术出版社,1999.
- [13] United Nations Educational, Scientific and Cultural Organization, International Hydropower Association. GHG measurement guidelines for freshwater reservoirs [M]. Paris: United Nations Educational, Scientific and Cultural Organization, International Hydropower Association, 2010.
- [14] Weiss R F. Carbon dioxide in water and seawater: the solubility of a non-ideal gas [J]. Marine Chemistry, 1974, 2(3): 203-215.
- [15] 秦宇,杨博逍,李哲,等. 夏季金沙江下游水-气界面 CO<sub>2</sub>、CH<sub>4</sub> 通量特征初探[J]. 湖泊科学, 2017, **29**(4): 991-999. Qin Y, Yang B X, Li Z, *et al.* CO<sub>2</sub> and CH<sub>4</sub> flux across waterair interface in summer in the downstream of Jinsha River, Southwest China [J]. Journal of Lake Sciences, 2017, **29**(4): 991-999.
- [16] 秦字,王紫薇,李哲,等. 三峡水库澎溪河水-气界面 CO<sub>2</sub> 与 CH<sub>4</sub> 通量特征及影响因素初探 [J]. 地球环境学报, 2019, **10**(2): 177-189. Qin Y, Wang Z W, Li Z, *et al*. CO<sub>2</sub> and CH<sub>4</sub> flux across waterair interface and environmental factors in Pengxi River of the Three Gorges Reservoir [J]. Journal of Earth Environment,
- [17] Jähne B, Libner P, Fischer R, et al. Investigating the transfer processes across the free aqueous viscous boundary layer by the controlled flux method [J]. Tellus B: Chemical and Physical Meteorology, 1989, 41(2): 177-195.

2019, **10**(2): 177–189.

[18] Cole J J, Caraco N F. Atmospheric exchange of carbon dioxide in

- a low-wind oligotrophic lake measured by the addition of  $SF_6$  [J]. Limnology and Oceanography, 1998, 43(4):647-656.
- [19] 王雨潇. 三峡库区万州段干流、典型支流 CO<sub>2</sub>、CH<sub>4</sub> 通量变化特征研究 [D]. 重庆: 重庆交通大学, 2020.
  Wang Y X. Study on the variation characteristics of CO<sub>2</sub> and CH<sub>4</sub> fluxes in the main stream and typical tributaries of Wanzhou section of the Three Gorges Reservoir [D]. Chongqing: Chongqing Jiaotong University, 2020.
- [20] 王川隘. 三峡库区风效应下的船舶操纵运动数值模拟研究 [D]. 重庆: 重庆交通大学, 2019. Wang C A. Numerical simulation of ship maneuvering with wind effect in Three Gorges reservoir area [D]. Chongqing: Chongqing Jiaotong University, 2019.
- [21] Wanninkhof R. Relationship between wind speed and gas exchange over the ocean [J]. Journal of Geophysical Research: Oceans, 1992, 97(C5): 7373–7382.
- [22] Roehm C L, Prairie Y T, Giorgio P A D. The pCO<sub>2</sub> dynamics in lakes in the boreal region of northern Québec, Canada [J]. Global Biogeochemical Cycles, 2009, 23(3), doi: 10.1029/ 2008GB003297.
- [23] Andersen C B. Understanding carbonate equilibria by measuring alkalinity in experimental and natural systems [J]. Journal of Geoscience Education, 2002, 50(4): 389-403.
- [24] 李哲, 白镭, 郭劲松, 等. 三峡水库两条支流水-气界面 CO<sub>2</sub>、CH<sub>4</sub> 通量比较初探 [J]. 环境科学, 2013, **34**(3): 1008–1016.

  Li Z, Bai L, Guo J S, *et al.* Comparative study on water-air CO<sub>2</sub>, CH<sub>4</sub> flux in two tributaries in the Three Gorges Reservoir, China [J]. Environmental Science, 2013, **34**(3): 1008–1016.
- [25] Rantakari M, Kortelainen P. Interannual variation and climatic regulation of the CO<sub>2</sub> emission from large boreal lakes [J]. Global Change Biology, 2005, 11(8): 1368-1380.
- [26] 曹玉平, 焦树林, 邓飞艳, 等. 马岭河河口段水-气界面二氧化碳排放特征 [J]. 环境科学与技术, 2018, **41**(12): 195–199, 205.

  Cao Y P, Jiao S L, Deng F Y, et al. Characteristics of air-water CO<sub>2</sub> exchange in estuary of Malinghe River [J]. Environmental Science & Technology, 2018, **41**(12): 195–199, 205.
- [27] 罗佳宸,毛瑢,李思悦. 三峡库区主要河流秋季 pCO<sub>2</sub> 及其影响因素 [J]. 环境科学,2018,**39**(7):3134-3141. Luo J C, Mao R, Li S Y. pCO<sub>2</sub> in the main rivers of the Three Gorges Reservoir and its influencing factors [J]. Environmental Science, 2018, **39**(7):3134-3141.
- [28] Li X D, Liu C Q, Liu X L, et al. Identification of dissolved sulfate sources and the role of sulfuric acid in carbonate weathering using dual-isotopic data from the Jialing River, Southwest China [J]. Journal of Asian Earth Sciences, 2011, 42 (3): 370-380.
- [29] 李甜甜,季宏兵,江用彬,等. 赣江上游河流水化学的影响 因素及 DIC 来源 [J]. 地理学报,2007,62(7):764-775. Li T T, Ji H B, Jiang Y B, et al. Hydro-geochemistry and the sources of DIC in the upriver tributaries of the Ganjiang River [J]. Acta Geographica Sinica, 2007,62(7):764-775.
- [30] Conley D J. Biogeochemical nutrient cycles and nutrient management strategies [J]. Hydrobiologia, 1999, 410: 87-96.
- [31] Zhang J, Zhang Z F, Liu S M, et al. Human impacts on the large world rivers: Would the Changjiang (Yangtze River) be an illustration? [J]. Global Biogeochemical Cycles, 1999, 13(4): 1099–1105
- [32] 李思亮, 刘丛强, 丁虎, 等. 8<sup>13</sup>C-DIC 在河流风化和碳生物 地球化学过程中的应用[J]. 地球环境学报, 2012, **3**(4):

- 929-935
- Li S L, Liu C Q, Ding H, *et al*. The application of  $\delta^{13}$ C-DIC on weathering and biogeochemical processes of carbon in rivers [J]. Journal of Earth Environment, 2012, **3**(4): 929–935.

43 卷

- [33] 邱雨生, 陈敏, 黄奕普, 等. 南极普里兹湾及其邻近海域溶解有机碳的分布[J]. 海洋学报, 2004, **26**(3): 38-46. Qiu Y S, Chen M, Huang Y P, et al. Distribution of dissolved organic carbon in and near the Prydz Bay, Antarctica [J]. Acta Oceanologica Sinica, 2004, **26**(3): 38-46.
- [34] 王保栋,王桂云,郑昌洙,等. 南黄海冬季生源要素的分布特征[J]. 黄渤海海洋,1999, 17(1): 40-45.
  Wang B D, Wang G Y, Zheng Z C, et al. Distribution features of bioactive elements in seawater in the southern Yellow Sea in winter [J]. Journal of Oceanography of Huanghai & Bohai Seas, 1999, 17(1): 40-45.
- [35] Wu Y, Zhang J, Liu S M, et al. Sources and distribution of carbon within the Yangtze River system [J]. Estuarine, Coastal and Shelf Science, 2007, 71(1-2): 13-25.
- [36] Trolle D, Staehr P A, Davidson T A, et al. Seasonal dynamics of CO<sub>2</sub> flux across the surface of shallow temperate lakes [J]. Ecosystems, 2012, 15(2): 336-347.
- [37] Anderson N J, Bennion H, Lotter A F. Lake eutrophication and its implications for organic carbon sequestration in Europe [J]. Global Change Biology, 2014, 20(9): 2741-2751.
- [38] 秦宇, 张渝阳, 李哲, 等. 三峡澎溪河水华期间水体 CH<sub>4</sub> 浓度及其通量变化特征初探 [J]. 环境科学, 2018, **39**(4): 1578-1588.

  Qin Y, Zhang Y Y, Li Z, et al. CH<sub>4</sub> fluxes during the algal bloom in the Pengxi River [J]. Environmental Science, 2018, **39**(4): 1578-1588.
- [39] Huttunen J T, 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 [J]. Chemosphere, 2003, 52(3): 609-621.
- [40] 杨平, 仝川, 何清华, 等. 闽江口鱼虾混养塘水-气界面温室气体通量及主要影响因子 [J]. 环境科学学报, 2013, 33 (5): 1493-1503.

  Yang P, Tong C, He Q H, et al. Greenhouse gases fluxes at water-air interface of aquaculture ponds and influencing factors in the Min River estuary [J]. Acta Scientiae Circumstantiae, 2013, 33(5): 1493-1503.
- [41] 张丽华,宋长春,王德宣. 氮输入对沼泽湿地碳平衡的影响 [J]. 环境科学, 2006, **27**(7): 1257-1263.

  Zhang L H, Song C C, Wang D X. Effects of nitrogen fertilization on carbon balance in the freshwater marshes [J]. Environmental Science, 2006, **27**(7): 1257-1263.
- 42] 李玲玲,薛滨,姚书春. 湖泊沉积物甲烷的产生和氧化研究的意义及应用[J]. 矿物岩石地球化学通报,2016,35(4):634-645.

  Li L L, Xue B, Yao S C. The significance and application of the research on production and oxidation of methane in lake sediments [J]. Bulletin of Mineralogy, Petrology and
- Bastviken D, Ejlertsson J, Tranvik L. Measurement of methane oxidation in lakes: a comparison of methods [J]. Environmental Science & Technology, 2002, 36(15): 3354-3361.

Geochemistry, 2016, 35(4): 634-645.

[44] 秦宇,黄璜,李哲,等. 内陆水体好氧甲烷氧化过程研究进展[J]. 湖泊科学, 2021, 33(4): 1004-1017.

Qin Y, Huang H, Li Z, et al. Research progress of aerobic methane oxidation process in inland waters [J]. Journal of Lake Sciences, 2021, 33(4): 1004-1017.