雅鲁藏布江河水中 CH_4 和 N_2O 气体浓度及释放特征

叶润成[1,2] 吴起鑫[1] 赵志琦[2] 胡 健[2] 崔丽峰[2] 丁 虎[2,3*]

([1]贵州大学国土资源部喀斯特环境与地质灾害重点实验室, 贵阳 550025; [2]中国科学院地球化学研究所环境地球化学国家重点实验室, 贵阳 550081; [3] University of Glasgow, Glasgow G12 8QQ, Scotland, UK)

摘 要 河流向大气释放大量温室气体,是陆地生态系统物质循环和能量流动的重要环节。山地河流是温室气体排放的热点区域,但迄今山地河流 CH_4 和 N_2O 释放方面的研究较少。为探究高原中大型河流 CH_4 和 N_2O 浓度的时空分布特征及其影响因素,对雅鲁藏布江(雅江)干流和主要支流河水中 CH_4 和 N_2O 气体进行了季节性采样分析。结果表明,雅江河水中 CH_4 含量为 2.3~864.9 nmol·L^{-1},N_2O 含量为 8.2~23.7 nmol·L^{-1},枯水期 CH_4 含量和丰水期无显著差异($P=0.112$),但枯水期 N_2O 含量显著高于丰水期($P=0.017$),流量和水温可能分别是影响 CH_4 和 N_2O 变化的主要因子。雅江河水 CH_4 和 N_2O 的释放速率分别为 4.3~11.1 mg C·m^{-2}·d^{-1}和 0.16~0.37 mg N·m^{-2}·d^{-1},排放量分别为 1.88~4.59 Gg C·a^{-1}和 0.07~0.16 Gg N·a^{-1},分别约占全球河流 CH_4 和 N_2O 释放量的 1.25‰~3.06‰和 2.17‰~4.96‰。山地河流 CH_4 和 N_2O 的排放需要引起重视,全球河流温室气体释放可能需要进行重新评估。

关键词 河流; 甲烷(CH_4); 氧化亚氮(N_2O); 气体通量; 影响因素

Concentrations and emissions of dissolved CH_4 and N_2O in the Yarlung Tsangpo River.

YE Run-cheng[1,2], WU Qi-xin[1], ZHAO Zhi-qi[2], HU Jian[2], CUI Li-feng[2], DING Hu[2,3*] ([1]*Key Laboratory of Karst Environment and Geohazard, Ministry of Land and Resources, Guizhou University, Guiyang* 550025, *China*; [2]*State Key Laboratory of Environmental Geochemistry, Institute of Geochemistry, Chinese Academy of Sciences, Guiyang* 550081, *China*; [3]*University of Glasgow, Glasgow G12 8QQ, Scotland, UK*).

Abstract: Rivers release large quantities of greenhouse gases into the atmosphere, which is an important link in the material cycling and energy flow of terrestrial ecosystems. Mountainous rivers are 'hotspots' for greenhouse gas emission, but the release of CH_4 and N_2O from those rivers has been less documented. To explore the spatio-temporal distributions and related controls of CH_4 and N_2O in middle-large plateau rivers, the seasonal variations of CH_4 and N_2O in tributary and main stream of the Yarlung Tsangpo River were examined. The results showed that the ranges of CH_4 and N_2O concentrations in the Yarlung Tsangpo were 2.3-864.9 and 8.2-23.7 nmol·L^{-1}, respectively. There was no significant difference in CH_4 concentrations between low-flow and high-flow periods ($P=0.112$), but the N_2O contents were higher in low-flow months than in high-flow months ($P=0.017$). River water discharge and water temperature were the major factors controlling the dynamics of CH_4 and N_2O emission, respectively. The release rates of CH_4 and N_2O in the Yarlung Tsangpo River ranged 4.3-11.1 mg C·m^{-2}·d^{-1} and 0.16-0.37 mg N·m^{-2}·d^{-1}, respectively. The emission amounts of CH_4 and N_2O in Yarlung Tsangpo River system were 1.88-4.59 Gg C·a^{-1} and 0.07-0.16 Gg N·a^{-1}, accounting for 1.25‰-3.06‰ and

国家自然科学基金国际(地区)合作与交流项目(41661144042)资助。
收稿日期: 2018-10-16 接受日期: 2018-11-14
*通讯作者 E-mail: dinghu@vip.skleg.cn

2.17‰-4.96‰ of global river estimations, respectively. The evasion of CH_4 and N_2O in mountainous rivers need further detailed studies, which may revise the global estimation of greenhouse gas emission.

Key words: river; CH_4; N_2O; gas flux; influencing factor.

河流是重要的温室气体排放场所(Strom *et al.*, 2007),但以往研究主要关注河水二氧化碳(CO_2)释放(Raymond *et al.*, 2012),甲烷(CH_4)和氧化亚氮(N_2O)研究相对较少(Seitzinger *et al.*, 2000; Upstill-Goddard *et al.*, 2000),而二者在大气中的长期增温潜势分别为 CO_2 的 25 倍和 298 倍(Strom *et al.*, 2007),对温室效应的贡献分别达20%和6%(Barrie *et al.*, 2009)。全球河水 CH_4 和 N_2O 的年排放量达 1.5 Tg C、32.2 Gg N(Bastviken *et al.*, 2011; Hu *et al.*, 2016; Stanley *et al.*, 2016),河水 CH_4 和 N_2O 释放需要引起更多重视。

山地占地球陆地面积的 25%,其水资源蕴藏量占全球的 30%以上(Meybeck *et al.*, 2001),且山地河流的水动力条件及风力条件复杂,气体交换系数变化范围较大(Schelker *et al.*, 2017),是河水温室气体释放的热点区域。此外,现今大部分 CH_4 研究主要集中在热带地区河流,对亚热带,特别是对高纬度地区河流的研究较少(王晓锋等, 2017)。针对 N_2O 的研究多聚焦于湿地生态系统、河口-河湾-近海等水生系统(杨丽标等, 2015),以及氮负荷较高的污染河流(Liu *et al.*, 2015),而山地河流的系统研究则太少。

河流中 CH_4 来源众多,如湿地、泛洪区、土壤及地下水等,因此河流在不严格的厌氧环境中可能仍具有较高的 CH_4 浓度(Stanley *et al.*, 2016)。研究表明,CH_4 浓度受到降雨、径流、洪水、流量、流速等因子的影响(Salimon *et al.*, 2013),从高纬度溪流(Billett *et al.*, 2013)到热带和亚热带河流(Anthony *et al.*, 2012),CH_4 浓度与河流流量均呈负相关关系,表现出明显的流量稀释效应(王晓锋等, 2017)。同样,河流中 N_2O 的来源也受到众多因素的影响。河流中 N_2O 的产生及释放是一个复杂的动态过程(赵炎等, 2011),水环境参数、氮负荷水平及其赋存形态、河流中水电站蓄水调节方式和河流自身特性等均对河流 N_2O 的排放产生一定程度的影响(吕鑫等, 2018)。pH 也是河流水环境演变的重要参数,与水体微生物活动、有机质的分解、生物代谢等关系密切,对反硝化速率具有重要影响,也是影响水体中 CH_4 和 N_2O 的重要控制因素(王亮等, 2012)。

雅鲁藏布江属于典型的山地环境大型河流,水文特征受季风控制,流域降雨的时空差异较大,物理、化学风化作用强烈(Hren *et al.*, 2007; Manaka *et al.*, 2015),是全球气候变化的敏感地区,在全球气候变化研究中具有重要意义。Qu 等(2017)的研究表明,雅鲁藏布江河水温室气体释放速率较高,可能在全球河流温室气体排放中占重要地位。但该研究没有考虑季节变化,并且没有评估其释放气体的总量。本研究以雅鲁藏布江干流和主要支流为研究对象,对流域河水的 CH_4 和 N_2O 浓度的时空变化特征及其主控因素进行了分析,并对河水和大气间 CH_4 和 N_2O 和气体的交换速率以及水面释放气体释放量进行了估算,以期为区域和全球河流温室气体释放等相关研究提供基础数据和理论依据。

1 研究区域与研究方法

1.1 研究区域概况

雅鲁藏布江发源于西藏南部喜马拉雅山北麓的杰马央宗冰川,自西向东流经青藏高原南部,绕过喜马拉雅山脉最东端的南迦巴瓦峰转向南流。流域地处构造运动活跃地带,流域面积(我国境内部分)为 651300 km^2。河源区海拔 5590 m,中上游(图 1 羊村水文站往上)海拔 3000 m 以上,自中国出境后则下降至 500 m 左右。流域内气候多样,中上游区域是以寒冷、干燥且降水量较小为特征的高原气候,以下为雨量充沛的雨林气候。流域内土地利用差异显著,上游区域(图 1 中拉孜水文站往上)以耐寒耐旱的稀疏草地和灌木植被覆盖为主,下游以森林为主(Ray *et al.*, 2015)。

1.2 研究方法

1.2.1 样品采集与分析 本次采样于 2017 年 6 月和 9 月进行,分别代表枯水期河丰水期样品。沿雅鲁藏布江干流及其主要支流采集河水样品共 52 件。研究区域和采样点位置如图 1 所示。

用 WTW 便携式水质参数仪在现场对河流的水温(T)、pH 值、溶解氧(DO)等参数进行测定。采用顶空瓶(Labco)现场采集 CH_4 和 N_2O 气体(Wallin

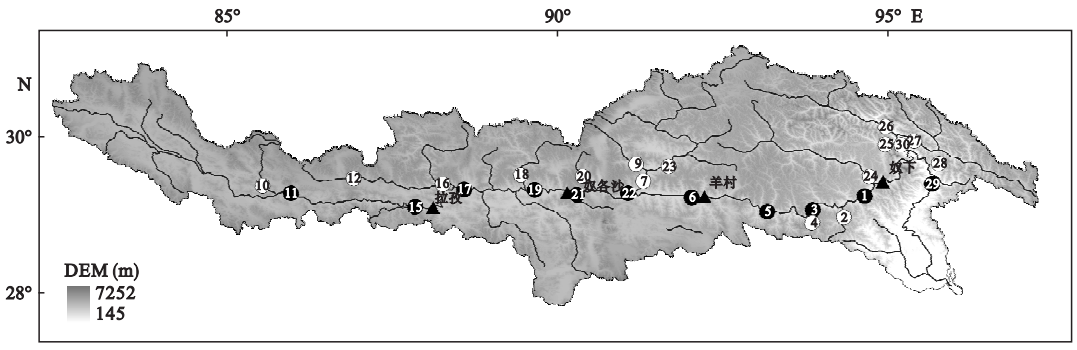


图 1 雅鲁藏布江 CH_4 和 N_2O 气体采样点示意图

Fig.1 Sampling sites of CH_4 and N_2O gas in the Yarlung Tsangpo River

圆圈和三角分别为采样点和主要水文站,其中实心和空心分别代表干流和支流,支流样点:2、4、7、9、10、12、16、18、20、23、24、25、26、27、28 对应的河流名称分别为:里龙、金东曲、拉萨河、堆龙曲、加大藏布、多雄藏布、多雄藏布、美雅江、日啊曲、拉萨河、尼洋河、拉月曲、易贡藏布、帕隆藏布和嘎弄曲。

et al.,2011; Halbedel,2015)。流程简述如下:使用 60 mL 的聚丙烯注射器采集水面 10 cm 下水体 30 mL,利用三通器注入 30 mL 的高纯氮气,形成水:氮气为 1∶1(体积比)顶空;之后将注射器用力在水面下摇动 1 min,使气体在水与顶间达到平衡。用连接在三通上的另一支针管抽取顶空气体取 25 mL,将所有气体注入已经预先抽真空的顶空瓶中,尔后带回实验室待测。利用中国科学院地球化学研究所实验室的气相色谱(Agilent Technologies 7890A)进行 CH_4 和 N_2O 浓度分析,测量精度为 0.01 ppmv。基于顶空气体比率,及注入真空瓶中顶空气体的量,根据亨利定律计算出样品的 CH_4 和 N_2O 含量(Halbedel,2015)。

1.2.2 气体交换速率估算 根据水-气界面气体释放理论扩散模型对水-气界面气体交换速率进行估算,具体的估算公式为:

$$F=k\cdot(C_w-C_0) \quad (1)$$

F 为水气界面气体交换速率,单位为 μmol·m^{-2}·d^{-1},$F>0$ 表示水体向大气中释放气体,$F<0$ 表示水体向大气中吸收气体;k 为气体交换系数;C_w 为水体中溶解气体浓度,nmol·L^{-1};C_0 表示空气中气体浓度,nmol·L^{-1},采用 2016 年全球 CH_4 和 N_2O 空气平均浓度(分别为 1853 和 329 ppbv,WMO,2015)根据采样点气压(由海拔换算)标准化的数值。考虑到雅江地形变化较为复杂,依据雅江干流水文站的分布将河流分为 5 段,分别根据每段的 k 及气体浓度等进行计算。

1.2.3 气体交换系数 k 值 k 值主要受流速、风速、温度及河道坡度因素影响,由于河水不同于湖泊和水库等静水水体,k 值可能主要受控于河流河床坡度和水动力条件等因素(Long *et al.*,2017)。因此,在此研究区域内根据环境条件,选择合适的参数 k 值尤为重要。本研究采取 Raymond 等(2012)所述的方法估算 k 值,如下:

$$k_{600}=5.14u_{10}^{0.758} \quad (2)$$

$$k_{600}=k(600/S_c)^{-n} \quad (3)$$

$$S_{CCH_4}=1898-114.38t+3.29t^2-0.0391t^3 \quad (4)$$

$$S_{CN_2O}=2056-137.11t+4.317t^2-0.0543t^3 \quad (5)$$

其中,k_{600} 为高度为 10 m 的气体交换系数;U_{10} 为采样日地表高度 10 m 处的平均风速,采用了日喀则、拉萨和林芝三地的平均风速(数据来源:https://en.tutiempo.net/climate);t 为水温。S_C 数为水的动力粘度与待测气体分子扩散速率之比(Wanninkhof,1992)。通过对比发现,3 个站点的全年平均风速差异不大,但水温从上往下逐渐升高,变化明显,因此按照水文站分段的原则,分段计算了各河段的 k_{600}。

采用风速估算的河水 k 值可能偏低(Long *et al.*,2017),因此,将 Qu 等(2017)根据各个雅鲁藏布江水文站坡度和流速估算的 k 作为上限值,并以同样原则进行分段。

1.2.4 CH_4 和 N_2O 排放量估算 气体释放量(E)根据下述公式计算:

$$E=F\times A \quad (6)$$

其中,F 为气体交换速率,A 为水面面积,单位为 km^2。利用 Arcgis 得到了雅鲁藏布江(中国境内)的边界,以此为界,根据 Allen 等(2018)最新发表的 30 m 分辨率的全球河流河宽数据,以相关数据的中位值,代表雅鲁藏布江全年平均流量水平下的水面面积。并且以水位站为分界将雅鲁藏布江干流分段,分别得到各自水面面积(包括段内支流的面积),根

据计算的分段水面面积乘上各段相应气体交换速率,最后累加得到全流域水面的总排放量。

2 结果与分析

2.1 野外水体温度与溶解氧

水质参数如表1所示,6月份雅鲁藏布江水温为8.2~19.7 ℃,平均水温为14.3 ℃,DO(溶解氧)为5.8~10.0 mg·L^{-1},平均值为7.0 mg·L^{-1}。9月水温为9.6~19.9 ℃,平均水温为13.7 ℃,DO为6.1~10.4 mg·L^{-1},平均值为7.1 mg·L^{-1}。

2.2 水体 CH_4 气体含量

雅鲁藏布江干流水体不同季节的 CH_4 浓度结果如表2所示。枯水期干流和支流的 CH_4 浓度范围分别为31.3~864.9和19.1~381.6 nmol·L^{-1},平均值为236.4和149.2 nmol·L^{-1};丰水期干流和支流的 CH_4 浓度范围分别为2.3~487.2和10.7~444.3 nmol·L^{-1},平均值为125.3和104.7 nmol·L^{-1};总体上,枯水期(6月)浓度平均值(186.1 nmol·L^{-1})高于丰水期(9月)(113.4 nmol·L^{-1}),但在统计学上无显著差异(P=0.112);两次采样结果相比较,支流浓度(平均127.0 nmol·L^{-1})低于干流的值(平均180.9 nmol·L^{-1});在空间上,干流上、中、下游 CH_4 浓度平均值分别为156.0、175.2、97.3 nmol·L^{-1},上游到中游有升高趋势,中游达最高值,下游则明显降低。

总体上,雅鲁藏布江河水的 CH_4 浓度平均值略高于高于印度河(40.9 nmol·L^{-1},Qu *et al.*,2017),低于我国长江上游(232.0 nmol·L^{-1},Qu *et al.*,2017)、黄河上游 CH_4 浓度(349.1 nmol·L^{-1},Qu *et al.*,2017),远低于沼泽地溪流(1856.6 nmol·L^{-1},Hope *et al.*,2001)等其他河流。

2.3 水体 N_2O 气体含量

雅鲁藏布江河水不同季节的 N_2O 浓度结果如表2所示,枯水期干流和支流的浓度范围分别为8.2~21.3和10.9~23.7 nmol·L^{-1},平均值为13.5和15.5 nmol·L^{-1};丰水期干流和支流的浓度范围分别为9.7~15.7和10.8~15.6 nmol·L^{-1},平均值为11.1和13.0 nmol·L^{-1};总体上,枯水期 N_2O 含量显著高于丰水期(P=0.017);全年水平上,支流浓度(平均14.2 nmol·L^{-1})高于干流(平均12.3 nmol·L^{-1});在空间上,干流上、中、下游 N_2O 浓度平均值分别为12.8、13.7、13.4 nmol·L^{-1},中游较上游表现出上升趋势,且中游平均值均较上游和下游高。

总体上雅鲁藏布江河水中的 N_2O 浓度平均值13.3 nmol·L^{-1},与Qu等(2017)对雅鲁藏布江 N_2O(7.5 nmol·L^{-1},Qu *et al.*,2017),印度河(7.3 nmol·L^{-1},Qu *et al.*,2017),我国长江上游(8.5 nmol·L^{-1},Qu *et al.*,2017)、黄河上游(10.6 nmol·L^{-1},Qu *et al.*,2017)等研究结果相似,低于Hudson河流(20.5 nmol·L^{-1},Cole *et al.*,2005)等河流。

2.4 气体交换速率及释放量

通过公式(2)~(5)计算出 k_{600} 值在枯水期和丰

表1 水质参数结果

Table 1 Statistical results of water temperature and dissolved oxygen

项目	枯水期			丰水期		
	最小值	最大值	平均值	最小值	最大值	平均值
温度(℃)	8.2	19.7	14.3	9.6	19.9	13.7
DO(mg·L^{-1})	5.8	10.0	7.0	6.1	10.4	7.1

表2 丰水期、枯水期采样点信息及水中 CH_4、N_2O 的含量

Table 2 Sampling location and concentration of CH_4 and N_2O

干支流	编号	高程(cm)	经纬度		CH_4(nmol·L^{-1})		N_2O(nmol·L^{-1})	
			纬度(°N)	经度(°E)	丰水期	枯水期	丰水期	枯水期
干流	1	2915	29.28	94.31	125.2	137.0	10.3	20.2
	3	2985	29.11	93.45	16.8	303.2	10.0	21.3
	5	3059	29.07	92.93	17.5	287.3	10.2	19.6
	6	3555	29.27	91.54	194.2	55.4	10.7	8.2
	11	4457	29.32	85.17	487.2	224.5	15.7	12.9
	15	3951	29.18	87.67	2.3	40.4	10.7	11.4
	17	3874	29.37	88.12	61.5	64.4	12.4	11.2
	19	3812	29.34	89.19	107.9	864.9	11.8	11.9
	21	3702	29.32	89.93	77.3	278.6	10.7	10.1
	22	3594	29.33	90.67	277.7	313.5	9.7	10.2
	29	709	29.44	95.41	11.2	31.3	9.9	11.8
支流	2	2943	29.12	93.87	35.2	153.7	12.6	23.7
	4	3003	29.00	93.32	12.1	341.9	11.8	23.5
	7	3615	29.48	90.94	422.6	289.2	13.1	21.5
	9	2736	29.71	90.87	10.7	138.3	11.3	18.8
	10	4477	29.33	85.15	444.3	381.6	13.5	14.4
	12	4626	29.34	86.46	29.4	39.6	14.9	13.2
	16	3950	29.4	87.95	59.5	36.9	12.5	10.9
	18	3865	29.45	89.10	26.8	85.9	13.1	14.7
	20	3756	29.36	89.63	13.6	19.1	13.6	11.7
	23	3723	29.81	91.58	40.8	170.1	10.8	12.5
	24	2913	29.52	94.43	136.3	248.1	11.8	12.6
	25	2362	29.99	94.88	195.4	156.5	11.9	12.2
	26	2018	30.10	95.07	28.9	27.1	13.9	13.6
	27	2603	29.91	95.48	13.9	63.1	14.9	13.2
	28	2746	29.71	95.59	101.2	87.5	15.6	15.3

水期的平均值分别为 5.1 和 4.3 m · d^{-1},高于 Amazon 流域(1.4~3.2 m · d^{-1},Richey *et al.*,2002)和西江流域(1.9~3.6 m · d^{-1},Yao *et al.*,2007)取值范围。这是由于雅江地处高原,风力条件活跃,流域风速显著高于 Amazon(1.0~3.0 m · s^{-1},Richey *et al.*,2002)和西江流域(0.9~2.4 m · s^{-1},Yao *et al.*,2007);但依据风速估算的 k_{600} 值显著低于 Qu 等(2017)根据雅江坡度和流速估算的 k 值。因此将两种方法估算的 k 值作为上下限,利用公式(1),对雅江各分段的 CH_4 和 N_2O 气体释放速率的范围进行了估算,最终得到全流域河水的 F_{CH_4} 和 F_{N_2O} 分别为 4.3~11.1 mg C · m^{-2} · d^{-1} 和 0.16~0.37 mg N · m^{-2} · d^{-1}。

根据公式(6),分段计算了各河段的 CH_4 和 N_2O 释放量范围,并相加得到雅江 CH_4 和 N_2O 释放量范围为 1.88~4.59 Gg C · a^{-1} 和 0.07~0.16 Gg N · a^{-1}。

3 讨 论

3.1 影响 CH_4、N_2O 释放的因素

通过分析所有样品 CH_4 浓度与温度、DO、pH、DOC 和 EC 等参数之间的关系,发现 CH_4 浓度与这些参数关系不大,可能是由于其受控的因素较为复杂(王晓锋等,2017)。有研究表明,在流域空间尺度上,流量是 CH_4 浓度变化的主要控制因素,如西江,Brocky Burn 流域等(Hope *et al.*,2004;Yao *et al.*,2007)。受中下游降水以及冰雪融水对和流量贡献增多的影响,雅江水体的化学组分从上游到下游整体上受到稀释效应的影响(Hren *et al.*,2007),因此雅江 CH_4 变化可能也与流量有关。雅江 CH_4 浓度与干流 4 个水文站的流量(流量数据来源于王秀娟,2015)呈显著负相关(R^2 = 0.762,P = 0.05),进一步证明了这个假设。但由于缺少其他站点的流量数据,流量的影响效果需要进一步研究。

所有样品的 N_2O 浓度只与水温呈显著负相关,若除去枯水期浓度异常高的 7 个点位(1、2、4、5、6、7 和 9 号采样点),二者的相关系数达到0.766(P = 0.01),并且这些点位的 N_2O 浓度与水温也呈现出相似的显著负相关关系(图 2)。这些点位浓度偏高的原因可能有:(1)这些点位于拉萨和奴下水文站之间,枯水期由于水量较小,较高浓度的支流,如拉萨河、堆龙曲支流汇入干流,导致相应河段浓度升高,可能反应出人类活动的影响。这些区域人类活动相对较多,人类活动产生的氮素浓度相应升高,可能使河流成为 N_2O 的源(吕鑫等,2018);(2)所涉及的点位处于河流宽度较宽的区域,枯水期水流较缓,能形成稳定的沉积物-水界面环境,加之水深较浅,水-气界面产生的气体更容易对水体浓度产生影响,从而为 N_2O 的释放提供了有利条件(GarcíA-Ruiz *et al.*,1998)。

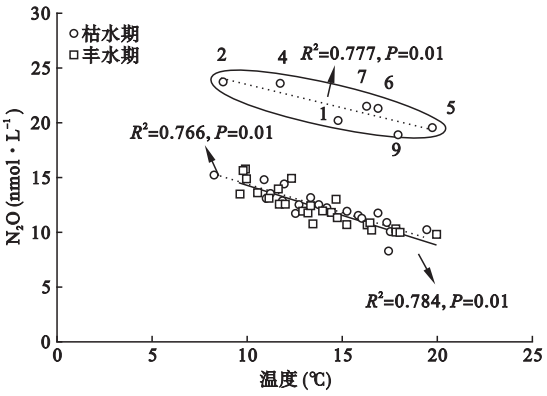


图 2 雅鲁藏布江中 N_2O 浓度与水温的关系

Fig.2 The relationship between N_2O and water temperature in the Yarlung Tsangpo River

椭圆内为 N_2O 含量的异常点,数字为相应的采样点编号,虚线和实线分别为枯水期和丰水期趋势线。

3.2 CH_4 和 N_2O 的气体交换速率与世界其他河流的对比

雅鲁藏布江河水的 CH_4 交换速率(4.3~11.1 mg C · m^{-2} · d^{-1}),与印度河(2.4 mg C · m^{-2} · d^{-1})及我国长江上游(13.6 mg C · m^{-2} · d^{-1})相近、低于黄河的 CH_4 交换速率 48.2 mg C · m^{-2} · d^{-1},与 Qu 等(2017)对雅鲁藏布江 CH_4 研究结果相似。但这些大型河流的气体交换速率明显低于生物作用剧烈的沼泽地区河水(Hope *et al.*,2001),详见表 3。雅鲁藏布江中 N_2O 交换速率为 0.16~0.44 mg N · m^{-2} · d^{-1},与我国大型河流长江上游 0.18 mg N · m^{-2} · d^{-1}、黄河上游 0.34 mg N · m^{-2} · d^{-1}(Qu *et al.*,2017)及亚马逊流域 N_2O 交换速率 0.27 mg N · m^{-2} · d^{-1}(Richey *et al.*,1988)相当,但明显低于长江河口的值 1.64 mg N · m^{-2} · d^{-1}(Wang *et al.*,2007),详见表 4。

雅鲁藏布江水面面积约占全球河流水面面积(~774000 km^2,Allen *et al.*,2018)的 1.3‰,但其 CH_4 和 N_2O 释放量约占全球河流总释放量的 1.25‰~3.06‰(Stanley *et al.*,2016)和 2.17‰~4.96‰(Hu *et al.*,2016)。

雅鲁藏布江河水 CH_4 和 N_2O 的浓度处于全球较低水平,而通量和释放量却较高,主要是由于 k 在

表3 雅鲁藏布江与世界其他河流 CH_4 交换速率比较
Table 3 CH_4 exchange rates between water-atmosphere interface in Yarlung Tsangpo River and other global rivers

名称(位置)	F_{CH_4} ($mg\ C \cdot m^{-2} \cdot d^{-1}$)	文献来源
雅鲁藏布江	4.3~11.1*	本研究
雅鲁藏布江	11.9	(Qu *et al.*,2017)
长江上游	13.6	(Qu *et al.*,2017)
黄河上游	48.2	(Qu *et al.*,2017)
Stream (interior Alaska)	7.7	(Crawford *et al.*,2013)
Indus	2.4	(Qu *et al.*,2017)
Tennessee	9.9	(Jones *et al.*,1998)
Manitoba	80.8	(Louis *et al.*,2000)
小溪流(Finland)	26.0	(Huttunen *et al.*,2003)
Ontario	134.8	(Baulch *et al.*,2015)
沼泽地溪流(Scotland)	176.2	(Hope *et al.*,2001)

*代表最小值是由风速计算的气体交换速率,最大值是由流速和坡度计算的气体交换速率。

表4 雅鲁藏布江与世界其他河流 N_2O 交换速率比较
Table 4 N_2O exchange rates between water-atmosphere interface in Yarlung Tsangpo River and other global rivers

名称(位置)	F_{N_2O} ($mg\ N \cdot m^{-2} \cdot d^{-1}$)	文献来源
雅鲁藏布江	0.16~0.37*	本研究
雅鲁藏布江	0.07	(Qu *et al.*,2017)
长江上游	0.18	(Qu *et al.*,2017)
黄河上游	0.34	(Qu *et al.*,2017)
Neuse River	0.36	(Stow *et al.*,2005)
Indus	0.13	(Qu *et al.*,2017)
Hudson River	0.16	(Cole *et al.*,2005)
Amazon basin	0.27	(Richey *et al.*,1988)
Tamar	0.27	(Law *et al.*,1991)
长江河口	1.64	(Wang *et al.*,2007)

*代表最小值是由风速计算的气体交换速率,最大值是由流速和坡度计算的气体交换速率。

相应计算中起了主导作用,这与前人在其他山区河流的结论相一致(Schelker *et al.*,2016)。由于山区河流水力条件的变化较为复杂,除采样点有限,对全流域气体浓度空间变化探究不够外,本研究还有在以下几个方面的不确定性:(1)k 值的不确定性使通量和释放量变化范围较大。一方面,不同模型得到的 k 值相差2~3倍,直接导致气体交换速率和释放量呈相应的倍数增长,另一方面,同种模型得到的 k 在空间上也有较大差异(由风速,流速和坡度计算的 k 值范围分别为3.8~5.8 $m \cdot d^{-1}$和5.0~29.5 $m \cdot d^{-1}$),这可能是山地河流气候和水力条件变化的影响结果,今后需要重视山地河流 k 值的系统研究。(2)流域水面面积估算的不确定性。本研究仅估算了河面宽度30 m以上的河水气体释放,且没有计算水库及湖泊的水面面积,因此所估算的结果可能比雅江水面的实际释放量低。

4 结 论

雅鲁藏布江河水中 CH_4 含量为2.3~864.9 $nmol \cdot L^{-1}$,N_2O 含量为8.2~23.7 $nmol \cdot L^{-1}$;雅鲁藏布江总体上向大气释放 CH_4 和 N_2O,释放速率分别为4.3~11.1 $mg\ C \cdot m^{-2} \cdot d^{-1}$和0.16~0.37 $mg\ N \cdot m^{-2} \cdot d^{-1}$。与黄河上游、长江上游等其他河流相比,$CH_4$ 气体交换速率处于较低于水平,而 N_2O 气体交换速率与黄河上游、亚马逊等河流相当。空间上,从上游往下游 CH_4 呈下降趋势、N_2O 总体呈升高趋势,下游略低于中游。季节上,枯水期和丰水期 CH_4 含量无显著差异,但枯水期 N_2O 显著高于丰水期。其中 CH_4 含量可能主要受控于河水流量,而 N_2O 则主要受控于河水温度的变化。

山地环境大型河流可能是重要的温室气体的源,其在温室气体收支核算中的作用在过去可能被低估。今后的研究除了要加强时间和空间上的布点,更要采用多种手段,提出更适用于山地河流的 k 值估算模型。

参考文献

吕 鑫, 刘小龙, 李 军, 等. 2018. 河流拦截背景下水库氧化亚氮(N_2O)排放的研究进展. 生态学杂志, **37**(3): 613-623.

王 亮, 王雨春, 段玉杰, 等. 2012. 三峡水库香溪河库湾水-气界面 N_2O 通量特征. 三峡大学学报: 自然科学版, **34**(1): 14-18.

王晓锋, 袁兴中, 陈 槐, 等. 2017. 河流 CO_2 与 CH_4 排放研究进展. 环境科学, **38**(12): 5352-5366.

王秀娟. 2015. 雅鲁藏布江流域水循环时空变化特性研究. 西藏科技, (7): 8-12.

杨丽标, 雷 坤, 孟 伟. 2015. 夏季大辽河河口区水体反硝化及其影响因素. 环境科学, (3): 905-913.

赵 炎, 曾 源, 吴炳方, 等. 2011. 水库水气界面温室气体通量监测方法综述. 水科学进展, **22**(1): 135-146.

Allen GH, Pavelsky TM. 2018. Global extent of rivers and streams. *Science*, **361**: 585-588.

Anthony SE, Prahl FG, Peterson TD. 2012. Methane dynamics in the Willamette River, Oregon. *Limnology & Oceanography*, **57**: 1517-1530.

Barrie LA, Braathen GO, Butler JH, *et al*. 2009. Annual Greenhouse Gas Bulletin. Eurpoean Geosciences Union General Assembly. Conference: Eurpoean Geosciences Union General Assembly 2009, At Vienna, Austria.

Bastviken D, Tranvik LJ, Downing JA, *et al*. 2011. Freshwater

methane emissions offset the continental carbon sink. *Science*, **331**: 50.

Baulch HM, Dillon PJ, Maranger R, *et al*. 2015. Diffusive and ebullitive transport of methane and nitrous oxide from streams: Are bubble-mediated fluxes important? *Journal of Geophysical Research: Biogeosciences*, **116**: 4028.

Billett MF, Harvey FH. 2013. Measurements of CO_2 and CH_4 evasion from UK peatland headwater streams. *Biogeochemistry*, **114**: 165-181.

Cole JJ, Caraco NF. 2005. Emissions of nitrous oxide (N_2O) from a tidal, freshwater river, the Hudson River, New York. *Environmental Science & Technology*, **35**: 991-996.

Crawford JT, Striegl RG, Wickland KP, *et al*. 2013. Emissions of carbon dioxide and methane from a headwater stream network of interior Alaska. *Journal of Geophysical Research: Biogeosciences*, **118**: 482-494.

GarcíA-Ruiz R, Pattinson SN, Whitton BA. 1998. Denitrification and nitrous oxide production in sediments of the Wiske, a lowland eutrophic river. *Science of the Total Environment*, **210**: 307-320.

Halbedel S. 2015. Protocol for CO_2 sampling in waters by the use of the headspace equilibration technique, based on the simple gas equation: Second update. *Protocol Exchange*, doi: 10.1038/protex.2015.085.

Hope D, Palmer SM, Billett MF, *et al*. 2004. Variations in dissolved CO_2 and CH_4 in a first-order stream and catchment: An investigation of soil-stream linkages. *Hydrological Processes*, **18**: 3255-3275.

Hope D, Palmer SM, Billett MF. 2001. Carbon dioxide and methane evasion from a temperate peatland stream. *Limnology & Oceanography*, **46**: 847-857.

Hren MT, Chamberlain CP, Hilley GE, *et al*. 2007. Major ion chemistry of the Yarlung Tsangpo-Brahmaputra river: Chemical weathering, erosion, and CO_2 consumption in the southern Tibetan Plateau and eastern syntaxis of the Himalaya. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, **71**: 2907-2935.

Hu M, Chen D, Dahlgren RA. 2016. Modeling nitrous oxide emission from rivers: A global assessment. *Global Chang Biology*, **22**: 3566-3582.

Huttunen JT, Alm J, Liikanen A, *et al*. 2003. Fluxes of methane, carbon dioxide and nitrous oxide in boreal lakes and potential anthropogenic effects on the aquatic greenhouse gas emissions. *Chemosphere*, **52**: 609-621.

Jones JB, Mulholland PJ. 1998. Methane input and evasion in a hardwood forest stream: Effects of subsurface flow from shallow and deep pathways. *Limnology & Oceanography*, **43**: 1243-1250.

Law CS, Rees AP, Owens NJP. 1991. Temporal variability of denitrification in estuarine sediments. *Estuarine, Coastal & Shelf Science*, **33**: 37-56.

Liu XL, Bai L, Wang ZL, *et al*. 2015. Nitrous oxide emissions from river network with variable nitrogen loading in Tianjin, China. *Journal of Geochemical Exploration*, **157**: 153-161.

Long H, Vihermaa L, Waldron S, *et al*. 2015. Hydraulics are a first-order control on CO_2 efflux from fluvial systems. *Journal of Geophysical Research: Biogeosciences*, **120**: 1912-1922.

Louis VLS, Kelly CA, Duchemin É, *et al*. 2000. Reservoir surfaces as sources of greenhouse gases to the atmosphere: A global estimate. *Bioscience*, **50**: 766-775.

Manaka T, Ushie H, Araoka D, *et al*. 2015. Spatial and seasonal variation in surface water pCO_2 in the Ganges, Brahmaputra, and Meghna Rivers on the Indian Subcontinent. *Aquatic Geochemistry*, **21**: 437-458.

Meybeck M, Green P, Vörösmarty C. 2001. A New Typology for mountains and other relief classes: An application to global continental water resources and population distribution. *Mountain Research & Development*, **21**: 34-45.

Qu B, Aho KS, Li C, *et al*. 2017. Greenhouse gases emissions in rivers of the Tibetan Plateau. *Scientific Reports*, **7**: 16573.

Ray PA, Yang YCE, Wi S, *et al*. 2015. Room for improvement: Hydroclimatic challenges to poverty-reducing development of the Brahmaputra River basin. *Environmental Science & Policy*, **54**: 64-80.

Raymond PA, Zappa CJ, Butman D, *et al*. 2012. Scaling the gas transfer velocity and hydraulic geometry in streams and small rivers. *Limnology and Oceanography: Fluids and Environments*, **2**: 41-53.

Richey JE, Devol AH, Wofsy SC, *et al*. 1988. Biogenic gases and the oxidation and reduction of carbon in Amazon River and Floodplain Waters. *Limnology & Oceanography*, **33**: 551-561.

Richey JE, Melack JM, Aufdenkampe AK, *et al*. 2002. Outgassing from Amazonian rivers and wetlands as a large tropical source of atmospheric CO_2. *Nature*, **416**: 617-620.

Salimon C, dos Santos Sousa E, Alin SR, *et al*. 2013. Seasonal variation in dissolved carbon concentrations and fluxes in the upper Purus River, southwestern Amazon. *Biogeochemistry*, **114**: 245-254.

Schelker J, Singer GA, Ulseth AJ, *et al*. 2017. CO_2 evasion from a steep, high gradient stream network: Importance of seasonal and diurnal variation in aquatic pCO_2 and gas transfer. *Limnology & Oceanography*, **61**: 1826-1838.

Seitzinger SP, Kroeze C, Styles RV. 2000. Global distribution of N_2O emissions from aquatic systems: Natural emissions and anthropogenic effects. *Chemosphere: Global Change Science*, **2**: 267-279.

Stanley EH, Casson NJ, Christel ST, *et al*. 2016. The ecology of methane in streams and rivers: Patterns, controls, and global significance. *Ecological Monographs*, **86**: 146-171.

Stow CA, Walker JT, Cardoch L, *et al*. 2005. N_2O emissions

from streams in the Neuse river watershed, North Carolina. *Environmental Science & Technology*, **39**: 6999-7004.

Strom L, Christensen TR. 2007. Below ground carbon turnover and greenhouse gas exchanges in a sub-arctic wetland. *Soil Biology & Biochemistry*, **39**: 1689-1698.

Upstill-Goddard RC, Barnes J, Frost T, *et al*. 2000. Methane in the southern North Sea: Low-salinity inputs, estuarine removal, and atmospheric flux. *Global Biogeochemical Cycles*, **14**: 1205-1217.

Wallin MB, Öquist MG, Buffam I, *et al*. 2011. Spatiotemporal variability of the gas transfer coefficient ($k$$CO_2$) in boreal streams: Implications for large scale estimates of CO_2 evasion. *Global Biogeochemical Cycles*, **25**, doi: 10.1029/2010GB003975.

Wang D, Chen ZL, Xu SY. 2007. The fluxes of CH_4, CO_2 and N_2O from Yangtze estuary intertidal flat in summer season. *Geochimica*, **72**: 78-88.

Wanninkhof R. 1992. Relationship between wind speed and gas exchange over the ocean. *Journal of Geophysical Research: Oceans*, **97**: 7373-7382.

WMO. 2015. Greenhouse Gas Bulletin: The State of Greenhouse Gases in the Atmosphere Based on Global Observations through 2015. World Meteorological Organization, 2016.

Yao G, Gao Q, Wang Z, *et al*. 2007. Dynamics of CO_2 partial pressure and CO_2 outgassing in the lower reaches of the Xijiang River, a subtropical monsoon river in China. *Science of the Total Environment*, **376**: 255-266.

作者简介 叶润成,男,1994年生,硕士研究生,主要从事环境地球化学方面的研究。E-mail: guiyangyrc@163.com

责任编辑 魏中青