

环境科学

(HUANJING KEXUE)

ENVIRONMENTAL SCIENCE

第38卷 第12期

Vol.38 No.12

2017

中国科学院生态环境研究中心 主办
科学出版社 出版



目次(卷终)

京津冀区域 PM_{2.5} 污染相互输送特征 王燕丽, 薛文博, 雷宇, 王金南, 武卫玲 (4897)

顾及尺度效应的多源遥感数据“源”“汇”景观的大气霾效应 许凯, 余添添, 孙姣姣, 袁兆祥, 秦昆 (4905)

基于多源数据的 PM_{2.5} 浓度时空分布预测与制图 肖璐, 郎艺超, 夏浪, 楼昭涵, 孙楠, 黄李童, George Christakos (4913)

华东区域 PM_{2.5} 变化背景下浙江省人口经济暴露水平评估 郁珍艳, 高大伟, 李正泉, 杨续超, 王阔, 马浩, 徐宏辉 (4924)

南京北郊不同大气污染程度下气溶胶化学组分特征 张程, 于兴娜, 安俊琳, 朱彬, 林梦凡 (4932)

菏泽市 PM_{2.5} 碳组分季节变化特征 刘泽珺, 吴建会, 张裕芬, 梁丹妮, 马威, 刘保双, 冯银厂, 张勤勤 (4943)

辽宁典型城市道路扬尘 PM₁₀ 中水溶性无机离子组分特征及来源解析 张伟, 姬亚芹, 张军, 张蕾, 王伟, 王士宝 (4951)

天津冬季一次重污染过程颗粒物中水溶性离子粒径分布特征 姚青, 刘子锐, 韩素芹, 蔡子颖, 刘敬乐, 黄小娟, 刘景云, 王跃思 (4958)

高原城市昆明公路隧道大气中 PM_{2.5} 理化特征分析 王成辉, 闫琨, 韩新宇, 施择, 毕丽玫, 向峰, 宁平, 史建武 (4968)

2015 年中国近地面臭氧浓度特征分析 段晓瞳, 曹念文, 王潇, 张玉欣, 梁静舒, 杨思鹏, 宋秀瑜 (4976)

不同 CDPF 贵金属负载量对柴油公交车 VOCs 组分排放影响 楼狄明, 张子骏, 刘继跃, 谭丕强, 胡志远 (4983)

ENSO 事件对上海降水中氢氧同位素变化的影响 董小芳, 杨华玮, 张杰, 朱志鹏, 杨言, 郑祥民, 周立旻 (4991)

我国南方两个典型森林生态系统的硫、氮和汞沉降量 程正霖, 罗遥, 张婷, 段雷 (5004)

新安江水库二氧化碳排放的时空变化特征 杨乐, 李贺鹏, 孙滨峰, 岳春雷 (5012)

三峡库区表层沉积物营养盐时空变化及评价 卓海华, 邱光胜, 翟婉盈, 刘云兵, 兰静 (5020)

三门峡水库水体中不同形态汞的分布特征 程柳, 麻冰涓, 周伟立, 王力, 耿音, 刘清伟, 毛宇翔 (5032)

太子河流域中游地区河流硝酸盐来源及迁移转化过程 李艳利, 孙伟, 杨梓睿 (5039)

典型入湖河流水体氮素变化特征及其对降雨的响应: 以太湖乌溪港为例 连慧妹, 刘宏斌, 李旭东, 宋挺, 刘申, 雷秋良, 任天志, 武淑霞, 李影 (5047)

缙云山常绿阔叶林湿沉降过程中不同空间层次水质变化特征 马明, 孙涛, 李定凯, 王定勇 (5056)

基于 MIKE11 模型提高污染河流水质改善效果的方法 熊鸿斌, 陈雪, 张斯思 (5063)

北京市地下水典型抗生素分布特征与潜在风险 陈卫平, 彭程伟, 杨阳, 吴玉梅 (5074)

深圳茅洲河下游柱状沉积物中碳氮同位素特征 凌郡鸿, 张依章, 王民浩, 周北海, 陶明, 陈惠明, 闫振广 (5081)

供水管网铁释放的影响因素相对重要性分析 刘莹, 于影, 石宝友, 刘书明, 吴雪 (5090)

低温高铁锰氨氮地下水生物同池净化 李冬, 曹瑞华, 杨航, 王刘煜, 张杰, 曾辉平 (5097)

臭氧预氧化强化混凝对二级出水中 DON 作用机制探讨 刘冰, 郑煜铭, 王大祥, 李清飞, 赵承美, 余国忠, 古励 (5106)

碱化过一硫酸盐降解水中环丙沙星 葛勇建, 蔡显威, 林翰, 徐梦苑, 沈一挺, 周丹, 钱梦洁, 邓靖 (5116)

MIL-88A@MIP 催化活化过硫酸盐靶向降解邻苯二甲酸二丁酯 王九妹, 关泽宇, 王金泉, 王艳, 马邕文, 闫志成, 张桂华 (5124)

常温下加装脱硫装置的 MCAnMBR 处理高硫酸盐有机废水试验 徐婷, 金艳青, 李勇 (5132)

载镁天然沸石复合材料对污水中氮磷的同步回收 成雪君, 王学江, 王浩, 张志昊, 赵建夫 (5139)

不同运行模式下改良型 CAST 工艺处理生活污水的除磷性能 马娟, 王谨, 俞小军, 周猛, 孙洪伟, 王磊 (5146)

ABR-MBR 工艺处理生活污水实现短程硝化 吕亮, 赵诗惠, 韦佳敏, 张敏, 尤雯, 吴鹏, 沈耀良 (5154)

海洋厌氧氨氧化菌处理含海水污水的基质抑制及其动力学特性 周同, 于德爽, 李津, 吴国栋, 王晓静 (5162)

游离氨 (FA) 对氨氧化过程氨逃逸影响试验 孙洪伟, 于雪, 尤永军, 彭永臻, 王淑莹 (5169)

西安市典型景观水体水质及反硝化细菌种群结构 康鹏亮, 黄廷林, 张海涵, 陈胜男, 商潘路, 冯稷, 贾宽宇 (5174)

厌氧氨氧化启动过程及微生物群落结构特征 汪瑶琪, 张敏, 姜滢, 徐乐中, 陈重军, 沈耀良 (5184)

SBAF 单级自养脱氮快速启动、稳定运行及微生物群落演化 岳秀, 刘竹寒, 于广平, 吉世明, 唐嘉丽 (5192)

活性污泥中硝化螺菌 (*Nitrospira*) 的富集及其动力学参数 姚倩, 彭党聪, 赵俏迪, 王博 (5201)

pH 值对零价铁自养反硝化过程的影响 张宁博, 李祥, 黄勇 (5208)

接种单一/混合污泥对厌氧氨氧化反应器快速启动的影响 张泽文, 李冬, 张杰, 郭跃洲, 李帅 (5215)

活性污泥法和生物膜法 SBR 工艺亚硝化启动和稳定运行性能对比 孙艺齐, 卞伟, 王盟, 赵青, 王文啸, 梁东博, 李军 (5222)

长期暴露下纳米 TiO₂ 对厌氧颗粒污泥体系稳定性的影响 李慧婷, 崔福义 (5229)

长三角典型城郊不同土地利用土壤抗生素组成及分布特征 赵方凯, 陈利顶, 杨磊, 方力, 孙龙, 李守娟 (5237)

不同有机肥中磷在土壤剖面中累积迁移特征与有效性差异 张田, 许浩, 茹淑华, 苏德纯 (5247)

有机磷酸酯在三峡库区土壤中污染特征 何明靖, 杨婷, 杨志豪, 魏世强 (5256)

上海某生活垃圾焚烧厂周边土壤重金属污染特征、来源分析及潜在生态风险评价 郭彦海, 孙许超, 张士兵, 余广杰, 唐正, 刘振涛, 薛昱, 高品 (5262)

大庆市不同环境介质中多环芳烃污染特征对比及来源解析 宋宁宁, 冯嘉申, 于洋, 李迎霞 (5272)

工业区户外儿童游乐场地表灰尘重金属污染的磁学响应 杨孟, 李慧明, 李凤英, 王金花, 刁一伟, 钱新, 杨兆平, 王成 (5282)

上海市郊工业区附近蔬菜中重金属分布及其健康风险 周雅, 毕春娟, 周泉潇, 张焕焕, 陈振楼, 包新一 (5292)

基施硅肥对土壤镉生物有效性及水稻镉累积效应的影响 高子翔, 周航, 杨文毅, 辜娇峰, 陈立伟, 杜文琪, 徐珺, 廖柏寒 (5299)

水稻对气态单质汞的吸收与挥发 尚帅, 田珮, 蒋煜, 武婧轩, 姜珊, 邓泓 (5308)

麦田 O₃ 浓度的长期变化及其对冬小麦干物质和产量损失的估算 赵辉, 郑有飞, 李硕, 徐静馨, 曹嘉晨, 魏莉, 关清 (5315)

缓控释肥侧深施对稻田氨挥发排放的控制效果 侯朋福, 薛利祥, 俞映惊, 薛利红, 范立慧, 杨林章 (5326)

生物炭和有机肥对华北农田盐碱土 N₂O 排放的影响 石玉龙, 刘杏认, 高佩玲, 张晴雯, 张爱平, 杨正礼 (5333)

成都平原不同类型沟渠 CO₂、CH₄ 和 N₂O 排放通量特征及其影响因素 冯香荣, 邓欧平, 邓良基, 吴铭, 姚昆, 杨泽鹏 (5344)

河流 CO₂ 与 CH₄ 排放研究进展 王晓峰, 袁兴中, 陈槐, 何奕忻, 罗珍, 刘恋, 何宗茂 (5352)

《环境科学》第 38 卷(2017 年) 总目录 (5367)

《环境科学》征稿简则(4950) 《环境科学》征订启事(5031) 信息(4923, 5105, 5161)

河流 CO₂ 与 CH₄ 排放研究进展

王晓锋^{1,2}, 袁兴中^{1,2,3,4,*}, 陈槐⁵, 何奕忻⁵, 罗珍⁶, 刘恋^{3,4}, 何宗苡^{3,4}

(1. 重庆师范大学地理与旅游学院, 重庆 401331; 2. 重庆师范大学长江上游湿地科学研究中心, 重庆 401331; 3. 重庆大学煤矿灾害动力学与控制国家重点实验室, 重庆 400030; 4. 重庆大学资源及环境科学学院, 重庆 400030; 5. 中国科学院成都生物研究所, 成都 610041; 6. 第三军医大学军事预防医学院, 重庆 400038)

摘要: 河流作为连接海-陆两大碳库的主要通道, 其水-气界面二氧化碳 (CO₂) 与甲烷 (CH₄) 排放构成全球碳循环的重要环节, 对全球气候变暖的贡献不容小觑. 明确河流水体 CO₂ 与 CH₄ 产排过程、时空特征以及控制因素是认识河流生态学功能以及其对变化环境响应的重要内容. 基于当前河流 CO₂ 与 CH₄ 排放研究进展, 构建河流碳排放动力学概念框架 (内源代谢、陆源输入), 并从全球尺度、区域尺度、流域尺度综述了河流碳排放时空变异性特征以及存在的研究不足. 在理解碳排放动力学概念框架和时空变异特征的基础上, 构建了河流 CO₂ 与 CH₄ 动力学控制因子分层框架 (内部因子: 有机质、温度、营养盐; 外部因子: 水文、地貌、人类活动), 深入探讨了河流碳排放的关键影响因素. 最后, 根据当前研究中存在的不足, 提出河流碳排放应将纳入区域陆地碳平衡过程, 今后研究重点应包括流域尺度上河流 CO₂ 与 CH₄ 内源产生与陆源输入相对贡献的量化研究、不同界面 CO₂ 与 CH₄ 产生与排放过程研究、高时空分辨率的监测数据的补充以及变化环境与人类活动干扰下河流碳排放的响应过程等, 为理解河流生态学过程及生态系统功能提供基础, 同时为我国进一步深入开展相关研究提供借鉴.

关键词: 河流系统; 碳排放; 动力学概念框架; 时空变异性; 控制因子

中图分类号: X142 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2017)12-5352-15 DOI: 10.13227/j.hjxx.201701049

Review of CO₂ and CH₄ Emissions from Rivers

WANG Xiao-feng^{1,2}, YUAN Xing-zhong^{1,2,3,4,*}, CHEN Huai⁵, HE Yi-xin⁵, LUO Zhen⁶, LIU Lian^{3,4}, HE Zong-yi^{3,4}

(1. College of Geography and Tourism, Chongqing Normal University, Chongqing 401331, China; 2. Wetland Science Research Center of the Upper Reaches of the Yangtze River, Chongqing Normal University, Chongqing 401331, China; 3. State Key Laboratory of Coal Mine Disaster Dynamics and Control, Chongqing University, Chongqing 400030, China; 4. College of Resource and Environmental Science, Chongqing University, Chongqing 400030, China; 5. Chengdu Institute of Biology, Chinese Academy of Sciences, Chengdu 610041, China; 6. College of Military Preventive Medicine, Third Military Medical University, Chongqing 400038, China)

Abstract: Streams and rivers play a major biogeochemical role in the global carbon cycle and act as hot spots for carbon dioxide (CO₂) and methane (CH₄) emissions to the atmosphere, excepting their roles of transporting the water and carbon from the terrestrial environment to the ocean. While carbon gases have been of great global concern, systematic reviews are still scarce. Given recent recognition of the pervasiveness of CO₂ and CH₄ in streams and rivers, this study synthesized existing research and discoveries to identify patterns and controls for riverine CO₂ and CH₄, knowledge gaps, and research opportunities. This study presented a conceptual framework for sources and the fates of CO₂/CH₄ from streams and rivers and used this framework to understand the dynamic processes of fluvial carbon evasion and potential anthropogenic disturbances. Multiple environmental influences combined with different contributions of endogenous metabolism and terrigenous input, and the CO₂ and CH₄ in streams and rivers showed significant spatial and temporal variability on a global scale, regional scale, and watershed scale, which indicates a substantial challenge for understanding the larger-scale dynamics. For a clearer recognition of how the changing environment and human activities may modify fluvial CO₂ and CH₄ dynamics, this study constructed a system framework of controls on CO₂ and CH₄ production and persistence in streams and rivers. The framework of controls can be viewed in terms of endogenous environmental controls that influence river metabolism (organic matter, temperature, nutrients, pH, and alternative electron acceptors) and external factors, including geomorphic and hydrologic drivers and human activities (agriculture, damming, and urbanization). We point out that the carbon emissions from rivers should be integrated into the terrestrial carbon budget, and in the future, more attention should be given to research on the sources of CO₂ and CH₄ in rivers, the generation and diffusion of CO₂ and CH₄ at different interfaces, the spatiotemporal variability of riverine carbon emissions, and the

收稿日期: 2017-01-07; 修订日期: 2017-06-14

基金项目: 国家水体污染控制与治理科技重大专项 (2013ZX07104-004-05); 煤矿灾害动力学与控制国家重点实验室重点基金项目 (2011DA105287-ZD201402); 中国科学院“百人计划”项目

作者简介: 王晓锋 (1987 ~), 男, 博士, 主要研究方向为湿地生态学, E-mail: xiaofeng6540@163.com

* 通信作者, E-mail: xzyuan@cqu.edu.cn

response of riverine CO₂ and CH₄ dynamics to the changing environment and human activities.

Key words: river system; gaseous carbon emissions; conceptual framework; spatiotemporal variability; controls

河流生态系统被认为是连接陆地与海洋两大碳库的重要纽带, 全球河流向海洋碳输入量大约为 0.9 Pg·a⁻¹^[1], 构成了全球碳循环的重要结构单元, 在生物圈的物质循环尤其是碳循环中起主要作用, 这也一直被认为是河流最重要的生态学意义^[2]. 然而, 近 30 年来研究表明, 河流不仅是全球碳循环的输送通道(Pipe 理论), 还是一部分陆地有机碳参与生物地化循环的重要场所(“生物反应器”理论), 并通过水-气界面向大气直接排放二氧化碳(CO₂)^[3~5]和甲烷(CH₄)^[6~8]. 世界上大部分的河流水体 CO₂ 和 CH₄ 处于过饱和状态^[3,8~10], 据估算, 全球河流每年向大气中排放大约 1.8 Pg CO₂, 相当于是河流向海洋输碳量(0.9 Pg·a⁻¹)的 2 倍, 抵消了 80% 的全球陆地生态系统年净吸收碳量(2.6 Pg·a⁻¹)^[5]. 同时, 全球河流每年向大气排放 1.5 ~ 26.8 Tg CH₄^[7,11], 对全球气候变暖的贡献不容小觑. 在全球变化形势日益严峻的背景下, 这些估算使得河流系统 CO₂ 和 CH₄ 排放(碳排放)的研究成为当前生态环境研究的热点. 然而, 由于河流水体中碳的来源、转移及排放是一个复杂的、动态的生物地球化学过程, 受到多种复杂因子的影响, 因此河流生态系统碳排放研究仍然存在较大的不确定性.

目前, 关于河流 CO₂ 和 CH₄ 排放的研究主要集中在: ①时空变异特征及影响因素研究^[9,12,13]; ②洪泛区、河口以及源头溪流等具有特殊水文过程的区域碳排放的研究^[14~16]; ③河流 CO₂ 及 CH₄ 陆源输入、原位产生机制、消耗过程及排放途径研究^[2,3,17,18]; 以及④区域(流域)尺度或全球尺度河流碳排放总量估算^[4,5,19,20]. 总体来看, 国际上对河流碳排放的研究仍显薄弱, 大部分研究仍主要集中在热带地区河流, 对亚热带及高纬度地区河流研究偏少, 特别是对流域范围内人类活动对河流碳排放的影响研究较少. 鉴于河流生态系统在全球碳循环中的重要作用, 近年来, 我国对长江^[21,22]、黄河^[13,23]、珠江^[24,25]以及澜沧江^[26]等 CO₂ 和 CH₄ 的排放及影响因素展开了初步研究, 但与国际上特别是亚马逊河、密西西比河以及印度地区的研究还存在较大差距, 特别是对河流碳排放内外影响因素及动态预测研究存在较大不足. 为了进一步推进我国河流碳排放研究, 完善河流碳循环过程的基本理论, 加深对近年来国内外河流碳排放研究的理解,

本文初步构建河流生态系统 CO₂ 与 CH₄ 动力学概念框架, 并从不同尺度综述了河流 CO₂ 与 CH₄ 排放时空变异性, 进而总结河流碳排放关键控制因子框架, 根据当前研究存在的不足, 提出河流碳排放研究的知识空白及未来发展趋势.

1 河流 CO₂ 与 CH₄ 动力学概念框架

河流中的碳少量来源于河流内部初级生产, 大部分来源于流域内的陆地碳输入. 陆地碳输入包括土壤、动植物残体、溶解性有机碳(DOC)、颗粒态有机碳(POC)以及土壤呼吸产生溶解性无机碳(DIC)随地表径流、壤中流或地下水汇入(图 1). 这些碳进入水体后一部分直接传输进入河流下游, 一部分埋藏于河流沉积物中, 一部分随水流输入海洋, 还有一部分则在输移过程中参与水体生物地化循环, 转化为 CO₂ 和 CH₄, 排放进入大气, 形成河流碳排放^[5,7,27]. 河流碳排放的动力学过程是一个综合的生物和非生物过程, 涉及水-陆界面、沉积物-水界面、地下水-地表水界面以及水-气界面等多界面迁移转化.

1.1 河流 CO₂ 动力学概念框架

水-气界面 CO₂ 排放是河流碳排放的最主要的途径, 其排放速率由河流表层水体 CO₂ 浓度和水-气界面气体交换系数决定. 河流表层水体 CO₂ 通常包括两个来源: 外源和内源. 外源主要指流域陆源(土壤、洪泛区、湿地)有机碳的分解和植物根系呼吸产生的土壤 CO₂ 通过地表径流或壤中流进入河流, 地下水溶解性 CO₂ 的排泄, 以及少量碳酸盐沉降等^[14,28,29]. 流域土壤呼吸产生的 CO₂ 是小流域和源头溪流水体 CO₂ 的主要来源. Johnson 等^[14]对亚马逊流域源头溪流的研究表明, 陆地向河流传输的碳中 77% 都是土壤呼吸产生的 CO₂ 形式存在, 其中超过 90% 最终通过水-气界面排放进入大气, 因此, 研究者提出源头溪流起到了陆域土壤 CO₂ 排放的输导作用. Teodoru 等^[30]对加拿大魁北克北部的溪流-河流系统研究认为陆源 CO₂ 的输入是上游水体 pCO₂ 远高于下游的主要原因, 这一结论也在北美溪流系统^[4]、育空河^[19]等研究中得到了广泛认识. Telmer 等的研究认为^[31], 降雨期间, 渥太华河流域土壤径流 pCO₂ 高达 5 065 Pa, 是导致小流域水体高 CO₂ 浓度的直接因素. 河流水体

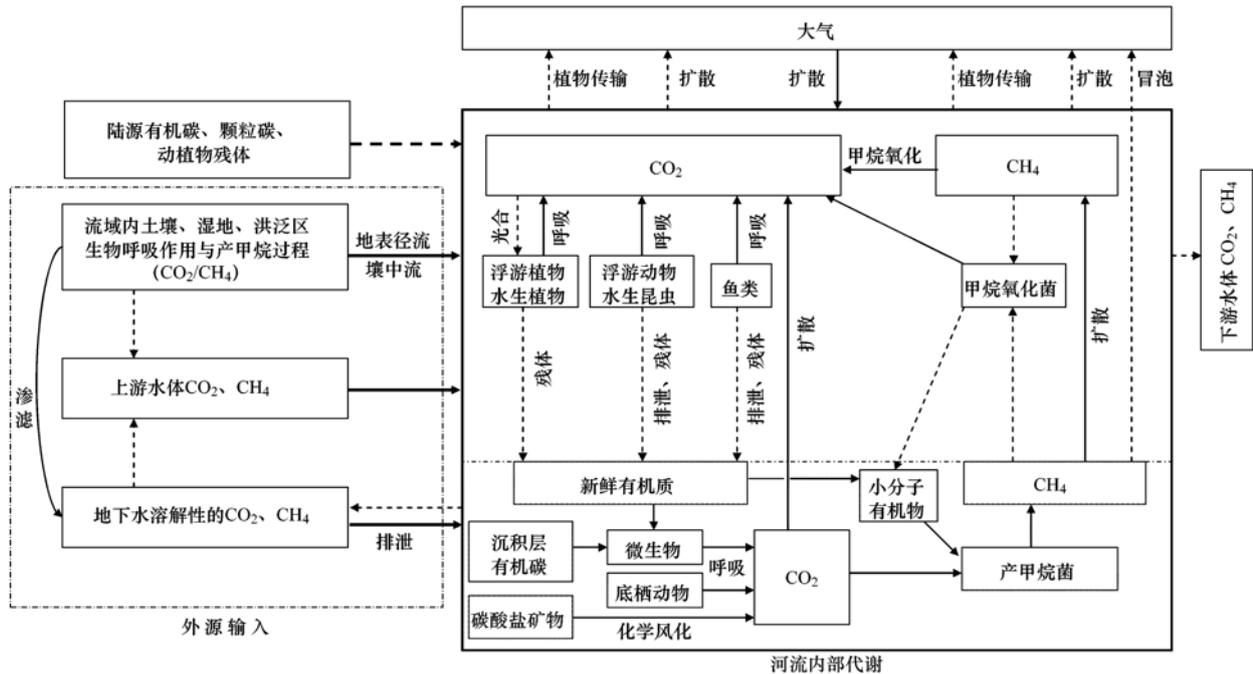


图 1 河流水体 CO₂ 与 CH₄ 来源与去向概念框架

Fig. 1 Conceptual framework for sources and fates of CO₂/CH₄ in streams and rivers

CO₂ 浓度在丰水期高于枯水期^[3,9,12], 也与丰水期大量陆源 CO₂ 随径流的直接输入密切相关. 陆地土壤 CO₂ 随径流输入外, 还有一部分下渗进入地下水, 并经过地下水-地表水交换进入河流^[32]. 此外, 许多河流具有面积较大的洪泛平原和河岸邻接湿地系统, 在洪水脉冲作用下, 成为河流水体 CO₂ 的重要来源^[3]. 这些研究结果均肯定了河流水体 CO₂ 陆源输入的重要性. 然而, 目前对陆源 CO₂ 输入贡献仍以推断为主, 而从流域尺度的量化研究较少, 导致对全球碳循环存在明显的缺口. 对 CO₂ 由水-陆界面或土壤-地下水-水体输移过程研究是弥补这一缺口的关键, 未来结合径流模拟和水环境面源污染模型等, 构建无机碳多界面迁移模型, 可能对区域尺度 CO₂ 汇流过程进行有效的模拟和量化.

从流域范围碳输移过程理解, 陆地 POC、DOC 以及 DIC 随径流进入源头溪流, 其中大部分 DIC 在具有较高扰动和湍流的源头区会直接以 CO₂ 形式排放进入大气^[14], 而有机碳及少量的 CO₂ 随水流进入下游河流. 因此一些研究者认为源头溪流水体 CO₂ 主要源于陆源土壤呼吸, 而下游河段则主要源于内部有机碳的分解^[2,3,14,33,34]. 河流内源 CO₂ 主要指水体和沉积物中有机碳的微生物分解, 同时包括水体内部水生生物(浮游生物、水生昆虫、水生

植物以及鱼类等)的呼吸作用产生 CO₂, 沉积层底栖动物呼吸以及碳酸盐矿物的风化作用等产生 CO₂^[1,3,28,30] (图 1). 由于河流内源碳代谢较复杂, 大部分研究者将河流碳代谢分为初级生产固定和异养呼吸, 且认为河流在大部分条件下属典型的异养系统. Meyer 等^[35]对美国 Ogeechee River 研究表明, 其平均的呼吸速率是初级生产速率的 5 倍, 属典型的异养系统. Hall 等^[36]对美国中西部 14 条河流水体碳代谢研究中, 认为大部分的河流初级生产速率/呼吸速率 < 1.0, 且河流越小, 该比率越低. 其他河流代谢的研究中^[37,38]也进一步肯定了河流自身异养特征的事实. 此外, 研究者利用碳同位素示踪技术, 对河流水体有机碳周转距离进行研究^[34,36], 进一步量化了不同河流在碳输移过程中的生物地化强度, 为研究河流内源碳代谢过程提供了新的思路.

河流水体 CO₂ 的主要去向包括水体浮游植物与水生植物的光合作用固定和水-气界面的排放^[1,3,28,39,40]. 香溪河的研究中, 水体光合作用的时空差异是引起河流 pCO₂ 时空格局的关键因素^[10], 在龙川江^[26]、重庆都市区河网^[41]、亚马逊流域^[42]等研究也有相似的结论. 随着人类活动加剧, 大部分河流出现营养盐含量增加, 流速减缓, 出现富营养化, 水体初级生产增强, 甚至表现为 CO₂ 的吸收^[41]. 河流中 CO₂ 陆源输入、内源呼吸以及水体光

合作用共同决定了水体 CO₂ 浓度, 进而形成水-气界面浓度差, 导致河流 CO₂ 排放。

1.2 河流 CH₄ 动力学概念框架

CH₄ 排放占河流碳排放的极少部分, 但对大气 CH₄ 浓度及全球气候变化具有重要贡献^[11,43,44], 且受人类活动和气候变化的正驱动。自然生态系统中, CH₄ 的产生是一系列复杂的微生物作用的结果。碳素由最初的有机碎屑形态经异养微生物分解, 转变为可被产甲烷菌利用的单一碳分子形态, 再经过产甲烷作用最终形成 CH₄ 气体并释放进入大气。对于河流系统而言, CH₄ 动力学过程也是一个产生、输入、消耗、输出的动态平衡过程。

(1) 产生 与湿地、湖库相似, 河流水体 CH₄ 主要是沉积层中产甲烷菌以乙酸盐或 CO₂/H₂ 为底物, 在厌氧环境下经一系列发酵过程产生的^[11]。因此产甲烷作用分为氢营养型甲烷化和乙酸发酵型甲烷化两种, 且后者是目前研究发现最主要的产 CH₄ 方式^[45]。沉积物中产生的 CH₄ 气体通过分子扩散、冒泡或植物茎干传输进入上覆水体, 进而参与水体内 CH₄ 代谢。河流沉积物中产甲烷菌丰度、厌氧环境以及 CH₄ 产生所需要的底物条件是河流内部 CH₄ 产生的主要决定因素^[45]。此外, 河流沉积物中 CH₄ 的产生与水体浮游生物关系密切, 一方面浮游生物生长过程会产生大量新鲜有机碳, 刺激 CH₄ 产生^[46]; 另一方面, 浮游动植物的大量繁殖, 导致深水层氧气浓度降低, 为 CH₄ 产生创造了厌氧环境, 同时减少 CH₄ 氧化^[47,48]。目前大量河段出现富营养化状况, 可能成为 CH₄ 排放的热点区域。

(2) 输入 与 CO₂ 来源相似, 陆域土壤厌氧层产生 CH₄ 通过浅层地下水溢流输入、潜流层 CH₄ 交换、洪泛区以及临近湿地 CH₄ 输入等, 构成了河流水体 CH₄ 的外源输入^[18,49~54]。在一些小尺度溪流中, 剧烈的跌水曝气不利于沉积物的积累和厌氧环境的形成, 但在 Willamette 河支流^[50]、森林溪流^[55,56]、泥炭地溪流^[57] 以及阿拉斯加州溪流网络^[52] 等研究中, 研究者均认为地下水排泄是导致这些溪流水体仍具有较高的 CH₄ 浓度的主要原因。同时, 亚马逊河、Ogeechee 河、Zambezi 河等研究中^[58~60], 洪泛平原受频繁水淹, 富含有机质的土壤产生大量 CH₄, 通过扩散进入河流。目前大多研究将洪泛区作为特殊水文区域开展了大量 CH₄ 排放研究, 但对洪泛区 CH₄ 向干流水体的侧向输移研究较少。此外, 部分学者对山地河流潜流

层^[50,51,61,62] 及河流邻接的湿地系统^[52] 的 CH₄ 产生开展了研究, 但关于二者对河流 CH₄ 输入的量化研究较少。

(3) 消耗 在有氧条件下, 甲烷氧化菌对 CH₄ 的氧化作用是水体 CH₄ 消耗的重要环节^[63]。湖泊系统的研究表明, CH₄ 在沉积物-水界面向水体扩散时, 33%~99% 会被甲烷氧化菌消耗掉^[64]。目前对河流内部 CH₄ 氧化的量化研究相对较少, 且存在较大的分歧。在 Saar 河^[65]、太平洋西北部的河流^[66] 以及其他区域河流^[67] 研究中, 甲烷氧化率低于 4%, 而在休斯敦河的研究中, CH₄ 氧化率达到 35%~70%^[68], Shelley 等^[69] 的研究中河流内部 CH₄ 氧化速率甚至超过了 CH₄ 产生速率。水体 CH₄ 氧化受到溶解氧、水深、甲烷氧化菌以及初级生产者等多种因素共同作用和影响, 未来对不同区域水体 CH₄ 氧化的量化研究是完善河流 CH₄ 动力学模型的重要内容。

(4) 输出 河流水体 CH₄ 的输出主要是随水流进入下游水体和水-气界面排放。河流 CH₄ 向大气排放除了传统认识的分子扩散外, 还存在冒泡和植物传输两种途径。近年来关于 CH₄ 冒泡排放的研究越来越受关注, Crawford 等的研究表明^[18], 在富含有机碳的河流中 CH₄ 冒泡排放量甚至与扩散排放量相当, Baulch 等的研究中^[70], 溪流 CH₄ 冒泡排放占总排放通量的 20%~67%, 且与沉积物有机质含量呈显著正相关关系。植物传输只发生在植物群落茂密的水域, 植物通过输导组织将沉积物中的 CH₄ 直接输移上层水体或直接排入大气, 目前针对不同类型水生植物的 CH₄ 传输差异已经开展了较多研究^[71,72]。尽管需要特定的发生条件, 但考虑到冒泡和植物传输可以极大地减少水体 CH₄ 氧化, 这两种途径对河流 CH₄ 排放的贡献不容忽视, 随着检测技术的发展, 未来应给予更多关注。

2 河流碳排放的时空变异性

由于河流水体 CO₂ 与 CH₄ 来源与去向均较为复杂, 受到多种环境过程、生物过程以及环境因子共同影响, 导致河流碳排放呈现显著的时空变异性。为了深入理解河流碳排放过程及特征, 从不同尺度认识碳排放空间变异性至关重要。

2.1 河流 CO₂ 排放的时空变异性

河流 CO₂ 排放空间变异性表现为河流间变异性以及河流内变异性。从全球角度看, 当前对河流 CO₂ 排放的研究主要集中在北美、南美、非洲南部

以及西欧地区,其他地区也集中了少量研究^[5],Mata 分析结果表明热带河流水体 CO₂ 浓度及排放速率高于温带河流,高于寒带河流^[73]. 热带大型河流(宽度 > 60 ~ 100 m) CO₂ 排放通量为 1 600 g·(m²·a)⁻¹,是温带[720 g·(m²·a)⁻¹]的 2.2 倍,寒带仅为 260 g·(m²·a)⁻¹;热带与温带小型河流与溪流(宽度 < 60 m) CO₂ 排放通量相近,但远高于寒带区域^[73]. 不同气候区河流 CO₂ 排放的差异主要受温度控制. 有研究表明,温度上升 10℃,水体 CO₂ 浓度增加 2 ~ 3 倍,温度上升 20℃ 则增加 4 ~ 7 倍^[74],这意味着全球气候变暖将促进高纬度河流系统 CO₂ 排放.

同一气候区的河流间 CO₂ 排放也存在显著变异性. 美国本土河流与溪流系统的 CO₂ 排放通量为 882 ~ 4 008 g·(m²·a)⁻¹,平均为 2 370 (± 800) g·(m²·a)⁻¹^[4];加拿大魁北克低海拔区河溪系统 CO₂ 排放通量变异性从 7.2 ~ 2 145.8 g·(m²·a)⁻¹,平均为 324 g·(m²·a)⁻¹^[30,75];亚马逊流域 7 条河流 CO₂ 排放通量变异范围为 302 ~ 5 790 g·(m²·a)⁻¹,不同河流间差异均达到 1 ~ 3 个数量级^[41]. 我国长江[170 g·(m²·a)⁻¹]、黄河[87 g·(m²·a)⁻¹]、澜沧江[324 g·(m²·a)⁻¹]、珠江[830 ~ 1 560 g·(m²·a)⁻¹]等 CO₂ 排放速率也存在较大差异^[12,23,26,76,77]. 研究认为,由于陆地 CO₂ 输入的差异,河流 CO₂ 浓度及排放速率随河流等级增加而逐渐降低,小尺度的河流、溪流具有更高的 CO₂ 排放速率^[4,78]. 即使同尺度的河流,由于流域地质特征、植被及人类活动等因素的影响,CO₂ 排放也存在较大差异. 目前关于同区域不同河流间 CO₂ 排放差异比较及因素分析的研究较少,尤其我国在这方面研究尚属空白.

河流内的变异性主要表现为不同河段 CO₂ 排放不同,然而目前尚没有河流水体 CO₂ 排放的统一模式. Davidson 等研究中^[79],三条小尺度河流水体 CO₂ 分压由上游河段的 1 925 Pa 降低至下游的 456 Pa^[80]. Teodoru 等的研究表明^[30],魁北克北部多数河流 CO₂ 分压沿上游向下游逐渐降低. 然而,Striegl 等的研究表明^[19],育空河干流从上游向下游 CO₂ 浓度与排放速率逐渐增加,而支流则表现为中游最高,下游次之,上游最低. 对于不同尺度的河流,水体 CO₂ 排放表现在空间上表现不同模式. 针对不同尺度河流进行全流域沿流向的系统监测对于探索河流纵向 CO₂ 排放模式具有重要意义. 此外,大部

分研究认为由于高浓度土壤 CO₂ 的输入、较低的生态容量和高的湍流扰动,使得河源区(上游溪流)水体可能具有更高的 CO₂ 浓度和排放速率^[14,78~80]. 而由于不稳定有机质的累积、特殊的水动力条件和复杂的生物代谢过程,使河口区 CO₂ 排放具有特殊性^[81]. 目前关于河口区的研究相对较多,但关于河源区的研究较少. 针对河流特殊区域的 CO₂ 排放的研究对理解河流在陆地碳循环中的作用和参与过程具有重要意义.

河流 CO₂ 排放具有显著的季节变异性 and 昼夜变异性. 大部分河流 CO₂ 排放表现为雨季高于旱季,夏秋季高于春冬季^[12,41,82,83]. 季节变异性主要受到温度、降雨、流量以及洪水等影响. 夏季高温多雨,一方面陆地土壤呼吸产生 CO₂ 通过地表径流和地下水快速进入河流,另一方面,高温加快了河流异养代谢过程,因此具有较高的 CO₂ 浓度和排放通量. 然而,持续的降雨或暴雨可能导致水体 CO₂ 的稀释效应而表现为河流较低的 CO₂ 排放通量^[84]. 河流 CO₂ 排放昼夜变化研究较少,但 Neal 等的研究表明^[85],Kennet 河水体 CO₂ 饱和度具有明显的昼夜变化规律,且白天高于夜间,并在中午达到峰值,其研究结果与 Peng 等的研究结果一致^[86],河流自身代谢受昼夜温差、光照等因素影响较大. 目前关于河流 CO₂ 排放季节变化的研究较多,但忽略了昼夜变异性,因此可能导致区域河流 CO₂ 排放估算存在较大的不确定性.

2.2 河流 CH₄ 排放的时空变异性

目前关于全球尺度河流 CH₄ 排放的空间特征的研究较少. Stanley 基于全球 952 个位点的 CH₄ 浓度数据库(MethDB)的研究表明,纬度与河溪水体 CH₄ 浓度呈显著的负相关关系,初步明确了随纬度增加河流 CH₄ 浓度降低的模式^[11],相似的结论在其他研究中也提及^[87]. 然而,全球河流与溪流水体 CH₄ 研究的地理分布呈极不均匀的成群特征,主要集中在北美、欧洲及非洲中部地区,而亚洲、南美、中东地区、加拿大、澳大利亚等地区仅零星分布^[88],极大地增加了这种模式的不确定性. 通常生态系统中,CH₄ 产生过程对温度较为敏感,低温条件下不利于 CH₄ 产生^[89],因此热带地区河流可能比寒带河流产生更多的 CH₄. 同时高纬度河流冬季通常存在冰封期,因此全年排放量可能更小^[73]. 全球变暖可能极大地促进高纬度河流 CH₄ 生成与排放^[9],高纬度河流 CH₄ 排放对气候变化的响应是研

究变化环境下生态系统过程的重要内容。

河流内 CH₄ 排放的空间变异性表现为纵向变异性及横向变异性。目前关于河流 CH₄ 纵向变异性研究较多, 没有统一规律。受地貌、人为干扰、水环境特征以及水动力学过程等因素影响, 对 Yukon 河全流域河流 CH₄ 排放的研究中, 干流与支流均表现为 CH₄ 浓度呈上游 (0.07 μmol) < 中游 (0.39 μmol) < 下游 (1.35 μmol)^[19], 亚马逊干流及支流也呈现相似空间分布规律^[90]。而 Tanswei 河与 Adyar 河的研究中 CH₄ 排放整体表现为中游最高, 下游次之, 上游最低^[91,92]。同时, 香溪河 CH₄ 排放从上游向下游呈降低趋势^[10], 可见不同区域河流 CH₄ 排放空间分布模式存在差异。河流水体 CH₄ 浓度横向上通常表现为由河中心向河两岸逐渐增加, 一方面有机质输入容易在河岸区富集, 为 CH₄ 生成提供了物质基础, 另一方面, 两侧水体相对扰动较小, CH₄ 容易在水体中积累^[90,93]。河流水体 CH₄ 排放对河流内在环境及外在环境的变化都非常敏感, 更高密度的采样对于精确估算河流 CH₄ 在碳排放中的作用至关重要。

CH₄ 生成过程对温度非常敏感。然而, 热带地区由于温度季节性波动较小, 河流水体 CH₄ 浓度及排放季节变异性主要受到降雨和流量驱动。亚马逊河流及其主要支流的研究中, CH₄ 排在枯水期显著高于丰水期^[90]。非洲地区的 3 条热带河流^[94] 以及欧洲的 9 条潮汐型河口^[95] 中也有相似的研究结果。由于丰水期水量较大, 对原位产生的 CH₄ 具有稀释效应, 同时低水位减少了甲烷从底层向表层扩散过程中被氧化的时间, 因此导致枯水期甲烷浓度与排放显著高于丰水期。随着纬度增加, 甲烷生成的季节变异性受温度的驱动增加, 季节变化也表现出夏秋季高于冬季的一般规律。香溪河研究中甲烷排放夏季显著高于其他季节, 且气温与甲烷排放速率呈显著正相关关系^[10]; Anthony 等^[50] 在对 Willamette 河水体 CH₄ 动力学为期 2 年的高频率监测中发现, 每年 7~9 月 (夏季) 为 CH₄ 排放峰值期; Campeau 等^[75] 在对北方 46 条河流、溪流研究中, 指出寒带河流对温度敏感性更高, 相应的季节性波动更显著。总之, 水文与温度的季节性变化决定了河流 CH₄ 浓度与排放的季节变异性, 且随着纬度增加, 温度对河流 CH₄ 时间变异性的贡献增大。此外, 河流水体 CH₄ 排放的日变化也有相关研究, 但仍处于探索阶段, 已有研究中均呈现白天高于夜间^[96,97]。湖泊 CH₄ 排放的昼夜研究中认为水动力

学的昼夜变化、风的扰动以及温度的差异可能是共同决定因素^[72]。研究 CH₄ 日变化动态对精确估算河流对大气 CH₄ 贡献具有重要意义, 对研究河流 CH₄ 动力学和 CH₄ 控制有一定科学意义。

河流碳排放空间异质性及以及监测数据分布不均匀, 导致全球河流碳排放总量的估算存在较大的误差。未来需要开展更多高密度、高频率的区域河流系统的研究, 进而确定碳排放时空变异影响机制, 提高全球估算精确性。

3 河流碳排放控制因子框架

河流 CO₂、CH₄ 排放的动力学概念框架以及时空变异性研究现状表明, 河流碳排放受到多重因素的影响。大多数研究中对影响河流 CO₂、CH₄ 排放的控制因素进行了讨论, 但缺乏系统框架。构建影响因素的系统框架, 有利于更清晰地认识人类活动可能对河流 CO₂、CH₄ 排放产生的影响。本文构建了一个分层的因子框架 (图 2), 包括内部因子和外部因子两层。内部因子主要包括温度、有机质、营养盐, 直接影响河流内部 CO₂、CH₄ 的生物地化过程^[39]。此外, 由于水体 CH₄ 产生过程是有机物降解的最后一步, 末端电子受体 (如氧气、三价铁、硫酸根、硝酸根、四价锰及腐殖酸等) 的耗尽是稳定 CH₄ 产生的基础, 电子受体丰富的环境中, 电子受体还原菌能够抑制产甲烷菌的活性, 进而抑制 CH₄ 产生^[98]。因此末端电子受体也是水体 CH₄ 产生的重要内部因子。pH 是影响河流无机碳转化平衡的重要因素, 也作为影响河流 CO₂ 排放的内部因子^[82]。外部因子主要包括地形、水文以及人类活动, 这里特别强调物理过程和陆源输入过程对河流 CO₂、CH₄ 排放的影响。此外, 流域基底特征以及植被类型可能也是影响河流 CO₂、CH₄ 的重要外部因子, 但由于这些因素对河流碳排放的变异性的贡献受到地形、水文等控制, 差异较大, 因此不作为主要外部因子。

3.1 内部因子

内部因子主要决定河流自身代谢的生化适宜性: 适宜的热力条件 (温度), 丰富的原料 (有机质) 和生物代谢所需的营养物 (营养盐)。

3.1.1 温度

温度是决定河流以及其临近陆地呼吸及代谢速率的关键因子, 是热带地区河流维持高浓度的 CO₂ 和 CH₄ 的主要机制^[11,73]。从河流代谢角度, 河流生

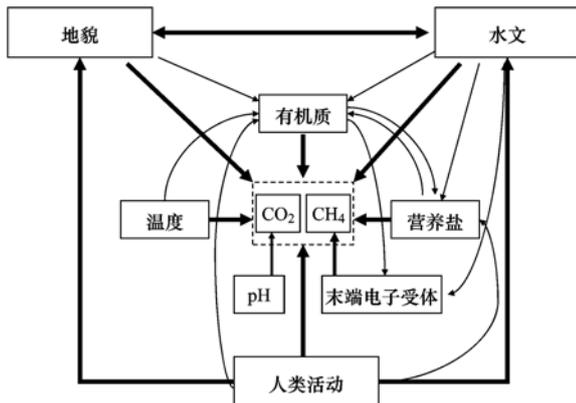


图2 河流水体 CO₂ 与 CH₄ 产生与排放影响因素系统框架

Fig. 2 System framework of controls on CO₂ and CH₄ production and persistence in streams and rivers

态系统是一个异养型的系统^[1]，河流中生物呼吸作用和光合作用对温度较为敏感，因此温度变化能够影响河流 CO₂ 产生和消耗平衡关系，进而对河流 CO₂ 排放产生影响。从流域碳输入过程角度，河流水体 CO₂ 有一部分来源于陆地土壤呼吸，高温促进了临近陆地土壤呼吸产生大量 CO₂，从而增加了陆源 CO₂ 的输入。然而，一些研究中河流 CO₂ 浓度与排放和温度相关性较弱甚至不相关^[9,99]，主要由于河流 CO₂ 来源复杂(图1)，CO₂ 过程受到多方面因素的共同影响。但温度仍然被认为是河流 CO₂ 季节变异性的主要驱动因素。

温度在湖泊、湿地、水库以及河流等多种水环境中均被认为是调节 CH₄ 浓度的重要因子。有研究表明，CH₄ 产生过程具有较高的温度依赖性^[89]，温度每上升 10℃，产甲烷菌的繁殖率可增加 1 倍，气温与水温对河流 CH₄ 产生的调控意义重大^[100]。在加拿大魁北克河网系统的研究中，水体甲烷浓度与水温呈极显著正相关关系，水体甲烷浓度的温度系数(Q₁₀)达到 4.1^[9]。Yvon-Durocher 等^[101]的研究认为温度升高对淡水 CH₄ 的排放的促进作用高于系统初级生产力的增加，且温度升高能够促使更多初级生产固定的碳以 CH₄ 形式排放。季节变化研究中，温带与寒带河流 CH₄ 浓度呈现明显的夏季高、冬季低的规律，这一模式被认为主要受温度支配^[102]。然而，Wallin 等^[103]的研究中认为温度只是次要的影响因素，甚至富营养的河流中全年一半以上的 CH₄ 排放集中在温度较低的冬季^[104]。这些结果表明，温度并不是河流系统 CH₄ 浓度调控的唯一因子，在研究中应该进一步考虑更多因素的综合效应。

3.1.2 有机质

有机质是河流原位呼吸作用和微生物代谢的基

本原料，也是河流 CH₄ 和 CO₂ 内源产生的主要碳源。水体微生物对有机质的分解作用是河流 CO₂ 的重要来源，通常有机质丰富的河道中 CO₂ 内源产生高于外源输入^[30]，目前关于河流有机质与水体 CO₂ 关系的研究较多，但缺乏系统的辨识 CO₂ 的具体来源和周转。一些研究者利用同位素方法对碳源进行了示踪研究，结果表明，亚马逊河中陆源新鲜有机质输入是水体 CO₂ 的主要来源^[30]，而非新鲜有机碳对亚马逊河 CO₂ 排放的贡献仅为 3%~9%^[105]。Zeng 等^[84]的研究表明陆地新鲜有机碳的输入是自然河流水体 CO₂ 过饱和的主要因素，而城市河流中人为碳源(污水有机碳，石灰石、白云石、次生碳酸盐等)对水体 CO₂ 的贡献较大。然而，对于一些山地河流和源头溪流而言，原位呼吸作用贡献相对较弱，水体 CO₂ 浓度与 DOC 相关性不显著^[26]。可见，有机质对河流 CO₂ 的影响大小取决于河流外源输入与内源呼吸的相对贡献。目前，对河流 CO₂ 的来源研究还较为薄弱，是河流碳排放研究的重要方向。

CH₄ 排放和沉积物有机质关系更密切^[18,106]。基于全球河流 CH₄ 数据的分析表明，甲烷浓度与 DOC 呈显著正相关关系^[11]，有机碳既作为 CH₄ 产生的底物来源促进原位 CH₄ 产生，同时高有机质水体中 O₂ 消耗快，减少 CH₄ 氧化^[16,39]。早期研究表明，外源有机质输入能够显著刺激河流中的甲烷产生^[107]。进一步研究表明，河流中有机质的生物有效性和腐殖质组成(胡敏素、胡敏酸、富啡酸等)特征可能影响河流甲烷产生的重要机制^[108]。同时，Smemo 等^[109]认为一些腐殖质可能作为 CH₄ 生成的电子受体而刺激 CH₄ 产生，而 Minderlein 等^[110]的研究发现一些腐殖酸对产甲烷菌具有一定抑制作用，并因此在一些富含有机质的沉积物中不利于 CH₄ 的产生。由于淡水系统中有机质的组成及其生物有效性极易受到人类活动(施肥、城市化、排污等)影响^[111]，研究有机质与 CH₄ 排放的关系时，不仅需要关注有机质的量与 CH₄ 产生的关系，更应该开展更多河流水体有机质组成与 CH₄ 代谢过程的关系的研究。

3.1.3 营养盐

目前营养盐对河流 CO₂ 与 CH₄ 动力学的影响研究较少，但营养盐与河流水体初级生产、微生物代谢、浮游生物生长等密切相关。因此，营养盐对河流 CO₂ 的影响主要是通过改变生态系统初级生

产和呼吸作用平衡, 从而影响河流原位 CO₂ 的产生和消耗^[26,86]. 重庆都市区河网研究表明^[41], 在污染严重的河流(碳源丰富)中, 营养盐输入能够缓解微生物生长限制, 促进水体 CO₂ 产生, 而低污染的河流中, 由于碳限制, 营养盐的增加主要促进水体浮游植物生长, 增强光合作用, 进而降低水体 CO₂ 浓度. 营养盐对河流 CO₂ 排放的影响受到其他因子的制约, 对二者关系的研究仍有待加强.

生态系统中氮磷对 CH₄ 产生影响的研究较多, 影响机制可能有多种: ①产甲烷菌与甲烷氧化菌均受到营养盐限制; ②营养盐特别是氮盐能够通过增加细胞渗透压而抑制水中甲烷氧化菌的生长; ③铵盐能够被甲烷氧化酶氧化, 进而替代 CH₄ 消耗; ④营养盐添加促进河流浮游生物的繁殖, 为 CH₄ 产生提供了新鲜有机质和厌氧环境^[112-115]. 这些机制表明, 营养盐可能促进水生系统中 CH₄ 产生与排放. 同一种营养盐对河流水体 CH₄ 影响也存在多重机制, 例如硝态氮作为营养物可能促进产甲烷菌繁殖代谢, 同时也作为有机物分解的末端电子受体抑制 CH₄ 产生^[11,116,117], 因此不同环境下营养盐对甲烷排放的影响结果可能不同. 在土壤中 P 的添加对甲烷氧化菌活性和丰度也具促进和抑制双重影响, 但影响机制并不清楚^[118]. 近年来, 在湿地系统中发现了亚硝酸盐型甲烷厌氧氧化过程, 而这一关联碳-氮循环的过程在河流系统中还尚未开展研究. 基于营养盐对水体甲烷排放的影响, 全球碳、氮、磷循环可能存在密切的耦合关系, 尤其在全球变化和人类活动干扰背景下, 这种关系的研究对理解陆地-海洋-大气之间的碳-氮-磷过程具有重要意义.

随着对河流 CO₂ 与 CH₄ 排放的认识越来越明确, 进一步探究有机质输入与组成、营养盐形态以及富集等对河流 CO₂ 与 CH₄ 代谢影响是研究变化环境中河流生态功能响应的关键.

3.2 外部因子

影响河流 CO₂ 与 CH₄ 的外部因子众多, 本文将外部因子归纳为水文、地貌以及人为活动三方面. 外部因子通常通过物理过程(例如稀释、扰动、汇流、沉积物冲刷)直接影响河流 CO₂、CH₄ 浓度与排放, 或通过影响内部因子(污水排放、有机碳汇入、营养盐富集)间接改变河流内生物地化过程.

3.2.1 水文

水文因素对河流 CO₂ 浓度及排放的影响研究较多, 主要集中在流量、流速、降雨(径流汇入)、洪水以及地下水排泄等过程对河流 CO₂ 排放的影

响. 大部分研究表明, 河流水体 CO₂ 浓度与流量呈相同的波动规律^[13,84,118], 这与高流量期大量的外源 CO₂ 随径流汇入有关. 而同时, 在湄公河^[82]、Potomac 河^[119] 以及 Comoé 河^[83] 等研究中, 水体 CO₂ 浓度与流量呈相反的动态规律, 这可能与高流量对 CO₂ 稀释作用有关. 降雨对河流 CO₂ 排放有多方面的影响, 首先加速河流周围土壤呼吸产生 CO₂ 的输入; 其次是稀释作用^[12,17,83,84,118]; 再次, 降雨携带陆源有机物的输入促进原位呼吸过程, 进而增加河流异养代谢; 最后, 降雨过程中由于雨滴对水体表面的扰动可能增加 CO₂ 的瞬时排放速率, 但没有直接的研究证据. 流速是影响水体溶解性 CO₂ 排放的重要因子^[120], 主要通过增加水体湍流能及水面扰动, 提高水-气界面气体传输速率. 同时, 对河流而言, 流速是影响沉积层呼吸作用产生 CO₂ 向上扩散的重要驱动因子^[121,122]. 目前, 关于关键水文过程对河流 CO₂ 排放动力学研究仍然较少, 需要受到更多关注.

从 CH₄ 动力学概念框架看到, 河流周围湿地、洪泛区、饱和土壤以及地下水等通过水文过程连通, 成为河流 CH₄ 的主要来源(图 1), 导致河流在不具备严格的厌氧环境下仍具有较高 CH₄ 浓度. 因此, 近年来水文过程对河流 CH₄ 排放的影响也吸引了研究者目光. 与河流 CO₂ 相似, CH₄ 浓度也受到降雨、径流、洪水、流量、流速等因子的影响. 从高纬度溪流^[102] 到热带和亚热带河流^[50,90,94,123], CH₄ 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. Dyson 等^[124] 认为河流 CH₄ 排放可能存在“初期冲刷”效应, 即在最大流量到来之前可能存在短期的高排放速率, 但这一假设仍缺乏中低纬度区域河流的验证. 同时这种水文脉冲对水体有机质、营养盐也具有明显的稀释效应, 可能减少 CH₄ 的产生. 然而, 对于具有广阔洪泛区的河流而言, 洪水脉冲过程中洪泛区土壤 CH₄ 快速进入河流水体, 导致一些研究中洪峰伴随 CH₄ 浓度的峰值同时出现^[16,57,125,126]. 流速对 CH₄ 排放的作用具有双重性, 一方面增加沉积物-水界面、水-气界面 CH₄ 扩散和排放, 另一方面增加水体溶解氧和增强深水层的氧化作用, 增加 CH₄ 的消耗.

此外, Cole 等^[2] 提出集中地下水排泄是导致局部水体 CO₂ 与 CH₄ 的空间异质性的的重要因素. 目前关于地下水与河流水体交换过程对 CH₄ 动力学影响的研究较少, 特别是河流潜流层可能作为厌氧

生物地化循环过程的重要界面,在地下水排泄过程中对河流水体 CH_4 的贡献有待进一步探索。

3.2.2 地貌

地貌对河流 CO_2 和 CH_4 的影响主要可归纳为 3 方面:①通过影响径流路径进而影响陆源 CO_2 和 CH_4 输入;②决定河床形态和沉积物积累过程从而影响河流原位代谢;③决定河流流速、流量以及湍流能,进而影响河流 CO_2 与 CH_4 浓度和排放速率^[49,75,120]。从宏观尺度看,流域地貌决定了河流宽度、深度、河网密度、径流特征、河床坡降以及底质类型等特征。河床坡降对河流流速以及湍流能具有重要决定作用,坡降越大,流速越快,湍流能越高,河流水-气界面气体交换速率越快^[120]。亚马逊河流域研究中,河床底质粒度越小,水体 CH_4 浓度越高^[90],河流代谢热点通常集中在细砂粒底质和有机质丰富的河床区^[106]。从中观尺度看,源头河段、跌水、浅滩-深潭以及河床基岩河段均可以影响河流有机质的来源、积累以及溶解氧、温度、营养盐等条件^[127],进而改变河流代谢过程。从微观尺度看,河床的枯枝落叶的积累和底质类型是影响河流 CO_2 和 CH_4 产生与排放的因子。目前关于不同尺度地貌对河流生态系统代谢过程的研究较少,针对不同尺度下河流地貌特征对河流碳排放的研究对认识生态系统结构和功能的具有重要意义。

3.2.3 人类活动

人类活动对河流生态系统具有多方面影响,包括河流连通性阻断、河岸带破坏、面源污染、污水排放、流域土地利用改变以及生物多样性减少等^[128]。同时研究表明,人类活动增加了密西西比河向海洋的碳转移^[129],改变了淡水生态系统有机碳组成^[23]。甚至一些研究者认为人类活动使得河流成为退化最严重的生态系统^[130]。这种环境的变化必然对河流 CO_2 与 CH_4 的产生、消耗、输入输出过程产生重要影响。下面就农业活动、筑坝及城市化(排污、土地利用变化)对河流碳排放影响研究进行分析。

(1) 农业活动

农业活动是影响内陆淡水系统健康的最关键因素,其对河流碳循环的影响受到广泛关注^[131],但对 CO_2 和 CH_4 排放的研究较少。密西西比河研究表明,农业活动导致河水碱度增加,促进河流 CO_2 排放^[132]。Barnes 等^[133]的研究表明农业流域河流的 CO_2 排放是背景区河流的 3~6 倍。Beaulieu 等^[134]认为农业活动导致 Harsha 水库 CH_4 排放远高于世

界其他水库。有限的研究肯定了农业活动对水生生态系统碳排放的影响。农业活动(耕作、施肥、灌溉、过度放牧等)加剧了河流水面源营养物富集^[135],直接改变了河流碳动力学过程。同时,农业流域土壤流失进入河流,形成细粒沉积物被认为是农业流域河流 CH_4 高排放的重要驱动因子^[136,137]。此外,流域内水田或排水不良的农田为 CH_4 产生提供了良好的厌氧环境,这部分 CH_4 能够随地下水和壤中流进入河流或溪流。最后,流域原有地貌改变,影响径流汇入过程,同时原始的自然植被被农业植物代替,影响生态系统代谢过程^[111]。

(2) 筑坝

河流筑坝拦水是上世纪世界上最普遍的水利工程,几乎将全球一半以上的河流阻断。然而,筑坝导致水深加深、流速减慢、有机碳积累以及河岸带植被的淹没等,使得自然河流由 CO_2 和 CH_4 弱源变成了强源^[7,138]。筑坝已经成为对河流生态系统影响最大的人类活动之一,已有研究者对水库 CO_2 和 CH_4 排放进行了综述,本文不做过多论述。

(3) 城市化

近 20 年来,全球正在经历快速的城市化过程,尤其是在发展中国家。城市化是一种综合性的环境影响因素,包括流域陆面硬化、城镇污水排放、水文过程改变、城市面源污染、河道改造、流域碳循环变化等。城市化对河流生态系统结构和功能均产生了显著影响,其中流域碳循环的改变受到了广泛关注。Sacramento 河研究中 17% 的 TOC 负荷来源于城市污水和面源污染^[139]。城市污水排放导致 Piracicaba 河流域大部分的支流处于高 DOC/DIC 和低 DO 的状态^[140],促进河流异养代谢。城市建设中使用的石灰石、白云石等碳酸盐矿物是城市河流 CO_2 的主要碳源^[84]。Hosen 等的研究表明^[141],城市河流中自然腐殖质减少,人为富里酸和蛋白类增加,有机碳微生物有效性高于非城市河流。河流溶解性有机碳组成及生物有效性的改变可能对河流 CO_2 和 CH_4 产生与排放具有重要影响。Kaushal 等^[142]对美国东部河流碱度长期变化研究中认为,流域内人类活动的增强导致河流碱度增加,随后其对 Gwynns Falls 流域碳排放的研究中表明河流水体 CO_2 排放通量沿城市化梯度增加显著^[143]。重庆都市区河网研究中,城市区河段 CO_2 排放速率是农村区或林地区的 3~6 倍^[41],高污染负荷伴随高 CO_2 浓度。上海河网的研究中,城市区河流 CH_4 浓度显著高于郊区和农村区^[144]。Purvaja 等认为^[145],城镇

生活污水是红树林湿地 CH₄ 的重要来源. 此外, 城市化过程中, 地表水文过程改变和植被覆盖减少也是影响城市河流碳排放的潜在机制. 尽管所有证据均表明城市化对河流碳排放具有极为重要的影响, 但目前针对该方面的研究仍然不足. 城市化对生态系统功能影响是多方面的, 从河流碳排放的角度探讨城市化的生态影响对优化城市发展策略和自然系统温室气体排放控制具有重要意义.

4 问题与展望

(1) 缺乏流域尺度上河流 CO₂ 与 CH₄ 动力学过程的研究. 目前大部分研究只针对某一条河流干流水-气界面碳排放, 而从流域尺度上研究不足. 河流碳排放, 特别是 CO₂ 排放, 与陆源碳输入密切相关, 从流域尺度上量化含碳气体内源产生与外源输入相对贡献, 将河流与陆地的碳动力学过程进行耦合研究(无边界碳循环), 才能科学构建河流碳排放动力学模型, 深入识别河流碳排放的关键调控因子, 为减少河流碳排放和优化流域管理策略提供科学依据. 此外, 利用化学计量学(C/N 比)、有机质荧光光谱特征以及碳同位素(¹³C、¹⁴C)方法进一步辨识 CO₂ 与 CH₄ 的主要来源、转化和归趋, 结合 GIS 手段和流域特征明确河流碳的来源与去向, 是全球及区域碳循环研究的关键环节.

(2) 加强河流生态系统中不同界面的 CO₂ 与 CH₄ 产生与排放研究. 河流中 CO₂ 与 CH₄ 的产生与排放不仅涉及水气界面的因子, 同时与沉积物-孔隙水、沉积物-上覆水、悬浮颗粒-水、地下水-地表水、潜流层-地表水以及水-陆等界面过程都有密切关系. 目前大部分研究聚集于水-气界面排放, 而忽视了对其他界面碳代谢过程的研究, 因此对河流碳排放的来源辨识和过程机制的理解仍然较为模糊.

(3) 继续开展高时空分辨率的河流碳排放研究, 补充和完善全球河流碳排放数据库. 目前, 全球河流 CO₂ 与 CH₄ 排放研究不均匀的成群分布特征明显, 需要加快开展滞后区域的河流碳排放研究, 为科学评估河流生态系统在全球碳平衡中的作用提供基础. 综合考虑空间尺度(全球尺度、区域尺度、流域尺度以及河段生境尺度)、时间尺度(年际、季节以及昼夜尺度)、特殊水文区域(河源区、河口区、富营养化河段等)以及关键水文过程(降雨或洪水期、地下水排泄、北方河流结冰期以及筑坝拦水)等方面河流碳排放的变异特征, 理清河流碳排放时空分布格局的控制因子及其调控机制.

(4) 加快开展人类活动影响下河流碳排放特征研究. 土地利用方式改变、筑坝与梯级水电开发等人类活动改变了河流生态系统原本的地化循环过程, 生活污水、工业废水排放导致大部分河段受到严重污染, 富营养化加剧, 均直接影响河流中 C、N、P 等元素的循环过程, 改变了河流生态系统中微生物、浮游生物代谢, 进而影响河流外源与内源 CO₂ 与 CH₄ 产消过程. 从全球和流域尺度评估长期人类活动促进河流碳排放的潜在作用, 量化和预测人为-自然对河流碳排放相对贡献率, 是减少河流人为成因的碳排放的关键依据. 此外, 近年来开展了一系列河流水环境保护和恢复工程, 急需从河流碳循环的角度对人为恢复策略下生态系统功能变化进行科学研究.

(5) 开展多河流或河网碳排放比较研究, 尤其应加强中小型河流研究. 目前研究主要集中在大河, 对中小型河流研究不足, 而这些河流可能具有更大的碳排放潜力. 受水文、地貌、水环境特征等因素的影响, 河流碳排放时空差异明显, 对不同特征的中小型河流开展碳排放比较研究, 能够更清晰辨识河流碳排放的关键驱动因子, 对完善河流碳排放动力学模型具有重要意义.

(6) 关注变化环境下河流碳排放特征. 目前广受关注的变化环境包括气候变化、氮沉降、农业面源污染、极端天气、土地利用变化等. 关于变化环境对其他生态系统 CO₂ 与 CH₄ 排放研究较多, 但河流系统没有受到太多关注. 基于河流碳排放动力学概念框架和影响因子框架, 变化环境下河流碳排放受到直接或间接影响, 同时河流碳排放影响气候变化, 在一定程度上形成了驱动循环.

参考文献:

- [1] Cole J J, Prairie Y T, Caraco N F, *et al.* Plumbing the global carbon cycle: Integrating inland waters into the terrestrial carbon budget[J]. *Ecosystems*, 2007, **10**(1): 172-185.
- [2] Cole J J, Caraco N F. Carbon in catchments: connecting terrestrial carbon losses with aquatic metabolism[J]. *Marine and Freshwater Research*, 2001, **52**(1): 101-110.
- [3] Richey J E, Melack J M, Aufdenkampe A K, *et al.* Outgassing from Amazonian rivers and wetlands as a large tropical source of atmospheric CO₂[J]. *Nature*, 2002, **416**(6881): 617-620.
- [4] Butman D, Raymond P A. Significant efflux of carbon dioxide from streams and rivers in the United States [J]. *Nature Geoscience*, 2011, **4**(12): 839-842.
- [5] Raymond P A, Hartmann J, Lauerwald R, *et al.* Global carbon dioxide emissions from inland waters [J]. *Nature*, 2013, **503**(7476): 355-359.
- [6] de Angelis M A, Lilley M D. Methane in surface waters of Oregon estuaries and rivers [J]. *Limnology and Oceanography*,

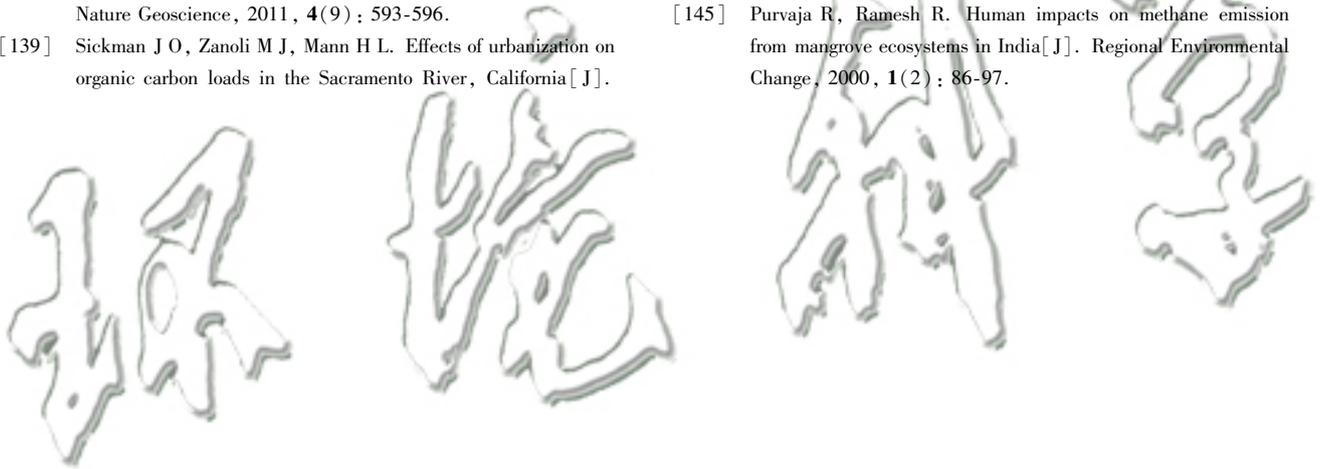
- 1987, **32**(3): 716-722.
- [7] Bastviken D, Tranvik L J, Downing J A, *et al.* Freshwater methane emissions offset the continental carbon sink [J]. *Science*, 2011, **331**(6013): 50.
- [8] Belger L, Forsberg B R, Melack J M. Carbon dioxide and methane emissions from interfluvial wetlands in the upper Negro River basin, Brazil [J]. *Biogeochemistry*, 2011, **105**(1-3): 171-183.
- [9] Campeau A, del Giorgio P A. Patterns in CH₄ and CO₂ concentrations across boreal rivers: major drivers and implications for fluvial greenhouse emissions under climate change scenarios [J]. *Global Change Biology*, 2014, **20**(4): 1075-1088.
- [10] Huang W M, Bi Y H, Hu Z Y, *et al.* Spatio-temporal variations of GHG emissions from surface water of Xiangxi River in Three Gorges Reservoir region, China [J]. *Ecological Engineering*, 2015, **83**: 28-32.
- [11] Stanley E H, Casson N J, Christel S T, *et al.* The ecology of methane in streams and rivers: patterns, controls, and global significance [J]. *Ecological Monographs*, 2016, **86**(2): 146-171.
- [12] Yao G R, Gao Q Z, Wang Z G, *et al.* Dynamics of CO₂ partial pressure and CO₂ outgassing in the lower reaches of the Xijiang River, a subtropical monsoon river in China [J]. *Science of the Total Environment*, 2007, **376**(1-3): 255-266.
- [13] Ran L, Lu X X, Richey J E, *et al.* Long-term spatial and temporal variation of CO₂ partial pressure in the Yellow River, China [J]. *Biogeosciences*, 2015, **12**(4): 921-932.
- [14] Johnson M S, Lehmann J, Riha S J, *et al.* CO₂ efflux from Amazonian headwater streams represents a significant fate for deep soil respiration [J]. *Geophysical Research Letters*, 2008, **35**(17): L17401.
- [15] Crosswell J R, Wetz M S, Hales B, *et al.* Air-water CO₂ fluxes in the microtidal Neuse River Estuary, North Carolina [J]. *Journal of Geophysical Research: Oceans*, 2012, **117**(C8): C08017.
- [16] Smith L K, Lewis Jr W M, Chanton J P, *et al.* Methane emissions from the Orinoco River floodplain, Venezuela [J]. *Biogeochemistry*, 2000, **51**(2): 113-140.
- [17] Hope D, Palmer S M, Billett M F, *et al.* Variations in dissolved CO₂ and CH₄ in a first-order stream and catchment: an investigation of soil-stream linkages [J]. *Hydrological Processes*, 2004, **18**(17): 3255-3275.
- [18] Crawford J T, Stanley E H, Spawn S A, *et al.* Ebullitive methane emissions from oxygenated wetland streams [J]. *Global Change Biology*, 2014, **20**(11): 3408-3422.
- [19] Striegl R G, Dornblaser M M, McDonald C P, *et al.* Carbon dioxide and methane emissions from the Yukon River system [J]. *Global Biogeochemical Cycles*, 2012, **26**(4): GB0E05.
- [20] Selvam P B, Natchimuthu S, Arunachalam L, *et al.* Methane and carbon dioxide emissions from inland waters in India-implications for large scale greenhouse gas balances [J]. *Global Change Biology*, 2014, **20**(11): 3397-3407.
- [21] Yu P S, Zhang H S, Zheng M H, *et al.* The partial pressure of carbon dioxide and air-sea fluxes in the Changjiang River Estuary and adjacent Hangzhou Bay [J]. *Acta Oceanologica Sinica*, 2013, **32**(6): 13-17.
- [22] Zhang G L, Zhang J, Liu S M, *et al.* Methane in the Changjiang (Yangtze River) estuary and its adjacent marine area: riverine input, sediment release and atmospheric fluxes [J]. *Biogeochemistry*, 2008, **91**(1): 71-84.
- [23] Song H L, Liu X T. Anthropogenic effects on fluxes of ecosystem respiration and methane in the Yellow River estuary, China [J]. *Wetlands*, 2016, **36**(S1): 113-123.
- [24] Zhai W D, Dai M H, Cai W J, *et al.* High partial pressure of CO₂ and its maintaining mechanism in a subtropical estuary: the Pearl River estuary, China [J]. *Marine Chemistry*, 2005, **93**(1): 21-32.
- [25] Zhou H Y, Yin X J, Yang Q H, *et al.* Distribution, source and flux of methane in the western Pearl River Estuary and northern South China Sea [J]. *Marine Chemistry*, 2009, **117**(1-4): 21-31.
- [26] Li S Y, Lu X X, He M, *et al.* Daily CO₂ partial pressure and CO₂ outgassing in the upper Yangtze River basin: a case study of the Longchuan River, China [J]. *Journal of Hydrology*, 2012, **466-467**: 141-150.
- [27] Wehrli B. Biogeochemistry: conduits of the carbon cycle [J]. *Nature*, 2013, **503**(7476): 346-347.
- [28] Abril G, Martinez J M, Artigas L F, *et al.* Amazon River carbon dioxide outgassing fuelled by wetlands [J]. *Nature*, 2014, **505**(7483): 395-398.
- [29] Sawakuchi H O, Bastviken D, Sawakuchi A O, *et al.* Oxidative mitigation of aquatic methane emissions in large Amazonian rivers [J]. *Global Change Biology*, 2016, **22**(3): 1075-1085.
- [30] Teodoru C R, del Giorgio P A, Prairie Y T, *et al.* Patterns in pCO₂ in boreal streams and rivers of northern Quebec, Canada [J]. *Global Biogeochemical Cycles*, 2009, **23**(2): GB2012.
- [31] Telmer K, Veizer J. Carbon fluxes, pCO₂ and substrate weathering in a large northern river basin, Canada: carbon isotope perspectives [J]. *Chemical Geology*, 1999, **159**(1-4): 61-86.
- [32] Worrall F, Lancaster A. The release of CO₂ from riverwaters-the contribution of excess CO₂ from groundwater [J]. *Biogeochemistry*, 2005, **76**(2): 299-317.
- [33] Mulholland P J, Fellows C S, Tank J L, *et al.* Inter-biome comparison of factors controlling stream metabolism [J]. *Freshwater Biology*, 2001, **46**(11): 1503-1517.
- [34] Quay P D, Wilbur D O, Richey J E, *et al.* Carbon cycling in the Amazon River; implications from the ¹³C compositions of particles and solutes [J]. *Limnology and Oceanography*, 1992, **37**(4): 857-871.
- [35] Meyer J L, Edwards R T. Ecosystem metabolism and turnover of organic carbon along a Blackwater River continuum [J]. *Ecology*, 1990, **71**(2): 668-677.
- [36] Hall Jr R O, Tank J L, Baker M A, *et al.* Metabolism, gas exchange, and carbon spiraling in rivers [J]. *Ecosystems*, 2016, **19**(1): 73-86.
- [37] Howarth R W, Schneider R, Swaney D. Metabolism and organic carbon fluxes in the tidal freshwater Hudson River [J]. *Estuaries*, 1996, **19**(4): 848-865.
- [38] Benner R, Opsahl S, Chin-Leo G, *et al.* Bacterial carbon metabolism in the Amazon River system [J]. *Limnology and Oceanography*, 1995, **40**(7): 1262-1270.
- [39] Mayorga E, Aufdenkampe A K, Masiello C A, *et al.* Young organic matter as a source of carbon dioxide outgassing from

- Amazonian rivers[J]. *Nature*, 2005, **436**(7050): 538-541.
- [40] Richey J E. Pathways of atmospheric CO₂ through fluvial systems [A]. In: Field C B, Raupach M, (Eds.). Scientific Committee on Problems of the Environment (SCOPE)/United Nations Environment Program (UNEP)-the Global Carbon Cycle: Integrating Humans, Climate, and the Natural World [M]. USA: Island Press, 2003. 329-340.
- [41] Wang X F, He Y X, Yuan X Z, *et al.* pCO₂ and CO₂ fluxes of the metropolitan river network in relation to the urbanization of Chongqing, China [J]. *Journal of Geophysical Research: Biogeosciences*, 2017, **122**(3): 470-486.
- [42] de Fútima F L Raseira M, Krusche A V, Richey J E, *et al.* Spatial and temporal variability of pCO₂ and CO₂ efflux in seven Amazonian Rivers[J]. *Biogeochemistry*, 2013, **116**(1-3): 241-259.
- [43] Borges A V, Darchambeau F, Teodoru C R, *et al.* Globally significant greenhouse-gas emissions from African inland waters [J]. *Nature Geoscience*, 2015, **8**(8): 637-642.
- [44] Kirschke S, Bousquet P, Ciais P, *et al.* Three decades of global methane sources and sinks [J]. *Nature Geoscience*, 2013, **6**(10): 813-823.
- [45] Avery G B, Shannon R D, White J R, *et al.* Controls on methane production in a tidal freshwater estuary and a peatland: methane production via acetate fermentation and CO₂ reduction [J]. *Biogeochemistry*, 2003, **62**(1): 19-37.
- [46] Bellido J L, Tulonen T, Kankaala P, *et al.* CO₂ and CH₄ fluxes during spring and autumn mixing periods in a boreal lake (P?? j? rvi, southern Finland) [J]. *Journal of Geophysical Research: Biogeosciences*, 2009, **114**(G4): G04007.
- [47] Franz D, Koebisch F, Larmanou E, *et al.* High net CO₂ and CH₄ release at a eutrophic shallow lake on a formerly drained fen [J]. *Biogeosciences*, 2016, **13**(10): 3051-3070.
- [48] Schrier-Uijl A P, Veenendaal E M, Leffelaar P A, *et al.* Spatial and temporal variation of methane emissions in drained eutrophic peat agro-ecosystems: drainage ditches as emission hotspots [J]. *Biogeosciences Discussions*, 2008, **5**(2): 1237-1261.
- [49] Jones J B, Mulholland P J. Influence of drainage basin topography and elevation on carbon dioxide and methane supersaturation of stream water [J]. *Biogeochemistry*, 1998, **40**(1): 57-72.
- [50] Anthony S E, Prahl F G, Peterson T D. Methane dynamics in the Willamette River, Oregon [J]. *Limnology and Oceanography*, 2012, **57**(5): 1517-1530.
- [51] Schindler J E, Krabbenhoft D P. The hyporheic zone as a source of dissolved organic carbon and carbon gases to a temperate forested stream [J]. *Biogeochemistry*, 1998, **43**(2): 157-174.
- [52] Crawford J T, Striegl R G, Wickland K P, *et al.* Emissions of carbon dioxide and methane from a headwater stream network of interior Alaska [J]. *Journal of Geophysical Research: Biogeosciences*, 2013, **118**(2): 482-494.
- [53] Billett M F, Harvey F H. Measurements of CO₂ and CH₄ evasion from UK peatland headwater streams [J]. *Biogeochemistry*, 2013, **114**(1-3): 165-181.
- [54] Bugna G C, Chanton J P, Cable J E, *et al.* The importance of groundwater discharge to the methane budgets of nearshore and continental shelf waters of the northeastern Gulf of Mexico [J]. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 1996, **60**(23): 4735-4746.
- [55] Jones Jr J B, Mulholland P J. Methane input and evasion in a hardwood forest stream: effects of subsurface flow from shallow and deep pathway [J]. *Limnology and Oceanography*, 1998, **43**(6): 1243-1250.
- [56] Miyama T, Yoshimura K, Kominami Y, *et al.* CH₄ emissions from litter-covered sandbars and the edge of a mountain stream in a secondary deciduous broadleaf forest [J]. *Journal of Agricultural Meteorology*, 2011, **67**(1): 43-51.
- [57] Hope D, Palmer S M, Billett M F, *et al.* Carbon dioxide and methane evasion from a temperate peatland stream [J]. *Limnology and Oceanography*, 2001, **46**(4): 847-857.
- [58] Richey J E, Devol A H, Wofsy S C, *et al.* Biogenic gases and the oxidation and reduction of carbon in Amazon River and floodplain waters [J]. *Limnology and Oceanography*, 1988, **33**(4): 551-561.
- [59] Pulliam W M. Carbon dioxide and methane exports from a southeastern floodplain swamp [J]. *Ecological Monographs*, 1993, **63**(1): 29-53.
- [60] Teodoru C R, Nyoni F C, Borges A V, *et al.* Dynamics of greenhouse gases (CO₂, CH₄, N₂O) along the Zambezi River and major tributaries, and their importance in the riverine carbon budget [J]. *Biogeosciences*, 2015, **12**(8): 2431-2453.
- [61] Baker M A, Dahm C N, Valett H M. Acetate retention and metabolism in the hyporheic zone of a mountain stream [J]. *Limnology and Oceanography*, 1999, **44**(6): 1530-1539.
- [62] Baker M A, Valett H M, Dahm C N. Organic carbon supply and metabolism in a shallow groundwater ecosystem [J]. *Ecology*, 2000, **81**(11): 3133-3148.
- [63] Borrel G, Jézéquel D, Biderre-Petit C, *et al.* Production and consumption of methane in freshwater lake ecosystems [J]. *Research in Microbiology*, 2011, **162**(9): 832-847.
- [64] Bastviken D, Cole J J, Pace M L, *et al.* Fates of methane from different lake habitats: connecting whole-lake budgets and CH₄ emissions [J]. *Journal of Geophysical Research: Biogeosciences*, 2008, **113**(G2): G02024.
- [65] Zaiss U, Winter P, Kaltwasser H. Microbial methane oxidation in the River Saar [J]. *Journal of Basic Microbiology*, 1982, **22**(2): 139-148.
- [66] Lilley M D, de Angelis M A, Olson E J. Methane concentrations and estimated fluxes from Pacific Northwest rivers [J]. *Mitteilungen-Internationale Vereinigung fur Theoretische und Angewandte Limnologie*, 1996, **25**: 187-196.
- [67] Bussmann I. Distribution of methane in the Lena Delta and Buor Khaya Bay, Russia [A]. In: EGU General Assembly Conference [C]. Vienna, Austria; EGU, 2012; 2270.
- [68] de Angelis M A, Scranton M I. Fate of methane in the Hudson River and estuary [J]. *Global Biogeochemical Cycles*, 1993, **7**(3): 509-523.
- [69] Shelley F, Abdullahi F, Grey J, *et al.* Microbial methane cycling in the bed of a chalk river: oxidation has the potential to match methanogenesis enhanced by warming [J]. *Freshwater Biology*, 2015, **60**(1): 150-160.
- [70] Baulch H M, Dillon P J, Maranger R, *et al.* Diffusive and ebullitive transport of methane and nitrous oxide from streams: are bubble-mediated fluxes important? [J]. *Journal of Geophysical Research: Biogeosciences*, 2011, **116**(G4): G04028.

- [71] 段晓男, 王效科, 陈琳, 等. 乌梁素海湖泊湿地植物区甲烷排放规律[J]. 环境科学, 2007, **28**(3): 455-459.
Duan X N, Wang X K, Chen L, *et al.* Methane emission from aquatic vegetation zones of Wuliangsu Lake, Inner Mongolia[J]. Environmental Science, 2007, **28**(3): 455-459.
- [72] Bastviken D, Santoro A L, Marotta H, *et al.* Methane emissions from Pantanal, South America, during the low water season: toward more comprehensive sampling[J]. Environmental Science & Technology, 2010, **44**(14): 5450-5455.
- [73] Aufdenkampe A K, Mayorga E, Raymond P A, *et al.* Riverine coupling of biogeochemical cycles between land, oceans, and atmosphere[J]. Frontiers in Ecology and the Environment, 2011, **9**(1): 53-60.
- [74] Kosten S, Roland F, Da Motta Marques D M L, *et al.* Climate-dependent CO₂ emissions from lakes[J]. Global Biogeochemical Cycles, 2010, **24**(2): GB2007.
- [75] Campeau A, Lapierre J F, Vachon D, *et al.* Regional contribution of CO₂ and CH₄ fluxes from the fluvial network in a lowland boreal landscape of Québec[J]. Global Biogeochemical Cycles, 2014, **28**(1): 57-69.
- [76] Wang F S, Wang Y C, Zhang J, *et al.* Human impact on the historical change of CO₂ degassing flux in River Changjiang[J]. Geochemical Transactions, 2007, **8**: 7.
- [77] 张龙军, 徐雪梅, 温志超. 秋季黄河 pCO₂ 控制因素及水-气界面通量[J]. 水科学进展, 2009, **20**(2): 227-235.
Zhang L J, Xu X M, Wen Z C. Control factors of pCO₂ and CO₂ degassing fluxes from the Yellow River in autumn[J]. Advances in Water Science, 2009, **20**(2): 227-235.
- [78] de Fátima F L, Rasera M, Ballester M V R, *et al.* Estimating the surface area of small rivers in the southwestern Amazon and their role in CO₂ outgassing[J]. Earth Interactions, 2008, **12**(6): 1-16.
- [79] Davidson E A, Figueiredo R O, Markewitz D, *et al.* Dissolved CO₂ in small catchment streams of eastern Amazonia: a minor pathway of terrestrial carbon loss[J]. Journal of Geophysical Research; Biogeosciences, 2010, **115**(G4): G04005.
- [80] Humborg C, Mörth C M, Sundbom M, *et al.* CO₂ supersaturation along the aquatic conduit in Swedish watersheds as constrained by terrestrial respiration, aquatic respiration and weathering[J]. Global Change Biology, 2010, **16**(7): 1966-1978.
- [81] Cai W J. Estuarine and coastal ocean carbon paradox: CO₂ sinks or sites of terrestrial carbon incineration? [J]. Annual Review of Marine Science, 2011, **3**: 123-145.
- [82] Li S Y, Lu X X, Bush R T. CO₂ partial pressure and CO₂ emission in the Lower Mekong River[J]. Journal of Hydrology, 2013, **504**: 40-56.
- [83] Koné Y J M, Abril G, Kouadio K N, *et al.* Seasonal variability of carbon dioxide in the Rivers and lagoons of Ivory Coast (West Africa)[J]. Estuaries and Coasts, 2009, **32**(2): 246-260.
- [84] Zeng F W, Masiello C A. Sources of CO₂ evasion from two subtropical rivers in North America[J]. Biogeochemistry, 2010, **100**(1-3): 211-225.
- [85] Neal C, Watts C, Williams R J, *et al.* Diurnal and longer term patterns in carbon dioxide and calcite saturation for the River Kennet, south-eastern England [J]. Science of the Total Environment, 2002, **282-283**: 205-231.
- [86] Peng X, Wang B L, Liu C Q, *et al.* Diurnal variations of pCO₂ in relation to environmental factors in the cascade reservoirs along the Wujiang River, China[J]. Chinese Journal of Geochemistry, 2012, **31**(1): 41-47.
- [87] Ortiz-Llorente M J, Alvarez-Cobelas M. Comparison of biogenic methane emissions from unmanaged estuaries, lakes, oceans, rivers and wetlands[J]. Atmospheric Environment, 2012, **59**: 328-337.
- [88] Stanley E H, Loken J, Crawford N, *et al.* A global database of methane concentrations and atmospheric fluxes for streams and rivers [EB/OL]. Long Term Ecological Research Network, Environmental Data Initiative, 2015. <https://portal.ternet.edu/nis/mapbrowse?packageid=knb-iter-ntl.321.5375841>.
- [89] Treat C C, Wollheim W M, Varner R K, *et al.* Temperature and peat type control CO₂ and CH₄ production in Alaskan permafrost peats[J]. Global Change Biology, 2014, **20**(8): 2674-2686.
- [90] Sawakuchi H O, Bastviken D, Sawakuchi A O, *et al.* Methane emissions from Amazonian Rivers and their contribution to the global methane budget[J]. Global Change Biology, 2014, **20**(9): 2829-2840.
- [91] Yang S S, Chen I C, Liu C P, *et al.* Carbon dioxide and methane emissions from Tanswei River in Northern Taiwan [J]. Atmospheric Pollution Research, 2015, **6**(1): 52-61.
- [92] Rajkumar A N, Barnes J, Ramesh R, *et al.* Methane and nitrous oxide fluxes in the polluted Adyar River and estuary, SE India [J]. Marine Pollution Bulletin, 2008, **56**(12): 2043-2051.
- [93] Hofmann H. Spatiotemporal distribution patterns of dissolved methane in lakes: how accurate are the current estimations of the diffusive flux path? [J]. Geophysical Research Letters, 2013, **40**(11): 2779-2784.
- [94] Koné Y J M, Abril G, Delille B, *et al.* Seasonal variability of methane in the rivers and lagoons of Ivory Coast (West Africa) [J]. Biogeochemistry, 2010, **100**(1-3): 21-37.
- [95] Middelburg J J, Nieuwenhuize J, Iversen N, *et al.* Methane distribution in European tidal estuaries [J]. Biogeochemistry, 2002, **59**(1-2): 95-119.
- [96] Yang L B, Li X Y, Yan W J, *et al.* CH₄ Concentrations and emissions from Three Rivers in the Chaohu Lake watershed in Southeast China [J]. Journal of Integrative Agriculture, 2012, **11**(4): 665-673.
- [97] Sturm K, Grinham A, Werner U, *et al.* Sources and sinks of methane and nitrous oxide in the subtropical Brisbane River estuary, South East Queensland, Australia [J]. Estuarine, Coastal and Shelf Science, 2016, **168**: 10-21.
- [98] Lovley D R, Coates J D, Blunt-Harris E L, *et al.* Humic substances as electron acceptors for microbial respiration [J]. Nature, 1996, **382**(6590): 445-448.
- [99] Dawson J J C, Soulsby C, Hrachowitz M, *et al.* Seasonality of epCO₂ at different scales along an integrated river continuum within the Dee basin, NE Scotland [J]. Hydrological Processes, 2009, **23**(20): 2929-2942.
- [100] Bastviken D. Methane [A]. In: Likens G (Ed.). Encyclopedia of Inland Waters [M]. Oxford: Elsevier, 2009.
- [101] Yvon-Durocher G, Montoya J M, Woodward G, *et al.* Warming increases the proportion of primary production emitted as methane from freshwater mesocosms [J]. Global Change Biology, 2011, **17**(2): 1225-1234.

- [102] Dinsmore K J, Billett M F, Dyson K E. Temperature and precipitation drive temporal variability in aquatic carbon and GHG concentrations and fluxes in a peatland catchment [J]. *Global Change Biology*, 2013, **19**(7): 2133-2148.
- [103] Wallin M B, Löfgren S, Erlandsson M, *et al.* Representative regional sampling of carbon dioxide and methane concentrations in hemiboreal headwater streams reveal underestimates in less systematic approaches [J]. *Global Biogeochemical Cycles*, 2014, **28**(4): 465-479.
- [104] Silvennoinen H, Liikanen A, Rintala J, *et al.* Greenhouse gas fluxes from the eutrophic Temmesjoki River and its Estuary in the Liminganlahti Bay (the Baltic Sea) [J]. *Biogeochemistry*, 2008, **90**(2): 193-208.
- [105] Vihermaa L E, Waldron S, Garnett M H, *et al.* Old carbon contributes to aquatic emissions of carbon dioxide in the Amazon [J]. *Biogeosciences*, 2014, **11**(13): 3635-3645.
- [106] Baulch H M, Dillon P J, Maranger R, *et al.* Diffusive and ebullitive transport of methane and nitrous oxide from streams: are bubble-mediated fluxes important? [J]. *Journal of Geophysical Research: Biogeosciences*, 2011, **116**(G4): G04028.
- [107] Jones Jr J B, Holmes R M, Fisher S G, *et al.* Methanogenesis in Arizona, USA dryland streams [J]. *Biogeochemistry*, 1995, **31**(3): 155-173.
- [108] Garnier J, Vilain G, Silvestre M, *et al.* Budget of methane emissions from soils, livestock and the river network at the regional scale of the Seine basin (France) [J]. *Biogeochemistry*, 2013, **116**(1-3): 199-214.
- [109] Smemo K A, Yavitt J B. Anaerobic oxidation of methane: an underappreciated aspect of methane cycling in peatland ecosystems? [J]. *Biogeosciences*, 2011, **8**(3): 779-793.
- [110] Minderlein S, Blodau C. Humic-rich peat extracts inhibit sulfate reduction, methanogenesis, and anaerobic respiration but not acetogenesis in peat soils of a temperate bog [J]. *Soil Biology and Biochemistry*, 2010, **42**(12): 2078-2086.
- [111] Williams C J, Frost P C, Morales-Williams A M, *et al.* Human activities cause distinct dissolved organic matter composition across freshwater ecosystems [J]. *Global Change Biology*, 2016, **22**(2): 613-626.
- [112] Bodelier P L E, Laanbroek H J. Nitrogen as a regulatory factor of methane oxidation in soils and sediments [J]. *FEMS Microbiology Ecology*, 2004, **47**(3): 265-277.
- [113] Xu Z J, Zheng X H, Wang Y S, *et al.* Effects of elevated CO₂ and N fertilization on CH₄ emissions from paddy rice fields [J]. *Global Biogeochemical Cycles*, 2004, **18**(3): GB3009.
- [114] Liu L L, Greaver T L. A review of nitrogen enrichment effects on three biogenic GHGs: the CO₂ sink may be largely offset by stimulated N₂O and CH₄ emission [J]. *Ecology Letters*, 2009, **12**(10): 1103-1117.
- [115] Song C C, Yang G S, Liu D Y, *et al.* Phosphorus availability as a primary constraint on methane emission from a freshwater wetland [J]. *Atmospheric Environment*, 2012, **59**: 202-206.
- [116] Rajkumar A N, Barnes J, Ramesh R, *et al.* Methane and nitrous oxide fluxes in the polluted Adyar River and estuary, SE India [J]. *Marine Pollution Bulletin*, 2008, **56**(12): 2043-2051.
- [117] Bodelier P L E, Steenbergh A K. Interactions between methane and the nitrogen cycle in light of climate change [J]. *Current Opinion in Environmental Sustainability*, 2014, **9-10**: 26-36.
- [118] Salimon C, dos Santos Sousa E, Alin S R, *et al.* Seasonal variation in dissolved carbon concentrations and fluxes in the upper Purus River, southwestern Amazon [J]. *Biogeochemistry*, 2013, **114**(1-3): 245-254.
- [119] Prasad M B K, Kaushal S S, Murtugudde R. Long-term pCO₂ dynamics in rivers in the Chesapeake Bay watershed [J]. *Applied Geochemistry*, 2013, **31**: 209-215.
- [120] Raymond P A, Zappa C J, Butman D, *et al.* Scaling the gas transfer velocity and hydraulic geometry in streams and small rivers [J]. *Limnology and Oceanography: Fluids and Environments*, 2012, **2**(1): 41-53.
- [121] Beaulieu J J, Shuster W D, Rebolz J A Controls on gas transfer velocities in a large river [J]. *Journal of Geophysical Research: Biogeosciences*, 2012, **117**(G2): G02007.
- [122] Alin S R, de Fátima F L Raseira M, Salimon C I, *et al.* Physical controls on carbon dioxide transfer velocity and flux in low-gradient river systems and implications for regional carbon budgets [J]. *Journal of Geophysical Research: Biogeosciences*, 2011, **116**(G1): G01009.
- [123] Bouillon S, Yambélé A, Gillikin D P, *et al.* Contrasting biogeochemical characteristics of the Oubangui River and tributaries (Congo River basin) [J]. *Scientific Reports*, 2014, **4**: 5402.
- [124] Dyson K E, Billett M F, Dinsmore K J, *et al.* Release of aquatic carbon from two peatland catchments in E. Finland during the spring snowmelt period [J]. *Biogeochemistry*, 2011, **103**(1-3): 125-142.
- [125] Bartlett K B, Crill P M, Bonassi J A, *et al.* Methane Flux From the Amazon River Floodplain: emissions during rising water [J]. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 1990, **95**(D10): 16773-16788.
- [126] Semenov M V, Kravchenko I K, Semenov V M, *et al.* Carbon dioxide, methane, and nitrous oxide fluxes in soil catena across the right bank of the Oka River (Moscow oblast) [J]. *Eurasian Soil Science*, 2010, **43**(5): 541-549.
- [127] Burkholder B K, Grant G E, Haggerty R, *et al.* Influence of hyporheic flow and geomorphology on temperature of a large, gravel-bed river, Clackamas River, Oregon, USA [J]. *Hydrological Processes*, 2008, **22**(7): 941-953.
- [128] Vörösmarty C J, McIntyre P B, Gessner M O, *et al.* Global threats to human water security and river biodiversity [J]. *Nature*, 2010, **467**(7315): 555-561.
- [129] Raymond P A, Oh N H, Turner R E, *et al.* Anthropogenically enhanced fluxes of water and carbon from the Mississippi River [J]. *Nature*, 2008, **451**(7177): 449-452.
- [130] Carpenter S R, Stanley E H, Vander Zanden M State of the world's freshwater ecosystems: physical, chemical, and biological changes [J]. *Annual Review of Environment and Resources*, 2011, **36**: 75-99.
- [131] Stanley E H, Powers S M, Lottig N R, *et al.* Contemporary changes in dissolved organic carbon (DOC) in human-dominated rivers: is there a role for DOC management? [J]. *Freshwater Biology*, 2012, **57**(S1): 26-42.
- [132] Raymond P A, Cole J J. Increase in the export of alkalinity from North America's largest river [J]. *Science*, 2003, **301**(5629):

- 88-91.
- [133] Barnes R T, Raymond P A. The contribution of agricultural and urban activities to inorganic carbon fluxes within temperate watersheds[J]. *Chemical Geology*, 2009, **266**(3-4): 318-327.
- [134] Beaulieu J J, Smolenski R L, Nietch C T, *et al.* High methane emissions from a midlatitude reservoir draining an agricultural watershed[J]. *Environmental Science & Technology*, 2014, **48**(19): 11100-11108.
- [135] Veum K S, Goynes K W, Motavalli P P, *et al.* Runoff and dissolved organic carbon loss from a paired-watershed study of three adjacent agricultural watersheds [J]. *Agriculture, Ecosystems & Environment*, 2009, **130**(3-4): 115-122.
- [136] Sanders I A, Heppell C M, Cotton J A, *et al.* Emission of methane from chalk streams has potential implications for agricultural practices[J]. *Freshwater Biology*, 2007, **52**(6): 1176-1186.
- [137] Crawford J T, Stanley E H. Controls on methane concentrations and fluxes in streams draining human-dominated landscapes [J]. *Ecological Applications*, 2016, **26**(5): 1581-1591.
- [138] Barros N, Cole J J, Tranvik L J, *et al.* Carbon emission from hydroelectric reservoirs linked to reservoir age and latitude[J]. *Nature Geoscience*, 2011, **4**(9): 593-596.
- [139] Sickman J O, Zanolli M J, Mann H L. Effects of urbanization on organic carbon loads in the Sacramento River, California[J]. *Water Resources Research*, 2007, **43**(11): W11422.
- [140] Daniel M H B, Montebelo A A, Bernardes M C, *et al.* Effects of urban sewage on dissolved oxygen, dissolved inorganic and organic carbon, and electrical conductivity of small streams along a gradient of urbanization in the Piracicaba River Basin [J]. *Water, Air, and Soil Pollution*, 2002, **136**(1-4): 189-206.
- [141] Hosen J D, McDonough O T, Febria C M, *et al.* Dissolved organic matter quality and bioavailability changes across an urbanization gradient in headwater streams[J]. *Environmental Science & Technology*, 2014, **48**(14): 7817-7824.
- [142] Kaushal S S, Likens G E, Utz R M, *et al.* Increased river alkalization in the Eastern U. S. [J]. *Environmental Science & Technology*, 2013, **47**(18): 10302-10311.
- [143] Kaushal S S, Delaney-Newcomb K, Findlay S E G, *et al.* Longitudinal patterns in carbon and nitrogen fluxes and stream metabolism along an urban watershed continuum [J]. *Biogeochemistry*, 2014, **121**(1): 23-44.
- [144] Wang D Q, Chen Z L, Sun W W, *et al.* Methane and nitrous oxide concentration and emission flux of Yangtze Delta plain river net[J]. *Science in China Series B: Chemistry*, 2009, **52**(5): 652-661.
- [145] Purvaja R, Ramesh R. Human impacts on methane emission from mangrove ecosystems in India[J]. *Regional Environmental Change*, 2000, **1**(2): 86-97.



CONTENTS

Regional Transport Matrix Study of PM _{2.5} in Jingjinji Region, 2015	WANG Yan-li, XUE Wen-bo, LEI Yu, <i>et al.</i> (4897)
Effect of Atmospheric Haze Based on Multi-source Remote Sensing Data Considering the Size Effect of Landscape Sources and Sinks	XU Kai, YU Tian-tian, SUN Jiao-jiao, <i>et al.</i> (4905)
Space-Time Estimations and Mapping of PM _{2.5} Fine Particulates Based on Multi-source Data	XIAO Lu, LANG Yi-chao, XIA Lang, <i>et al.</i> (4913)
Exposure Level of Population and Economy in Zhejiang Province Considering the Background of PM _{2.5} in East China	YU Zhen-yan, GAO Da-wei, LI Zheng-quan, <i>et al.</i> (4924)
Aerosol Chemical Characteristics for Different Air Pollution Levels in North Suburban Nanjing	ZHANG Cheng, YU Xing-na, AN Jun-lin, <i>et al.</i> (4932)
Seasonal Variation of Carbon Fractions in PM _{2.5} in Heze	LIU Ze-jun, WU Jian-hui, ZHANG Yu-fen, <i>et al.</i> (4943)
Characteristics and Source Apportionment of Water-soluble Inorganic Ions in Road Dust PM _{2.5} in Selected Cities in Liaoning Province	ZHANG Wei, JI Ya-qin, ZHANG Jun, <i>et al.</i> (4951)
Characteristics of the Size Distribution of Water-soluble Ions During a Heavy Pollution Episode in the Winter in Tianjin	YAO Qing, LIU Zi-rui, HAN Su-qin, <i>et al.</i> (4958)
Physico-chemical Characteristic Analysis of PM _{2.5} in the Highway Tunnel in the Plateau City of Kunming	WANG Cheng-hui, YAN Kun, HAN Xin-yu, <i>et al.</i> (4968)
Characteristics Analysis of the Surface Ozone Concentration of China in 2015	DUAN Xiao-tong, CAO Nian-wen, WANG Xiao, <i>et al.</i> (4976)
Effects of Different Precious Metal Loads of CDPF on Characteristics of VOCs Emissions from a Diesel Bus	LOU Di-ming, ZHANG Zi-jun, LIU Ji-yue, <i>et al.</i> (4983)
Influence of ENSO Events on the Hydrogen ($\delta^2\text{H}$) and Oxygen ($\delta^{18}\text{O}$) Isotopic Values of Precipitation in Shanghai	DONG Xiao-fang, YANG Hua-wei, ZHANG Luan, <i>et al.</i> (4991)
Deposition of Sulfur, Nitrogen and Mercury in Two Typical Forest Ecosystems in Southern China	CHENG Zheng-lin, LUO Yao, ZHANG Ting, <i>et al.</i> (5004)
Spatial and Temporal Variability of CO ₂ Emissions from the Xin'anjiang Reservoir	YANG Le, LI He-peng, SUN Bin-feng, <i>et al.</i> (5012)
Evaluation of Temporal and Spatial Variation Characteristics of Nutrients in Surface Sediment in the Three Gorges Reservoir Area	ZHUO Hai-hua, QIU Guang-sheng, ZHAI Wan-ying, <i>et al.</i> (5020)
Distribution of Different Mercury Species in the Waterbody at Sanmenxia Reservoir	CHENG Liu, MA Bing-juan, ZHOU Wei-li, <i>et al.</i> (5032)
Identification of Nitrate Sources and Transformation Processes in Midstream Areas; A Case in the Taizi River Basin	LI Yan-li, SUN Wei, YANG Zi-rui (5039)
Characteristics of Nitrogen Variation and Its Response to Rainfall; A Case Study in Wuxi Port at Taihu Lake Basin	LIAN Hui-shu, LIU Hong-bin, LI Xu-dong, <i>et al.</i> (5047)
Dynamics of the Water Quality in a Broad-leaf Evergreen Forest at Different Spatial Levels on Jinyun Mountain	MA Ming, SUN Tao, LI Ding-kai, <i>et al.</i> (5056)
Method of Improving the Water Quality of Polluted Rivers Based on the MIKE11 Model	XIONG Hong-bin, CHEN Xue, ZHANG Si-si (5063)
Distribution Characteristics and Risk Analysis of Antibiotic in the Groundwater in Beijing	CHEN Wei-ping, PENG Cheng-wei, YANG Yang, <i>et al.</i> (5074)
Characteristics of Carbon and Nitrogen in the Downstream Columnar Sediment of Maozhou River, Shenzhen	LING Jun-hong, ZHANG Yi-zhang, WANG Min-hao, <i>et al.</i> (5081)
Relative Importance of Factors Influencing Iron Release in Drinking Water Distribution Systems	LIU Ying, YU Ying, SHI Bao-you, <i>et al.</i> (5090)
Removal of High Concentration of Iron, Manganese and Ammonia Nitrogen from Low Temperature Groundwater Using Single Bio-filter	LI Dong, CAO Rui-hua, YANG Hang, <i>et al.</i> (5097)
Mechanism of Pre-ozonation Enhanced Coagulation on DON in the Secondary Effluent	LIU Bing, ZHENG Yu-ming, WANG Da-xiang, <i>et al.</i> (5106)
Base Activation of Peroxymonosulfate for the Degradation of Ciprofloxacin in Water	GE Yong-jian, CAI Xian-wei, LIN Han, <i>et al.</i> (5116)
MIL-88A@MIP Activated Persulfate for Targeted Degradation of Dibutyl Phthalate	WANG Jiu-mei, GUAN Ze-yu, WAN Jin-quan, <i>et al.</i> (5124)
Methane Cycle Anaerobic Membrane Bioreactor with Desulfurization for Treating High Sulfate Organic Wastewater at Normal Temperature	XU Ting, JIN Yan-qing, LI Yong (5132)
Simultaneous Recovery of Nutrients from Wastewater by Mesoporous MgO-loaded Natural Zeolite	CHENG Xue-jun, WANG Xue-jiang, WANG Hao, <i>et al.</i> (5139)
Phosphorus Removal Capacity of Domestic Wastewater Treated by a Modified CAST Process Under Different Operating Modes	MA Juan, WANG Jin, YU Xiao-jun, <i>et al.</i> (5146)
Realization of Shortcut Nitrification in the ABR-MBR Process Treating Domestic Wastewater	LÜ Liang, ZHAO Shi-hui, WEI Jia-min, <i>et al.</i> (5154)
Substrate Inhibition and Kinetic Characteristics of Marine Anaerobic Ammonium Oxidizing Bacteria Treating Saline Wastewater	ZHOU Tong, YU De-shuang, LI Jin, <i>et al.</i> (5162)
Effect of Free Ammonia on Ammonia Escape During an Ammonia Oxidation Process	SUN Hong-wei, YU Xue, YOU Yong-jun, <i>et al.</i> (5169)
Water Quality and Diversity of Denitrifier Community Structure of Typical Scenic Water Bodies in Xi'an	KANG Peng-liang, HUANG Ting-lin, ZHANG Hai-han, <i>et al.</i> (5174)
Start-up and Characteristics of the Microbial Community Structure of ANAMMOX	WANG Yao-qi, ZHANG Min, JIANG Ying, <i>et al.</i> (5184)
Fast Start-up and Performance of the CANON Process Based on a SBAF System and Evolution Properties of Microorganisms	YUE Xiu, LIU Zhu-han, YU Guang-ping, <i>et al.</i> (5192)
Enrichment of <i>Nitrospira</i> in Activated Sludge and Kinetic Characterization	YAO Qian, PENG Dang-cong, ZHAO Qiao-di, <i>et al.</i> (5201)
Effect of pH Value on Autotrophic Denitrification Process of Zero Valent Iron Substrate	ZHANG Ning-bo, LI Xiang, HUANG Yong (5208)
Effect of Seeding Single/Mixed Sludge on Rapid Start-up of an ANAMMOX Reactor	ZHANG Ze-wen, LI Dong, ZHANG Jie, <i>et al.</i> (5215)
Comparison of Start-up and Stable Performance of Nitrification in Activated Sludge and Biofilm Processes in a SBR	SUN Yi-qi, BIAN Wei, WANG Meng, <i>et al.</i> (5222)
Long-term Impacts of TiO ₂ Nanoparticles on the Stability of an Anaerobic Granular Sludge Bioreactor	LI Hui-ting, CUI Fu-yi (5229)
Composition and Distribution of Antibiotics in Soils with Different Land Use Types in a Typical Peri-urban Area of the Yangtze River Delta	ZHAO Fang-kai, CHEN Li-ding, YANG Lei, <i>et al.</i> (5237)
Distribution of Phosphorus in Soil Profiles after Continuous Application of Different Fertilizers	ZHANG Tian, XU Hao, RU Shu-hua, <i>et al.</i> (5247)
Occurrence of Organophosphate Esters in Soils of the Three Gorges Reservoir	HE Ming-jing, YANG Ting, YANG Zhi-hao, <i>et al.</i> (5256)
Pollution Characteristics, Source Analysis and Potential Ecological Risk Assessment of Heavy Metals in Soils Surrounding a Municipal Solid Waste Incineration Plant in Shanghai	GUO Yan-hai, SUN Xu-chao, ZHANG Shi-bing, <i>et al.</i> (5262)
Comparison of Characteristics and Source Apportionment of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in Different Environmental Media in the Urban Area of Daqing City	SONG Ning-ning, FENG Jia-shen, YU Yang, <i>et al.</i> (5272)
Magnetic Response of Heavy Metal Pollution in Playground Dust of an Industrial Area	YANG Meng, LI Hui-ming, LI Feng-ying, <i>et al.</i> (5282)
Distribution Characteristics and Health Risk for Heavy Metals in Vegetables Near the Industrial Areas in Shanghai	ZHOU Ya, BI Chun-juan, ZHOU Xiao-xiao, <i>et al.</i> (5292)
Impacts of Silicon Fertilizer as Base Manure on Cadmium Bioavailability in Soil and on Cadmium Accumulation in Rice Plants	GAO Zi-xiang, ZHOU Hang, YANG Wen-tao, <i>et al.</i> (5299)
Uptake and Volatilization of Gaseous Elemental Mercury by Paddy Rice	SHANG Shuai, TIAN Pei, JIANG Yu, <i>et al.</i> (5308)
Long Term Variations of Ozone Concentration of in a Winter Wheat Field and Its Loss Estimate Based on Dry Matter and Yield	ZHAO Hui, ZHENG You-fei, LI Shuo, <i>et al.</i> (5315)
Control Effect of Side Deep Fertilization with Slow-release Fertilizer on Ammonia Volatilization from Paddy Fields	HOU Peng-fu, XUE Li-xiang, YU Ying-liang, <i>et al.</i> (5326)
Effects of Biochar and Organic Fertilizer on Saline-alkali Soil N ₂ O Emission in the North China Plain	SHI Yu-long, LIU Xing-ren, GAO Pei-ling, <i>et al.</i> (5333)
Flux Characteristics of CO ₂ , CH ₄ , and N ₂ O and their Influencing Factors in Different Types of Ditches on the Chengdu Plain	FENG Xiang-rong, DENG Ou-ping, DENG Liang-ji, <i>et al.</i> (5344)
Review of CO ₂ and CH ₄ Emissions from Rivers	WANG Xiao-feng, YUAN Xing-zhong, CHEN Huai, <i>et al.</i> (5352)