

三峡水库中段库底水体 CH₄ 浓度变化及其主要影响因素*

秦宇¹, 苏友恒¹, 李哲^{2**}, 刘正勉¹, 张渝阳¹

(1: 重庆交通大学水利水运工程教育部重点实验室, 重庆 400074)

(2: 中国科学院重庆绿色智能技术研究院, 重庆 400714)

摘要: 甲烷(CH₄)是一种重要的温室气体,对全球气候变化有不可忽视的影响. 三峡水库是中国最大的水库,其潜在的CH₄释放近年来备受关注. 然而,此地区现存研究主要集中于水-气界面通量观测,对库底沉积物同底层水体CH₄浓度变化之间关系的认知仍然欠缺. 为探究三峡水库泥沙主要沉降淤积的中段区域库底水体CH₄浓度变化及其主要影响因素,本研究于2017年8月-2018年11月在涪陵南沱镇、忠县石宝寨、万州小周镇采集库底上覆水体和底泥样本,并结合三峡水库调度运行特征进行分析. 结果表明,三峡水库中段库底上覆水CH₄浓度范围为0.02~0.91 μmol/L,二氧化碳(CO₂)浓度范围为0.006~0.105 mmol/L,沉积物有机碳含量范围为7~90 g/kg,总氮含量范围为0.27~45.6 g/kg. 另外,三峡水库低水位运行时期(5-9月),上游及陆源输入大量异源性有机碳是该时期三峡库中段底部CH₄积累的充分条件. 在水库高水位运行时期(10月-次年4月),水位与径流变化对三峡水库中段底部CH₄的影响并不明显,库底自源性有机质相对比重有所增加,温度是该时期影响水库底层水体CH₄浓度分布的主要水环境因素.

关键词: 三峡水库;甲烷;流量;水位;沉积物

CH₄ variation and main influencing factors of bottom water column in the middle section of Three Gorges Reservoir*

Qin Yu¹, Su Youheng¹, Li Zhe^{2**}, Liu Zhengmian¹ & Zhang Yuyang¹

(1: *Key Laboratory of Hydraulic and Waterway Engineering of the Ministry of Education, Chongqing Jiaotong University, Chongqing 400074, P.R.China*)

(2: *Chongqing Institute of Green and Intelligent Technology, Chinese Academy of Sciences, Chongqing 400714, P.R.China*)

Abstract: Methane (CH₄) is an important greenhouse gas contributing to global climate change. The Three Gorges Reservoir (TGR) is the largest reservoir in China and has been receiving concerns for its potential CH₄ emissions during the past decades. However, the current research in the TGR mainly focuses on the observation of water-air interface fluxes, the knowledge of relationship between bottom sediments in the reservoir and CH₄ concentrations variation of the bottom water column is still lacking. To explore CH₄ concentrations variation and main influencing factors of the bottom water column in the middle section of TGR, this study collects overlying water and sediment of the bottom respectively at Nanling Town of Fuling, Shibaozhai of Zhongxian and Xiaozhou Town of Wanzhou in the middle section of the TGR during August 2017 and November 2018, and analyzing the data combined with reservoir operation characteristics. The results indicate that CH₄ concentrations in the overlying water of the bottom ranges from 0.02 μmol/L to 0.91 μmol/L, carbon dioxide (CO₂) ranges from 0.006 mmol/L to 0.105 mmol/L, the organic carbon (OC) content in the sediment ranges from 7 g/kg to 90 g/kg, and total nitrogen ranges from 0.27 g/kg to 45.6 g/kg. During the low water level period of the TGR (May to September), a large amount of allochthonous OC input from upstream and terrestrial sources is a sufficient condition for CH₄ accumulation of the bottom in the middle section of the TGR. During the high water level period (October to April of the following year), water level and runoff variations have no obvious effect on CH₄ of the bottom in the middle section of

* 2020-02-18 收稿;2020-05-23 收修改稿.

国家自然科学基金项目(51861125204,51609226)和重庆市基础科学与前沿技术研究项目(cstc2017jcyjAX0280)联合资助.

** 通信作者;E-mail: lizhe@cigit.ac.cn.

the TGR, the relative proportion of autochthonous organic matter of the bottom in the reservoir is increased, and temperature is the main aquatic environmental factor that affected the CH₄ distribution.

Keywords: Three Gorges Reservoir; CH₄; flow; water level; sediment

CH₄是仅次于CO₂的一种重要的温室气体. 政府间气候变化专门委员会(IPCC)估计,CH₄在100 a期间使得全球变暖的能力约是CO₂的28倍^[1],对气候变化具有不可忽视的作用. 内陆水体是全球CH₄重要的来源^[2-4],来源于水库CH₄的直接排放量以碳计就达到13.4 Tg/a^[5].

水生生态系统中,调节控制产CH₄的主要直接因素是有机质、温度和终端电子受体(如NO₃⁻、Fe³⁺、Mn⁴⁺、SO₄²⁻),而间接控制因素是水域的地理背景与水文条件^[6]. 影响CH₄氧化的直接因素是CH₄氧化细菌的丰度与活度,反映在物化指标上主要是温度、DO和CH₄浓度. 其中,能最终进入大气增强全球温室效应的部分是两者平衡之后的结果. 水生生态系统中的CH₄在时空上往往还表现出较大的异质性^[6],尤其是在空间上往往因外部环境条件发生改变进而促使CH₄产生主要集中在一些热点区域^[7-9]. 新安江和萨尔河的CH₄排放热点主要在水库的中上游^[9-10],而卡里巴湖上则主要在近岸地区^[11]. 这些地区都具有大量陆源性有机碳(OC)累积特征. 在河流—水库系统中,由于流速变缓,水流中携带的颗粒易于过渡区段沉积,这将为库底带来大量上游及陆源输入有机质^[12],并可能形成更大范围的厌氧环境,促进CH₄的产生^[9],最后通过扩散和气泡释放的形式进入大气. 尽管如此,目前的研究通常集中于水—气界面之间的通量观测^[10, 13-14],而与沉积物CH₄生产相关的观测与研究多出现在湖泊系统中^[15-16]. 河流—水库系统中沉积区域CH₄源汇变化的研究鲜有报道.

三峡水库是我国目前最大的水库. 三峡水库兼顾防洪、发电、航运等功能,是长江上游重要的生态屏障. 但自2003年蓄水以来,水文情势变化导致水库水环境与水生生态发生显著改变,在纵向上总体呈现出由河流型向湖泊型逐渐过渡的特征,且受“蓄清排浑”的调度运行规程影响,水文、水环境与水生生态要素的时空配置差异明显. 这些差异导致三峡水库在时间上明显分为高水位与低水位两个运行时期,在空间上中段沉积的现象较为明显^[17-18]. 当前,关于三峡水库CH₄源汇变化的研究仍主要集中于通量数据的估计^[19],对三峡水库内沉积物中CH₄产生及其影响因素的科学认识仍然十分有限. 本研究拟以三峡水库中段库底CH₄为对象,以水位和流量为切入点,结合有机碳、总氮(TN)等理化指标,分析水库中段CH₄浓度变化特征及其潜在机制.

1 材料与方法

1.1 研究区概况

三峡水库是典型的河道型水库,从三斗坪坝址到水库末端重庆江津花红堡,全长约700 km. 为实现通航和防洪的要求,三峡水库在汛期(6—9月),水库水位一般维持在防洪限制水位145 m运行,从汛末9月开始拦截多余来水,水库水位逐渐抬升至175 m水位. 在次年4月底以前,水库尽可能维持较高水位运行,随着大坝下泄流量大于上游流入水库的流量,水位逐渐于5月底降至枯水期最低消落水位(155 m). 三峡水库整体上属于亚热带季风气候,平均温度为18.4℃,年降水量为1000~1800 mm,分布均匀.

1.2 采样方案

本次研究选取涪陵南沱镇(FL, 29°48′00″N, 107°27′00″E)、忠县石宝寨(ZX, 30°24′57.63″N, 108°12′40.86″E)、万州小周镇(WZ, 30°46′26.66″N, 108°24′46.74″E)为采样点(图1). 3个采样点位分别距离大坝约469、332、286 km,处于三峡水库的中段范围. 采样时间为2017年8月—2018年11月,逐月采样日为当月的月底,每次采样时间为两天,研究期间的三峡水库流量和水位数据来自于中国长江三峡集团有限公司. 采样点位分布和同期水文情况见图1,上覆水温度与溶解氧(DO)浓度情况见表1.

采样点位于长江干流主航道,以航道浮标船作为位置标记. 将体积为5 L的分层取水器用绳索绑定并沿水柱向下投放至轻微触碰底部,并对底层以上0.5 m的上覆水进行采样. 后在相同位置用绳索将采泥斗投放至底部抓取1~5 L表层底泥样本,视样品数量与质量是否达到实验所要求重复1~2次采样. 将采集得到的水样(体积约5 L)在低温避光下保存于玻璃瓶中,于1~2天内送回实验室,并在当天进行常规指标的检测(DO、pH、水温). 气体样本采集是通过15 mL顶空瓶完全淹没至分层采水器的水体中,在尽量避免瓶内混

入气泡下封装水样,避光保存并转移至实验室进行 CO₂、CH₄ 的分压检测. 底泥用封口袋密封完毕后运送至实验室,且在实验室内将底泥冷冻干燥后,用筛子(孔径为 0.25 mm)将泥样中的碎屑残渣筛滤,并用密封袋再次封装避光保存. 其中用于粒径分析的是 1 和 8 月的底泥样品,每次测试样品重量为 5 g.

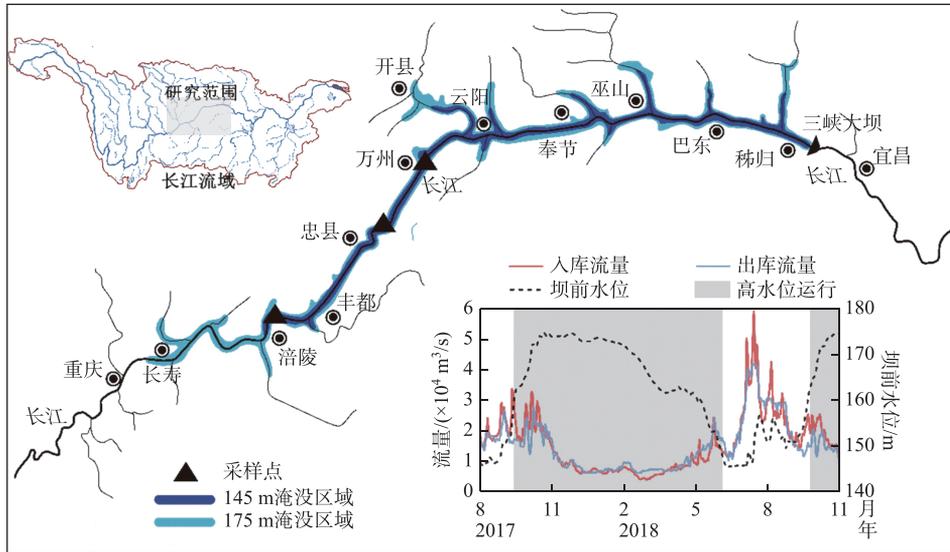


图 1 三峡水库流域采样点与水文信息

Fig.1 Sampling sites and hydrology in the Three Gorges Reservoir

表 1 上覆水温度与溶解氧浓度(平均值±标准差)

Tab.1 Temperature and dissolved oxygen concentration of overlying water (mean value ± SD)

研究地点	运行时期	温度/℃	溶解氧/(mg/L)
涪陵 (FL)	高水位 (n=6)	25.4±1.5	6.8±0.7
	低水位 (n=7)	17.6±2.8	8.7±0.6
忠县 (ZX)	高水位 (n=6)	24.8±1.1	7.1±0.5
	低水位 (n=7)	17.8±4.2	8.5±0.6
万州 (WZ)	高水位 (n=6)	24.8±1.5	6.7±0.9
	低水位 (n=7)	18.2±3.8	8.6±0.6

1.3 样品分析方法

上覆水温度与 DO 浓度均在现场通过 ProODO (YSI®) 测试得到. 底泥样本中的 OC 将采用 550℃ 烧失量法, TN 含量测定主要采用凯氏氮测定法^[20]. 粒径分布检测采用马尔文 2000 激光粒度分析仪 (Malvern Instruments Ltd, UK). 水体中 CH₄、CO₂ 浓度的测定采用顶空平衡法-气相色谱法^[21]: 用两根注射针头安装在装有水体样本体积为 15 mL 的顶空瓶上, 用注射器通过其中一根针头向顶空瓶内中注入 10 mL 的高纯氮气, 多余的水体通过另一针头排除. 完成气体注射之后, 置于 220 r/min 摇床震荡 20 min. 现场气温、大气压采用手持式数字大气压计测得. 最后通过抽取顶空瓶中的平衡气体推送入气象色谱仪 (安捷伦 7820 型气相色谱仪), 气体采用十通阀进样, CH₄ 经 TDX-01 色谱柱分离后直接用 FID 检测器检测, 浓度通过积分峰面计算得到. 其计算公式为^[22]:

$$P(\text{Gas}) = \frac{(P_{\text{final}} \cdot K_{\text{equilibrium}}) + \left[(HS/S) \frac{(P_{\text{final}} - P_{\text{initial}})}{V_m} \right]}{K_{\text{sample}}} \quad (1)$$

式中, $P(\text{Gas})$ 为待测水样中气体分压; P_{initial} 及 P_{final} 分别为平衡前、后瓶内上方空气中待测气体分压; HS/S 为瓶内气体与水体体积比; K_{sample} 及 $K_{\text{equilibrium}}$ 分别为采样时和样品分析前瓶内不同水温条件下对应的等测气体溶解度^[23].

1.4 数据处理方法

根据三峡水库“蓄清排浑”的调度运行规程,对全年数据序列进行划分,其中,将10月一次年4月划分为“高水位运行期”;5-9月划分为“低水位运行期”.实验数据录入SPSS软件加以统计分析,数据先进行单样本K-S检验判断其分布特征,对符合正态分布的数据采用ANOVA检验进行差异性分析与Pearson相关性分析,对不符合正态分布的数据采用非参数统计(Spearman相关性分析),线性回归采用ANOVA检验其显著性,绘图制表运用Origin软件.

2 结果与分析

2.1 CH_4 与 CO_2 的时间变化

三峡水库干流中段在研究期间库底上覆水 CH_4 平均浓度为 $0.15 \pm 0.03 \mu\text{mol/L}$, 总体介于 $0.02 \sim 0.91 \mu\text{mol/L}$ 之间(图2). 在时间上, 全年的峰值出现在3-7月, 其他月份三峡水库中段库底 CH_4 浓度较为稳定. 按照水库调度运行, 整体上, 低水位运行期间库底 CH_4 浓度变化幅度比高水位运行期间更大. 在沿程上, 水库在高水位运行呈现出库底 CH_4 浓度上游高于下游的趋势, 在低水位运行时位于两者之间的忠县库底 CH_4 浓度并没有明显低于涪陵, 整体上也呈现沿程降低. CO_2 在研究期间平均浓度为 $0.050 \pm 0.005 \text{ mmol/L}$, 总体介于 $0.006 \sim 0.105 \text{ mmol/L}$ 之间(图2). 7-10月份总体上水体 CO_2 浓度相对较低. CH_4/CO_2 在一定程度上是 CH_4 产生与整个生态系统新陈代谢相对关系的表征, 虽然存在对这一化学计量的探索, 但该值的差异目前仍未得到系统的解释^[6].

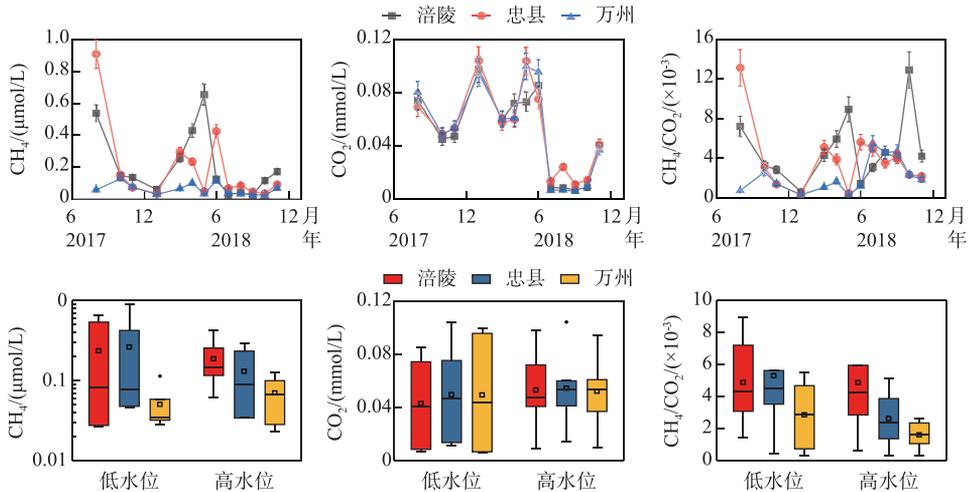


图2 研究期间 CH_4 和 CO_2 随时间变化及其在不同水库运行阶段的统计分析结果

Fig.2 CH_4 and CO_2 alters with time and their statistical analysis in different operation stages of reservoir

2.2 有机碳、总氮和碳氮比的变化分析

三峡水库中段全年 OC 含量介于 $6 \sim 92 \text{ g/kg}$ 之间(图3), 低水位时期呈现出上游比下游低的趋势, 总体上低水位时期要略高于高水位时期. 全年 TN 含量介于 $0.2 \sim 4.6 \text{ g/kg}$ 之间. 碳氮比(C/N)在低水位期间呈现出明显的陆源输入特征, 而在高水位运行期间体现出自源有机物占比扩大的特点. 对 OC 与 TN 进行单样本 K-S 检验, 结果表明 OC 与 TN (两者显著水平 $\text{Sig.} > 0.05$) 符合正态分布, 后续采用 ANOVA 检验进行统计分析, 发现涪陵和忠县采样点的 OC 含量存在显著差异(显著水平 $\text{Sig.} = 0.026 < 0.05$), 总体上忠县 OC 含量高于涪陵. 进一步对样本进行双尾 Pearson 相关性分析(假设检验为 ANOVA), 发现忠县与万州采样点的 OC

含量($r=0.727, P<0.01, n=13$)和 TN 含量($r=0.860, P<0.01, n=13$)都显示出显著的相关性,但涪陵与忠县之间并没有显著相关性. 这显示出在涪陵由于地理与水文环境因素的影响下,上、下游两个采样点沉积物 OC 与 TN 含量不同,而下游两个点位沉积物的分布可能存在密切关联.

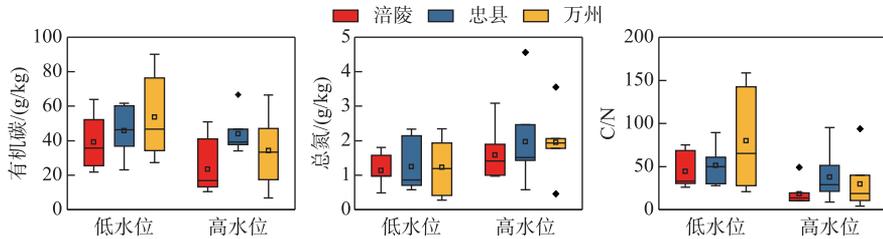


图3 不同水库运行时期底泥有机碳、总氮和碳氮比的统计结果

Fig.3 Statistical analysis in different reservoir operation stages of organic carbon, total nitrogen and C/N

2.3 泥沙粒径分布特征

三峡水库中段涪陵、忠县、万州 3 个采样点的泥沙粒径 (d_{50}) 在低水位时期分别为 39.053、9.151、16.298 μm , 高水位时期分别为 12.942、11.521、9.180 μm . 高水位期间的流量通常小于低水位运行期间的, 而流量的下降往往会使得更多更细粒径的颗粒达到有效沉降速度, 进而整体上降低沉积物颗粒粒径. 万州与涪陵的结果与之吻合, 即在低水位运行时期水库中段库底粒径相较于高水位时期更粗. 但忠县底泥粒径基本没有明显的变化, 甚至还略微减小(图4). 出现这样的结果, 可能预示忠县采样点处存在特殊的条件(如颗粒之间有明显混凝现象^[24]). 同时, 反映出忠县附近的水体底部具有良好的稳定性, 因为较细的泥沙颗粒并没有如水库中段另外两个点一样在高流量情况下被带走. 因此, 该段水体可能具备非常好的沉降条件.

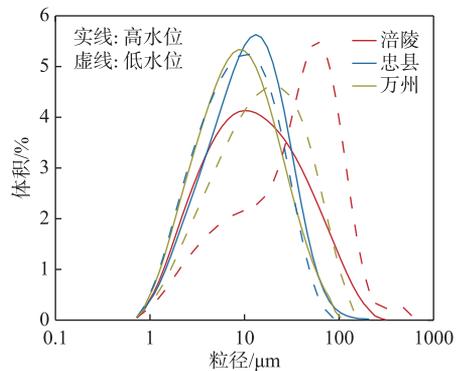


图4 不同采样点泥沙粒径分布与水位的关系

Fig.4 Relationship between sediment particle size distribution and water level at different sampling sites

3 讨论

天然 CH₄ 主要通过细菌对有机质降解或者在高温下有机物裂解产生. 通常认为内陆水体中 CH₄ 主要由细菌产生, 大致包括: 水解、酸化、乙酸化与 CH₄ 化 4 个阶段. CH₄ 产生途径可以分为乙酸发酵型、H₂/CO₂ 型、甲基营养型^[25], 而前两者更为常见. 在淡水(硫酸盐浓度较低)且富含有机物的环境中这两者途径的比例大致为 7:3^[26]. 无论是自源性还是陆源性的有机物, 都能够促进 CH₄ 的产生, 但两者在这个过程中被转化的速度是不同的, 一般自源性碳源具有较低的 C/N 和较高的分解与产 CH₄ 速率^[27]. 通常河流中产生的 CH₄ 并没有全部释放到大气中, 其中一部分会被 CH₄ 氧化细菌同化成自身物质和分解为 CO₂^[28]. 这些细菌可能会在水体缺氧-好氧交界区域大量存在^[29], 为局部的生态系统提供碳源以及能量^[30]. 碳源在这 4 个阶段后被转化为 CH₄ 进而释放到水体, 最终进入大气. 在河流-水库系统中, 陆源输入的碳源积累能够有效促进 CH₄ 生成^[31-32]. 由于陆源输入有机物大部分吸附或裹挟于泥沙颗粒表面, 故河流-水库系统中泥沙沉降同 CH₄ 产生速率存在关联性^[33]. 特别是在河道型水库中, 水库库中段相较于上游流速会有明显下降, 因此通常也是大量泥沙淤积沉降的区域. Grinham 等^[34] 在 Little Nerang 水坝的探究发现, 在该水库东流入点(水库水位影响末端)沉积大量的异源有机物, 进而促进 CH₄ 大量产生, 且比坝前 CH₄ 浓度高出两个多数量级. Maeck 等^[9] 发现在 Serring 水坝上游部分, 泥沙沉积速率较快的地区位于水库中段附近, 且与上游沉积物多由粗颗粒构成不同的是中下段更多的是柔软且富含有机质的细颗粒. 三峡水库与之类似, 在涪陵上游的河段, 平均粒径更大且多为砂, 而中段粒径明显减小且多为淤泥与黏土^[35], 同时涪陵与忠县段除水力条件外还可能

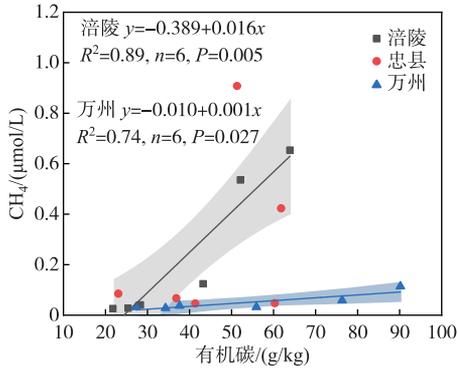


图5 低水位 CH₄浓度与有机碳含量的关系
Fig.5 Relationship between CH₄ concentration and organic carbon content in low water level

的情况^[24]. 最近的文献也与本次研究的观察推测吻合,即三峡水库中段是主要沉积区域之一^[17-18],并存在 OC 的大量输入^[36].

在上述假设成立的基础上,本研究着重分析了不同水库运行条件下库底上覆水 CH₄浓度与不同环境因素之间的相关性. 通过分析发现,低水位时期,水库中段底泥中 OC 含量同其上覆水体 CH₄浓度总体呈现出显著的正相关关系(图 5). 水库中段底泥 OC 的 C/N 几乎都在 20 以上(图 3),显示出典型的陆源 OC 特征^[37-41],且维管植物可能占据不小的比例^[42]. 低水位时期相较于高水位时期泥沙粒径也显著增加. Luo 等^[43]在贵州红枫水库上发现,沉积物粒径大于 16 μm 的部分随着 C/N 增加而增加;Liu 等^[44]在陕西丹江的研究显示,沉积物粒径小于 50 μm 的部分比其他粒径的部分有着更低的 C/N. 目前,粒径与 C/N 同时增加的现象暂无系统解释,可能是由于较大粒径的微聚物能够更好地

保护陆源有机质以避免提前矿化分解^[45]. 除此之外,水文条件在该时期也是影响 CH₄浓度的因素之一. 水库中段 CH₄峰值水平出现在低流量时期(图 6A 阴影部分),水位升高与 CH₄浓度的倒数呈现显著的正相关关系(图 6B). 当水库在低水位运行时期,大量的陆源 OC 从上游和近岸汇集至水库中段,在流量下降时,更多更细的颗粒能够达到有效沉降速度而增大沉积物累积速率,并促进产 CH₄过程(图 5). 上述过程能很好地解释涪陵和万州在该时期底层水体 CH₄浓度变化. 但忠县的情况有所区别,如前文所述,有机质的沉降可能还受到其他原因的驱动. 且此期间底层相对于其他两点更加稳定,这可能为 CH₄氧化这一过程创造出更有利的环境. 因此,忠县附近可能存在更多影响因素,这或许可以解释为什么简单线性回归在忠县并不能很

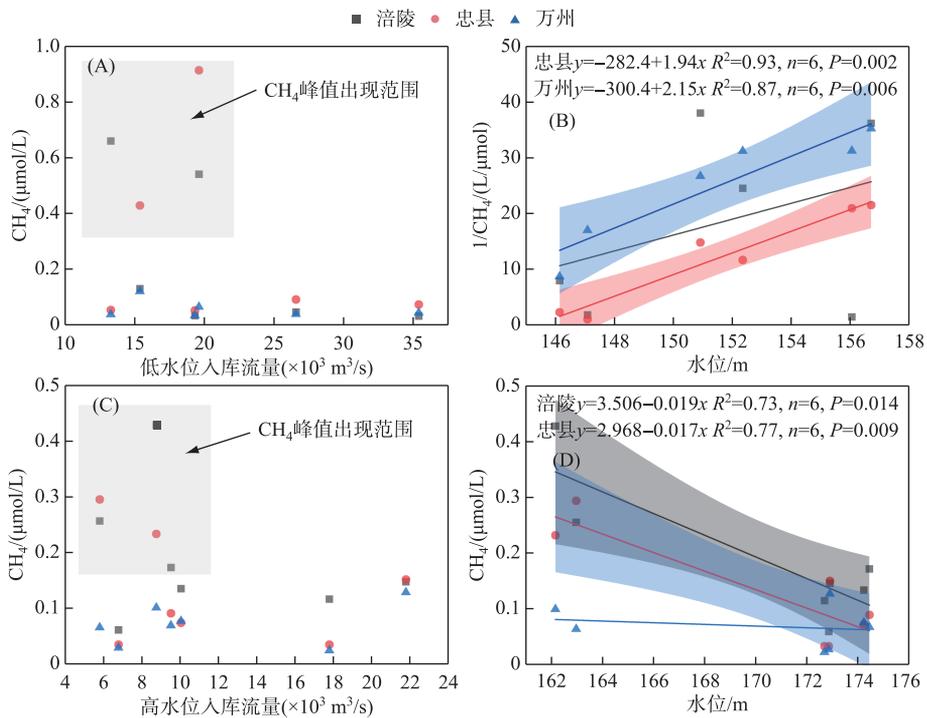


图6 水库水位流量与 CH₄浓度的关系

Fig.6 Relationship between water level and flow of reservoir and CH₄ concentration

好地解释变量之间的关系(图5)。由于低水位时期泥沙粒径整体上显著高于高水位时期,故有理由推测:低水位时期,三峡水库受纳上游及陆源输入的大量 OC 是该时期三峡库中段底部 CH₄ 积累的充分条件;而若该时期流量水平相对较低,将有利于底层水体中 CH₄ 汇集而不至于被输移扩散或被氧化。

高水位时期,尽管三峡水库中段库底 OC 的 C/N 比显著偏低,显示出自源性占比相较于低水位时期增加,但三峡水库中段 CH₄ 浓度同有机质之间并无显著的统计相关性。高水位时期,水位变化波动不大,径流条件也处于相对较低的水平。高水位时期 CH₄ 浓度峰值水平出现在低流量时(图6C 阴影部分),且部分点位(涪陵、忠县)库底 CH₄ 浓度同水位升高呈显著负相关关系(图6D),但目前尚缺乏更多的证据说明高水位时期库底 CH₄ 浓度同陆源及上游输入有机物之间存在关联性。相关的研究还有待深化。

水文径流条件的改变是上述变化的主要原因,但并不意味着其他环境因素并无关系。温度是产 CH₄ 重要的敏感性环境条件^[6],在一些季节性温度差异较大的湖泊中上述特征体现得尤为明显^[46-47]。在低水位时期,温度变化的幅度不大且在合适的温度范围内(表1),对产 CH₄ 并没有太大影响。在高水位时期,温度可能是控制产 CH₄ 的关键因素之一。在2017年10月—2018年4月这段连续时间范围内,三峡水库中段温度与底泥上覆水 CH₄ 浓度呈现正相关(图7)。DO 也可能是影响库底 CH₄ 产生的因素之一,比如,当环境中 DO 浓度提高,上层新鲜有机质的分解会更多地以 O₂ 作为电子受体,进而完全氧化为 CO₂。虽然好氧环境下也可能存在产 CH₄ 的情况^[48],但目前普遍承认的是 CH₄ 产生在厌氧沉积物中。在本次研究中,高水位运行期间上覆水 DO 浓度比低水位运行期间更高,这可能抑制了 CH₄ 产生,进而降低了库底 CH₄ 浓度。遗憾的是,本次研究并没有测定孔隙水中的 DO 浓度,同时无法排除上覆水 DO 浓度升高可能是温度变化导致这一因素,因此,还不能合理证明这一假设。综上,高水位期间,温度可能影响产 CH₄ 过程,进而导致 OC 含量受温度的影响,未显示出与底泥上覆水 CH₄ 浓度的显著相关性。

目前的数据只能揭示三峡水库中段高 CH₄ 浓度出现的部分原因,仍然还有一些问题没有得到解释:1) CH₄ 氧化对底泥上覆水浓度的影响情况。通常情况下 CH₄ 会在氧分界线周围大量氧化^[29, 49-50],但目前监测数据中上覆水并未出现明显的缺氧区域(表1)。可能的情况是该过程已经在沉积层内完成。2) 空间上忠县点位所呈现出同万州、涪陵之间的差异。在粒径(图4)与 CH₄/CO₂(图2)上忠县显示出与另外两个采样点的不同,但是目前仍然没有确定且合理的解释。

4 结论

本研究主要探究三峡水库中段在其独特运行规律影响下底层水体 CH₄ 浓度变化及与沉积物之间的关系,结论如下:

1) 三峡水库中段库底 CH₄ 浓度峰值出现在3—7月,整体上均呈现由上游向下游降低的趋势。在低水位运行期间,相对低流量是库底 CH₄ 峰值出现的充分条件。但在高水位运行期间,水位与径流变化对三峡水库中段底部 CH₄ 影响并不明显。

2) 三峡水库低水位运行时期(5—9月),上游及陆源输入的大量异源性 OC 成为该时期三峡水库中段底部 CH₄ 积累的充分条件。在水库高水位运行时期(10月—次年4月),库底自源性有机质相对比重有所增加,温度是该时期影响水库库底 CH₄ 浓度分布的主要环境因素。

5 参考文献

[1] IPCC. Climate Change 2014: Synthesis Report. Contribution of Working Groups I, II and III to the Fifth Assessment Re-

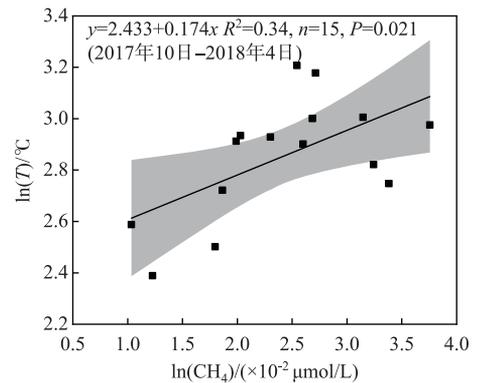


图7 高水位时期温度与 CH₄ 浓度的关系

Fig.7 Relationship between temperature and CH₄ concentration in high water level

- port of the Intergovernmental Panel on Climate Change. IPCC, Geneva, Switzerland, 2014. <https://www.ipcc.ch/report/ar5/syr/>.
- [2] Jin H, Yoon TK, Begum MS *et al.* Longitudinal discontinuities in riverine greenhouse gas dynamics generated by dams and urban wastewater. *Biogeosciences*, 2018, **15**(20): 6349-6369. DOI: 10.5194/bg-15-6349-2018.
- [3] Barros N, Cole JJ, Tranvik LJ *et al.* Carbon emission from hydroelectric reservoirs linked to reservoir age and latitude. *Nature Geoscience*, 2011, **4**(9): 593. DOI: 10.1038/ngeo1211.
- [4] Prairie YT, Alm J, Beaulieu J *et al.* Greenhouse gas emissions from freshwater reservoirs: What does the atmosphere see? *Ecosystems*, 2018, **21**(5): 1058-1071. DOI: 10.1007/s10021-017-0198-9.
- [5] Deemer BR, Harrison JA, Li SY *et al.* Greenhouse gas emissions from reservoir water surfaces: A new global synthesis. *BioScience*, 2016, **66**(11): 949-964. DOI: 10.1093/biosci/biw117.
- [6] Stanley EH, Casson NJ, Christel ST *et al.* The ecology of methane in streams and rivers: Patterns, controls, and global significance. *Ecological Monographs*, 2016, **86**(2): 146-171. DOI: 10.1890/15-1027.
- [7] Wilkinson J, Bodmer P, Lorke A. Methane dynamics and thermal response in impoundments of the Rhine River, Germany. *Science of the Total Environment*, 2019, **659**: 1045-1057. DOI: 10.1016/j.scitotenv.2018.12.424.
- [8] Crawford JT, Loken LC, Stanley EH *et al.* Basin scale controls on CO₂ and CH₄ emissions from the upper Mississippi River. *Geophysical Research Letters*, 2016, **43**(5): 1973-1979. DOI: 10.1002/2015GL067599.
- [9] Maeck A, Delsontro T, McGinnis DF *et al.* Sediment trapping by dams creates methane emission hot spots. *Environmental Science & Technology*, 2013, **47**(15): 8130-8137. DOI: 10.1021/es4003907.
- [10] Yang L. Contrasting methane emissions from upstream and downstream rivers and their associated subtropical reservoir in eastern China. *Scientific Reports*, 2019, **9**(1): 8072. DOI: 10.1038/s41598-019-44470-2.
- [11] DelSontro T, Kunz MJ, Kempter T *et al.* Spatial heterogeneity of methane ebullition in a large tropical reservoir. *Environmental Science & Technology*, 2011, **45**(23): 9866-9873. DOI: 10.1021/es2005545.
- [12] Hertwich EG. Addressing biogenic greenhouse gas emissions from hydropower in LCA. *Environmental Science & Technology*, 2013, **47**(17): 9604-9611. DOI: 10.1021/es401820p.
- [13] Chen H, Yuan XZ, Chen ZL *et al.* Methane emissions from the surface of the Three Gorges Reservoir. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 2011, **116**: D21306. DOI: 10.1029/2011JD016244.
- [14] Beaulieu JJ, Balz DA, Birchfield MK *et al.* Effects of an experimental water-level drawdown on methane emissions from a eutrophic reservoir. *Ecosystems*, 2018, **21**(4): 657-674. DOI: 10.1007/s10021-017-0176-2.
- [15] Teodoru CR, Nyoni FC, Borges A *et al.* Dynamics of greenhouse gases (CO₂, CH₄, N₂O) along the Zambezi River and major tributaries, and their importance in the riverine carbon budget. *Biogeosciences*, 2015, **12**(8): 2431-2453. DOI: 10.5194/bg-12-2431-2015.
- [16] Barbosa PM, Melack JM, Farjalla VF *et al.* Diffusive methane fluxes from Negro, Solimões and Madeira rivers and fringing lakes in the Amazon basin. *Limnology and Oceanography*, 2016, **61**(S1): S221-S237. DOI: 10.1002/lno.10358.
- [17] Li WJ, Yang SF, Xiao Y *et al.* Rate and distribution of sedimentation in the Three Gorges Reservoir, upper Yangtze River. *Journal of Hydraulic Engineering*, 2018, **144**(8): 05018006. DOI: 10.1061/(asce)hy.1943-7900.0001486.
- [18] Xiao Y, Li WJ, Yang SF. Changing temporal and spatial patterns of fluvial sedimentation in Three Gorges Reservoir, Yangtze River, China. *Arabian Journal of Geosciences*, 2019, **12**(15): 1-12. DOI: 10.1007/s12517-019-4638-z.
- [19] Lei D, Liu J, Zhang JW *et al.* Methane oxidation in the water column of Xiangxi Bay, Three Gorges Reservoir. *CLEAN - Soil, Air, Water*, 2019, **47**(9): 1800516. DOI: 10.1002/clen.201800516.
- [20] Agricultural Chemistry Committee of Chinese Soil Society ed. Methods for routine analysis of soil agricultural chemistry. Beijing: Science Press, 1982. [中国土壤学会农业化学专业委员会. 土壤农业化学常规分析方法. 北京: 科学出版社, 1982.]
- [21] Qin Y, Zhang YY, Li Z *et al.* CH₄ fluxes during the algal bloom in the Pengxi River. *Chinese Journal of Environmental Science*, 2018, **39**(4): 1578-1588. DOI: 10.13227/j.hjkk.201706044. [秦宇, 张渝阳, 李哲等. 三峡澎溪河水华期间水体 CH₄ 浓度及其通量变化特征初探. 环境科学, 2018, **39**(4): 1578-1588.]
- [22] Goldenfum JA. GHG measurement guidelines for freshwater reservoirs. The UK: The International Hydropower Association, 2010. <https://www.hydropower.org/ghg-measurement-guidelines-for-freshwater-reservoirs>.
- [23] Qing Y, Yang BX, Li Z *et al.* CO₂ and CH₄ flux across water-air interface in summer in the downstream of Jinsha River,

- southwest China. *J Lake Sci*, 2017, **29**(4): 991-999. DOI: 10.18307/2017.0423. [秦宇, 杨博道, 李哲等. 夏季金沙江下游水—气界面 CO₂、CH₄ 通量特征初探. 湖泊科学, 2017, **29**(4): 991-999.]
- [24] Li WJ, Yang SF, Hu J *et al.* Field measurements of settling velocities of fine sediments in Three Gorges Reservoir using ADV. *International Journal of Sediment Research*, 2016, **31**(3): 237-243. DOI: 10.1016/j.ijsrc.2016.05.002.
- [25] He PJ, Lu F, Shao LM *et al.* Characterization of methanogenesis using stable isotopic probing. *Progress In Chemistry*, **21**(Z1): 540-549. [何晶晶, 吕凡, 邵立明等. 稳定同位素表征有机物甲烷化代谢动力学. 化学进展, 2009, **21**(Z1): 540-549.]
- [26] Conrad R. Contribution of hydrogen to methane production and control of hydrogen concentrations in methanogenic soils and sediments. *FEMS Microbiology Ecology*, 1999, **28**(3): 193-202. DOI: 10.1016/S0168-6496(98)00086-5.
- [27] Grasset C, Mendonca R, Saucedo GV *et al.* Large but variable methane production in anoxic freshwater sediment upon addition of allochthonous and autochthonous organic matter. *Limnology and Oceanography*, 2018, **63**(4): 1488-1501. DOI: 10.1002/lno.10786.
- [28] Templeton AS, Chu KH, Alvarez-Cohen L *et al.* Variable carbon isotope fractionation expressed by aerobic CH₄-oxidizing bacteria. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 2006, **70**(7): 1739-1752. DOI: 10.1016/j.gca.2005.12.002.
- [29] Lopes F, Viollier E, Thiam A *et al.* Biogeochemical modelling of anaerobic vs. aerobic methane oxidation in a meromictic crater lake (Lake Pavin, France). *Applied Geochemistry*, 2011, **26**(12): 1919-1932. DOI: 10.1016/j.apgeochem.2011.06.021.
- [30] Jones RI, Grey J. Biogenic methane in freshwater food webs. *Freshwater Biology*, 2011, **56**(2): 213-229. DOI: 10.1111/j.1365-2427.2010.02494.x.
- [31] Berberich ME, Beaulieu JJ, Hamilton TL *et al.* Spatial variability of sediment methane production and methanogen communities within a eutrophic reservoir; Importance of organic matter source and quantity. *Limnology and Oceanography*, 2020, **65**(6): 1336-1358. DOI: 10.1002/lno.11392.
- [32] Tittel J, Hüls M, Koschorreck M. Terrestrial vegetation drives methane production in the sediments of two German reservoirs. *Scientific Reports*, 2019, **9**(1): 15944. DOI: 10.1038/s41598-019-52288-1.
- [33] Isidorova A, Grasset C, Mendonça R *et al.* Methane formation in tropical reservoirs predicted from sediment age and nitrogen. *Scientific Reports*, 2019, **9**(1): 11017. DOI: 10.1038/s41598-019-47346-7.
- [34] Grinham A, Dunbabin M, Albert S. Importance of sediment organic matter to methane ebullition in a sub-tropical freshwater reservoir. *Science of the Total Environment*, 2018, **621**: 1199-1207. DOI: 10.1016/j.scitotenv.2017.10.108.
- [35] Li JL, Bao YH, Wei J *et al.* Fractal characterization of sediment particle size distribution in the water-level fluctuation zone of the Three Gorges Reservoir, China. *Journal of Mountain Science*, 2019, **16**(9): 2028-2038. DOI: 10.1007/s11629-019-5456-1.
- [36] Tang XQ, Li R, Wu M *et al.* Influence of turbid flood water release on sediment deposition and phosphorus distribution in the bed sediment of the Three Gorges Reservoir, China. *Science of the Total Environment*, 2019, **657**: 36-45. DOI: 10.1016/j.scitotenv.2018.12.011.
- [37] Dunn RJK, Welsh DT, Teasdale PR *et al.* Investigating the distribution and sources of organic matter in surface sediment of Coombabah Lake (Australia) using elemental, isotopic and fatty acid biomarkers. *Continental Shelf Research*, 2008, **28**(18): 2535-2549. DOI: 10.1016/j.csr.2008.04.009.
- [38] Bianchi TS, Wysocki LA, Schreiner KM *et al.* Sources of terrestrial organic carbon in the Mississippi plume region; Evidence for the importance of coastal marsh inputs. *Aquatic Geochemistry*, 2011, **17**(4/5): 431-456. DOI: 10.1007/s10498-010-9110-3.
- [39] Countway RE, Canuel EA, Dickhut RM. Sources of particulate organic matter in surface waters of the York River, VA estuary. *Organic Geochemistry*, 2007, **38**(3): 365-379. DOI: 10.1016/j.orggeochem.2006.06.004.
- [40] Dai JH, Sun MY. Organic matter sources and their use by bacteria in the sediments of the Altamaha estuary during high and low discharge periods. *Organic Geochemistry*, 2007, **38**(1): 1-15. DOI: 10.1016/j.orggeochem.2006.10.002.
- [41] Hedges JI, Keil RG, Benner R. What happens to terrestrial organic matter in the ocean? *Organic Geochemistry*, 1997, **27**(5/6): 195-212. DOI: 10.1016/S0146-6380(97)00066-1.
- [42] Nakai N. Paleoenvironmental features of Lake Biwa deduced from carbon isotope compositions and organic C/N ratios of the upper 800-m sample of 1, 400-m cored column. *Proceedings of the Japan Academy Ser B: Physical and Biological Sci-*

- ences, 1986, **62**(8): 279-282. DOI: 10.2183/pjab.62.279.
- [43] Luo Y, Lu MH, Wang HY *et al.* Recent soil erosion in the Hongfeng catchment on the Guizhou Plateau, SW China revealed by analysis of reservoir sediments and soil loss modeling. *Journal of Paleolimnology*, 2019, **61**(1): 17-35. DOI: 10.1007/s10933-018-0042-z.
- [44] Liu XJ, Li ZB, Li P *et al.* Changes in carbon and nitrogen with particle size in bottom sediments in the Dan River, China. *Quaternary International*, 2015, **380/381**: 305-313. DOI: 10.1016/j.quaint.2015.02.024.
- [45] Boix-Fayos C, Nadeu E, Quinero JM *et al.* Sediment flow paths and associated organic carbon dynamics across a Mediterranean catchment. *Hydrology and Earth System Sciences*, 2015, **19**(3): 1209-1223. DOI: 10.5194/hess-19-1209-2015.
- [46] Palma-Silva C, Marinho CC, Albertoni EF *et al.* Methane emissions in two small shallow neotropical lakes: The role of temperature and trophic level. *Atmospheric Environment*, 2013, **81**: 373-379. DOI: 10.1016/j.atmosenv.2013.09.029.
- [47] Itoh M, Kobayashi Y, Chen TY *et al.* Effect of interannual variation in winter vertical mixing on CH₄ dynamics in a subtropical reservoir. *Journal of Geophysical Research: Biogeosciences*, 2015, **120**(7): 1246-1261. DOI: 10.1002/2015JG002972.
- [48] Donis D, Flury S, Stöckli A *et al.* Full-scale evaluation of methane production under oxic conditions in a mesotrophic lake. *Nature Communications*, 2017, **8**(1): 1661. DOI: 10.1038/s41467-017-01648-4.
- [49] Morana C, Borges A, Roland F *et al.* Methanotrophy within the water column of a large meromictic tropical lake (Lake Kivu, East Africa). *Biogeosciences*, 2014, **12**(7): 2077-2088. DOI: 10.5194/bg-12-2077-2015.
- [50] Cabassi J, Tassi F, Vaselli O *et al.* Biogeochemical processes involving dissolved CO₂ and CH₄ at Albano, Averno, and Monticchio meromictic volcanic lakes (Central-Southern Italy). *Bulletin of Volcanology*, 2013, **75**(1): 1-19. DOI: 10.1007/s00445-012-0683-0.