

## 河流梯级开发对乌江中上游水体 溶存 $N_2O$ 释放的影响

刘小龙<sup>1</sup>, 汪福顺<sup>2</sup>, 白莉<sup>1</sup>, 李思亮<sup>3</sup>, 王宝利<sup>3</sup>, 刘丛强<sup>3</sup>, 王中良<sup>1</sup>

(1. 天津师范大学 天津市水资源与水环境重点实验室, 天津 300387;

2. 上海大学 环境与化学工程学院, 上海 200444;

3. 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 550002)

**摘要:** 当前河流筑坝导致水库释放温室气体  $N_2O$  的问题已经引起了世界范围内的广泛关注, 梯级开发河流  $N_2O$  释放过程和机理的研究有助于准确评估河流  $N_2O$  释放水平. 本研究选取了乌江中上游梯级开发河段, 采集了河水、库区表层水和水库下泄水样进行了相关地球化学分析. 结果显示, 乌江干流的梯级开发对水化学条件、氮化物以及  $N_2O$  的释放产生了显著影响, 氮化物受到显著的拦截效应,  $N_2O$  在库区附近的释放明显强于河流.  $N_2O$  饱和度平均为 347%, 均表现为大气  $N_2O$  的释放源, 并受各水库自身库龄、营养状态和有机质等条件的影响. 春夏季受水库内部氮的生物地球化学影响, 具有较高的  $N_2O$  释放水平. 温度、酸碱度(pH)和溶解氧(dissolved oxygen, DO)是影响  $N_2O$  释放的关键因子, 对于库龄较老的乌江渡和东风湖来说, 有机碳埋藏和水库营养条件显著促进着  $N_2O$  的释放, 而氮负荷水平并未表现出显著促进  $N_2O$  的释放. 硝化作用是河流  $N_2O$  产生的主要过程, 但是下泄水较高的  $N_2O$  含量说明库区底部反硝化作用具有重要的贡献. 全年河流水-气界面释放通量平均为  $0.33 \mu\text{mol}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{h}^{-1}$ , 下泄水的释放通量为  $0.64 \mu\text{mol}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{h}^{-1}$ , 水库表层水释放通量为  $0.43 \mu\text{mol}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{h}^{-1}$ . 与世界其他河流相比, 乌江中上游干流  $N_2O$  的释放水平属中等水平, 主要控制因素可能是氮负荷水平和水体水化学条件. 然而, 下泄水体具有高于河流和库区表层水的释放通量, 需要引起重视.

**关键词:** 氧化亚氮( $N_2O$ ); 梯级开发; 源汇效应; 释放通量

**中图分类号:** X 142

**文献标志码:** A

**文章编号:** 1007-2861(2015)03-0301-10

## Impact of cascade reservoir development on $N_2O$ emissions in the Wujiang River

LIU Xiao-long<sup>1</sup>, WANG Fu-shun<sup>2</sup>, BAI Li<sup>1</sup>, LI Si-liang<sup>3</sup>,

WANG Bao-li<sup>3</sup>, LIU Cong-qiang<sup>3</sup>, WANG Zhong-liang<sup>1</sup>

(1. Tianjin Key Laboratory of Water Resources and Environment, Tianjin Normal University, Tianjin 300387, China;

2. School of Environmental and Chemical Engineering, Shanghai University, Shanghai 200444, China;

3. State Key Laboratory of Environmental Geochemistry, Institute of Geochemistry, Chinese Academy of Sciences, Guiyang 550002, China)

**Abstract:** Dams affect hydrologic cycle and water environment through intercepting river water. Therefore, "impounded rivers" or river reservoirs often affect river basin environ-

收稿日期: 2015-05-15

基金项目: 流域水环境生态评估与预警技术研究与工程示范项目(2012ZX07503003001); 国家自然科学基金资助项目(41302285, 41403082); 天津市科委基金资助项目(14JCQNJC08600, 14JCQNJC08800)

通信作者: 刘小龙(1985—), 男, 助理研究员, 博士, 研究方向为环境地球化学. E-mail: liuxiaolong@inbox.com

ments. That has become a worldwide problem, especially the effect on  $N_2O$  emissions. This study investigates cascade reservoirs in the Wujiang River, and analyzes the related parameters and  $N_2O$  concentrations. It has been shown that the cascade development does have impacts on water parameters, nitrogen loadings and  $N_2O$  emission. Saturation of  $N_2O$  averaged 347% in the entire surface water represents a  $N_2O$  source with respect to atmosphere, under influences of age of reservoirs, nutrient status and organic matters.  $N_2O$  is emitted more in spring and summer than in winter and autumn. The key factors of influence are  $T$ , pH and DO. Organic matters and nutrient status are important in old reservoirs such as the Wujiangdu reservoir. Nitrification is a dominate process for  $N_2O$  emission in surface water. But for water in discharge, denitrification is a dominate process. The annual average  $N_2O$  fluxes were  $0.33 \mu\text{mol}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{h}^{-1}$  for river water,  $0.64 \mu\text{mol}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{h}^{-1}$  for discharge water, and  $0.43 \mu\text{mol}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{h}^{-1}$  for surface water in dams. Compared to other surface water in the world, emission of  $N_2O$  acts as moderate emission fluxes in the Wujiang River. High concentration in discharge water should be emphasized since it contributes huge amount of  $N_2O$  emission during hydroelectric production.

**Key words:** nitrous oxide ( $N_2O$ ); cascade reservoir development; source-sink effect; emission flux

氧化亚氮( $N_2O$ )气体的增温潜势是二氧化碳( $CO_2$ )的 296 倍,并且在大气中具有长达 114 a 的存留时间,因此其温室效应及其对平流层下部臭氧( $O_3$ )层的破坏一直以来受到了极大的关注<sup>[1-2]</sup>. 研究显示,由人类活动导致的  $N_2O$  年排放量约为  $4.5\times 10^9$  kg,而且正以年均约 0.25% 的速率增加<sup>[3]</sup>. 目前,大气中  $N_2O$  的体积分数已由工业革命前的  $2.70\times 10^{-7}$  上升至现在的  $3.19\times 10^{-7}$ <sup>[2]</sup>,是《京都议定书》中明确规定主要削减的重要温室气体之一. 因此,对于  $N_2O$  源汇效应及释放通量的研究是当今全球温室效应研究的重要课题之一.

水生生态系统尤其是富营养化河流、湖泊及水库  $N_2O$  的产生和释放往往具有较高的水平<sup>[4-5]</sup>,成为对全球  $N_2O$  释放估算不确定性的来源因素之一. 在水体营养盐载荷增加及富营养化背景下,河流-湖泊-水库等水生系统已经被确认为大气  $N_2O$  显著的释放源<sup>[6-8]</sup>. 大坝拦截引起的“河流水库化”现象造成生源要素在水库内部滞留,为  $N_2O$  的产生创造了环境条件及物质基础. 大坝截流对水环境产生着深远的影响<sup>[9-11]</sup>. 河流筑坝导致水库释放温室气体  $N_2O$  的问题已经引起了世界范围内的广泛关注<sup>[12-13]</sup>. 而我国目前正迎来前所未有的水电开发高潮,特别是针对西南地区河流的大规模峡谷型阶梯水库开发. 西南地区多为高氮背景河流<sup>[11,14]</sup>,这为河流梯级开发后氮的滞留与  $N_2O$  的产生提供了充足的物源. 但是,目前对梯级开发河流  $N_2O$  的产生及释放强度的研究仍相对较少,所取得认识还很有限.

基于此,本工作选择了乌江中上游梯级开发河流为研究对象,通过测定水化学参数、氮负荷水平以及  $N_2O$  含量,探讨  $N_2O$  的产生与释放机理、源汇效应等,明确梯级开发河流  $N_2O$  的释放水平,对于认识水坝建设的环境效应提供了新的认识.

## 1 研究区域概况

乌江是长江上游南岸最大的支流,干流全长 1 037 km,流域面积为  $1.16\times 10^5$  km<sup>2</sup>,贵州境内干流全长 802 km,流域面积 67 500 km<sup>2</sup>. 乌江流域有南北两源,南源三岔河,北源六冲河,集水面积在 1 000 km<sup>2</sup> 以上的支流主要有六冲河、三岔河、猫跳河、野济河、偏岩河、湘江、清水江、洪渡河、芙蓉江等. 乌江上游位于云贵高原的东部,海拔在 1 500 m 以上,森林覆盖率低,水土流失严重;中游为贵州高原的主体部分,以高原丘陵、盆地为主;下游属贵州高原东部斜

坡地带及川东南山地,海拔在 500 m 以下. 乌江流域内沉积岩发育良好,地层齐全,是我国碳酸盐类岩石分布面积最大、岩溶最发育的地区. 目前,乌江流域进行了 11 级梯级开发,本工作选取的位于乌江中上游的河段包括其中的 5 级开发,分别是普定水库、引子渡水库、东风水库、索风营水库和乌江渡水库,目前这 5 级开发均已经投入正常使用. 5 个水库的主要技术参数见表1(资料来源:中国水利水电第九工程局有限公司科研设计院). 5 个水库具有不同库龄、库容、蓄水面积,同时也是河段上连续的梯级开发水库,对于对比研究 N<sub>2</sub>O 的释放具有重要意义.

表 1 研究区域内各水库的主要技术参数

Table 1 Main technical parameters of reservoirs in the studied area

水库	控制流域面积/km <sup>2</sup>	平均流量/(m <sup>3</sup> ·s <sup>-1</sup> )	最大坝高/m	正常蓄水位水库面积/km <sup>2</sup>	总库容(调节库容)/亿m <sup>3</sup>	蓄水时间	装机容量/万kW
引子渡	6 425	152	130	13.88	5.43(3.97)	2004 年	16
普定	5 871	39	75	20.61	4.209(2.653)	1994 年	7.5
东风	18 161	345	162	19.06	8.63(4.9)	1994 年	51
索风营	21 862	427	113.4	5.7	1.57(0.85)	2005 年	42
乌江渡	27 790	502	165	47.8	21.4(13.5)	1979 年	63

## 2 样品采集与分析测试

### 2.1 样品采集

在 2007 年 7 月、10 月和 2008 年 1 月、4 月分季节对乌江中上游普定水库到乌江渡水库段梯级开发河流进行了样品采集. 在各水库库区坝前、坝后以及干流主航道分别采集库区表层水、坝后下泄水和干流表层水样品. 利用 Niskin 采水器采集样品后,现场用原水冲洗 50 mL 的血清瓶 3 次,灌满至 2 倍溢出,加入 NaOH 保护剂调节 pH>10,用 0 号橡皮塞密闭,以 5 mL 一次性注射器穿透橡皮塞,排除气压,拔出注射器,使瓶中无气泡残留,使用 parafilm 膜封口,密闭保存. 另外采集 1 L 水样,过滤后加入浓硫酸进行酸化保护以备测定总氮(TN)、硝酸根(NO<sub>3</sub><sup>-</sup>)和铵根(NH<sub>4</sub><sup>+</sup>). 现场利用水质参数仪 YSI-6600(金泉仪器公司,美国)原位测定水样的温度、酸碱度(pH)、溶解氧(dissolved oxygen, DO)等参数.

### 2.2 分析测试

利用连续流动营养盐分析仪(Skalar 公司,荷兰)测定水样中 TN, NO<sub>3</sub><sup>-</sup> 和 NH<sub>4</sub><sup>+</sup>,并利用气相色谱测定其中 N<sub>2</sub>O 的含量. 样品的 N<sub>2</sub>O 浓度测定采用顶空平衡法. 具体分析方法如下:室内在样品瓶中注入 20 mL 高纯氮气(N<sub>2</sub>),排出等体积水,在恒温水浴摇床内剧烈振荡 30 min,使气体在气液两相间充分达到平衡;然后,用气相色谱测定顶空中 N<sub>2</sub>O 浓度,再进一步换算出水样中 N<sub>2</sub>O 浓度. 气相色谱的测定条件是配有电子捕获检测器(electron capture detector, ECD)的 HP6890 气相色谱仪,Ar-CH<sub>4</sub>(V(Ar):V(CH<sub>4</sub>)=95:5)做载气,流速 20 mL/min,80~100 目的 Porapak-Q 柱分离,柱温 50 °C,检测器温度 320 °C. 最后标准曲线的相关系数达到 0.999 9,根据该曲线得出的大气 N<sub>2</sub>O 浓度为(320.7±8.4) nmol/L. 重复实验结果表明溶解 N<sub>2</sub>O 浓度的测量精度优于 4%,相对误差小于 1.0 nmol/L.

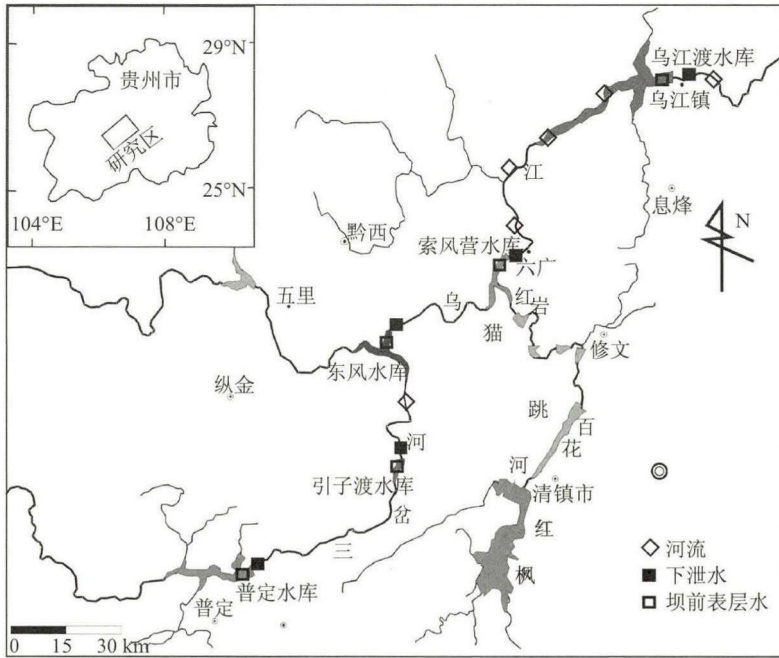


图 1 乌江中上游位置和采样点位图

Fig. 1 Map showing locations of the Wujiang River and sampling sites

### 3 结果与讨论

#### 3.1 乌江梯级开发对河流氮和 N<sub>2</sub>O 的影响

温度、酸碱度(pH)和 DO 是影响氮的生物地球化学转化过程的重要水化学参数, 因为温度、酸碱度和 DO 水平可以影响水体的硝化作用和反硝化作用过程. 与下泄水和河流水相比, 库区表层水体在夏季、春季和秋季均具有较高的水温(T)、pH 值和 DO(如表 2), 冬季水体各参数变化不明显. 这说明水坝拦截后河流的水库湖泊化效应明显, 水体中光合作用是造成

表 2 乌江干流水体水化学参数和溶解 N<sub>2</sub>O 含量

Table 2 N<sub>2</sub>O concentration and water parameters in main stream of the Wujiang River

采样时间	水体类型	T/°C	pH 值	DO/(mg·L <sup>-1</sup> )	N <sub>2</sub> O/(nmol·L <sup>-1</sup> )	N <sub>2</sub> O <sub>SAT</sub> /%
夏季	河水	23.38±2.32	8.03±0.31	8.41±1.46	24.35±10.53	291±109
	下泄水	21.49±0.79	7.79±0.12	7.35±0.82	45.76±46.33	512±510
	库区表层水	26.56±2.63	8.64±0.43	10.17±3.22	24.24±6.93	322±106
秋季	河水	19.28±0.76	7.82±0.15	7.65±1.21	27.35±9.00	290±99
	下泄水	18.83±0.56	7.79±0.22	7.88±1.03	33.45±12.81	352±142
	库区表层水	19.45±0.55	8.00±0.28	7.85±1.57	30.06±15.34	322±169
冬季	河水	12.57±0.79	8.11±0.11	9.12±0.51	39.24±14.08	324±142
	下泄水	11.39±1.41	8.02±0.21	10.12±1.71	36.96±11.93	304±92
	库区表层水	12.64±1.23	8.09±0.08	8.75±0.97	37.05±21.37	322±194
春季	河水	15.79±2.42	8.35±0.37	9.46±1.85	31.66±13.33	282±117
	下泄水	15.42±2.39	7.95±0.16	8.41±2.28	49.92±17.54	466±155
	库区表层水	18.76±2.71	8.57±0.25	9.82±1.04	40.03±13.05	416±139

注: 表中数据格式为“平均值±SD”, SD 为标准差; N<sub>2</sub>O<sub>SAT</sub>为水体 N<sub>2</sub>O 的饱和溶解度.

pH 值和 DO 升高的重要原因. 从全年来看, 水库表层水的 pH 值为 8.00~9.31, 平均值为 8.33; 河水 pH 值为 7.61~8.92, 平均值为 8.08; 下泄水 pH 值为 7.59~8.44, 平均值为 7.89. 水库表层水具有明显高于下泄水和河流的 pH 值, 说明水库可能会造成下游河流的趋酸化过程. DO 与 pH 值的变化规律类似, 溶解氧在库区表层水基本都是过饱和状态, 下泄水较低的 DO 水平可能是受水库底层泄水方式的影响.

乌江干流河水、下泄水和库区表层水中 TN,  $NO_3-N$  和  $NH_4-N$  含量的差异明显. 河流、下泄水和库区表层水 TN 的平均值分别为 3.00, 3.35 和 3.23 mg/L,  $NO_3-N$  平均值分别为 2.60, 2.80 和 2.56 mg/L,  $NH_4-N$  的平均值分别为 0.35, 0.32 和 0.33 mg/L. 水库下泄水具有较高的氮含量, 水坝拦截对河流氮表现出一定的累积作用. 从沿程河流看(见图 2)水坝拦截对氮的累积作用更加明显, 坝前水和下泄水均具有较高的含量. 水坝的梯级开发在逐级加强对氮的拦截或者释放, 同时也深刻影响了下游水体的氮过程, 例如  $NO_3-N$  含量从东风水库的 3.00 mg/L 锐减到下游乌江渡下泄水的 1.93 mg/L, 减幅约为 36%, 这与世界上其他河流对氮的拦截效应表现出一致性<sup>[15-16]</sup>. 然而, 由图 2 可以看出, 水库开发对氮并不是表现出单纯的拦截效应, 也表现出复杂性, 有的河段表现出水库效应增加了下游水体的氮负荷.

水库对氮的拦截效应一方面可能会导致水体营养物质过剩或者富营养化现象, 另一方面水体氮负荷加大会明显增强河流-水库向大气  $N_2O$  的释放<sup>[4,6-7,11]</sup>. 乌江干流各类水体溶解  $N_2O$  的含量变化差异显著(见表 2)且均为过饱和, 全年  $N_2O$  的饱和度变化为 160%~1417%, 平均值为 347%, 河流和水库水体均表现为大气  $N_2O$  的释放源. 各季节水体  $N_2O$  含量的最高值均出现在夏季乌江渡下泄水中, 其他水库下泄水也表现出明显高于坝前水和河流的含量特征(见表 2 和图 3). 由于当前乌江干流各水库均采用底层泄水方式, 一方面下泄水较高的  $N_2O$  含量可能表明水库底层水具有较高的溶存  $N_2O$  含量<sup>[17]</sup>, 另一方面下泄水中  $N_2O$  较快释放到大气中, 会显著增加水库过程对大气温室气体的释放, 应当引起重视. 河流水体  $N_2O$  含量最低, 这可能是因为河流具有较强的水动力条件, 水体交换过程会加快  $N_2O$  向大气中的释放.

干流各水体  $N_2O$  的释放表现出明显的季节性差异, 与之前水库内部  $N_2O$  的研究结果不同的是, 表层水冬季  $N_2O$  含量并不高, 春夏季较高, 秋冬季较低<sup>[5,17]</sup>. 季节差异可能与水温有关, 冬季水温低, 不利于微生物的活动, 硝化作用和反硝化作用较弱, 而春夏季则相反; 另外, 春夏季水库进入温度分层期, 沉积物-水界面  $N_2O$  的扩散可能会加强表层水体  $N_2O$  的释放<sup>[7]</sup>.

乌江干流河流  $N_2O$  含量的沿程变化如图 3 所示. 除春季外, 沿途河流  $N_2O$  的含量均表现出逐渐递增的趋势, 位于下游的乌江渡水库水体  $N_2O$  始终保持着较高的含量.  $N_2O$  和各形态氮的沿程分布规律并不一致(见图 2 和 3), 从上游普定水库到下游乌江渡水库,  $NO_3-N$  含量表现出逐渐降低的趋势. 一直以来, 氮负荷水平被认为是直接促进  $N_2O$  释放的重要因素<sup>[18-19]</sup>, 而从乌江河流氮和  $N_2O$  的空间分布规律看, 氮负荷水平不是控制  $N_2O$  释放的关键因素. 乌江渡水库建库年龄较早, 其次为东风水库、普定水库、引子渡水库和索风营水库(见表 1), 较老的水库由于淹没原生河流的土壤植被往往具有较大的有机质储备, 同时水库周边新兴城镇排放生活污水以及库区网箱养鱼等也会向库区水体释放有机质. 充足的有机质、适宜的 pH 和 DO 条件会促进水体硝化作用<sup>[14,20]</sup>, 从而会促使水体释放  $N_2O$ .

### 3.2 湖泊 $N_2O$ 产生的机理和影响因素

以 4 个季节表层水数据分析水化学参数和氮化物含量与  $N_2O$  含量之间的相关性, 发现 pH, DO 和  $N_2O$  之间表现出显著的负相关关系(见表 3), 表明干流河流、库区表层水和下泄水中  $N_2O$  可能主要来自于硝化作用. 已有的研究也发现了类似的规律, 作为硝化的中间产物, 有氧缺氧的交替、低 pH、高  $NO_3^-$  等条件有利于硝化作用对  $N_2O$  在水体中的累积<sup>[20]</sup>. 然而, 若

从整体数据上看, TN 和  $\text{NO}_3^-$  含量与  $\text{N}_2\text{O}$  之间并未表现出显著的相关性, 这可能说明不同类型表层水不同季节水体  $\text{N}_2\text{O}$  的产生过程和机理并不单纯类似, 而氮含量水平对  $\text{N}_2\text{O}$  产生与释放的贡献具有一定的限制性.

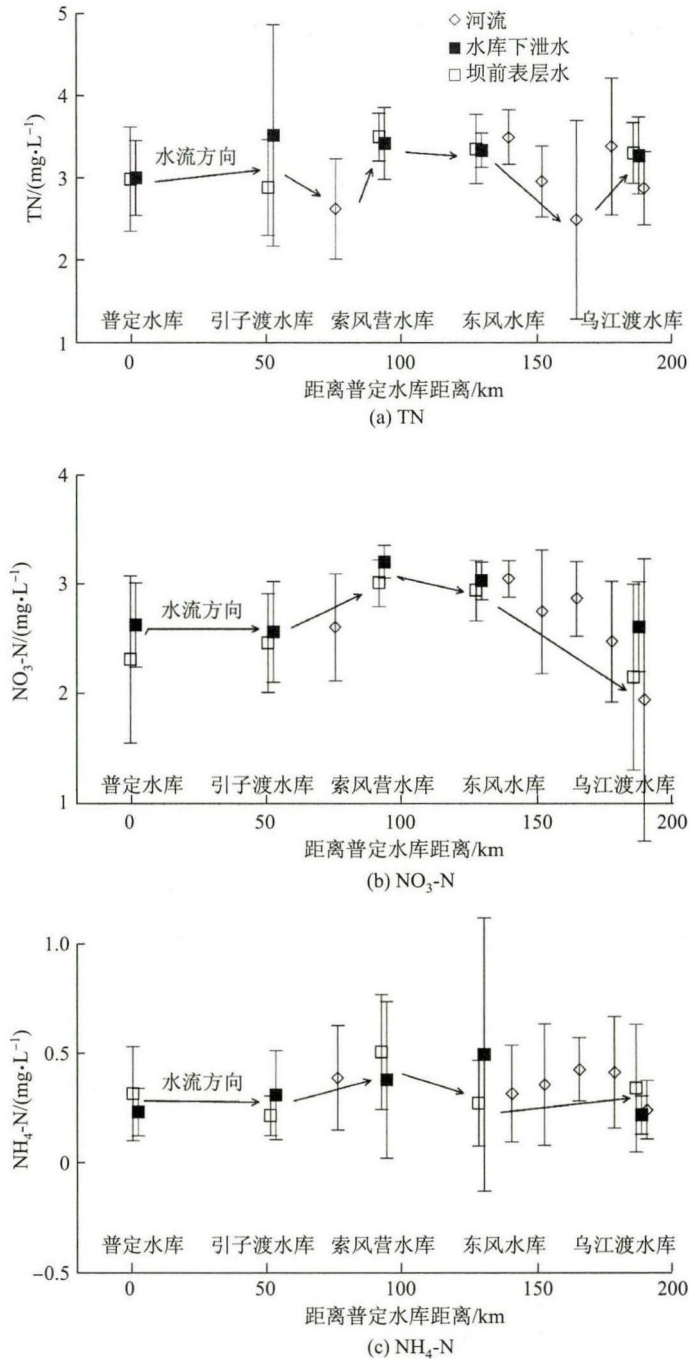


图 2 乌江中上游河流梯级水库氮的沿程分布

Fig. 2 Spatial distribution of nitrogen concentration in reservoirs in the Wujiang River

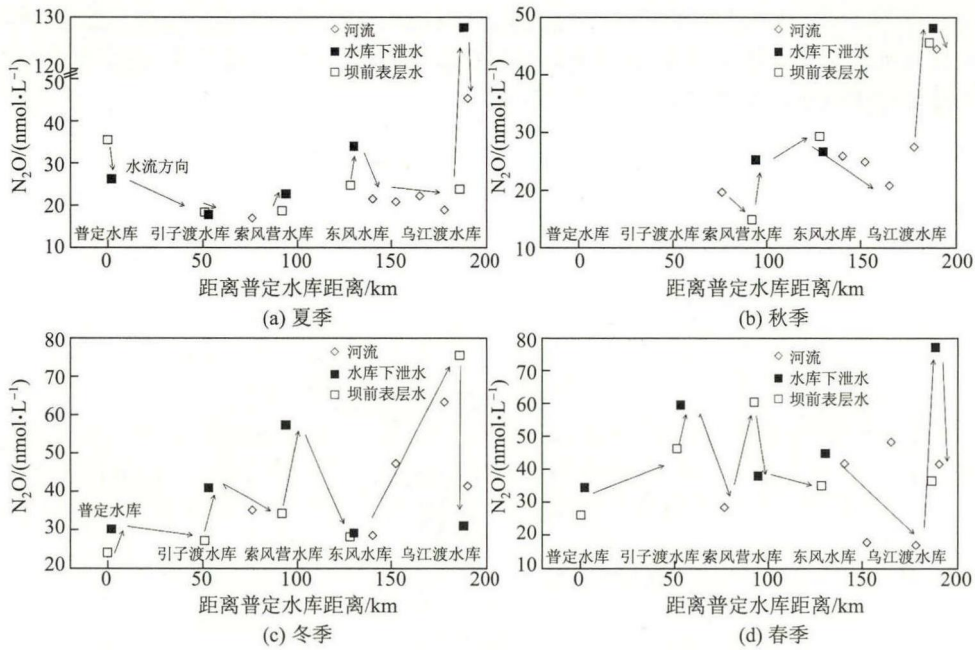


图 3 乌江中上游河流梯级水库 N<sub>2</sub>O 的沿程分布

Fig. 3 Spatial distribution of N<sub>2</sub>O in reservoirs in the Wujiang River

表 3 乌江中上游秋季水体参数、氮化物与 N<sub>2</sub>O 之间的相关关系

Table 3 Relationship among water parameters, nitrogen variables and N<sub>2</sub>O in autumn season of the Wujiang River

	T	pH 值	DO	EC	TN	NO <sub>3</sub>	NH <sub>4</sub>	N <sub>2</sub> O	F <sub>N<sub>2</sub>O</sub>
T	1	-0.19	-0.74**	-0.26	-0.54*	-0.57*	-0.24	0.45	0.53
pH		1	0.68**	0.01	-0.34	-0.34	-0.48	-0.75**	-0.70*
DO			1	0.04	0.24	0.25	0.02	-0.79**	-0.85**
EC				1	0.33	0.38	0.09	-0.13	-0.17
TN					1	0.95**	0.57*	-0.36	-0.37
NO <sub>3</sub>						1	0.65**	-0.37	-0.37
NH <sub>4</sub>							1	-0.41	-0.26
N <sub>2</sub> O								1	0.93**
F <sub>N<sub>2</sub>O</sub>									1

注: \*\*P<0.01 显著相关, \*P<0.05 相关.

目前, N<sub>2</sub>O 的饱和度(ΔN<sub>2</sub>O)与表观耗氧量(apparent oxygen utilization, AOU)之间的关系可以用以探讨 N<sub>2</sub>O 的形成机理, 其中

$$\Delta N_2O = [N_2O]_{\text{测量值}} - [N_2O]_{\text{饱和值}},$$

$$AOU = [O_2]_{\text{饱和值}} - [O_2]_{\text{测量值}}.$$

图 4 所示为乌江中上游水库 N<sub>2</sub>O 与 AOU 之间的关系. 秋季表层水的 N<sub>2</sub>O 与 AOU 之间具有显著的正相关关系, 由于在硝化作用过程中氧气的消耗量和 N<sub>2</sub>O 的产出量呈正比关系, 所以秋季各类型表层水 N<sub>2</sub>O 的产生主要来自于水体中的硝化作用, N<sub>2</sub>O 对 AOU 的回归系数为 0.118, 这与世界上海洋和湖泊 N<sub>2</sub>O 的研究结果相似. 其他季节的相关性并不明显, 说明其

产生过程并不单一. 对于各水库下泄水中较高的  $N_2O$  来说, 反硝化作用可能是主要过程<sup>[5]</sup>. 由于研究区水库均属于深水型水库, 夏季底层缺氧环境不适于硝化作用的产生, 而高含量的  $N_2O$  可能主要受控于沉积物-水界面的释放和扩散作用.

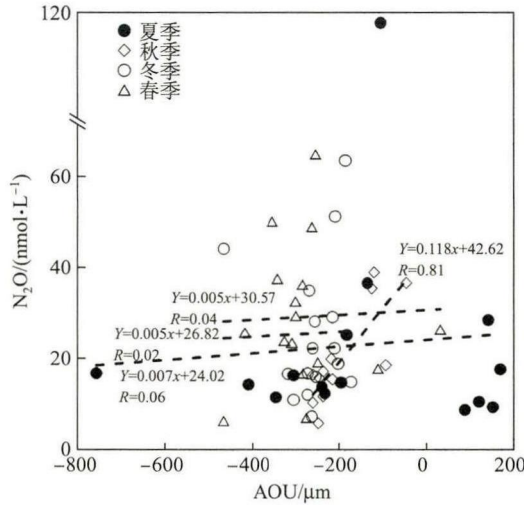


图 4 乌江中上游水库  $N_2O$  与 AOU 的关系

Fig. 4 Correlations of  $N_2O$  versus AOU in reservoirs of the Wujiang River

### 3.3 乌江中上游梯级开发对于 $N_2O$ 释放通量的影响

依据 Fick 第一定律, 可以对水体  $N_2O$  的扩散通量进行计算, 有

$$F = K\Delta C = \frac{D}{Z}(C_s - C_{eq})$$

式中,  $F$  为水-气界面气体  $N_2O$  的交换通量,  $K$  为扩散系数,  $\Delta C$  是气体在水-气界面的浓度差. 计算结果表明, 全年河流水-气界面释放通量平均为  $0.33 \mu\text{mol}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{h}^{-1}$ , 下泄水的释放通量为  $0.64 \mu\text{mol}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{h}^{-1}$ , 水库表层水释放通量为  $0.43 \mu\text{mol}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{h}^{-1}$ . 全年各点位  $N_2O$  释放通量及其变化范围如图 5 所示. 可以看出, 上游水库表层水、河流及下泄水的释放通量变化不大, 而乌江渡水库具有较高的释放通量, 这与其  $N_2O$  溶存含量较高有关.

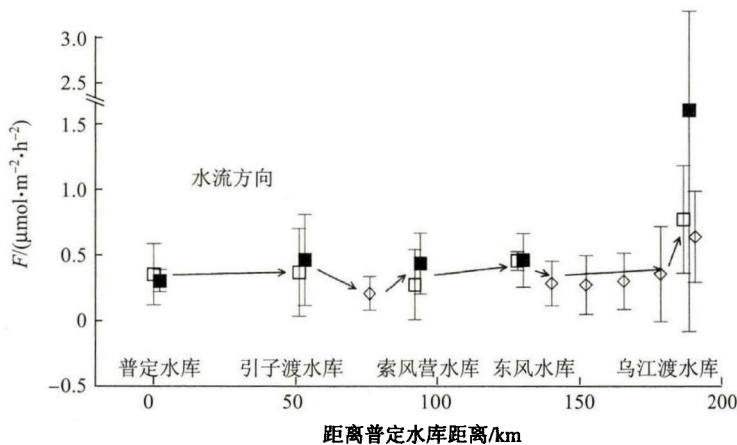


图 5 乌江中上游河流  $N_2O$  释放通量的沿途变化

Fig. 5 Variation of  $N_2O$  fluxes in cascade reservoirs in the Wujiang River



目前针对河流-水库/湖泊体系  $N_2O$  的研究,主要集中在营养水平较高或者氮负荷水平较重的水体,同时也有少数学者兼顾着中营养及贫营养水体.例如 Swaleouse 河  $N_2O$  释放通量具有很高的水平,为  $14\sim 100 \mu\text{mol}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{h}^{-1}$ <sup>[22]</sup>,哈德逊河  $N_2O$  的释放通量为  $0.23 \mu\text{mol}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{h}^{-1}$ <sup>[6]</sup>,圣华金河的释放通量为  $0.58\sim 4.58 \mu\text{mol}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{h}^{-1}$ <sup>[23]</sup>,我国新安塘河的释放通量约为  $2.00 \mu\text{mol}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{h}^{-1}$ <sup>[24]</sup>,而纽斯河的部分表现出  $N_2O$  不饱和状态,释放通量约为  $-0.60\sim 4.60 \mu\text{mol}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{h}^{-1}$ <sup>[25]</sup>.受污染及营养水平高的河水-水库始终表现为大气  $N_2O$  释放源<sup>[12,26]</sup>,一般具有较高的溶解度和饱和度<sup>[6]</sup>.

与世界其他河流相比,乌江河流  $N_2O$  的释放通量属于中等水平.相比较而言,乌江中上游干流氮负荷水平中等,这可能也是水体  $N_2O$  释放不高的根本原因,同时水库内部水化学条件及氮的生物地球化学过程是控制  $N_2O$  释放的重要因素.另外,下泄水体具有显著高于河流和库区表层水的释放通量,该水体在水电开发过程中具有特殊意义,会随着发电过程加速释放到大气中,可能成为重要的温室气体释放端元.

## 4 结束语

(1) 乌江干流的梯级开发对水体水化学参数、氮化物以及  $N_2O$  产生了显著的影响. pH 和 DO 均表现出在库区较高,下泄水较低的变化特征.而氮化物的水库效应并不一致,总体表现出对氮化物的截留效应,说明影响梯级开发河流氮分布的因素较为复杂.  $N_2O$  均表现为大气的释放源,但是不同库区存在显著的季节性差异.春夏季受水库内部氮的生物地球化学影响,具有较高的  $N_2O$  释放水平.

(2) 温度、pH 和 DO 是影响  $N_2O$  释放的关键因子,对于库龄较老的乌江渡和东风湖来说,有机碳埋藏和水库营养条件显著促进着  $N_2O$  的释放.硝化作用是河流  $N_2O$  产生的主要过程,但是下泄水较高的  $N_2O$  含量说明库区底部反硝化作用具有重要的贡献.

(3) 全年河流水-气界面释放通量平均为  $0.33 \mu\text{mol}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{h}^{-1}$ ,下泄水的释放通量为  $0.64 \mu\text{mol}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{h}^{-1}$ ,水库表层水释放通量为  $0.43 \mu\text{mol}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{h}^{-1}$ .与世界其他河流相比,乌江中上游干流  $N_2O$  的释放水平属中等水平,主要控制因素可能是氮负荷水平和水体水化学条件.然而,下泄水体具有高于河流和库区表层水的释放通量,这点需要引起重视.

## 参考文献:

- [1] HOUGHTON J, DING Y, GRIGGS D, et al. Climate change 2001: the scientific basis [M]. Cambridge: Cambridge University Press, 2001.
- [2] Intergovernmental Panel on Climate Change. The science of climate change [R]. New York: Cambridge University Press, 2007.
- [3] KHALIL M A K, RASMUSSEN R A. The global sources of nitrous oxide [J]. Journal of Geophysical Research Atmospheres, 1992, 971:14651-14660.
- [4] WANG S L, LIU C Q, YEAGER K M, et al. The spatial distribution and emission of nitrous oxide ( $N_2O$ ) in a large eutrophic lake in eastern China: anthropogenic effects [J]. Science of the Total Environment, 2009, 407, 3330-3337.
- [5] LIU X L, LIU C Q, LI S L, et al. Spatiotemporal variations of nitrous oxide ( $N_2O$ ) emissions from two reservoirs in SW China [J]. Atmospheric Environment, 2011, 45(31): 5458-5468.
- [6] COLE J, CARACO N. Emissions of nitrous oxide ( $N_2O$ ) from a tidal, freshwater river, the Hudson River, New York [J]. Environmental Science & Technology, 2001, 35, 991-996.

- [7] 王仕禄, 刘丛强, 万国江, 等. 贵州百花湖分层晚期有机质降解过程与溶解  $N_2O$  循环 [J]. 第四纪研究, 2004, 24(5): 569-577.
- [8] DONG L F, NEDWELL D B, COLBECK I, et al. Nitrous oxide emission from some english and Welsh Rivers and estuaries [J]. Water, Air, and Soil Pollution, 2004, 4(6): 127-134.
- [9] HUMBORG C, CONLEY D J, RAHM L. Silicon retention in river basins: far-reaching effects on biogeochemistry and aquatic food webs in coastal marine environments [J]. Ambio, 2000, 29(1): 45-50.
- [10] 刘丛强, 汪福顺, 王雨春, 等. 河流筑坝拦截的水环境响应——来自地球化学的视角 [J]. 长江流域资源与环境, 2009, 18(4): 384-396.
- [11] WANG F S, YU Y X, LIU C Q, et al. Dissolved silicate retention and transport in cascade reservoirs in Karst area, Southwest China [J]. Science of the Total Environment, 2010, 408: 1667-1675.
- [12] HUTTUNEN J, ALM J, LIIKANEN A, et al. Fluxes of methane, carbon dioxide and nitrous oxide in boreal lakes and potential anthropogenic effects on the aquatic greenhouse gas emissions [J]. Chemosphere, 2003, 52: 609-621.
- [13] FEARNSIDE P M. Greenhouse gas emissions from hydroelectric dams: reply to Rosa et al. [J]. Climatic Change, 2006, 75: 103-109.
- [14] 肖化云, 刘丛强. 氮同位素示踪贵州红枫湖河流季节性氮污染 [J]. 地球与环境, 2004, 32: 71-75.
- [15] JOSSETTE G, LEPORCQ B, SANCHEZ N, et al. Biogeochemical mass-balances (C, N, P, Si) in three large reservoirs of the Seine Basin (France) [J]. Biogeochemistry, 1999, 47: 119-146
- [16] 余立华, 李道季, 方涛, 等. 三峡水库蓄水前后长江口水域夏季硅酸盐、溶解无机氮分布及硅氮比值的变化 [J]. 生态学报, 2006, 26(9): 2817-2826.
- [17] 刘小龙, 刘丛强, 李思亮, 等. 猫跳河流域梯级水库夏季  $N_2O$  的产生与释放机理 [J]. 长江流域资源与环境, 2009, 18(4): 373-378.
- [18] STOW C A, WALKER J T, CARDOCH L, et al.  $N_2O$  emissions from streams in the Neuse river watershed, North Carolina [J]. Environmental Science & Technology, 2005, 39(18): 6999-7004.
- [19] YU Z, DENG H, WANG D, et al. Nitrous oxide emissions in the Shanghai river network: implications for the effects of urban sewage and IPCC methodology [J]. Global Change Biology, 2013, 19: 2999-3010.
- [20] KNOWLES R. Denitrification: microbiology and ecology [J]. Life Support & Biosphere Science, 1996, 3(1/2): 31-34.
- [21] SUNTHARALINGAM P, SARMIENTO J L. Factors governing the oceanic nitrous oxide distribution: simulations with an ocean general circulation model [J]. Global Biogeochemical Cycles, 2000, 14: 429-454.
- [22] GARCÍA-RUIZ R, PATTINSON S N, WHITTON B A. Nitrous oxide production in the river Swale-Ouse, North-East England [J]. Water Research, 1999, 33: 1231-1237.
- [23] HINSHAW S E, DAHLGREN R A. Dissolved nitrous oxide concentrations and fluxes from the eutrophic San Joaquin River, California [J]. Environmental Science & Technology, 2013, 47: 1313-1322.
- [24] XIA Y, LI Y, LI X, et al. Diurnal pattern in nitrous oxide emissions from a sewage-enriched river [J]. Chemosphere, 2013, 92: 421-428.
- [25] STOW C A, WALKER J T, CARDOCH L, et al.  $N_2O$  emissions from streams in the Neuse river watershed, North Carolina [J]. Environmental Science & Technology, 2005, 39(18): 6999-7004.
- [26] GARNIER J, CÉBRON A, TALLEC G. Nitrogen behaviour and nitrous oxide emission in the Tidal Seine River Estuary (France) as influenced by human activities in the upstream watershed [J]. Biogeochemistry, 2006, 77: 305-326.