

DOI:10.7524/j.issn.0254-6108.2022060704

祝文鑫, 徐焕志, 邢志远, 等. 夏、秋季长江口外海域沉积物-水界面溶解无机碳的交换通量[J]. 环境化学, 2023, 42(3): 931-941.

ZHU Wenxin, XU Huanzhi, XING Zhiyuan, et al. Study on the exchange flux of dissolved inorganic carbon at the sediment-water interface off the Yangtze River Estuary in summer and autumn[J]. Environmental Chemistry, 2023, 42 (3): 931-941.

夏、秋季长江口外海域沉积物-水界面溶解无机碳的交换通量*

祝文鑫 徐焕志** 邢志远 胡海燕 李博

(浙江海洋大学海洋科学与技术学院, 舟山, 316000)

摘要 沉积物-海水界面是海洋中溶解无机碳(DIC)转移和储存的重要场所, 长江口外海域拥有特定的沉积物-水界面交换的空间格局, 研究其沉积物-水界面DIC的交换过程对于碳的循环和转化具有重要意义. 本研究于2021年8月和2021年10月在长江口外海域采集沉积物样品及原位底层海水, 通过实验室模拟培养法计算了该海域沉积物-水界面DIC的交换通量, 并研究了沉积物间隙水-上覆水的DIC浓度差、温度、盐度和pH对DIC交换通量的影响. 结果表明, 夏季和秋季研究海域沉积物-水界面DIC交换通量平均值分别为 $(432.45 \pm 190.78) \mu\text{mol} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{h}^{-1}$ 和 $(223.05 \pm 110.39) \mu\text{mol} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{h}^{-1}$. 夏季交换通量高于秋季, DIC扩散方向均由沉积物向上覆水释放, 表明沉积物表现为DIC的“源”. 此外, 交换通量会随着DIC浓度差或温度升高而升高, 随着盐度或pH升高而降低.

关键词 长江口外海域, 溶解无机碳(DIC), 沉积物-水界面, 交换通量.

Study on the exchange flux of dissolved inorganic carbon at the sediment-water interface off the Yangtze River Estuary in summer and autumn

ZHU Wenxin XU Huanzhi** XING Zhiyuan HU Haiyan LI Bo

(College of Marine Science & Technology, Zhejiang Ocean University, Zhoushan, 316000, China)

Abstract The sediment-seawater interface is an important zone for the transfer and storage of dissolved inorganic carbon (DIC) in the ocean. The sea area off the Yangtze Estuary has a specific spatial pattern of sediment-water interface exchange, which makes great significance to study the process of DIC exchange at the sediment-water interface for carbon cycle and transformation. The sediments and bottom seawater in situ were collected from the sea area off the Yangtze River Estuary in August 2021 and October 2021. The exchange flux of DIC at the sediment-water interface in the sea area was calculated by laboratory incubation method. Furthermore, the effects of the DIC concentration difference between the sediment interstitial water and the overlying water, temperature, salinity, and pH on the exchange flux of DIC were also studied. The results showed that the average value of DIC exchange fluxes at the sediment-water interface in the sea area in summer and autumn were $(432.45 \pm 190.78) \mu\text{mol} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{h}^{-1}$ and $(223.05 \pm 110.39) \mu\text{mol} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{h}^{-1}$, respectively. The exchange flux of DIC in summer was higher than that in autumn. The direction of DIC diffusion was released from the sediment to the overlying water, which indicated that the sediment appeared as the DIC

2022年6月7日收稿(Received: June 7, 2022).

* 国家自然科学基金(41706022)资助.

Supported by the National Natural Science Foundation of China (41706022).

** 通信联系人 Corresponding author, E-mail: xhz1967@163.com

“source”. In addition, the exchange flux of DIC would correspondingly increase with the increase of DIC concentration difference or temperature, and decrease with the increase of salinity or pH.

Keywords Yangtze River Estuary, dissolved inorganic carbon (DIC), sedimentary-water, exchange flux.

碳是构成生命的基础,在生物圈物质和能量循环中承担着主要作用^[1-2].溶解无机碳(DIC)是海洋CO₂体系的重要参数,占海水总碳的95%以上,对研究全球气候变化和碳循环具有重要的意义^[3].沉积物是海水中DIC的重要来源之一^[4],沉积物-水界面是有机物质在地球化学循环和生物系统之间进行耦合过程的主要场所^[1,5],是DIC转移和储存的重要场所,研究沉积物-水界面DIC的交换通量对研究海水中DIC的循环具有重要作用.

目前,国内对沉积物-水界面DIC交换通量的研究主要集中在水产养殖塘^[1,6]、湖泊^[2,7]等生态系统,但关于沉积物-海水界面DIC交换通量的研究还鲜见报道.国外报道,Lehrter等^[8]研究了路易斯安那陆架海的沉积物-水界面DIC通量,认为沉积物-海水界面DIC通量对于大陆架碳循环具有重要意义,沉积物可能是初级生产的重要营养源.另外,沉积物间隙水-上覆水的DIC浓度差、温度、盐度和pH等因素会影响沉积物-水界面的交换通量,改变上述条件会使沉积物-水界面交换通量发生显著变化^[1,6,9].

陆架海对大气CO₂的碳汇/源作用是导致全球CO₂收支不确定性的因素之一^[10],东海对大气CO₂的碳汇/源作用具有季节性,长期以来是海洋碳循环研究的热点海域^[11].长江口外海域是物理、化学和生物因素相互作用的例证,产生了特定的沉积物-水界面交换的空间格局^[12].

本文研究了2021年夏季和秋季长江口外海域沉积物-水界面DIC的交换通量,并探究了DIC交换通量的影响因素,对于研究中国近海大陆架海水中DIC的迁移和转化、为东海陆架海碳循环体系研究提供数据支持,具有重要的实际意义.

1 材料与方法(Materials and methods)

1.1 样品采集与测定

研究海域覆盖长江口附近舟山海域至东海陆架边缘处(图1),每个季节的采样站位见表1.

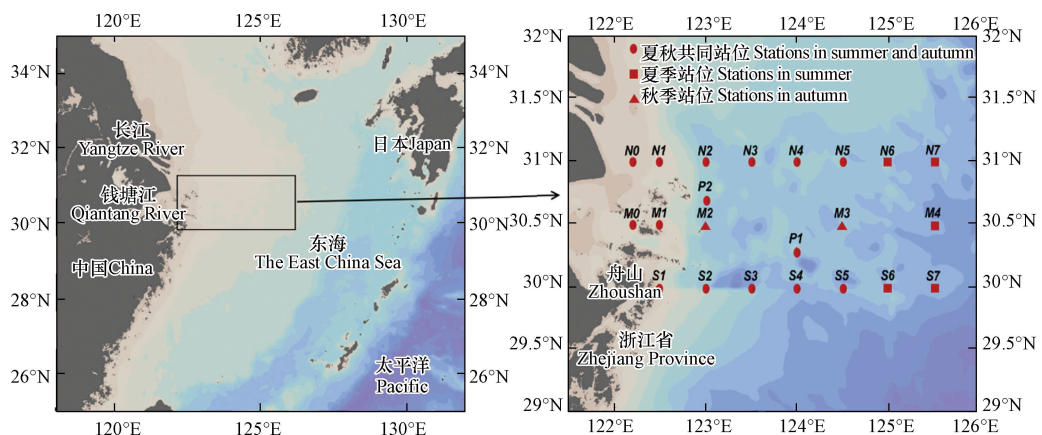


图1 采样站位(图中所设站位均采集沉积物样品并进行培养实验)

Fig.1 Location of the sampling stations (Sediment samples for culture experiments are collected from all stations in the figure)

表1 采样站位表

Table 1 Sampling stations table

航次Cruise	站位Station
夏季	N0, N1, N2, N3, N4, N5, N6, N7, S1, S2, S3, S4, S5, S6, S7, M0, M1, M4, P1, P2
秋季	N0, N1, N2, N3, N4, N5, S1, S2, S3, S4, S5, M0, M1, M2, M3, P1, P2

(1) 柱状沉积物样品采集 使用 0.25 m³ 箱式采泥器采集沉积物, 利用有机玻璃管(直径 $D=3.5$ cm, 高 $H=19$ cm)采集沉积物柱状样品. 柱状样品两端用橡胶塞密封, 瓶身用铝箔纸包裹避光^[1]. 每站采集柱状沉积物 2 份, 1 份用于 DIC 交换通量的培养实验, 另 1 份用于沉积物粒度和间隙水 DIC 浓度的测定(N2、M2 和 S2 采集 12 份柱状沉积物, 另外 10 份用于温度、盐度和 pH 对交换通量影响的培养实验).

(2) 底层水样品采集 水样用 Sea-Bird 911 型采水器(Sea-bird Electronics, USA)采集, 每个站位采集原位底层海水 2 L 于水袋用于沉积物培养, 每个站位样品采集后立即到实验室进行沉积物-水界面 DIC 交换通量的培养实验. 用于直接测量 DIC 浓度的底层海水紧跟溶解氧(DO)之后采样, 取水样于 60 mL 棕色螺旋纹顶空瓶中至溢满, 旋紧瓶盖并用 Parafilm 膜封口, 4 °C 冷藏保存. 底层水样品的测试在岸上实验室进行.

(3) 现场测定 现场底层海水的温度、盐度和深度由温盐深仪(CTD)测得.

(4) 实验室测定 水体温度和盐度采用 YSI-30 型便携式盐度计(YSI, USA)测定, pH 值由 PHS-3C 型 pH 计(精度为 0.01)测定, DO 采用 LDO II AQS 型溶解氧测定仪探头(HACH, USA)测定.

1.2 实验方法

沉积物-水界面 DIC 交换通量的实验室模拟研究采用 SONE (Sediment-water oxygen and nutrient exchanges)方法^[13], 参照陈朱虹等^[14]和杨平等^[1]的实验设计. 调整沉积物样品的深度为 10 cm, 将 75 mL 原位底层海水通过重力溢流的方式缓慢加入到沉积物上方, 加水过程应避免破坏表面沉积物, 同时以不加沉积物的原位海水作为对照. 再次将培养管上端用橡胶塞密封, 连接取样管和加样管. 实验在电热恒温水浴锅中进行, 避光处理, 沉积物样品原位培养温度与现场上覆水温度相同. 将引流硅胶置于培养管中部获取代表性样品, 在出水口一端连接医用二通阀, 以加入上覆水的时刻开始计时, 第一天分别于 4 h、8 h、12 h、24 h 对上覆水进行取样, 之后每隔 24 h 进行取样, 共取 6 次样. 每次取样时检测上覆水 DO 的含量, 确保有氧环境. 取样使用一次性注射器抽取 10 mL 沉积物上覆水, 缓慢注射入 10 mL 棕色螺旋纹顶空瓶, 避免产生气泡, 旋紧瓶盖并用 Parafilm 膜封口, 4 °C 冷藏避光保存, 与底层水样一同在岸上实验室进行测试. 每次取样完成后向培养管中补充相同体积的原位上覆水, 保持培养管中上覆水总体积不变. 取各站位沉积物 50 g 进行离心, 获得沉积物间隙水, 测得沉积物间隙水 DIC 浓度, 此过程尽量避免水样与空气接触. 沉积物粒径采用纳米粒度及 Zeta 电位分析仪(NaNano-ZS90, UK)测定, 沉积物样品用 H₂O₂ 和 HCl 预处理用以去掉有机物和碳酸盐, 取适量沉积物样品加入适量去离子水和 0.05% 六偏磷酸钠(NaPO₃)放置 12 h, 并在测试前超声处理 10 min 使样品充分分散^[15]. 将样品分为黏粒(<2 μm)、粉粒(2—20 μm)和砂粒(>20 μm)^[1].

为验证温度、盐度和 pH 对 DIC 交换通量的影响, 对秋季 N2、M2 和 S2 站位的样品设置了温度、盐度和 pH 梯度. 温度梯度为 20、22、23、25 °C; 盐度梯度为 33、22 和 11; pH 梯度为 7.70、7.96 和 8.00. 培养温度通过设置水浴锅的温度来控制, 盐度通过配置人工海水来调节, pH 通过 HCl 或 NaOH 调节^[16], 每次取样后检测上覆水的温度、盐度、pH、DO 等参数的稳定性, pH 在整个实验周期变化幅度控制在 0.01. 分别在 0、24、48 和 72 h 进行取样, 计算 0—72 h 内的交换通量.

1.3 分析方法及数据处理

DIC 使用非色散红外吸收法测定^[17], 仪器为 AS-C3 型总溶解无机碳分析仪(Apollo, USA). DIC 在沉积物-水界面的交换通量公式为^[1,6]:

$$F = \Delta C \times V / (A \times \Delta t)$$

式中, $F(\mu\text{mol} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{h}^{-1})$ 表示 DIC 在沉积物-水界面的交换通量; $\Delta C(\mu\text{mol} \cdot \text{L}^{-1})$ 表示培养前后 DIC 浓度的变化量(同时用空白对照校正); V 表示培养管中上覆水的体积(L), A 表示培养管的截面积(m²); Δt 表示培养时间. 每次取样后加入上覆水采用 $[(C_{\text{取}} \times 65 + C_{\text{加}} \times 10) / 75]$ 进行校正.

计算结果的正负分别表示 DIC 由沉积物向上覆水释放和 DIC 被沉积物吸收.

用 ODV 2020 和 Origin2018 软件进行绘图. 不同季节上覆水 DIC 浓度、间隙水 DIC 浓度的差异性利用 SPSS 25 软件的独立样本 T 检验进行统计分析. 以 $P < 0.05$ 作为差异显著水平. 沉积物-水界面 DIC 交换通量与环境变量间的相关系数使用 SPSS 25 软件的 Pearson 相关分析法得到. 以 $P < 0.05$ 为显

著相关, $P < 0.01$ 为极显著相关.

2 结果与讨论(Results and discussion)

2.1 上覆水体理化参数特征

夏、秋季调查海域底层水体主要理化性质的比较如表 2 所示,夏季研究海域水体温度、盐度高于秋季,而 pH、DO 则低于秋季.

表 2 夏季和秋季研究海域水体主要理化性质的比较

Table 2 Comparison of main physical and chemical properties of water column in the study sea area in summer and autumn and grain-size characteristics of sediments

长江口外海域 Yangtze River Estuary		水体理化性质 Physicochemical properties of waters			
		温度/°C Temperature	盐度 Salinity	pH	溶解氧/ (mmol·L ⁻¹) DO
夏季	范围	19.96—27.78	13.62—34.32	6.31—7.44	0.09—0.20
	均值	23.31±2.30	31.66±5.63	7.03±0.28	0.14±0.03
秋季	范围	20.02—23.64	12.15—34.28	7.86—8.02	0.10—0.27
	均值	22.31±1.10	30.58±6.13	7.94±0.05	0.20±0.05

2.2 沉积物粒度参数特征

研究海域沉积物粒级范围在 1—8 ϕ 之间,研究海域不同站位沉积物形态存在差异(表 3). 近岸海域沉积物以粉粒为主,占比可达 79.4%,其中 M0 站位的粉粒占比达到了 93.1%;远海海域沉积物以砂粒和粉粒为主,分别占比 49.6%和 47.6%,其中 N4 站位的砂粒占比达到了 88.7%.

表 3 沉积物理化性质

Table 3 Sediment physicochemical properties

长江口外海域 Yangtze River Estuary		沉积物粒度 Sediment grain size		
		砂粒/% Sand	粉粒/% Silt	黏粒/% Clay
近岸	M0	3.9	93.1	3.1
	M1	53.9	41.5	4.6
	P2	21.2	74.6	4.2
	S1	13.4	82.1	4.5
	S2	10.0	85.5	4.2
	S3	15.6	81.2	3.1
	N0	3.5	87.0	9.5
	N1	5.6	83.2	11.2
	N2	4.5	83.8	11.6
	N3	15.6	81.2	3.1
	平均	14.7±15.03	79.4±14.10	5.9±3.44
远海	P1	54.3	40.0	5.7
	S4	21.7	75.3	3.0
	S5	21.3	75.5	3.2
	N4	88.7	11.3	0
	N5	62.1	35.8	2.1
		平均	49.6±28.66	47.6±27.66

注: 选取夏秋季共同采样站位,以 123.5°E 为近岸和远海的分界线.

Note: Select the common sampling stations in summer and autumn, and take 123.5°E as the boundary between nearshore and open sea.

2.3 上覆水和沉积物间隙水 DIC 浓度特征

不同季节的沉积物上覆水和沉积物间隙水 DIC 浓度分布如图 2 所示. 夏季, 上覆水和沉积物间隙水 DIC 浓度变化范围分别为 $1854.30\text{--}2059.40\ \mu\text{mol}\cdot\text{L}^{-1}$ 和 $3444.85\text{--}6954.90\ \mu\text{mol}\cdot\text{L}^{-1}$, 平均值分别为 $(1976.40\pm 51.10)\ \mu\text{mol}\cdot\text{L}^{-1}$ 和 $(4936.52\pm 907.45)\ \mu\text{mol}\cdot\text{L}^{-1}$, 上覆水 DIC 浓度整体呈现显著近岸低远海高的趋势 ($P<0.05$), 沉积物间隙水 DIC 浓度近岸和远海整体无显著差异 ($P>0.05$). 秋季, 上覆水和沉积物间隙水 DIC 浓度变化范围分别为 $1934.65\text{--}2082.05\ \mu\text{mol}\cdot\text{L}^{-1}$ 和 $2875.45\text{--}4962.55\ \mu\text{mol}\cdot\text{L}^{-1}$, 平均值分别为 $(2003.49\pm 37.32)\ \mu\text{mol}\cdot\text{L}^{-1}$ 和 $(3627.66\pm 572.40)\ \mu\text{mol}\cdot\text{L}^{-1}$, 上覆水 DIC 浓度呈现显著近岸低远海高的趋势 ($P<0.05$), 沉积物间隙水 DIC 浓度呈现显著近岸高远海低的趋势 ($P<0.05$). 夏季上覆水 DIC 浓度与秋季无显著差异 ($P>0.05$), 而夏季间隙水 DIC 浓度显著高于秋季 ($P<0.05$), 秋季上覆水和间隙水 DIC 浓度分布相对均匀.

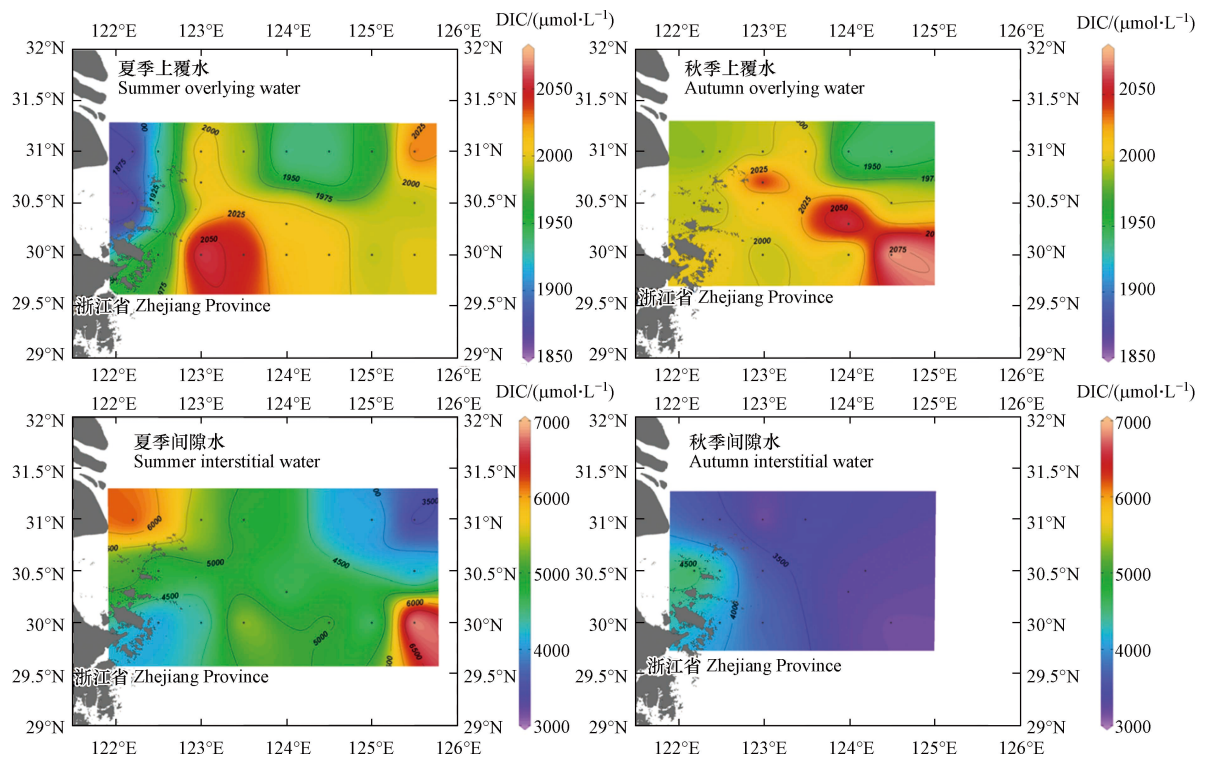


图 2 夏季和秋季上覆水和沉积物间隙水 DIC 浓度分布

Fig.2 Distribution of DIC concentration in overlying water and sediment interstitial water in summer and autumn

2.4 沉积物-水界面 DIC 交换通量

模拟现场条件, 各站位沉积物-水界面 DIC 交换通量见表 4. 通过计算, 夏季和秋季研究海域沉积物-水界面的 DIC 交换通量变化范围分别为 $196.88\text{--}901.31\ \mu\text{mol}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{h}^{-1}$ 和 $89.29\text{--}520.56\ \mu\text{mol}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{h}^{-1}$, 平均值分别为 $(432.45\pm 190.78)\ \mu\text{mol}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{h}^{-1}$ 和 $(223.05\pm 110.39)\ \mu\text{mol}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{h}^{-1}$. 各站位 DIC 交换通量均大于零, 表明 DIC 由沉积物释放到上覆水, 即沉积物表现为 DIC 的“源”, 是研究海域海水 DIC 的重要来源. 培养期间, 上覆水 DO 浓度下降至 $0.12\text{--}0.16\ \text{mmol}\cdot\text{L}^{-1}$ (图 3, 选取 N2、M2 和 S2 站位), 沉积物中微生物的呼吸及有机碳的降解过程是一个耗氧过程.

表 4 各站位沉积物-水界面 DIC 交换通量

Table 4 DIC exchange fluxes at sediment-water interface at different stations

Station	Exchange flux/ $(\mu\text{mol}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{h}^{-1})$		Station	Exchange flux/ $(\mu\text{mol}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{h}^{-1})$	
	夏季 Summer	秋季 Autumn		夏季 Summer	秋季 Autumn
M0	606.13	286.63	S5	417.50	202.31
M1	537.81	389.19	S6	347.81	—

续表 4

站位 Station	交换通量/($\mu\text{mol}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{h}^{-1}$) Exchange flux		站位 Station	交换通量/($\mu\text{mol}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{h}^{-1}$) Exchange flux	
	夏季 Summer	秋季 Autumn		夏季 Summer	秋季 Autumn
M2	—	197.98	S7	393.56	—
M3	—	89.29	N0	877.94	520.56
M4	234.63	—	N1	901.31	144.38
P1	351.13	232.50	N2	280.56	126.13
P2	425.00	159.50	N3	584.06	261.31
S1	383.44	305.50	N4	196.88	113.00
S2	338.94	165.75	N5	438.56	114.69
S3	432.13	236.31	N6	378.94	—
S4	300.63	246.88	N7	222.00	—

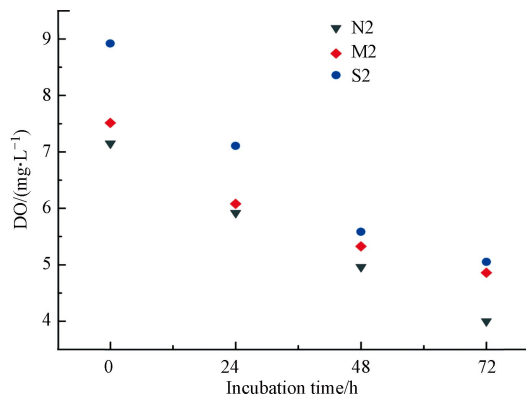


图 3 溶解氧随培养时间的变化

Fig.3 Changes of dissolved oxygen with incubation time

沉积物-水界面 DIC 交换通量等值线图见图 4, DIC 交换通量总体表现为夏季高于秋季, 近岸高于远海的趋势. 近岸受人类活动影响较大, 陆源物质输入较多, 沉积物所含有有机质更加丰富, 环境更适合有机质分解为 CO_2 , 扩散到底层水中^[12,18]. N0、N1 站位处于长江口上升流核心区附近^[19], 出现这 2 处的 DIC 交换通量高值区可能与上升流也有一定关系, 底层的低温高盐水体上涌使得 DIC 交换通量增加. 而夏季在 S7 站位出现间隙水 DIC 浓度最高值, 这可能是因为高温的黑潮深层水使得表层沉积物分解速率加快^[20]. 其它部分原因会在讨论中提到.

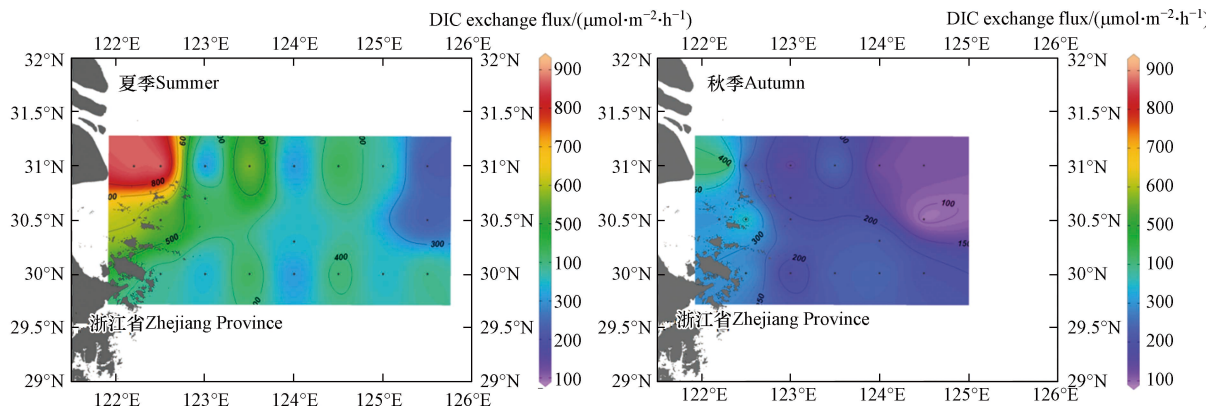


图 4 夏季与秋季沉积物-水界面 DIC 交换通量分布

Fig.4 Distribution of DIC exchange fluxes at sediment-water interface in summer and autumn

表 5 列出了长江口外海域与路易斯安那大陆架 (Louisiana continental shelf) 以及国内一些湖泊 (乌素里海和岱海) 沉积物-水界面 DIC 的交换通量. 与其他地区相比, 长江口外海域 DIC 交换通量处于较

低水平, 长江口外海域离岸最远, 有机质含量少^[12,18]. 沉积物-海水界面 DIC 交换通量明显低于湖泊水-沉积物 DIC 交换通量, 其中, 岱海表层沉积物表现为 DIC 的汇, 其他区域沉积物均表现为 DIC 的源, 这可能是因为湖泊富营养化现象严重, 初级生产力高于海洋, 而岱海水深较乌素里海深, 沉积物不易受到水生植物的影响^[2]. 各区域沉积物-水界面 DIC 交换通量的差异反映了 DIC 循环受诸多因素影响.

表 5 其他区域沉积物-水界面 DIC 交换通量的比较($\mu\text{mol}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{h}^{-1}$)

Table 5 Comparison of DIC exchange fluxes at sediment-water interface in other regions($\mu\text{mol}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{h}^{-1}$)

位置 Location	DIC交换通量范围 Range of DIC exchange flux	DIC交换通量均值 Mean value of DIC exchange flux	参考文献 References
长江口外海域 Yangtze River Estuary	89.29—901.31	339.03±187.85	本研究
路易斯安那陆架海 Louisiana continental shelf	329.17—891.67	995.83±79.17	[8]
乌梁素海(明水区) Wuliangsu Lake	—	2961.25	[2]
岱海(深水区) Daihai Lake	—	-2072.08	[2]

2.5 沉积物-水界面 DIC 交换通量与不同环境变量关系

采用 Pearson 相关分析法^[6,21], 得到 DIC 在沉积物-水界面的交换通量与上覆水 DIC 浓度、沉积物间隙水 DIC 浓度、温度、盐度和 pH 的相关系数(表 6). 结果显示, DIC 交换通量与沉积物间隙水 DIC 浓度和温度呈显著正相关关系($P<0.05$), 与盐度、上覆水 DIC 浓度和 pH 呈显著负相关关系($P<0.05$).

表 6 DIC 交换通量与不同环境变量之间的 Pearson 相关系数

Table 6 Pearson correlation coefficient between DIC exchange flux and different environmental variables

相关分析项目 Analysis item	相关系数 Correlation coefficient
上覆水 DIC 浓度	-0.494**
间隙水 DIC 浓度	0.718**
温度	0.398*
盐度	-0.500**
pH	-0.494**

注:** $P<0.01$ 极显著相关, * $P<0.05$ 显著相关.

Note: ** $P<0.01$ extremely significant correlation, * $P<0.05$ significant correlation.

2.5.1 沉积物间隙水-上覆水的 DIC 浓度差对交换通量的影响

相关分析结果显示, 沉积物-水界面 DIC 交换通量与沉积物间隙水-上覆水的 DIC 浓度差呈现显著正相关关系, 且夏季和秋季存在显著季节性差异(图 5).

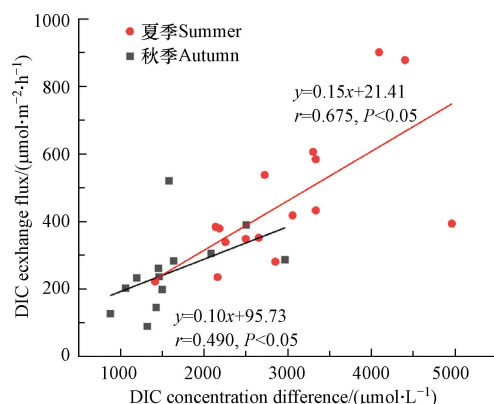


图 5 夏秋季沉积物-水界面 DIC 交换通量与沉积物间隙水-上覆水的 DIC 浓度差的相关性

Fig.5 Correlation between the DIC exchange fluxes at the sediment-water interface and the DIC concentration difference between the sediment interstitial water and the overlying water in summer and autumn

间隙水中的 DIC 直接参与交换过程,王伟颖等^[2]在研究湖泊水-沉积物界面 DIC 交换通量时,表明浮游植物对 DIC 的吸收利用形成沉积物间隙水-上覆水的 DIC 浓度差,浓度梯度有利于 DIC 向上覆水释放,类似的研究也被杨平等^[21]报道;董慧等^[22]在研究营养盐的扩散过程中,表明当其它环境条件受到限制时,交换主要依靠沉积物间隙水-上覆水的初始浓度差, DIC 浓度差促使了沉积物间隙水中的 DIC 在向上覆水中释放.夏季浮游植物初级生产力旺盛^[23],同时长江口外海域受到长江冲淡水的影响,夏季海水 DIC 浓度处于较低水平,夏季沉积物间隙水-上覆水的 DIC 浓度差较大,所以 DIC 浓度差对夏季 DIC 交换通量的影响更加显著,同时 DIC 交换通量呈现夏季高于秋季的特点(图 4).

2.5.2 温度、盐度和 pH 对交换通量的影响

温度和盐度是影响海水无机碳体系的两个重要因子,一般情况下,海水 DIC 更易保存于低温高盐海水中^[24].改变温度条件对各站位 DIC 交换通量具有显著影响,表现为随着温度升高,交换通量增加(图 6).一般情况下,温度越高,沉积物中有机质分解的速率越快. DIC 在沉积物-水界面的交换过程主要依靠有机质的分解和矿化,并在矿化过程中碳以 DIC 形式释放至上覆水中^[18].高温的条件会促进微生物对有机碳的分解^[25],低温条件微生物活性比较低,影响有机质分解和矿化的强度,不利于 DIC 的扩散.长江口外海域同时受到长江冲淡水、沿岸流、台湾暖流和黑潮支流的综合影响^[26],从而导致该海域水体盐度有所差异.盐度培养结果显示,随着上覆水盐度的增大, DIC 的交换通量减小(图 6).这与王聪^[27]的海水盐度与 DIC 浓度呈正相关关系的研究结果一致,高学鲁等^[28]在研究长江口和杭州湾的 DIC 浓度时得到相同的结论.当海水中的盐度增加,即海水中的 DIC 浓度增加,从而减小了沉积物间隙水-上覆水的 DIC 浓度差,使 DIC 由沉积物向上覆水中扩散的速率变慢.由于长江冲淡水的影响,长江口近岸盐度较低^[29].在本研究中,测得秋季 N0、M0 和 S0 站位底层水盐度分别为 12.15、18.91 和 27.20,均处于较低水平.相应的, DIC 交换通量近岸较高,在 N0 站位达到最高(图 4).

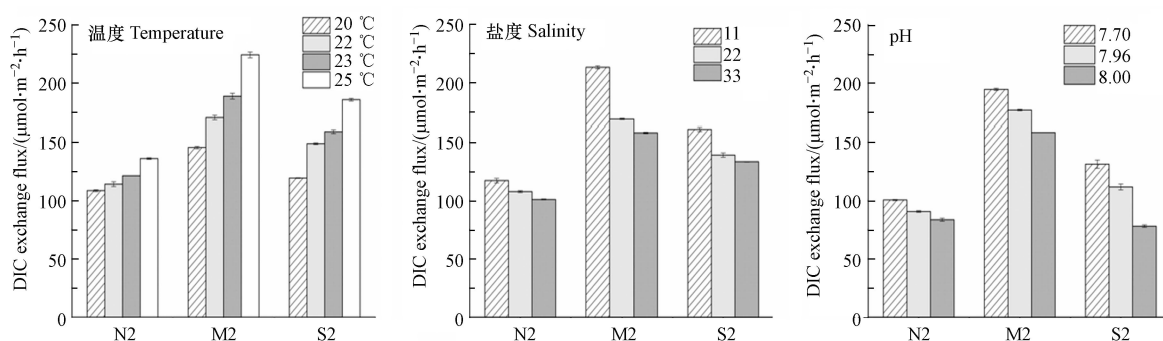


图 6 不同温度、盐度和 pH 下的交换通量

Fig.6 The exchange fluxes of different temperature, salinity, and pH

海水 pH 值变化不大,但仍然存在小的波动^[30].培养期间随着上覆水 pH 的增加, DIC 的交换通量减小(图 6).在设置的 pH 范围内,随着 pH 的升高,会使 H_2CO_3 水解为 HCO_3^- ^[31]. DIC 在海水中主要以 HCO_3^- 的形式存在^[32],海水中的 DIC 随着 pH 的上升而上升,从而使交换通量减小.这与熊莹槐等^[6]研究的结论一致.

2.5.3 沉积物粒度对交换通量的影响

DIC 交换通量与沉积物粒度特征的相关系数如表 7 所示.研究表明,沉积物中粉粒和黏粒的含量与 DIC 交换通量呈显著正相关关系($P < 0.05$),砂粒含量与 DIC 交换通量呈显著负相关关系($P < 0.05$),这表明不同粒径的沉积物对沉积物-水界面 DIC 交换过程的影响存在差异.沉积物中有机质的含量主要受到小粒径沉积物的影响,黏粒级沉积物中所含有机质含量最多^[33-35].Lin 等^[36]研究表明,黏粒粒径小,含量增多使得比表面积增大,从而吸附较多有机质含量.近岸沉积物中黏粒和粉砂占比达到了 85.3%(表 2),而黏粒和粉砂中有机质较砂粒丰富,所以近岸沉积物-水界面 DIC 交换速率更快(图 4).

表 7 DIC 交换通量和沉积物粒度的 Pearson 相关矩阵
Table 7 Pearson correlation matrix for DIC exchange flux and sediment grain size

	砂粒/% Sand	粉粒/% Silt	黏粒/% Clay	DIC交换通量 DIC exchange fluxes
砂粒/%	1			
粉粒/%	-0.993**	1		
黏粒/%	-0.544**	0.443*	1	
DIC交换通量	-0.451*	0.413*	0.510**	1

注: ** $P < 0.01$ 极显著相关, * $P < 0.05$ 显著相关.

Note: ** $P < 0.01$ extremely significant correlation, * $P < 0.05$ significant correlation.

3 结论(Conclusion)

(1) 沉积物-水界面 DIC 交换过程在碳的迁移和转化中有着十分重要的作用. 以上研究结果表明, 夏季和秋季长江口外海域沉积物-水界面的 DIC 交换通量变化范围分别为 $196.88\text{—}901.31 \mu\text{mol}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{h}^{-1}$ 和 $89.29\text{—}520.56 \mu\text{mol}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{h}^{-1}$, 平均值分别为 $(432.45\pm 190.78) \mu\text{mol}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{h}^{-1}$ 和 $(223.05\pm 110.39) \mu\text{mol}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{h}^{-1}$, 均表现为由沉积物向上覆水释放, 表明沉积物整体表现为 DIC 的“源”. 长江口外海域沉积物-水界面 DIC 交换通量呈现夏季高于秋季, 近岸高于远海的趋势.

(2) DIC 交换通量与沉积物间隙水-上覆水的 DIC 浓度差呈显著正相关关系 ($P < 0.05$), DIC 浓度差会促使沉积物间隙水中的 DIC 向上覆水中释放, 交换通量增加. 沉积物-水界面 DIC 交换过程伴随沉积物的耗氧过程, 且温度、盐度和 pH 对 DIC 交换通量具有显著调节作用, 培养温度升高, 或上覆水盐度降低, 或 pH 下降, 交换通量增加. 此外, 不同粒径的沉积物对沉积物-水界面 DIC 交换过程的影响存在差异, 粉粒和黏粒的含量与 DIC 交换通量呈显著正相关关系 ($P < 0.05$), 砂粒含量与 DIC 交换通量呈显著负相关关系 ($P < 0.05$).

致谢: 感谢浙江海洋大学“海洋锋面与渔业资源长期调查计划”提供的航次支持 (SOPHI2021-01 和 SOPHI2021-02), 感谢“浙海科 2”号海洋调查船全体人员在采集样品时提供的帮助. 感谢浙江海洋大学石油化工与环境学院王北福老师和 Y20 级石油与天然气工程专业研究生闫江毅同学在沉积物粒度分析方面提供的支持和帮助.

参考文献 (References)

- [1] 杨平, 金宝石, 谭立山, 等. 亚热带河口陆基养虾塘水体溶解性碳浓度及沉积物-水界面碳通量时空动态特征 [J]. 生态学报, 2018, 38(6): 1994-2006.
YANG P, JIN B S, TAN L S, et al. Spatial-temporal variations of water column dissolved carbon concentrations and dissolved carbon flux at the sediment-water interface in the shrimp ponds from two subtropical estuaries [J]. Acta Ecologica Sinica, 2018, 38(6): 1994-2006 (in Chinese).
- [2] 王伟颖, 吕昌伟, 何江, 等. 湖泊水-沉积物界面 DIC 和 DOC 交换通量及耦合关系 [J]. 环境科学, 2015, 36(10): 3674-3682.
WANG W Y, LÜ C W, HE J, et al. Exchange fluxes and coupling relationship of dissolved inorganic carbon and dissolved organic carbon across the water-sediment interface in lakes [J]. Environmental Science, 2015, 36(10): 3674-3682 (in Chinese).
- [3] 宋金明, 李学刚, 李宁, 等. 一种海水中溶解无机碳的准确简易测定方法 [J]. 分析化学, 2004, 32(12): 1689-1692.
SONG J M, LI X G, LI N, et al. A simple and accurate method for determining accurately dissolved inorganic carbon in seawaters [J]. Chinese Journal of Analytical Chemistry, 2004, 32(12): 1689-1692 (in Chinese).
- [4] BROWN K A, MCLAUGHLIN F, TORTELL P D, et al. Sources of dissolved inorganic carbon to the Canada Basin halocline: A multitracer study [J]. Journal of Geophysical Research: Oceans, 2016, 121(5): 2918-2936.
- [5] 何江, 孙英, 吕昌伟, 等. 岱海表层沉积物中内源磷的释放 [J]. 生态学报, 2010, 30(2): 389-398.
HE J, SUN Y, LÜ C W, et al. Research on phosphorus release from the surface sediments in the Daihai Lake [J]. Acta Ecologica Sinica, 2010, 30(2): 389-398 (in Chinese).
- [6] 熊莹槐, 王芳, 陈燕, 等. 三种主养草鱼池塘沉积物-水界面碳通量的研究 [J]. 水产学报, 2015, 39(7): 1005-1014.

- XIONG Y H, WANG F, CHEN Y, et al. Carbon fluxes across sediment-water interface in different grass carp poly-culture models [J]. *Journal of Fisheries of China*, 2015, 39(7): 1005-1014(in Chinese).
- [7] 关瑞, 吕昌伟, 何江, 等. 不同类型湖泊水-沉积物界面DIC交换通量研究 [J]. *农业环境科学学报*, 2013, 32(9): 1841-1847.
- GUAN R, LÜ C W, HE J, et al. Exchange fluxes of dissolved inorganic carbon across water-sediment interface in different types of lakes [J]. *Journal of Agro-Environment Science*, 2013, 32(9): 1841-1847(in Chinese).
- [8] LEHRTER J C, BEDDICK D L, DEVEREUX R, et al. Sediment-water fluxes of dissolved inorganic carbon, O₂, nutrients, and N₂ from the hypoxic region of the Louisiana continental shelf [J]. *Biogeochemistry*, 2012, 109(1/2/3): 233-252.
- [9] 望雪, 程豹, 杨正健, 等. 澜沧江流域沉积物间隙水-上覆水营养盐特征与交换通量分析 [J]. *环境科学*, 2018, 39(5): 2126-2134.
- WANG X, CHENG B, YANG Z J, et al. Differences in diffusive fluxes of nutrients from sediment between the natural river areas and reservoirs in the Lancang river basin [J]. *Environmental Science*, 2018, 39(5): 2126-2134(in Chinese).
- [10] CHEN C T A, HUANG T H, FU Y H, et al. Strong sources of CO₂ in upper estuaries become sinks of CO₂ in large river plumes [J]. *Current Opinion in Environmental Sustainability*, 2012, 4(2): 179-185.
- [11] 陈鑫, 宋金明, 袁华茂, 等. 东海2012年夏季海-气界面碳交换及其区域碳汇强度变化趋势初探 [J]. *海洋学报*, 2014, 36(12): 18-31.
- CHEN X, SONG J M, YUAN H M, et al. CO₂ fluxes across the air-sea interface of the East China Sea in summer 2012 and the change tendency of regional carbon sink strength [J]. *Acta Oceanologica Sinica*, 2014, 36(12): 18-31(in Chinese).
- [12] ALLER R C, MACKIN J E, ULLMAN W J, et al. Early chemical diagenesis, sediment-water solute exchange, and storage of reactive organic matter near the mouth of the Changjiang, East China Sea [J]. *Continental Shelf Research*, 1985, 4(1/2): 227-251.
- [13] COWAN J L W, BOYNTON W R. Sediment-water oxygen and nutrient exchanges along the longitudinal axis of Chesapeake Bay: Seasonal patterns, controlling factors and ecological significance [J]. *Estuaries*, 1996, 19(3): 562-580.
- [14] 陈朱虹, 陈能汪, 吴殷琪, 等. 河流库区沉积物-水界面营养盐及气态氮的释放过程和通量 [J]. *环境科学*, 2014, 35(9): 3325-3335.
- CHEN Z H, CHEN N W, WU Y Q, et al. Sediment-water flux and processes of nutrients and gaseous nitrogen release in a China River reservoir [J]. *Environmental Science*, 2014, 35(9): 3325-3335(in Chinese).
- [15] CHEN Q, LIU D Y, CHEN Y J, et al. Effect of mariculture on sediment grain size and its potential environmental significance in Sishili Bay, Yellow Sea, China [J]. *Environmental Earth Sciences*, 2016, 75(20): 1-9.
- [16] 高天赐, 高学鲁, 邢那国, 等. 秋季牟平海洋牧场及其邻近海域沉积物-水界面营养盐交换通量 [J]. *海洋环境科学*, 2020, 39(3): 387-392.
- GAO T C, GAO X L, XING Q G, et al. Exchange fluxes of nutrients across sediment-water interface in the Muping Marine Ranch and its adjacent waters in autumn [J]. *Marine Environmental Science*, 2020, 39(3): 387-392(in Chinese).
- [17] 国家海洋局. 海水总溶解无机碳的测定 非色散红外吸收法: HY/T 196—2015 [S]. 北京: 中国标准出版社, 2016.
- State Oceanic Administration of the People's Republic of China. Determination of dissolved inorganic carbon in sea water using non-dispersive infrared absorption: HY/T 196—2015 [S]. Beijing: Standards Press of China, 2016(in Chinese).
- [18] 闫兴成, 王明玥, 许晓光, 等. 富营养化湖泊沉积物有机质矿化过程中碳、氮、磷的迁移特征 [J]. *湖泊科学*, 2018, 30(2): 306-313.
- YAN X C, WANG M Y, XU X G, et al. Migration of carbon, nitrogen and phosphorus during organic matter mineralization in eutrophic lake sediments [J]. *Journal of Lake Sciences*, 2018, 30(2): 306-313(in Chinese).
- [19] 胡明娜, 赵朝方. 浙江近海夏季上升流的遥感观测与分析 [J]. *遥感学报*, 2008, 12(2): 297-304.
- HU M N, ZHAO C F. Upwelling in Zhejiang coastal areas during summer detected by satellite observations [J]. *Journal of Remote Sensing*, 2008, 12(2): 297-304(in Chinese).
- [20] 卢汐, 宋金明, 袁华茂, 等. 黑潮主流径海域海水中的无机碳及其对东海陆架区的影响 [J]. *海洋与湖沼*, 2016, 47(1): 16-28.
- LU X, SONG J M, YUAN H M, et al. Distribution of inorganic carbon parameters in kuroshio and its impact on adjacent East China Sea shelf [J]. *Oceanologia et Limnologia Sinica*, 2016, 47(1): 16-28(in Chinese).
- [21] 杨平, 金宝石, 谭立山, 等. 九龙江河口区养虾塘沉积物-水界面营养盐交换通量特征 [J]. *生态学报*, 2017, 37(1): 192-203.
- YANG P, JIN B S, TAN L S, et al. Temporal variation of nutrients fluxes across the sediment-water interface of shrimp ponds and influencing factors in the Jiulong River Estuary [J]. *Acta Ecologica Sinica*, 2017, 37(1): 192-203(in Chinese).
- [22] 董慧, 郑西来, 张健. 污染河口区沉积物-水界面营养盐交换通量的实验研究 [J]. *海洋环境科学*, 2012, 31(3): 423-428.
- DONG H, ZHENG X L, ZHANG J. Experimental study on exchange flux of nutrients in sediment-water interface in polluted estuary area [J]. *Marine Environmental Science*, 2012, 31(3): 423-428(in Chinese).
- [23] 胡博, 谭丽菊, 王江涛. 昌黎近岸海域扇贝养殖区沉积物-水界面溶解无机氮磷及尿素扩散通量研究 [J]. *海洋环境科学*, 2017, 36(6): 864-870.
- HU B, TAN L J, WANG J T. Study on the diffusion fluxes of dissolved inorganic nitrogen phosphorus and urea across sediment-water

- interface in scallop culture area of Changli coastal waters [J]. *Marine Environmental Science*, 2017, 36(6): 864-870(in Chinese).
- [24] LEE K, MILLERO F J, WANNINKHOF R. The carbon dioxide system in the Atlantic Ocean [J]. *Journal of Geophysical Research:Oceans*, 1997, 102(C7): 15693-15707.
- [25] SCHRIER-UIJL A P, VERAART A J, LEFFELAAR P A, et al. Release of CO₂ and CH₄ from lakes and drainage ditches in temperate wetlands [J]. *Biogeochemistry*, 2011, 102(1/2/3): 265-279.
- [26] 洪华生. 中国区域海洋学-化学海洋学[M]. 北京: 海洋出版社, 2012: 218-224.
HONG H S. Regional oceanography of China seas[M]. Beijing: Ocean Press, 2012: 218-224(in Chinese).
- [27] 王聪. 差分非色散红外法测量不同盐度海水样品的总溶解无机碳研究 [J]. *海洋技术学报*, 2014, 33(3): 80-84.
WANG C. Research on the detection of dissolved inorganic carbon in seawater with different salinities through non-dispersive infrared detector [J]. *Journal of Ocean Technology*, 2014, 33(3): 80-84(in Chinese).
- [28] 高学鲁, 宋金明, 李学刚, 等. 长江口及杭州湾邻近海域夏季表层海水中的溶解无机碳 [J]. *海洋科学*, 2008, 32(4): 61-67.
GAO X L, SONG J M, LI X G, et al. Dissolved inorganic carbon in surface waters around the Changjiang Estuary and Hangzhou Bay in summer [J]. *Marine Sciences*, 2008, 32(4): 61-67(in Chinese).
- [29] 马啸, 张桂玲, 曹兴朋, 等. 春季东海溶存氧化亚氮的分布和海气交换通量 [J]. *海洋科学*, 2014, 38(2): 21-28.
MA X, ZHANG G L, CAO X P, et al. Distribution and air-sea fluxes of dissolved nitrous oxide in the East China Sea in spring [J]. *Marine Sciences*, 2014, 38(2): 21-28(in Chinese).
- [30] 陈敏. 化学海洋学[M]. 北京: 海洋出版社, 2012: 64-72.
CHEN M. Chemical oceanography [M]. Beijing: Ocean Press, 2012: 64-72(in Chinese).
- [31] 戴树桂. 环境化学[M]. 2版. 北京: 高等教育出版社, 2006: 152-154.
DAI S G. Environmental chemistry [M]. Beijing: Higher Education Press, 2006: 152-154(in Chinese).
- [32] DEFRIES R S, MALONE T F. Global change and our common future[M]. Washington D C : National Academies Press, 1989.
- [33] KEIL R G, TSAMAKIS E, GIDDINGS J C, et al. Biochemical distributions (amino acids, neutral sugars, and lignin phenols) among size-classes of modern marine sediments from the Washington coast [J]. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 1998, 62(8): 1347-1364.
- [34] 王圣瑞, 赵海超, 周小宁, 等. 五里湖与贡湖不同粒径沉积物中有机质、总氮和磷形态分布研究 [J]. *环境科学研究*, 2004, 17(S1): 11-14.
WANG S R, ZHAO H C, ZHOU X N, et al. Study on the organic matter, total nitrogen and phosphorus form distribution of different particle size fractions in the sediments from Wuli Lake and gonghu lake[J]. *Research of Environmental Sciences*, 2004, 17(Sup 1): 11-14(in Chinese).
- [35] 郭杰, 王珂, 段辛斌, 等. 长江中游航道整治工程区沉积物及有机质变化 [J]. *水生态学杂志*, 2020, 41(1): 53-59.
GUO J, WANG K, DUAN X B, et al. Sediment and organic matter dynamics in channel project areas of the middle Yangtze River [J]. *Journal of Hydroecology*, 2020, 41(1): 53-59(in Chinese).
- [36] LIN S, HSIEH I J, HUANG K M, et al. Influence of the Yangtze River and grain size on the spatial variations of heavy metals and organic carbon in the East China Sea continental shelf sediments [J]. *Chemical Geology*, 2002, 182(2/3/4): 377-394.