



# 中国邻近边缘海碳通量研究现状与展望

刘茜, 郭香会, 尹志强, 周宽波, Elliott Gareth ROBERTS, 戴民汉<sup>\*</sup>

厦门大学近海海洋环境科学国家重点实验室, 厦门 361005

\* 通讯作者, E-mail: mdai@xmu.edu.cn.

收稿日期: 2017-09-14; 收修改稿日期: 2018-08-09; 接受日期: 2018-08-31; 网络版发表日期: 2018-10-11

国家自然科学基金项目(批准号: 91328202、91428308)、科技部重大科学研究计划项目(编号: 2015CB954001)、国家海洋局海洋公益项目(编号: 201505003-3)和全球变化专项项目(编号: GASI-03-01-02-02)资助

**摘要** 集成分析了南海、东黄渤海等中国邻近边缘海(简称中国边缘海)海-气界面CO<sub>2</sub>通量及其所表征的CO<sub>2</sub>源汇格局, 简析海-气CO<sub>2</sub>通量的主要控制因素; 总结了河-海界面、边缘海与大洋的交换界面及输出真光层的碳通量, 进而初步构架了简化的中国边缘海碳收支; 并与世界其他陆架边缘海碳的源汇格局和通量作了比对, 最后对边缘海碳循环研究进行了展望。从周年尺度上看, 中国边缘海是大气CO<sub>2</sub>的源, 全年向大气的释放量为(9.5±53)Tg C; 河流经过河口输送至中国边缘海的总碳量为(59.6±6.4)Tg C a<sup>-1</sup>; 中国境内河口释放CO<sub>2</sub>的总量为(0.74±0.02)Tg C a<sup>-1</sup>; 西太平洋每年输入中国边缘海的总碳量为2.5Pg C a<sup>-1</sup>, 可见, 西北太平洋输入中国边缘海的碳通量巨大。中国边缘海上层海洋颗粒有机碳输出通量为(240±80)Tg C a<sup>-1</sup>。

**关键词** 海-气二氧化碳通量, 源汇格局, 海洋生物地球化学, 陆架边缘海, 碳循环, 中国边缘海

## 1 引言

工业革命以来, 日益加剧的人类活动从很多方面改变了地球气候系统的重要组成部分——碳循环的过程和速率, 并显著改变了大气圈的化学组分, 快速驱动当代气候变化。目前, 大气圈中的CO<sub>2</sub>增量主要源于人类活动, 包括化石燃料燃烧和水泥生产以及土地利用方式的改变。迄今已有足够的证据表明, 这些人类活动破坏了地球系统的自然碳平衡。举例言之, 20世纪90年代, 人类活动所释放的CO<sub>2</sub>约为6.4Pg C a<sup>-1</sup>(1Pg C=10<sup>15</sup>g C), 2007~2016年, 这一人为CO<sub>2</sub>排放量升高至39.2Pg C a<sup>-1</sup>(Le Quéré等, 2017), 其中, 由化石

燃料燃烧与工业过程排放的量为(34.3±2.0)Pg C a<sup>-1</sup>, 由森林砍伐等土地利用方式变化产生的排放量是(4.9±3.0)Pg C a<sup>-1</sup>。这些人为CO<sub>2</sub>约有47%存留于大气圈, 其余的53%通过海-气、陆-气交换快速进入海洋(占比23%)与陆地生态系统(占比30%)(Le Quéré等, 2017)。

人为CO<sub>2</sub>排放的一个直接后果是大气圈化学组分的变化, 突出的表现为大气CO<sub>2</sub>浓度的增加。截至2017年5月, 全球大气平均CO<sub>2</sub>浓度已高达406ppm(<https://www.esrl.noaa.gov/gmd/ccgg/trends/global.html>)( $\mu\text{mol mol}^{-1}$ ), 比工业革命前升高了45%。由于CO<sub>2</sub>是温室气体, 大气CO<sub>2</sub>浓度的升高必然产生温室效应, 导致

中文引用格式: 刘茜, 郭香会, 尹志强, Roberts E G, 戴民汉. 2018. 中国邻近边缘海碳通量研究现状与展望. 中国科学: 地球科学, 48: 1422–1443, doi: 10.1360/N072017-00305

英文引用格式: Liu Q, Guo X, Yin Z, Zhou K, Roberts E G, Dai M. 2018. Carbon fluxes in the China Seas: An overview and perspective. Science China Earth Sciences, 61: 1564–1582, <https://doi.org/10.1007/s11430-017-9267-4>

地球增温。由此,以CO<sub>2</sub>为核心的碳循环研究得到了广泛的关注,这使得碳循环成为地球科学最为活跃、进展最为迅速的研究领域之一,其研究重点在于降低碳通量估算的不确定性,厘清人为干扰程度,揭示调控过程和机理,以更准确地预估未来地球气候系统的变化趋势。

海洋是巨大的碳储库,其中,碳储量高达38118Pg C(Sarmiento和Gruber, 2002),远高于大气圈;海洋也是地表系统中最重要的主动吸收大气CO<sub>2</sub>的汇区,减缓了大气CO<sub>2</sub>浓度的升高速度。按工业革命以来的累积量计算,海洋已经吸收了人为排放约40%的CO<sub>2</sub>(DeVries等, 2017),随着大气CO<sub>2</sub>浓度的升高,海洋所吸收的CO<sub>2</sub>也呈增加的趋势。根据《IPCC第五次气候变化评估报告》,海洋碳汇从1980~1989年的( $-2.0\pm0.7$ )Pg C a<sup>-1</sup>变化为2000~2009年的( $-2.3\pm0.7$ )Pg C a<sup>-1</sup>,即在此20年间,海洋碳汇以每十年0.15Pg C的速度增加(Ciais等, 2013)。

海洋吸收大气CO<sub>2</sub>主要通过三种机制:“生物泵”、“溶解度泵”和“碳酸盐泵”。“生物泵”主要发生于真光层,浮游植物通过光合作用将海水中的溶解无机碳(Dissolved Inorganic Carbon, DIC)转化为溶解有机碳(Dissolved Organic Carbon, DOC)和颗粒有机碳(Particulate Organic Carbon, POC),其中部分有机碳以POC的形式通过沉降等过程输送至深海,部分以DOC的形式向下扩散至深海。“溶解度泵”指在北大西洋、南大洋等高纬度海区,低温导致海水中CO<sub>2</sub>溶解度增加,海表结冰使海水密度增大,增密的海水携带吸收的大气CO<sub>2</sub>下沉直至深海的过程。“碳酸盐泵”是控制海洋碳循环的另一重要过程。海水的碳酸盐系统具有一定的缓冲作用:一方面,CO<sub>2</sub>进入海水使HCO<sub>3</sub><sup>-</sup>和CO<sub>3</sub><sup>2-</sup>之间的比例发生变化而减缓pH的降低;另一方面,海水中碳酸盐沉淀的形成会放出CO<sub>2</sub>,在海底沉积物中有大量的碳酸盐,因此借助于深海碳酸盐的沉积与溶解,就可以调节大气的CO<sub>2</sub>浓度。换言之,深海碳酸盐溶解会从大气吸收CO<sub>2</sub>;而其沉淀则会释放CO<sub>2</sub>,这就是“碳酸盐泵”(Elderfield, 2002)。此外,Jiao等(2010)提出了基于微型生物生态过程的“非沉降生物泵”即“微型生物碳泵”的概念和理论,即把活性DOC转化为惰性DOC(refractory DOC, RDOC)的微型生物生态过程。

虽然海洋总体上是一个碳汇区,但海洋的碳汇存

在较大的时空变异。总体而言,低纬度海区释放CO<sub>2</sub>,中纬度海区吸收CO<sub>2</sub>,而高纬度海区北极附近以吸收CO<sub>2</sub>为主。北大西洋和南大洋是人为CO<sub>2</sub>最强的汇区,模态水(Mode Water,是指温度、盐度、垂向密度具有均一性质的一类特殊类型的水团)生成的中纬度区域也是重要的碳汇区,而赤道太平洋是巨大的碳源区(Takahashi等, 2009)。

陆架边缘海是海-陆-气相互作用最剧烈的区域,具有独特的地理、物理、化学和生物特征,其中的碳通量及其调控过程均具有高度的时空变异性。首先,它受陆源碳和人为来源的营养物质影响较大;其次,它初级生产力高,生物群落结构复杂,初级生产过程、微生物的再循环以及碳的沉降输出等一系列生物泵过程都不同于大洋;第三,由于水浅,陆架边缘海形成的颗粒碳快速沉降到底部,并在沉积物-水界面发生作用,对上覆水体碳循环及海-气界面的碳交换都可能产生直接的影响;加之水动力复杂,边缘海的碳沉降输出通量和埋藏的定量化是一个世界性难题;第四,边缘海从大气吸收的CO<sub>2</sub>既可形成颗粒物埋藏到沉积物中去,亦可输出到深海大洋并参与千年尺度的大洋循环(Tsunogai等, 1999)。此外,沿岸上升流使陆架边缘海的CO<sub>2</sub>源汇问题更加复杂。上升流带来富含CO<sub>2</sub>和营养盐的深层水,使得表层水游离CO<sub>2</sub>增多,如果其中营养盐刺激的初级生产过程不足以抵消深层水带来的游离CO<sub>2</sub>,则会增强海区向大气释放CO<sub>2</sub>的趋势。

近20年来,国际学术界高度重视边缘海碳循环研究,开展了大量的区域性碳通量观测、碳循环过程和模拟研究,显著提升了全球边缘海海-气界面CO<sub>2</sub>通量评估的准确度,加深了对边缘海碳循环机理的认识。基于已有数据的集成分析显示,目前在全球尺度上边缘海呈现为大气CO<sub>2</sub>的汇,约为0.2~0.4Pg C a<sup>-1</sup>(Borges, 2011; Borges等, 2005; Cai, 2011; Cai等, 2006; Chen和Borges, 2009; Dai等, 2013; Laruelle等, 2010; Liu等, 2010a)。Laruelle等(2014)利用全球海洋CO<sub>2</sub>图集(Surface Ocean CO<sub>2</sub> Atlas, SOCAT)数据,首次考虑部分极地陆架海冰覆盖区,再次估算了全球陆架边缘海CO<sub>2</sub>通量,为( $0.19\pm0.05$ )Pg C a<sup>-1</sup>,处于之前评估的低值范围。

目前研究较为普遍的认识是,边缘海所处的纬度决定了其源汇格局(Cai和Dai, 2004; Cai等, 2006)。由于高温和高陆源有机碳的输入,低纬海区通常释放

$\text{CO}_2$ . 全球河流DOC输出通量的评估也表明, 河流输送入海的DOC中有60%进入低纬度海区(Dai等, 2012). Dai等(2013)从外源碳输入和边缘海内部代谢的角度提出, 陆架边缘海分为河流主控型(RiOMar)和大洋主控型(OceMar)两大类, RiOMar受大河影响, 丰水期通常表现为大气 $\text{CO}_2$ 的汇; 而OceMar受开阔大洋影响, 大洋输入的海水具有不同的DIC与营养盐的比值, 当大洋海水进入边缘海内部真光层后, 除去生物活动所消耗的外源DIC和营养盐, 过剩的DIC则以 $\text{CO}_2$ 的形式向大气释放.

本文集成分析了南海、东黄渤海等中国邻近区域海洋系统(简称中国边缘海)海-气界面 $\text{CO}_2$ 通量及其所表征的 $\text{CO}_2$ 源汇格局, 简析海-气 $\text{CO}_2$ 通量的主要控制因素; 总结了河-海界面、边缘海与大洋的交换界面及输出真光层的碳通量, 简要评估了生物泵在区域碳循环中的作用, 进而初步构架了简化的中国边缘海碳收支; 并与世界其他陆架边缘海碳的源汇格局和通量作了比对, 最后对边缘海海洋碳循环研究进行了展望.

## 2 中国海区域碳循环研究

中国边缘海通常涵括南海、东海、黄海及渤海, 约占世界陆架边缘海总面积的12%, 纵跨温带、亚热带和热带, 内有长江、珠江等大河输入, 外有黑潮与之交换, 并在鲜明季风环流的影响下, 海洋上层与深层的物质交换非常复杂, 是备受国际关注的典型边缘海区域, 并与中国陆地生态系统构成了复杂的区域碳循环系统(戴民汉等, 2004). 中国在21世纪初出版了国际上第一本有关陆架海洋通量的专著(胡敦欣和杨作升, 2001), 估算了东海吸收大气 $\text{CO}_2$ 的能力, 得出东海是大气 $\text{CO}_2$ 弱汇区的结论. 该成果与周边国家和地区的科学家在东海开展的多项 $\text{CO}_2$ 源汇研究共同得到了国际科学界的广泛关注, 以至于中国东海已经作为全球陆架边缘海吸收 $\text{CO}_2$ 的一个重要案例. 科技部、国家自然科学基金委员会、国家海洋局和中国科学院都支持开展了一批项目, 开展了物质输运、营养盐循环和初级生产力等方面的研究, 并获得了大量的观测数据及成果. 目前, 若干国家级重大基础研究项目正在开展与中国海相关的海洋碳循环研究(戴民汉和尹志强, 2016).

### 2.1 海-气 $\text{CO}_2$ 通量

#### 2.1.1 南海

早期Chen等(2006)集成20世纪90年代有限的数据, 并通过质量守衡计算认为, 南海海盆是大气 $\text{CO}_2$ 的弱源. 现场调查数据显示, 南海北部暖季表现为大气 $\text{CO}_2$ 的源, 而冷季是汇, 年均是大气 $\text{CO}_2$ 的弱源(Zhai等, 2005, 2009); 基于1999年12月至2008年12月在南海北部东南亚时间序列站(SEATS; 见图1)的观测结果, 南海北部海盆是大气 $\text{CO}_2$ 的弱汇或接近源汇平衡(Chou等, 2005; Sheu等, 2010; Tseng等, 2007). 南海南部巽他陆架(Sunda Shelf)初秋是大气 $\text{CO}_2$ 的源(Rehder和Suess, 2001).

基于2003~2008年间在南海进行的14次走航 $p\text{CO}_2$ 观测, Zhai等(2013)对南海 $\text{CO}_2$ 源汇格局作了较为系统的集成研究. 该研究根据物理-生物地球化学特征将南海划分为受珠江冲淡水影响的北部陆架、南海北部陆坡及海盆、南海中南部海盆以及吕宋海峡西侧海域四个区域. 其中, 北部陆架 $p\text{CO}_2$ 较低且季节变化不显著( $320\sim390\mu\text{atm}$ ,  $1\text{atm}=1.01325\times10^5\text{Pa}$ ); 南海北部陆坡和海盆区表现出典型的季节性变化, 即暖季高, 冷季低; 南海中南部海盆全年 $p\text{CO}_2$ 相对较高( $360\sim425\mu\text{atm}$ ); 而在吕宋海峡西侧海域, 冬季受到涡旋/上升流偶发事件的影响向大气释放 $\text{CO}_2$ . 这四个特征区域覆盖的面积是 $1.34\times10^6\text{ km}^2$ , 面积加权平均 $\text{CO}_2$ 通量为 $(1.1\pm1.7)\text{mmol m}^{-2}\text{ a}^{-1}$ , 每年释放 $(18\pm27.6)\text{Tg C}$ 的 $\text{CO}_2$ . 如果外推至整个南海主体(不包括北部湾和泰国湾,  $2.50\times10^6\text{ km}^2$ ), 该释放量则为 $(33.6\pm51.3)\text{Tg C a}^{-1}$  ( $1\text{Tg C}=10^{12}\text{g C}$ )(Zhai等, 2013).

南海不同区域 $p\text{CO}_2$ 和海-气 $\text{CO}_2$ 通量的主要调控机制不同. 北部陆架主要是温度和生物作用调控, 冷季低温导致 $p\text{CO}_2$ 很低, 夏季浮游植物旺发消耗 $\text{CO}_2$ , 致使 $p\text{CO}_2$ 降低. 南海北部陆坡和海盆区主要受温度调控, 暖季是源, 冷季是汇. 中南部海盆由于温度高, 全年 $p\text{CO}_2$ 都较高, 是大气 $\text{CO}_2$ 的源. 吕宋海峡西侧的 $\text{CO}_2$ 源汇主要受上升流影响.

#### 2.1.2 东海

东海表层海水的 $\text{CO}_2$ 大部分处于不饱和状态, 整体而言东海是大气 $\text{CO}_2$ 的汇(Chou等, 2009, 2011, 2013; Peng等, 1999; Shim等, 2007; Tsunogai等, 1999; Wang等, 2000; Tseng等, 2011), 量级在 $10\sim30\text{Tg C a}^{-1}$ .

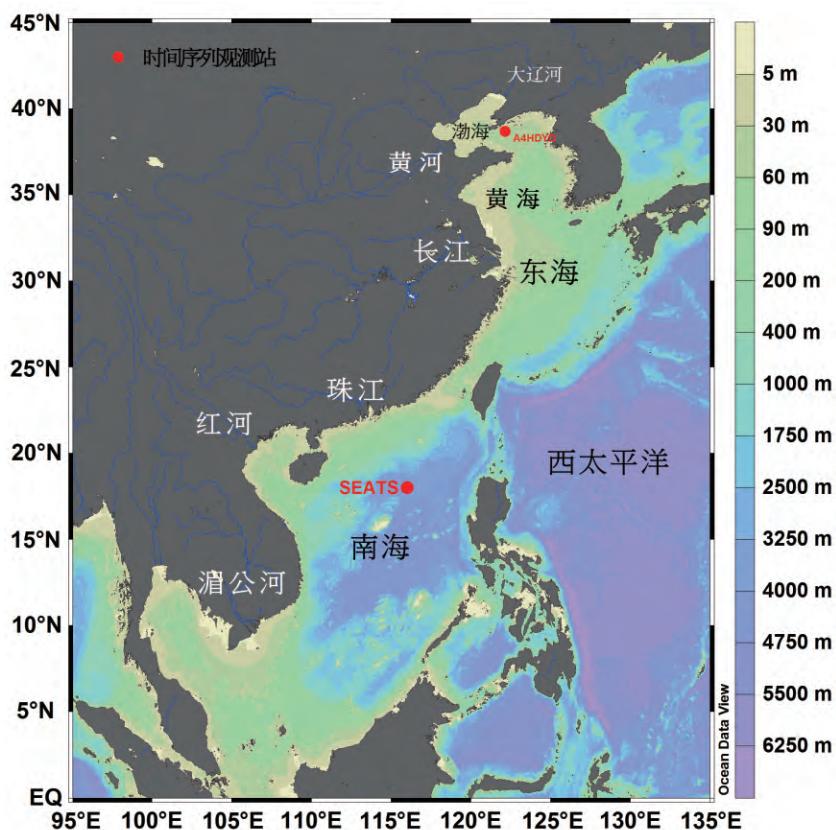


图1 中国海地理分布图

SEATS(South-East Asian Time-Series Study)代表东南亚时间序列站(见Chou等, 2005); A4HDYD为黄海时间序列站(见Xu等, 2016)

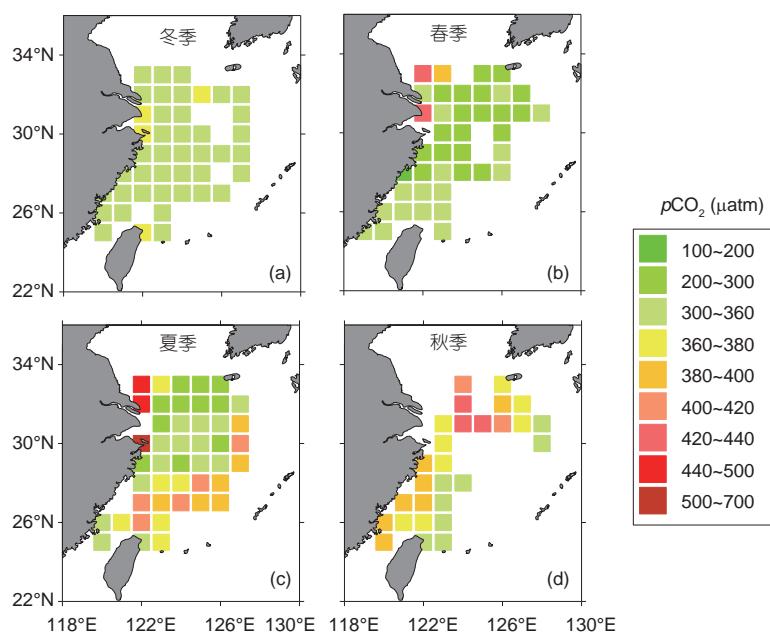
Tseng等(2014)根据东海8个夏季航次和5个其他季节航次的实测 $p\text{CO}_2$ , 建立了 $p\text{CO}_2$ 与长江径流量的关系, 并由长江径流量估算各季节的 $p\text{CO}_2$ , 进而估算海-气 $\text{CO}_2$ 通量, 平均为 $(-1.8\pm0.5)\text{mol C m}^{-2}\text{ a}^{-1}$ ; 该研究认为东海的 $\text{CO}_2$ 源汇格局主要受长江径流量调控。值得注意的是, 这一结论基于东海 $p\text{CO}_2$ 与长江径流量拟合的经验公式, 而该经验公式无法拟合出长江冲淡水区秋季的高 $p\text{CO}_2$ 特征(Zhai和Dai, 2009)。

2006~2011年间, Guo等(2015)进行了覆盖四个季节和整个东海陆架的24次表层水体 $p\text{CO}_2$ 现场测定, 并把东海分成物理-生物地球化学特征不同的5个区域, 即长江冲淡水、闽浙沿岸流、北部陆架、中部陆架和南部陆架。东海表层海水 $p\text{CO}_2$ 呈现明显的空间和季节变化, 在长江冲淡水区冬、春、夏三季,  $p\text{CO}_2$ 低至 $<100\mu\text{atm}$ , 而秋季则表现出 $>400\mu\text{atm}$ 的高 $p\text{CO}_2$ 特征; 在闽浙沿岸, 冬、春、夏三季 $p\text{CO}_2$ ( $300\sim350\mu\text{atm}$ )也低于秋季( $>350\mu\text{atm}$ ), 呈现与长江冲淡水区相似的季节变

化规律, 但变化幅度较小。在受黑潮影响的东海外大陆架, 表层水体 $p\text{CO}_2$ 暖季高、冷季低(图2; Guo等, 2015)。

总体观之, 长江冲淡水区和闽浙沿岸在冬、春、夏三个季节都是大气 $\text{CO}_2$ 的汇, 而秋季是大气 $\text{CO}_2$ 的源; 陆架区域冷季是大气 $\text{CO}_2$ 的汇, 而暖季则是大气 $\text{CO}_2$ 的源。5个区域年均都是大气 $\text{CO}_2$ 的汇, 面积加权平均 $\text{CO}_2$ 通量为 $(-2.5\pm1.5)\text{mol m}^{-2}\text{ a}^{-1}$ , 约等于全球边缘海平均碳汇强度的2倍。东海200m以浅的区域面积为 $0.45\times10^6\text{km}^2$ , 每年从大气吸收 $13.2\text{Tg C a}^{-1}$ 的 $\text{CO}_2$ (Guo等, 2015)。如果外推至整个东海( $0.77\times10^6\text{km}^2$ ), 该吸收量则为 $(23.3\pm13.5)\text{Tg C a}^{-1}$ 。

东海不同区域调控 $\text{CO}_2$ 源汇的主要机制不同, 长江冲淡水和闽浙沿岸流主要受温度、生物作用和水体垂直混合作用, 即冷季低温造成海表 $p\text{CO}_2$ 远低于大气, 暖季(也是长江洪水季)浮游植物旺发, 吸收大量 $\text{CO}_2$ , 导致海表 $p\text{CO}_2$ 远低于大气。春、夏季浮游生物产生的大量生源有机物进入底层水或沉积物后发生强烈的呼

图2 东海 $1^{\circ} \times 1^{\circ}$ 网格季节平均 $p\text{CO}_2$ 

引自Guo等(2015). 不同航次的海水 $p\text{CO}_2$ 数据观测于2006~2011年, 海水 $p\text{CO}_2$ 数据按照 $2.1\mu\text{atm a}^{-1}$ 的变化速率(Tseng等, 2014)归一化到2010年6月. 计算网格化平均值时, 先把每个航次的 $p\text{CO}_2$ 数据计算到 $1^{\circ} \times 1^{\circ}$ 的网格中, 然后再计算每个季节不同航次的平均值

吸作用释放大量 $\text{CO}_2$ , 但由于强烈的水体分层作用, 这些在底层水中累积的 $\text{CO}_2$ 在秋季水体分层破坏后进入上层水体, 向大气释放, 是造成东海近海区域秋季向大气释放 $\text{CO}_2$ 的主要机制. 在相对寡营养的东海外大陆架(受黑潮影响), 温度是调控海表 $p\text{CO}_2$ 和水体源汇格局的主要机制, 即海表 $p\text{CO}_2$ 冷季低于大气, 而暖季高于大气. 以上研究得出的结论是, 只有长江冲淡水和闽浙沿岸是河流主控的区域, 而东海外大陆架是温度主控的区域(Guo等, 2015).

总之, 东海内外大陆架(长江冲淡水和闽浙沿岸)与外大陆架的海表 $p\text{CO}_2$ 和海-气 $\text{CO}_2$ 通量都呈现截然不同的季节变化. 在内外大陆架,  $p\text{CO}_2$ 冬、春、夏三个季节低, 而秋季高; 而在外大陆架,  $p\text{CO}_2$ 冬、春、秋三个季节低, 而夏季高. 以长江冲淡水为例, 冬、春、夏、秋四个季节的平均 $p\text{CO}_2$ 分别为348、309、317和394 $\mu\text{atm}$ , 海-气 $\text{CO}_2$ 通量分别为 $-9.8$ 、 $-10.7$ 、 $-6.5$ 和 $2.2\text{mmol m}^{-2} \text{d}^{-1}$ , 只有秋季是大气 $\text{CO}_2$ 的源, 而其他季节都是汇. 而外大陆架南部这四个季节的平均 $p\text{CO}_2$ 分别为344、345、381和348 $\mu\text{atm}$ , 海-气 $\text{CO}_2$ 通量分别为 $-10.0$ 、 $-6.8$ 、 $1.8$ 和 $-8.4\text{mmol m}^{-2} \text{d}^{-1}$ , 只有夏季是大气 $\text{CO}_2$ 的源, 其他季节都是汇. 这些差异主要是由内、外大陆架海表 $p\text{CO}_2$ 的

主要调控机制不同造成的(如前所述, 图2).

### 2.1.3 黄海

以山东半岛成山角和韩国半岛长山串之间为分界线, 黄海传统上分为北黄海和南黄海. 早期的研究(Oh等, 2000)表明, 1996年4月黄海表层海水 $p\text{CO}_2$ 为 $220\sim360\mu\text{atm}$ , 表现为中等强度的大气 $\text{CO}_2$ 的汇, 碳汇量为 $-2.34\text{mol m}^{-2} \text{a}^{-1}$ . 2006~2007年间, Xue等(2012)在北黄海开展了4个季节的大面观测, 结果显示4个季节都是大气 $\text{CO}_2$ 的源, 年均为 $(0.63\pm0.10)\text{mol m}^{-2} \text{a}^{-1}$ , 是大气 $\text{CO}_2$ 的弱源. 基于北黄海西北部时间序列站(A4HDYD, 图1)的观测(2011年3月至2013年11月, 共21个航次), 北黄海为大气 $\text{CO}_2$ 的弱汇 $(-0.85\pm0.59)\text{mol C m}^{-2} \text{a}^{-1}$ ; Xu等, 2016). 以上结果表明, 北黄海年均海表 $p\text{CO}_2$ 基本与大气平衡.

在南黄海区域, Xue等(2011)用南黄海春、夏、秋三个季节的数据外推到一整年, 得到海-气 $\text{CO}_2$ 通量为 $1.32\text{mol m}^2 \text{a}^{-1}$ , 是弱源. Qu等(2014)发现, 黄海西部和中部夏季是大气 $\text{CO}_2$ 的弱汇, 通量为 $-1.02\text{mol m}^{-2} \text{a}^{-1}$ . Luo等(2015)用模式估算黄海中部年均为大气 $\text{CO}_2$ 的弱汇 $(-0.70\text{mol m}^{-2} \text{a}^{-1})$ .

基于国家海洋局覆盖整个黄海的监测结果, 在冬、春和夏季, 黄海是大气CO<sub>2</sub>的汇, 而秋季是源, 全年表现为大气CO<sub>2</sub>的弱汇, 平均CO<sub>2</sub>通量为( $-0.2\pm0.1$ )mol m<sup>-2</sup> a<sup>-1</sup>, 若基于该组数据, 按照黄海面积 $0.38\times10^6\text{km}^2$ 计算, 每年从大气吸收( $\sim1.0\pm0.3$ )Tg C的CO<sub>2</sub>(国家海洋局, 2013).

#### 2.1.4 渤海

渤海的海-气CO<sub>2</sub>通量研究十分有限。2009年9月, 渤海的CO<sub>2</sub>通量为 $1.01\text{mol m}^{-2}\text{ a}^{-1}$ (尹维翰等, 2012)。国家海洋局于2011~2012年的监测结果显示, 渤海秋季是大气CO<sub>2</sub>的源, 冬、春季是大气CO<sub>2</sub>的汇, 夏季海表pCO<sub>2</sub>与大气接近平衡, 全年表现为大气CO<sub>2</sub>的弱源, 为( $0.2\pm0.1$ )mol m<sup>-2</sup> a<sup>-1</sup>。渤海面积 $7.7\times10^4\text{km}^2$ , 每年向大气释放( $0.2\pm0.1$ )Tg C的CO<sub>2</sub>(国家海洋局, 2013)。

综上, 南海是大气CO<sub>2</sub>的源, 而东海是大气CO<sub>2</sub>的汇, 黄、渤海对大气CO<sub>2</sub>的吸收/释放接近平衡。整个中国边缘海是大气CO<sub>2</sub>的源, 向大气的CO<sub>2</sub>释放量为( $9.5\pm53$ )Tg C a<sup>-1</sup>(图3)。

### 2.2 陆-海连接系统碳通量

在区域碳循环研究中, 河流和河口因为面积小而常被忽视。事实上, 河流与河口是连接陆地和海洋生态系统的重要通道。土壤受风化、溶蚀的作用将固定的碳融入河流, 进入河口, 在此过程中, 一部分固定的

碳以CO<sub>2</sub>的形式返回到大气, 另一部分参与了河口的一系列生物地球化学过程, 部分进入大气, 部分有机碳埋藏在河流和河口的沉积物中, 剩余的无机碳和有机碳最终进入边缘海。Regnier等(2013)更新了全球CO<sub>2</sub>在各个圈层间的分配和交换, 计算出自工业革命以来, 由人类活动扰动所增加的从土壤进入内陆水体的碳通量为 $1.0\text{Pg C a}^{-1}$ , 这些碳主要进入河流, 其中40%返回到大气( $\sim0.4\text{Pg C a}^{-1}$ ), 50%( $\sim0.5\text{Pg C a}^{-1}$ )埋藏在河流、河口和近海的沉积物中, 剩余的10%( $\sim0.1\text{Pg C a}^{-1}$ )进入海洋。

输入中国边缘海的大河主要有湄公河、珠江、长江和黄河。长江是中国第一大河, 在世界大河中位居第三, 其径流量( $\sim900\text{km}^3\text{ a}^{-1}$ )占中国河流总径流量( $1600\text{km}^3\text{ a}^{-1}$ )的56%, 每年向东海和黄海输入大量淡水、碳及营养盐。从径流量讲, 珠江是中国第二大河, 是对南海北部陆架影响最大的河流; 湄公河是世界第七大河流, 下游在越南境内流入南海。黄河在山东注入渤海, 是中国携带悬浮泥沙量最大的河流。

#### 2.2.1 河流输入中国边缘海的碳通量

为评估河流输入整个中国边缘海碳通量, 我们利用已发表的河流中不同形态碳浓度与对应的径流量计算出河流不同形态碳的加权平均浓度, 该浓度与输送至中国边缘海的河流总径流量的乘积可以得到所有河流输入河口的碳通量。河口不仅是陆源物质入海的通

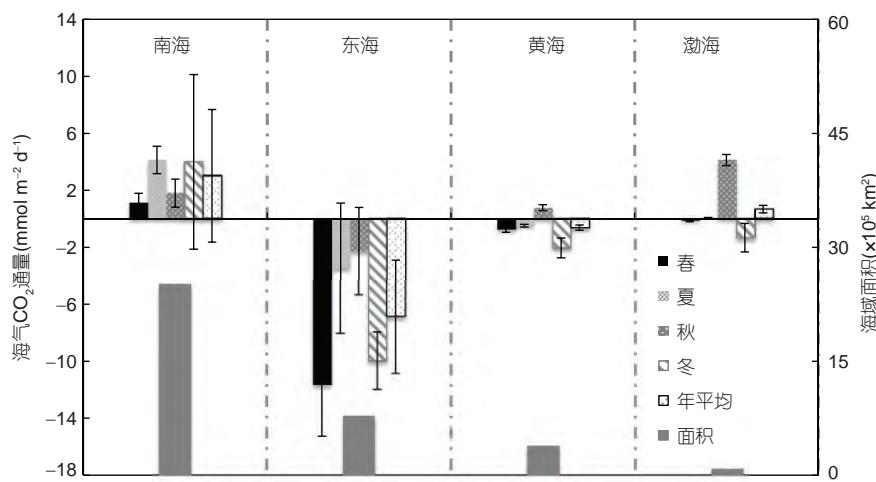


图3 中国邻近四大边缘海(南海、东海、黄海、渤海)研究范围内四个季节和年均单位面积海-气CO<sub>2</sub>通量及各海域地理总面积

海-气CO<sub>2</sub>通量的负值代表海水从大气中吸收CO<sub>2</sub>。南海数据引自Zhai等(2013), 东海引自Guo等(2015), 黄、渤海引自国家海洋局(2013)。对于海-气CO<sub>2</sub>通量, 柱长为平均值, 误差棒为标准偏差, 主要表征的是通量的空间变异范围, 详见文中讨论。

道, 同时还是个“反应器”, 即河口会发生生物地球化学过程, 导致碳的添加或去除, 进而改变最终的入海通量和物质组成。利用不同形态的碳在河口的去除和添加率, 最终估算出所有河流输入中国边缘海的碳通量。需要说明的是, 湄公河和珠江是流入南海最大的两条河流, 除此之外, 中国南部、越南、菲律宾和马来西亚等国家均有河流流入南海, 因此在我们的计算中除了考虑中国的河流外, 从越南、菲律宾和马来西亚流入南海的部分河流也纳入其中。

长江DIC和DOC浓度季节性变化不明显。DIC范围在 $1585\sim1978\mu\text{mol kg}^{-1}$ (Zhai等, 2007), 平均浓度为 $(1746\pm159)\mu\text{mol kg}^{-1}$ 。DOC浓度范围在 $1.64\sim2.74\text{mg L}^{-1}$ (Wang等, 2012), 平均值为 $(2.03\pm0.27)\text{mg L}^{-1}$ , POC/DOC约等于1(Wang等, 2012; Wu等, 2007), 接近全球河流的平均比值(McKee, 2003)。然而POC和颗粒无机碳(Particulate Inorganic Carbon, PIC)浓度呈现明显的季节性变化, 夏季高于冬季, POC和PIC的浓度范围分别为 $0.58\sim3.60$ 和 $0.17\sim0.70\text{mg L}^{-1}$ (Wang等, 2012), 平均值分别为 $(1.67\pm0.94)$ 和 $(0.36\pm0.16)\text{mg L}^{-1}$ 。采用Dai(2016)统计的长江多年(1900~2004年)流量数据与不同形态碳浓度的乘积得到长江输送到长江口的DIC、DOC、PIC和POC通量分别为 $(19.0\pm1.7)$ 、 $(1.84\pm0.2)$ 、 $(0.34\pm0.2)$ 和 $(1.51\pm0.8)\text{Tg C a}^{-1}$ 。每年输送到长江口的总碳量达 $(22.7\pm1.9)\text{Tg C a}^{-1}$ 。

珠江口淡水端的DIC浓度冬季( $>2700\mu\text{mol kg}^{-1}$ )高于夏季( $1000\mu\text{mol kg}^{-1}$ ), 平均浓度为 $1740\mu\text{mol kg}^{-1}$ (Guo等, 2008)。珠江八大口门的DOC浓度范围为 $1.38\sim2.13\text{mg L}^{-1}$ , 平均值为 $1.67\text{mg L}^{-1}$ (Ni等, 2008)。DOC浓度干季大于湿季, 而POC季节性变化与DOC相反, 因此, 湿季的POC/DOC比值高于干季( $1\sim4$  vs  $0.2\sim1$ )。PIC的实测数据未见报道, 如果假设PIC占TSM(总悬浮颗粒物)的0.97%(Huang等, 2017), 由此得到PIC浓度为 $1.59\text{mg L}^{-1}$ 。采用计算长江碳输出通量相似的方法, 我们可以得到河流输入珠江口的DIC、DOC、PIC和POC通量分别为 $(5.75\pm3.3)$ 、 $(0.46\pm0.3)$ 、 $(0.44\pm0.3)$ 和 $(2.10\pm1.2)\text{Tg C a}^{-1}$ , 输入的总碳量为 $(8.75\pm3.5)\text{Tg C a}^{-1}$ 。

黄河DIC浓度干季( $2570\sim3640\mu\text{mol kg}^{-1}$ )大于湿季( $2269\sim2752\mu\text{mol kg}^{-1}$ ), 平均浓度为 $3197\mu\text{mol L}^{-1}$ (张向上和张龙军, 2007; Ran等, 2013)。DOC浓度(利津站)月

变化较小, 范围在 $1.81\sim3.36\text{mg L}^{-1}$ (Wang等, 2012)或 $2.83\sim3.85\text{mg L}^{-1}$ (Ran等, 2013), 平均值为 $(2.83\pm0.56)\text{mg L}^{-1}$ 。与长江和珠江不同, 黄河水平均POC/DOC高达12(Wang等, 2012)。黄河POC的浓度具有较大的月变化范围, 平均值为 $(14.6\pm14.3)\text{mg L}^{-1}$ 。黄河每年向黄河口输送的DIC、DOC、PIC和POC通量分别为 $(1.46\pm0.3)$ 、 $(0.11\pm0.02)$ 、 $(2.35\pm3.5)$ 和 $(0.56\pm0.7)\text{Tg C a}^{-1}$ , 总碳量为 $(4.47\pm3.6)\text{Tg C a}^{-1}$ 。

综上, 中国三大河流向河口输出的DIC、DOC、PIC和POC年平均通量分别为 $(26.2\pm3.7)$ 、 $(2.67\pm0.4)$ 、 $(3.11\pm3.5)$ 和 $(4.17\pm1.6)\text{Tg C a}^{-1}$ , 总碳通量为 $(36.2\pm5.3)\text{Tg C a}^{-1}$ 。

最近Huang等(2017)报道了南海周边包括湄公河和珠江等51条河流径流量及碳浓度的相关数据。Xia和Zhang(2011)曾经报道了子牙新河、大辽河等汇入渤海的16条河流的DIC、DOC和POC浓度。利用这些已知的输送至中国海的河流碳浓度可以计算出不同形态碳的流量加权平均浓度, 即利用每条河流流量与碳浓度乘积的加和除以这些已知碳浓度河流的总径流量。不同形态流量加权的平均碳浓度乘以可查到的流入中国海所有河流总流量( $2208\text{km}^3 \text{a}^{-1}$ , 包括中国34条河流以及菲律宾、越南、马来西亚流入南海的13条河流), 得到所有河流排入河口的碳通量为 $(64.9\pm6.8)\text{Tg C a}^{-1}$ 。其中 $(40.8\pm4.8)\text{Tg C a}^{-1}$ 为DIC,  $(6.87\pm1.3)\text{Tg C a}^{-1}$ 为DOC,  $(4.05\pm3.7)\text{Tg C a}^{-1}$ 为PIC,  $(13.3\pm2.8)\text{Tg C a}^{-1}$ 为POC。这里, 我们未考虑汇入泰国湾的河流。相关河流流量、不同形态碳的浓度和碳通量见表1。

计算河流入海碳通量需要考虑不同形态的碳在河口的添加或去除。例如, 在长江口, 北支与南支发生的生物地球化学过程及其强度明显不同。南支如一个陆源物质入海的“通道”, 而北支则发生强烈的有机物矿化和DIC再生过程。Zhai等(2017)发现, 在2010年4月, 长江口北支生物地球化学过程(有机物矿化和 $\text{CaCO}_3$ 溶解)释放的DIC约占长江DIC输出通量的1.5~6.9%。在珠江口, 夏季河口下游(外伶仃洋及万山群岛、担杆列岛附近)的浮游植物水华可能导致明显的DIC去除。例如2005年8月珠江口发生了很强烈的水华, DIC去除量高达河流输入量的~40%(有效浓度从 $1628$ 降低到 $984\mu\text{mol kg}^{-1}$ ; Guo X等, 2009)。由于珠江口的水华一般只发生在夏季, 因此在全年尺度上, 河口DIC去除量不超过10%。黄河口DIC的去除率大概为10%(张向上

表1 输入中国陆架边缘海的河流不同形态碳浓度和碳通量<sup>a)</sup>

河流	流量 (km <sup>3</sup> a <sup>-1</sup> )	不同形态碳浓度				碳通量(Tg C a <sup>-1</sup> )				总碳通量
		DIC	DOC	PIC	POC	DIC	DOC	PIC	POC	
长江 <sup>#</sup>	908	1746	2.03	0.36	1.67	19.0±1.7	1.84±0.2	0.34±0.2	1.51±0.8	22.7±1.9
珠江 <sup>%</sup>	275	1740*	1.67	1.59	7.62	5.75±3.3	0.46±0.3	0.44±0.3	2.10±1.2	8.75±3.5
黄河 <sup>#</sup>	38	3197	2.83	61.6	14.6	1.46 ±0.3	0.11±0.02	2.35±3.5	0.56±0.7	4.47±3.6
Mekong <sup>%</sup>	474	1026	4.48	0.35	8.31	5.84	2.12	0.16	3.94	12.06
辽河/双台子河 <sup>&amp;</sup>	13	2645	5.88	—	9.25	0.42	0.08	—	0.12	—
大辽河 <sup>&amp;</sup>	20	2338	4.71	—	4.95	0.55	0.09	—	0.1	—
大凌河 <sup>&amp;</sup>	0	2814	3.83	—	16.5	0.01	0	—	0.01	—
小凌河 <sup>&amp;</sup>	15	3349	5.07	—	6.9	0.61	0.08	—	0.1	—
六股河 <sup>&amp;</sup>	3	1601	2.58	—	3.04	0.05	0.01	—	0.01	—
滦河 <sup>&amp;</sup>	8	3896	2.58	—	9.81	0.37	0.02	—	0.08	—
子牙新河 <sup>&amp;</sup>	22	5948	30.7	—	11.8	1.56	0.67	—	0.26	—
徒骇河 <sup>&amp;</sup>	2	2866	4.57	—	9.12	0.08	0.01	—	0.02	—
浊水溪 <sup>%</sup>	10	2697	1.42	4.53	33.7	0.33	0.01	0.05	0.34	0.73
韩江 <sup>%</sup>	16	663	1.26	2.83	8.48	0.13	0.02	0.05	0.14	0.33
鉴江 <sup>%</sup>	5	462	2.33	3.04	4.58	0.03	0.01	0.01	0.02	0.07
九龙江 <sup>%</sup>	8	536	1.84	10.2	41.1	0.05	0.01	0.08	0.33	0.47
高屏溪 <sup>%</sup>	3	2308	0.79	—	—	0.08	0	—	—	—
Lawis <sup>%</sup>	16	1765	0.5	11.2	81.3	0.33	0.01	0.17	1.26	1.78
雷州青年运河 <sup>%</sup>	8	500	4.75	3.88	55.6	0.05	0.04	0.03	0.46	0.58
漠阳江 <sup>%</sup>	10	634	1.43	5.97	40.5	0.08	0.01	0.06	0.4	0.55
南流江 <sup>%</sup>	2	194	1.91	7.36	54.5	0.01	0	0.02	0.12	0.14
Pampanga <sup>%</sup>	4	2826	5.76	6.25	64.2	0.15	0.03	0.03	0.29	0.49
钦江 <sup>%</sup>	2	344	1.96	0.67	2.58	0.01	0	0	0	0.02
榕江 <sup>%</sup>	2	1089	3.37	—	—	0.03	0.01	—	—	—
Saigon <sup>%</sup>	36	749	2.15	—	—	0.33	0.08	—	—	—
Song Hau <sup>%</sup>	21	835	2.36	—	—	0.21	0.05	—	—	—
曾文溪 <sup>%</sup>	2	3307	3.48	1.06	5.83	0.07	0.01	0	0.01	0.08
邕江 <sup>%</sup>	5	2305	1.18	2.52	11.7	0.14	0.01	0.01	0.06	0.22
Rajang <sup>%</sup>	150	360	2.80	1.19	1.63	0.65	0.42	0.03	0.24	1.34
所有河流	2208	1539	3.11	1.83	6.00	40.8±4.8	6.87±1.3	4.05±3.7	13.3±2.8	64.9±6.8
入海通量	2208	1539	2.80	1.83	3.90	40.8±4.8	6.19±1.1	4.05±3.7	8.62±1.8	59.6±6.4

a) DIC单位为 $\mu\text{mol L}^{-1}$ , DOC、PIC和POC单位为 $\text{mg L}^{-1}$ . #河流流量引自Dai(2016), 长江碳浓度数据引自Wang等(2012); Zhai等(2007), 黄河碳浓度数据引自Wang等(2012)、Ran等(2013)、张向上和张龙军(2007). %流量和碳浓度数据均引自Huang等(2017)及文中相关文献. &水流量数据来自国家水利部水文局官方网站(<http://xxfb.hydroinfo.gov.cn/>), 碳浓度引自Xia和Zhang(2011). 河流总流量除了表中的河流外, 还包括淮河<sup>#</sup>、瓯江<sup>#</sup>、蓟运河<sup>#</sup>、洋河<sup>&</sup>、复州河<sup>&</sup>、碧流河<sup>&</sup>、射阳河<sup>&</sup>、晋江<sup>&</sup>、万泉河<sup>&</sup>、南渡江<sup>&</sup>、Kinabatangan<sup>&</sup>、Tutoh<sup>&</sup>、Milan<sup>&</sup>、Pedas<sup>&</sup>、Labuk<sup>&</sup>、Agno<sup>&</sup>和Papar<sup>&</sup>总共47条河流. 不同形态碳浓度为流量加权平均浓度. —表示无数据

和张龙军, 2007). 鉴于河口生物地球化学对DIC的去处或添加无统一的规律, 本文近似认为河流入河口的DIC通量与河口输送入海的DIC通量相同, 由此带来的

误差不超过10%. 此外, POC在中国河口的去除率未见报道, 在珠江口的研究显示, 珠江输入的POC至少有35%在伶仃洋被去除(据何碧烟未发表数据, 并忽略现

场POC输出的贡献量), 由此假设河口POC去除率为35%。DOC去除采用10%(Dai等, 2012)。由于PIC通量较小, 因此忽略其在河口的去除或添加。最终计算得到河流输入中国边缘海的DIC、DOC、PIC和POC通量分别为( $40.8\pm4.8$ )、( $6.19\pm1.1$ )、( $4.05\pm3.7$ )和( $8.62\pm1.8$ )Tg C a<sup>-1</sup>, 总碳量为( $59.6\pm6.4$ )Tg C a<sup>-1</sup>。

## 2.2.2 河口的水-气CO<sub>2</sub>交换

河流是河口营养物质的主要来源。然而, 由于河口的高浊度, 光限制导致营养物质在河口很少被生物生产所充分利用。CO<sub>2</sub>的生物吸收不足以将河口水CO<sub>2</sub>降低到饱和度以下。因此, 几乎所有的河口都向大气释放CO<sub>2</sub>(Chen等, 2013)。为了评估中国河口海-气CO<sub>2</sub>通量, 我们首先利用已发表的数据计算了长江口、珠江口、黄河口海-气CO<sub>2</sub>通量, 然后采用这三个河口的面积加权平均值和河口总面积估算其他河口CO<sub>2</sub>通量。

长江口上游表层水体pCO<sub>2</sub>介于650~1440μatm, 而受人类活动影响强烈的黄浦江的pCO<sub>2</sub>却高达1000~4600μatm; 在河口混合区, pCO<sub>2</sub>范围在200~1000μatm(Zhai等, 2007)。总体而言, 长江内河口(121°~122°E, 不包括黄埔江和上海附近水域)年均CO<sub>2</sub>通量为15.5mol m<sup>-2</sup> a<sup>-1</sup>(Zhai等, 2007), 考虑内河口面积1600km<sup>2</sup>, 长江内河口每年向大气释放CO<sub>2</sub>的量为( $0.30\pm0.11$ )Tg C a<sup>-1</sup>(Zhai等, 2007), 相当于长江输送到东海DIC通量( $18.48$ Tg C a<sup>-1</sup>)的1.6%。

珠江口主要由三个亚河口组成, 由东向西分别是伶仃洋、磨刀门和黄茅海。总体来讲, 经伶仃洋入海的河流流经广州、东莞等人口密集的城市, 因此伶仃洋上游的pCO<sub>2</sub>(最高可达8000μatm)远高于其他两个亚河口(<2000μatm)。河口上游如此高的pCO<sub>2</sub>主要是由水体强烈的呼吸作用和硝化作用产生(Dai等, 2006, 2008)。向下游方向pCO<sub>2</sub>逐渐降低, 中游水体pCO<sub>2</sub>主要受混合控制, 而下游由净生产力控制(Guo X等, 2009)。相应地, 伶仃洋上游是大气CO<sub>2</sub>的强源( $50\sim350$ mmol m<sup>-2</sup> d<sup>-1</sup>或 $18\sim128$ mol m<sup>-2</sup> a<sup>-1</sup>), 而伶仃洋下游夏季是大气CO<sub>2</sub>的汇。珠江口CO<sub>2</sub>通量的季节变化很大, 夏季整个河口的平均CO<sub>2</sub>释放通量是冬季的6倍。由于伶仃洋上游所占面积不大, 因此整个珠江口年均表现为大气CO<sub>2</sub>中等强度的源( $6.92$ mol m<sup>-2</sup> a<sup>-1</sup>)。珠江口的面积为4360km<sup>2</sup>, 整个珠江口向大气释放CO<sub>2</sub>的量为( $0.36\pm0.14$ )Tg C a<sup>-1</sup>(Guo X等, 2009), 相当于珠江输送

到南海DIC通量( $0.48$ Tg C a<sup>-1</sup>)的6%。

从有限的调查数据来看, 黄河口的pCO<sub>2</sub>比长江口和珠江口都低, 2009年5月和9月的pCO<sub>2</sub>范围为380~700μatm, 两个季节差别不大(Liu等, 2014)。假设黄河口的海-气交换速率与长江内河口相同(~8cm h<sup>-1</sup>; Zhai等, 2007), 则可估算出黄河口海-气CO<sub>2</sub>通量为4.2mol m<sup>-2</sup> a<sup>-1</sup>。黄河口的面积为35km<sup>2</sup>(Liu等, 2006), 黄河口向大气释放CO<sub>2</sub>的量为0.002Tg C a<sup>-1</sup>。

长江口、珠江口和黄河口的面积加权平均CO<sub>2</sub>通量为9.19mol m<sup>-2</sup> a<sup>-1</sup>。韩江、钦江、闽江等汇入中国近海的38个其他河口的内河口面积为670km<sup>2</sup>(河流入海口至上游20km的面积), 如果这些河口的CO<sub>2</sub>通量用9.19mol m<sup>-2</sup> a<sup>-1</sup>估算, 则这38个内河口的CO<sub>2</sub>释放量为( $0.07\pm0.00$ )Tg C a<sup>-1</sup>。与上述三大河口的CO<sub>2</sub>释放量相加, 则中国河口的CO<sub>2</sub>释放量为( $0.74\pm0.18$ )Tg C a<sup>-1</sup>(图4)。

## 2.3 颗粒有机碳的输出

在稳态条件下, POC输出通量应与群落净生产力相当, 表征的是海洋生物泵的效率, 对大气CO<sub>2</sub>具有重要的调控作用。测定输出生产力的方法主要包括沉积物捕获器法(Chen等, 1998; Ho等, 2009), <sup>234</sup>Th/<sup>238</sup>U、<sup>210</sup>Pb/<sup>226</sup>Ra和<sup>210</sup>Po/<sup>210</sup>Pb不平衡法等同位素不平衡法(Wei等, 2011; 陈蔚芳, 2008; Cai等, 2008, 2015), <sup>228</sup>Ra/NO<sub>3</sub>模型法(Nozaki和Yamamoto, 2001), 碳收支法(Chou等, 2006)以及新生产力<sup>15</sup>N培养测定(Chen, 2005)。后三种属于间接测定方法, 与前两种方法在时间尺度等方面不尽可比, 因此, 本文主要依据前两种方法所估算的输出真光层的POC通量。

不同的方法所估算的南海POC输出通量存在较大的差异。在南海北部陆架区, POC输出通量主要由<sup>234</sup>Th/<sup>238</sup>U不平衡法获得。陈蔚芳(2008)得到POC输出真光层的通量为 $5.3\sim26.6$ mmol C m<sup>-2</sup> d<sup>-1</sup>, 平均值为( $15\pm4.6$ )mmol C m<sup>-2</sup> d<sup>-1</sup>。Cai等(2015)对南海北部陆架区的POC输出通量重新进行了高空间分辨率的系统评估, 得出陆架区的POC输出通量为 $4.6\sim66.7$ mmol C m<sup>-2</sup> d<sup>-1</sup>, 平均值为( $25\pm1.7$ )mmol C m<sup>-2</sup> d<sup>-1</sup>。在南海海盆区, 由<sup>234</sup>Th/<sup>238</sup>U不平衡法得到的值介于 $9.6\sim21.0$ mmol C m<sup>-2</sup> d<sup>-1</sup>, 由<sup>210</sup>Po/<sup>210</sup>Pb不平衡法得到的范围为 $1.8\sim20$ mmol C m<sup>-2</sup> d<sup>-1</sup>(Wei等, 2011; Yang等, 2009),

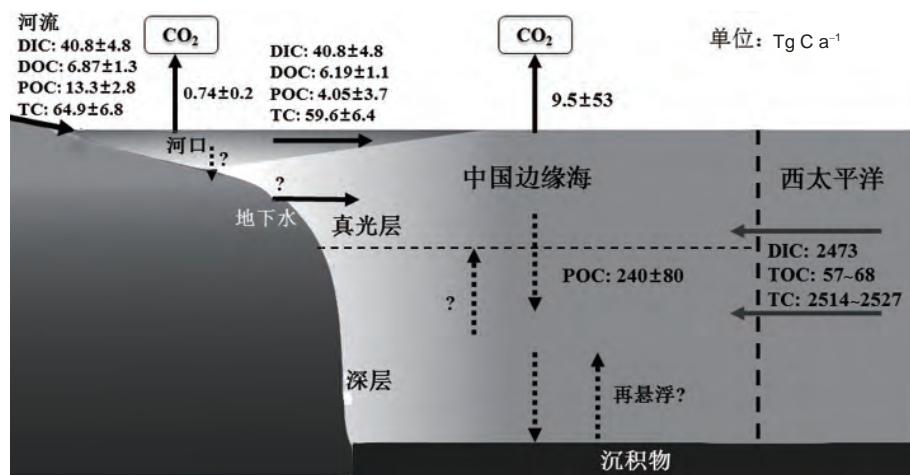


图4 中国邻近边缘海碳循环模式图

量化的界面碳通量包括中国边缘海海-气 $\text{CO}_2$ 通量、河流输入河口及河口输入中国边缘海不同形态碳通量(DIC、DOC、POC)和总碳通量(TC)、河口水-气 $\text{CO}_2$ 通量、中国边缘海上层海洋POC输出通量、西北太平洋向边缘海输送的净碳(DIC、TOC和TC)通量。此外,海底地下水输送入海的碳通量、河口及边缘海埋藏碳通量、通过扩散或上升流等过程进入边缘海真光层的碳通量研究非常有限,未能量化。需要指出的是,图中河口 $\text{CO}_2$ 通量未包含中国境外河口的通量;此外,我们在计算南海面积时未考虑北部湾和泰国湾;在边缘海与西太平洋的碳交换通量估算过程中,我们未考虑南海输出民都洛海峡、Karimata海峡,也未考虑与北部湾和泰国湾的碳交换。

由 $^{210}\text{Pb}/^{226}\text{Ra}$ 不平衡法得到的范围是 $7.2\sim 21\text{mmol C m}^{-2} \text{d}^{-1}$ (Wei等, 2011)。而以沉积物捕获器获得的POC通量范围为 $9.8\sim 18.5\text{mmol C m}^{-2} \text{d}^{-1}$ (Ho等, 2009)。以上的总体平均值为 $(14.4\pm 3.6)\text{mmol C m}^{-2} \text{d}^{-1}$ 。目前,对于南海北部海盆区最为全面且高分辨的POC输出通量亦来自于Cai等(2015),其范围为 $0.8\sim 16.2\text{mmol C m}^{-2} \text{d}^{-1}$ ,因此,南海北部海盆的输出生产力范围应在 $0.8\sim 21.0\text{mmol C m}^{-2} \text{d}^{-1}$ ,平均值为 $(8.7\pm 3.6)\text{mmol C m}^{-2} \text{d}^{-1}$ 。对于南海南部海盆区的POC输出通量观测较少,Cai等(2002)采用 $^{234}\text{Th}/^{238}\text{U}$ 和 $^{228}\text{Th}/^{228}\text{Ra}$ 不平衡法估算的值为 $1.7\sim 5.7\text{mmol C m}^{-2} \text{d}^{-1}$ ,平均值为 $(3.7\pm 2.8)\text{mmol C m}^{-2} \text{d}^{-1}$ 。Cai等(2008)指出其存在显著的空间变异性,均值为 $(3.8\pm 4.0)\text{mmol C m}^{-2} \text{d}^{-1}$ 。总体上陆架区POC的输出通量值大于海盆区。

从季节变化观之,南海冬季的POC输出通量最高;其他季节之间的差异不甚明显(Wei等, 2011; 陈蔚芳, 2008; Cai等, 2015)。而在年际尺度上,POC输出通量的时间变异可能受到厄尔尼诺和南方涛动的影响(Li等, 2017)。

衡量生物泵效率的一个关键指标是 $e$ 比值,即输出生产力与初级生产力的比值。总体来看,南海虽为寡营养海区,但其 $e$ 比值仍要大于其他亚热带海区,多数数

据>10%(Wei等, 2011; Chen等, 2008),而大洋亚热带寡营养海区基本<10%。因此,相对于开阔大洋,南海仍属于生物泵效率较高的海区。最新在南海的研究提出一个新的观点,认为南海真光层POC输出通量直接受控于POC储量,生物泵效率随青绿藻和硅藻比例的增加而升高,体现群落结构对生物泵过程的控制作用(Cai等, 2015)。

东海和黄海的大部分海区水深小于100m,在东北季风的作用下,混合作用可达到海底,并且持续3个月甚至更久的时间,因此底部再悬浮的作用通常比较强烈,定量POC输出通量难度较大(戴民汉等, 2013)。Hung等(2013)在东海内陆、中部和外大陆架区利用沉积物捕获器获得POC的净通量(即扣除底部悬浮作用)分别为 $24.7\sim 65.4$ 、 $5.7$ 、 $4.8\text{mmol C m}^{-2} \text{d}^{-1}$ 。东海POC通量的平均值为 $(24.5\pm 22.5)\text{mmol C m}^{-2} \text{d}^{-1}$ 。在东海浅水区(水深 $38\sim 88\text{m}$ )和深水区(水深 $118\sim 154\text{m}$ ),再悬浮有机碳的比例分别为57~93%和27~58%(Hung等, 2013; Guo等, 2010)。

基于 $^{234}\text{Th}/^{238}\text{U}$ 不平衡法,黄海春季输出真光层的POC净通量为 $26.4\sim 52\text{mmol C m}^{-2} \text{d}^{-1}$ ,平均值为 $(37.3\pm 0.9)\text{mmol C m}^{-2} \text{d}^{-1}$ (周宽波, 2009)。张岩松等(2005)利用沉积物捕获器测定的秋季POC净通量为

16mmol C m<sup>-2</sup> d<sup>-1</sup>, 夏季为(24.2±3.3)mmol C m<sup>-2</sup> d<sup>-1</sup>(张岩松等, 2004), 平均值为(20.1±4.2)mmol C m<sup>-2</sup> d<sup>-1</sup>, 而底部再悬浮的通量达到16.9mmol C m<sup>-2</sup> d<sup>-1</sup>(张岩松等, 2005).

渤海目前未见相关报道.

由以上可得, POC的输出通量在中国边缘海存在黄海>东海>南海的趋势. 其主要原因是由南海往东海至黄海, 水深逐渐变浅. 因此POC在水体中的再矿化几率逐渐变低. 另外, 在群落结构和生物量方面, 生物量往黄海方向逐渐增大, 而群落结构往大型硅藻占优势的方向变化, 由此, POC输出通量逐渐往黄海方向增加.

集成以上观测数据, 我们估算南海陆架区的POC输出通量为(20±9.8)mmol C m<sup>-2</sup> d<sup>-1</sup>, 海盆区为(5.4±2.5)mmol C m<sup>-2</sup> d<sup>-1</sup>, 东海为(24.6±22.5)mmol C m<sup>-2</sup> d<sup>-1</sup>, 黄海为(29.2±11.5)mmol C m<sup>-2</sup> d<sup>-1</sup>. 由此可以估算出南海的输出通量为(110±40)Tg C a<sup>-1</sup>, 东海输出通量为(80±70)Tg C a<sup>-1</sup>, 黄海为(50±20)Tg C a<sup>-1</sup>. 三个中国陆架边缘海的POC输出通量总和为(240±80)Tg C a<sup>-1</sup>.

## 2.4 与太平洋之交换

边缘海地处大洋边缘, 与大洋发生着复杂的物质和能量交换. 一方面, 开阔大洋向边缘海的物质和能量输送在很大程度上决定了边缘海水体的物理和生物地球化学性质, 如大西洋和加勒比海、墨西哥湾、北海之间的物质交换显著影响边缘海系统的碳通量(Thomas等, 2005). 另一方面, 边缘海具有更高的生产力, 因此, 边缘海对开阔大洋的物质输运又影响着开阔大洋的物质分布和生态特征, Liu等(2000)指出边缘海会向开阔大洋输入数量可观的有机碳, 达到2Pg C a<sup>-1</sup>. 由于边缘海与大洋的交换具有高度的时空变异性, 开展观测与模拟研究均十分困难, 是颇具挑战性的科学难题(Doney, 2010).

以黑潮为纽带, 西北太平洋-东亚边缘海是全球海洋中最为独特的大洋-边缘海系统, 其间的水体、能量以及物质交换对西北太平洋及其边缘海都有重要影响, 得到相当高的关注(Chen和Wang, 1999; Chen等, 2006; Chou等, 2007; Cao和Dai, 2011; Dai等, 2009; Sheu等, 2009; Wu等, 2015; 卢汐等, 2015). Chen和Wang(1999)评估了黑潮对东海营养盐的贡献, 认为东海磷酸盐主要源于黑潮入侵.

东海陆架向西北太平洋输送的有机碳(DOC)年通量介于2~12Tg C a<sup>-1</sup>(Chen和Wang, 1999; Liu等, 2006, 2010b), 东海通过近底层流向外海输送的POC为0.25Tg C a<sup>-1</sup>, 根据东海的碳收支模型推算, 从东海进入西北太平洋的DOC和DIC通量大约为50~63 Tg C a<sup>-1</sup>(Deng等, 2006).

吕宋海峡是南海与太平洋水交换的主要深水通道, 大体呈现“三明治”结构: 西北太平洋海水从上层和深层净流入南海, 而南海海水则从中层净流出(Chao等, 1996; Gan等, 2006; Li和Qu, 2006; Qu等, 2006; Tian等, 2006). 南海内部源自西北太平洋深层水的不断补充则通过中层水的快速通风(Ventilation)和净流出而达到质量平衡(Chao等, 1996; Li和Qu, 2006). 以DOC为例, 在200m以浅, 南海的DOC浓度低于吕宋海峡, 相反中层水(1000~1500m)南海有着较高的DOC, 当水深>2000m时, 南海和西北太平洋TOC(总有机碳)浓度一致(Dai等, 2009; Wu等, 2015). 结合水体流量和DOC浓度, 计算得出表、中、底层TOC的自南海的输送通量分别为(-107.1±54.6)、(54.7±15.0)和(-16.4±13.1)Tg C a<sup>-1</sup>(正值代表由南海输出到西北太平洋). 最终计算的TOC净输出通量为(-68.8±58.0)Tg C a<sup>-1</sup>. 参考该计算方法, 结合相关浓度梯度, 我们还可以计算出通过吕宋海峡其他相关物质的交换通量, DIC、TA(总碱度)和Ca<sup>2+</sup>净输入南海的通量分别为2.5 Pg C a<sup>-1</sup>、2.8Pg C a<sup>-1</sup>和40Pg Ca a<sup>-1</sup>, 而DIN(无机氮)、DIP(无机磷)和DSi(硅酸盐)净输入西北太平洋的通量分别为7Tg N a<sup>-1</sup>、4.65Tg P a<sup>-1</sup>和137.2Tg Si a<sup>-1</sup>. 由此可见, 南海与西北太平洋的物质交换通量巨大, 同时考虑到南海与西北太平洋海水中C:N:P:Si的比值不同, 两者之间的交换可能对南海及西北太平洋的碳及其他生源要素的生物地球化学循环产生重要影响. 例如, 通过深层“南海瀑布”输入南海的DIC的通量高达984Tg C a<sup>-1</sup>. 这可能是驱动南海成为大气CO<sub>2</sub>源的物质来源(Dai等, 2013). 西北太平洋输入南海的总碳量为2.5Pg C a<sup>-1</sup>.

需要特别指出的是, 上述通量估算尚存在很大的不确定性, 同时, 我们也未考虑南海输出民都洛海峡、Karimata海峡以及南海与北部湾、泰国湾的碳交换. 从数量级而言, 上述估算表明西北太平洋向中国边缘海输送的总碳量为2.5Pg C a<sup>-1</sup>.

### 3 中国海和其他边缘海的比较

基于陆架边缘海的物理-生物-化学特征, 可将全球边缘海系统大致分为几类(Cai等, 2006; Dai等, 2013)。中纬度( $30^{\circ}$ ~ $60^{\circ}$ )非上升流陆架边缘海通常具有相对宽阔的陆架、季节性水体分层、没有强烈的上升流。该区域可进一步划分为两类: 接受了大量人类活动所排放营养盐的陆架边缘海(eutrophic shelves)与接受相对较少营养盐排放的区域(mesotrophic shelves)。对于前者, 有中大西洋湾(Mid Atlantic Bight)(吸收CO<sub>2</sub>为2.65Tg C a<sup>-1</sup>; Cai等, 2006; DeGrandpre等, 2002)、波罗的海(吸收CO<sub>2</sub>为4.21Tg C a<sup>-1</sup>; Thomas和Schneider, 1999)、日本海(吸收CO<sub>2</sub>为29.6Tg C a<sup>-1</sup>; Choi等, 2012; Kang等, 2010)、北海(North Sea)(吸收CO<sub>2</sub>为8.46Tg C a<sup>-1</sup>; Thomas等, 2004)、地中海陆架(吸收CO<sub>2</sub>为3.51Tg C a<sup>-1</sup>; Bégovic和Copin-Montégut, 2002; Borges等, 2006; Copin-Montégut等, 2004)等; 这类区域整体上每年吸收大气CO<sub>2</sub>为81.7Tg C(Dai等, 2013)。对于中营养陆架边缘海, 典型区域有白令海(吸收CO<sub>2</sub>为23.8Tg C a<sup>-1</sup>; Bates等, 2011)、南美洲的帕塔哥尼亚海(Patagonian Sea)(吸收CO<sub>2</sub>为16.2Tg C a<sup>-1</sup>; Bianchi等, 2009)、美国的缅因湾(弱源, 释放CO<sub>2</sub>为0.46Tg C a<sup>-1</sup>; Vandemark等, 2011)等, 这类区域整体上每年吸收大气CO<sub>2</sub>为168.2Tg C(Dai等, 2013)。

低纬度( $0^{\circ}$ ~ $30^{\circ}$ )西边界流陆架虽然也属于非上升流区域, 但与中纬度非上升流陆架边缘海的碳收支却有较大的差别。由于这类区域温度较高, 通常也受河流影响, 接受大量河流输入的有机/无机碳, 因而该区域整体上属于大气CO<sub>2</sub>的源, 每年释放CO<sub>2</sub>为29.8Tg C(Dai等, 2013)。典型区域有巴西陆架边缘海(释放CO<sub>2</sub>为11.5Tg C a<sup>-1</sup>; Ito等, 2005)、美国佛罗里达西岸边缘海(释放CO<sub>2</sub>为4.28Tg C a<sup>-1</sup>; Cai等, 2006)等。

对于东边界流, 同样可分为低、中纬度两类。这类区域通常陆架较窄, 属于上升流主导的海域。由于上升流将较深层高pCO<sub>2</sub>的海水带至表层, 这类海域通常是大气CO<sub>2</sub>的源。对于低纬度上升流海域(low-latitude upwelling systems), 由于同时具有较高的温度, 因此其向大气释放的CO<sub>2</sub>也较多, 整体上年释放CO<sub>2</sub>为53.1Tg C(Dai等, 2013); 典型海域有秘鲁上升流海域(释放CO<sub>2</sub>为54.7Tg C a<sup>-1</sup>; Friederich等, 2008)、智利沿岸上升流海域(释放CO<sub>2</sub>为1.94Tg C a<sup>-1</sup>; Torres等, 2003, 2011)等。

而中纬度上升流区域(mid-latitude upwelling systems)则释放CO<sub>2</sub>比低纬度区域少, 且碳源汇的季节变化较大, 这类区域整体每年向大气释放CO<sub>2</sub>为11.8Tg C(Dai等, 2013); 典型海域有美国加利福利亚沿岸上升流海域(释放CO<sub>2</sub>为2.70Tg C a<sup>-1</sup>; Friederich等, 2002; Hales等, 2005)、白令海南部陆坡上升流区域(释放CO<sub>2</sub>为16.4Tg C a<sup>-1</sup>; Fransson等, 2006)。然而属于这类海域的美国俄勒冈陆架边缘海(吸收CO<sub>2</sub>为4.36Tg C a<sup>-1</sup>; Evans等, 2011)和加拿大西海岸陆架边缘海(吸收CO<sub>2</sub>为1.55Tg C a<sup>-1</sup>; Evans等, 2012)却年均为大气CO<sub>2</sub>的汇。

最后是高纬度( $60^{\circ}$ ~ $90^{\circ}$ )极地海域。由于这类海域的初级生产通常受光照不足的限制, 因此也称为光营养(phototrophic)海域。对于北极海域(phototrophic-Arctic), 其接受了大量河流输入的有机碳, 但由于温度较低, 一般是大气CO<sub>2</sub>的汇, 整体上吸收CO<sub>2</sub>高达202.5Tg C a<sup>-1</sup>(Dai等, 2013); 典型海域有格林兰-挪威海(吸收CO<sub>2</sub>高达118.8Tg C a<sup>-1</sup>; Anderson等, 2000; Hood等, 1999; Nakaoka等, 2006; Skjelvan等, 1999; Slagstad等, 1999)、巴伦支海(吸收CO<sub>2</sub> 68.0Tg C a<sup>-1</sup>; Nakaoka等, 2006; Omar等, 2007)、楚科奇海(吸收CO<sub>2</sub>9.65Tg C a<sup>-1</sup>; Arrigo等, 2010; Bates, 2006; Gao等, 2012; Semiletov等, 2007)等。而南极海域(phototrophic-Antarctic)尽管受上升流影响, 但同时也由于具有较低的温度, 是大气CO<sub>2</sub>的汇, 整体上吸收CO<sub>2</sub>为5.3Tg C a<sup>-1</sup>(Dai等, 2013)。

黄海和东海属于富营养的中纬度陆架海范畴, 而南海属低纬度西边界流区域。

### 4 展望

#### 4.1 加强观测, 科学甄别误差来源, 进一步厘清CO<sub>2</sub>通量的时空格局

近20年来, 围绕中国海碳通量的时空格局, 开展了大量的区域性观测, 虽然观测频率在空间上存在较大的差异(例如我们对渤海和北黄海的CO<sub>2</sub>源汇格局的认知仍存在较大不确定性), 总体而言仍然存在观测数据不足、时空覆盖度低等问题, 即使南海和东海的源汇格局基本确认, 但对时空格局的解析仍不足, 特别是缺乏长时间序列观测。由于各海域的海-气CO<sub>2</sub>通量存在较大的时空变化, 因此, 整个中国海海-气CO<sub>2</sub>通量的评估依然存在不确定性。

目前, 海-气CO<sub>2</sub>通量估算基本上是基于对海表CO<sub>2</sub>分压差(即表层海水CO<sub>2</sub>分压与大气CO<sub>2</sub>分压之差)的测定。由于大气pCO<sub>2</sub>相对均一恒定, 因此海表pCO<sub>2</sub>的准确测定和科学评估则成为海-气CO<sub>2</sub>通量估算的决定性因素。计算中的海表pCO<sub>2</sub>数据一般是基于现场走航观测数据作网格化处理, 其不确定性通常来自三个方面: (1) pCO<sub>2</sub>本身的测定误差; (2) 由于pCO<sub>2</sub>在海表的不均一分布产生的空间变异性, 它实际上不是通常所指的误差; (3) 由于走航采样空间覆盖率不足, 以及采样站位并非均匀分布, 由采样不足产生的偏差。在严格质量控制的条件下, 海表pCO<sub>2</sub>的测定误差可控制在1%以内, 因此, CO<sub>2</sub>通量评估的“不确定性”主要与(2)和(3)相关。Wang等(2014)融合遥感与现场观测数据, 建立了定量估算海表pCO<sub>2</sub>网格化数据三种“不确定性”的方法, 发现夏季在东海陆架区由pCO<sub>2</sub>在海表的不均一分布产生的空间变异性是造成评估结果不确定性的主要因素。厘清海表pCO<sub>2</sub>网格化数据的不确定性来源并进行定量估算, 对于准确估算海-气CO<sub>2</sub>通量, 进而评估海洋碳收支及其源汇格局的时空变化具有十分重要的意义。空间变异率不能通过增加观测频次来降低, 因为它是固有的变化, 但对确定观测的时空分辨率具有指导意义。

无论是全球还是区域碳循环研究, 其中一个巨大的挑战在于把控未来的发展趋势及其对全球和区域气候和生态系统的影响, 显然, 这需要解决碳循环的年际-年代际尺度上的空间格局, 我们对中国边缘海碳循环在该时空尺度上的变化知之甚少。以东海长江口附近为例, Chou等(2013)认为, 自20世纪90年代到21世纪, 夏季pCO<sub>2</sub>存在显著的降低趋势。他们认为引起这种变化的主要原因是富营养化的增强加速了夏季表层海水中光合作用对无机碳的去除。同时, 全球变暖可能会导致东海冬季碳汇减弱。该结论尚需要更多的观测数据和理论研究的支持。

在提升时空覆盖度的观测方面, 遥感具有不可替代的优势, Bai等(2015)建立了基于控制因子的海水pCO<sub>2</sub>遥感半分析模型。该模型基于海水碳酸盐系统理论, 综合考虑影响海水pCO<sub>2</sub>的热力学作用、水平与垂直混合、生物作用等, 为解决近海复杂水体pCO<sub>2</sub>的遥感反演这一难题作了有益的尝试。

## 4.2 进一步加强过程和机理研究

在增加观测的时空覆盖度的同时, 增强边缘海碳循环机理的研究显然是突破的途径。虽然经过多年的研究, 我们对中国边缘海不同形态的碳库之间的转化速率、初级生产与有机碳的输出通量之间的定量关系等仍有待深入。例如, 生物泵是调节大气CO<sub>2</sub>的关键过程之一, 一直以来均是海洋碳循环的核心研究内容之一。即使在国际学术界, 虽然历经30年的研究, 但对其中的过程、机理和模拟仍存在众多的科学挑战, 对控制生物泵运转效率(即输出生产力)的关键因子的认识仍相当不足, 在此我们稍作延展论述和展望。

长期以来, 深层营养盐的垂向补充一直被认为是维持上层输出生产力的主要途径, 而越来越多的证据表明固氮、大气干湿沉降等其他营养盐输送途径也可对输出生产力产生重要影响, 例如, 大气干湿沉降提供的营养盐和痕量金属可引起黄海春季藻华(Shi等, 2012; Tan等, 2011; Tan和Wang, 2014; Zhang, 1994)。因此, 研究海洋输出生产力首先需要识别营养盐的来源与结构。其次, 直接驱动输出生产力的因子是浮游植物初级生产力, 然而很多研究发现两者并不存在简单的线性耦合关系。海洋上层的食物网结构被认为是引起这种非耦合关系的主要因素。研究表明, 硅藻占主导的浮游植物群落结构更有利于有机碳的向下输出, 因为硅藻一般具有较大的粒径及密度, 且其硬质外壳能够保护有机物不被海洋细菌迅速降解。因此, 海洋硅循环(例如生源硅的生产与溶解)与海洋碳输出的耦合过程需要加以关注。另外, 营养级的向上传递亦可以对海洋有机碳的输出造成深远影响。例如, 赤道太平洋和阿拉伯海的浮游植物群落结构主要由通常不易沉降的微微型浮游植物所主导(Richardson和Jackson, 2007), 但通过浮游动物摄食、打包可显著增加有机碳的沉降通量。因此, 研究海洋微型生物食物网结构特征和主要碳流途径能够加深对以上两大问题的认识。诚然, 决定输出的有机碳能否被最终埋藏的关键因子是其在水柱中的矿化降解速率, 究竟何种来源的有机物质易被降解或被保存实属未知, 但一些新的技术, 如蛋白质组学以及生物标志物的研究或许有助于揭开该谜团。

异养生物在弱光层和深海将沉降有机碳转化为CO<sub>2</sub>的过程也调控着海洋的碳储存, 但目前尚不清楚

表层碳源能否满足整个水柱生物的需求。已有的研究对POC通量随深度衰减的估算比相应的异养代谢估算值低两个量级。出现如此巨大差异的原因可能是对POC通量和群落代谢的估算不准, 或有额外的未知碳源进到弱光层中。Giering等(2014)在北大西洋东部Porcupine深海平原进行的研究表明, 尽管弱光层中大部分的有机碳是以沉降快、易被较大的浮游动物摄食的大颗粒存在, 但原核生物(细菌及古菌)对碳的再矿化贡献率高达70~92%; 虽然一半的易沉降大颗粒会被浮游动物摄食, 但其中30%会以悬浮或是沉降速率较慢的颗粒形式释放出来, 这部分有机碳可以促进深海微型生物食物环。因此, 研究微生物与浮游动物在弱光层中的协同作用对加深认识海洋碳汇过程意义重大。

再有, 边缘海内部不同区域的生物泵效率和控制机制存在较大的变异性。在南海, 浮游植物的生物量及初级生产力均存在由近岸向远岸递减的趋势。因此, 从区域尺度上评估南海生物泵效率, 需要同时考量陆架、陆坡、海盆三者的贡献以及它们之间的相互作用。已有证据表明, 陆架生物泵产生的有机碳可以通过侧向迁移的方式传输至海盆内部, 但其量级以及对南海整个生物泵的贡献并不明确。

#### 4.3 构架边缘海碳循环概念框架, 寻求定量解析方法

由于缺乏解析方法, 而现阶段数值模式对很多生物地球化学过程的直接模拟尚存在困难, 目前的边缘海碳循环研究基本上还停留在描述性阶段, 定量研究不多。Dai等(2013)发展了基于物理-生物地球化学以及碳-营养盐的耦合诊断方法, 为建立半定量解析方法、构架边缘海碳循环概念框架作了有益的尝试。

由于边缘海碳循环既受陆地影响, 又与大洋关联, 由外源输运过程(如陆源输入和与大洋交换)与其内部固有的生物地球化学过程(如热力学过程和生物泵过程)共同控制。若以真光层作为目标系统, 从DIC的质量平衡角度视之, 则有

$$F_{\text{CO}_2} = \sum F_{\text{DIC}} + \text{NEC} - \text{NEP} - \frac{dC_{\text{DIC}}}{dt}, \quad (1)$$

式中,  $F_{\text{CO}_2}$ 是海-气界面的CO<sub>2</sub>交换通量,  $\sum F_{\text{DIC}}$ 为外源DIC输入通量之和, 即与目标系统外的净交换通量, NEC是系统净钙化速率, NEP是系统净群落生产力,

$dC_{\text{DIC}}/dt$ 是目标系统内的DIC浓度随时间的变化速率。在稳态条件下,

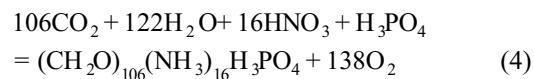
$$F_{\text{CO}_2} = \sum F_{\text{DIC}} + \text{NEC} - \text{NEP}. \quad (2)$$

一般情况下, 表层水体的净钙化速率可忽略不计(Cao等, 2009), 即NEC=0, 故,

$$F_{\text{CO}_2} = \sum F_{\text{DIC}} - \text{NEP}, \quad (3)$$

换言之, 海-气界面的CO<sub>2</sub>通量主要取决于外部净输入的无机碳与内部新陈代谢改变的碳量。

在系统内部, 浮游植物通过光合作用吸收营养盐并将水体无机碳转化为自身的有机碳(式(4)), 这些有机碳通过食物网作用, 其中一部分被微生物降解, 另一部分最终向下层输出, 这些生物主导的过程泛称海洋生物泵过程, 其效率通常用输出通量表征。在稳态条件下, 输出通量与NEP相等, 也相当于营养盐(硝酸盐, NO<sub>3</sub>; 或磷酸盐, PO<sub>4</sub>)的净输入量。由营养盐所支持的生物泵过程通过消耗DIC并影响游离CO<sub>2</sub>的浓度或pCO<sub>2</sub>, 最终改变海-气CO<sub>2</sub>通量, 其强弱是海洋吸收大气CO<sub>2</sub>能力的重要指标。



而式(1)中的外源输入至海洋上层的无机碳和营养盐可经真光层内有机碳生产而消耗, 产生的净耦合效应可表示为

$$\partial\text{DIC}^* = \Delta\text{DIC} - 106\Delta\text{PO}_4, \quad (5)$$

或

$$\partial\text{DIC}^* = \Delta\text{DIC} - 6.6\Delta\text{NO}_3, \quad (6)$$

$\Delta$ 为外部输入的化学参数经由内部生物地球化学过程而发生的改变量, 通常为观测值与保守混合值之差。而 $\partial\text{DIC}^*$ 是外源DIC经由系统内部生物地球化学过程而发生的净改变量。当 $\Delta\text{DIC}$ 大于相应 $106\Delta\text{PO}_4$ 或 $6.6\Delta\text{NO}_3$ 时, 外源DIC是超额的, 该超额DIC将会通过CO<sub>2</sub>排放释放至大气中, 使目标系统成为大气CO<sub>2</sub>的源; 当 $\Delta\text{DIC}$ 小于相应 $106\Delta\text{PO}_4$ 或 $6.6\Delta\text{NO}_3$ 时, 外源DIC是亏损的, 将由大气CO<sub>2</sub>输入进行补充, 使目标系统成为大气CO<sub>2</sub>的汇。数值106和6.6分别是浮游植物吸收碳/磷和碳/氮的Redfield比值(约为106:1和106:16(Redfield等, 1963))。

在碳酸盐体系中, 可通过海水的均质缓冲系数(Revelle Factor, RF; Revelle和Suess, 1957; Sundquist等, 1979); 式(7)将 $\partial\text{DIC}^*$ 转换成海-气界面的CO<sub>2</sub>分压差( $\Delta p\text{CO}_2$ ; 式(8)), 从而指示海洋的碳源汇格局.

$$\text{RF} = [\partial p\text{CO}_2 / p\text{CO}_2] / [\partial\text{DIC} / \text{DIC}], \quad (7)$$

由此,

$$\Delta p\text{CO}_2 = \text{RF} \times p\text{CO}_2 \times [\partial\text{DIC}^* / \text{DIC}], \quad (8)$$

式中,  $p\text{CO}_2$ 和DIC分别为表层海水的 $p\text{CO}_2$ 和DIC,  $\partial p\text{CO}_2$ 和 $\partial\text{DIC}$ 即 $\Delta p\text{CO}_2$ 和 $\partial\text{DIC}^*$ . 需要指出的是, RF受热力学作用控制, 相同 $\partial\text{DIC}^*$ 在不同温度下的 $\Delta p\text{CO}_2$ 和潜在CO<sub>2</sub>交换通量不同. 需要注意的是, 式(7)转化为式(8)的前提假设为所研究海区的表层水体海-气CO<sub>2</sub>平衡时间小于其上层水体的停留时间.

目前该诊断方法在南海、加勒比海、加利福尼亚上升流系统作了验证(Dai等, 2013; Cao等, 2014), 最近, Chou等(2017)在日本海北部的Peter the Great Bay也验证了该解析方法的有效性. 需要特别指出的是, 该诊断方法存在一定的假设, 例如, 研究海区需要处于稳态, 即不同水团混合与生物地球化学反应的时间尺度相当, 详见Dai等(2013)和Cao等(2014).

#### 4.4 深入陆-海交互带的碳通量和机理研究

陆架边缘海的特点之一是处于陆-海交互带, 涉及复杂、动态和多尺度的过程, 对于陆-海交互作用在中国海区域碳循环的作用方面本文仅提出以下两个薄弱环节.

##### 4.4.1 海底地下水排放

近20年来, 越来越多的研究表明, 除了河流以外, 海底地下水排放(Submarine Groundwater Discharge, SGD)是近海物质循环的重要组成部分, 而地下河口(Subterranean estuary)又构成了另一个陆-海界面“反应器”(Moore, 1999). 地下水通常富含有机碳. 例如, 在墨西哥湾的一个地下河口, 陆源地下水输送入海的DOC通量相当于近海DOC总来源的25%(Santos等, 2009). 根据目前有限的数据, 全球陆源地下水输送入海的DOC通量介于11~22Tg C a<sup>-1</sup>(Dai等, 2012). 然而SGD在中国河口乃至陆架边缘海DOC通量的贡献未见报道. 此外, 已有研究显示地下水 $p\text{CO}_2$ 比大气高3个数量

级(Gagan等, 2002; Cai等, 2003), 近几年的研究也证明, SGD是近海一个重要的无机碳来源(Liu Q等, 2014; Sadat-Noori等, 2016). 例如, 夏季SGD排入南海北部陆架的DIC通量相当于珠江DIC输出的23~53%(Liu等, 2012), 并可能对陆架区碳酸盐体系产生重要影响. SGD输送至九龙江河口的DIC通量相当于同时期九龙江贡献量的45~110%(Wang等, 2015). 可见, SGD作为一个可能被遗漏的陆源碳输入项, 也是今后研究区域尺度和全球尺度上近海系统碳收支不可缺少的一环.

##### 4.4.2 滨海湿地

湿地生态系统具有初级生产力高、有机物分解缓慢等特征, 在全球尺度上, 其碳埋藏量高达100Tg C a<sup>-1</sup>(Hopkinson等, 2012), 被称为“蓝色碳汇”, 其对全球范围内碳循环的影响已引起广泛关注(Sutula等, 2003; Søvik和Kløve, 2007; Zhang等, 2008; Sanders等, 2016). 中国湿地资源丰富, 湿地面积达 $3.85 \times 10^7 \text{ km}^2$ , 位居亚洲第一(Duan等, 2008), 其中滨海湿地面积约为 $5.94 \times 10^4 \text{ km}^2$ (曹磊等, 2013). 目前的研究表明中国各类沼泽湿地有机碳埋藏总量为4.91Tg C a<sup>-1</sup>(Duan等, 2008), 其中以红树林和沿海盐沼固碳速率最高. 滨海湿地是一个非常复杂的系统, 湿地植被通过光合作用吸收大气CO<sub>2</sub>, 植被凋落物落入土壤形成泥炭和腐殖质等, 土壤通过呼吸作用会再次释放CO<sub>2</sub>和CH<sub>4</sub>到大气中. 土壤中埋藏了部分的碳, 剩余的碳及部分凋落物会通过地表和地下径流输入到河口, 进入海洋, 从而影响河口和海洋的碳循环. 而当前研究最薄弱的环节在于准确量化滨海湿地横向输送进入海洋的碳通量. 例如, Bouillon等(2008)和Alongi(2009)发现红树林系统碳的源汇项无法平衡, 存在一个高达110Tg C a<sup>-1</sup>缺失的碳汇. 近期的一些研究表明通过地下和地表输送的碳通量可以解释大部分缺失的碳汇(Maher等, 2013; Alongi, 2014). 基于在澳大利亚的研究, Sippo等(2017)估算全球红树林系统横向输送入海的DIC通量为 $(43 \pm 12)\text{Tg C a}^{-1}$ , 占缺失碳汇的1/3. 这些零星报道显示通过地下和地表碳的横向输送可能是滨海湿地系统一个重要的碳汇项, 需要更多的深入研究加以证实, 这对于准确评估滨海湿地有效固碳速率和对海洋碳循环的影响至关重要. 在中国, 目前仅对长江口潮滩湿地进行了较为系统的碳储库和碳循环的研究(Alongi等, 1999, 2005; Cheng等, 2010; Guo H Q等, 2009), 尚不能综合

评估中国滨海湿地对区域碳循环的贡献,因此,今后要加强对中国滨海湿地系统碳收支和碳通量方面的研究。

#### 4.5 人类活动对边缘海碳循环影响的定量评估

人类活动对海洋碳循环的扰动是学术界非常重视的命题,也是当前的研究热点,但其驱动因子复杂多变,又常常相互关联产生多重效应,因而也是目前的研究难点(Le Quéré等, 2017; Regnier等, 2013)。由于边缘海地处海-陆-气交互作用区,人类活动的干扰来自各个圈层。以来自陆源的信号为例,土地利用方式的改变、堤岸建设、废水排放、沼泽地疏浚等活动已经或正在改变河口碳的来源、循环和收支,并进一步改变河流入海通量(Regnier等, 2013)。农业活动和土地利用方式的改变,增加了河流输出的营养盐通量,从而促进了河口和陆架区初级生产力的提高和有机碳的累积,进而导致氧的消耗甚至可能造成缺氧现象,并加剧了海洋酸化(Cai等, 2011; Doney, 2010; Wang等, 2016),进而影响碳循环过程。

总之,边缘海碳循环过程和机制复杂,受陆地、开阔大洋、大气等边界影响,还受内部复杂的物理和生物地球化学过程影响。量化其中的碳循环环节,不仅要增加现场观测的频次和空间覆盖度,还有赖于过程和机制研究。只有在全面掌握海洋碳循环的过程和机制的基础上才能很好地预测未来海洋碳循环的变化趋势及其对全球和区域气候的影响。

**致谢** 感谢香港科技大学刘志强博士对38个河口面积的计算以及杨艳对参考文献的整理。

#### 参考文献

- 曹磊, 宋金明, 李学刚, 袁华茂, 李宁, 段丽琴. 2013. 中国滨海盐沼湿地碳收支与碳循环过程研究进展. 生态学报, 33: 5141–5152
- 陈蔚芳. 2008. 南海北部颗粒有机碳输出通量、季节变化及其调控过程. 博士学位论文. 厦门: 厦门大学. 148
- 戴民汉, 翟惟东, 鲁中明, 蔡平河, 蔡卫君, 洪华生. 2004. 中国区域碳循环研究进展与展望. 地球科学进展, 19: 120–130
- 戴民汉, 尹志强. 2016. 第七章 海洋碳循环. 见: 中国科学院, 编. 中国学科发展战略: 海洋科学. 北京: 科学出版社. 199–221
- 国家海洋局. 2013. 2012年中国海洋环境状况公报. 77
- 胡敦欣, 杨作升. 2001. 东海海洋通量关键过程. 北京: 海洋出版社. 205
- 卢汐, 宋金明, 袁华茂, 李宁. 2015. 黑潮与毗邻陆架海域的碳交换. 地球科学进展, 30: 214–225
- 戴民汉, 翟惟东, 许艳萍, 李骞, 韩爱琴, 郑楠, 周宽波, 孟菲菲, 林华, 郭香会, 王旭晨. 2013. 第五章 海洋化学. 见: 王颖, 刘瑞玉, 苏纪兰, 编. 中国海洋地理. 北京: 科学出版社. 194–244
- 尹维翰, 齐衍萍, 曹志敏, 张友篪, 唐红霞. 2012. 渤海主要温室气体与海水 $p\text{CO}_2$ 环境特征. 海洋湖沼通报, 4: 189–193
- 张岩松, 章飞军, 郭学武, 张曼平. 2004. 黄海夏季水域沉降颗粒物垂直通量的研究. 海洋与湖沼, 35: 230–238
- 张岩松, 章飞军, 郭学武, 张曼平. 2005. 黄海秋季典型站位沉降颗粒物的垂直通量. 地球化学, 34: 123–128
- 张向上, 张龙军. 2007. 黄河口无机碳运输过程对pH异常增高现象的响应. 环境科学, 28: 1216–1222
- 周宽波. 2009. 黄海春季颗粒有机碳的分布、输出及动力学过程的初步研究. 硕士学位论文. 厦门: 厦门大学. 66
- Alongi D M. 2009. The Energetics of Mangrove Forests. New York: Springer. 216
- Alongi D M. 2014. Carbon cycling and storage in mangrove forests. Annu Rev Mar Sci, 6: 195–219
- Alongi D M, Tirredi F, Dixon P, Trott L A, Brunskill G J. 1999. Mineralization of organic matter in intertidal sediments of a tropical semi-enclosed delta. Estuar Coast Shelf Sci, 48: 451–467
- Alongi D M, Pfitzner J, Trott L A, Tirredi F, Dixon P, Klumpp D W. 2005. Rapid sediment accumulation and microbial mineralization in forests of the mangrove *Kandelia candel* in the Jiulongjiang Estuary, China. Estuar Coast Shelf Sci, 63: 605–618
- Anderson L G, Drange H, Chierici M, Fransson A, Johannessen T, Skjelvan I, Rey F. 2000. Annual carbon fluxes in the upper Greenland Sea based on measurements and a box-model approach. Tellus Ser B-Chem Phys Meteorol, 52: 1013–1024
- Arrigo K R, Pabi S, van Dijken G L, Maslowski W. 2010. Air-sea flux of  $\text{CO}_2$  in the Arctic Ocean, 1998–2003. J Geophys Res, 115: G04024
- Bai Y, Cai W J, He X, Zhai W, Pan D, Dai M, Yu P. 2015. A mechanistic semi-analytical method for remotely sensing sea surface  $p\text{CO}_2$  in river-dominated coastal oceans: A case study from the East China Sea. J Geophys Res, 120: 2331–2349
- Bates N R. 2006. Air-sea  $\text{CO}_2$  fluxes and the continental shelf pump of carbon in the Chukchi Sea adjacent to the Arctic Ocean. J Geophys Res, 111: C10013
- Bates N, Cai W J, Mathis J. 2011. The ocean carbon cycle in the western Arctic Ocean: Distributions and air-sea fluxes of carbon dioxide. Oceanography, 24: 186–201
- Bégovic M, Copin-Montégut C. 2002. Processes controlling annual variations in the partial pressure of  $\text{CO}_2$  in surface waters of the central northwestern Mediterranean Sea (Dyfamed site). Deep-Sea

- Res Part II-Top Stud Oceanogr, 49: 2031–2047
- Bianchi A A, Pino D R, Perlender H G I, Osiroff A P, Segura V, Lutz V, Clara M L, Balestrini C F, Piola A R. 2009. Annual balance and seasonal variability of sea-air CO<sub>2</sub> fluxes in the Patagonia Sea: Their relationship with fronts and chlorophyll distribution. J Geophys Res, 114: C03018
- Borges A V. 2011. Present day carbon dioxide fluxes in the coastal ocean and possible feedbacks under global change. In: Duarte P, Santana-Casiano J M, eds. Oceans and the Atmospheric Carbon Content. Dordrecht: Springer. 47–77
- Borges A V, Delille B, Frankignoulle M. 2005. Budgeting sinks and sources of CO<sub>2</sub> in the coastal ocean: Diversity of ecosystems counts. Geophys Res Lett, 32: L14601
- Borges A V, Schiettecatte L S, Abril G, Delille B, Gazeau F. 2006. Carbon dioxide in European coastal waters. Estuar Coast Shelf Sci, 70: 375–387
- Bouillon S, Borges A V, Castañeda-Moya E, Diele K, Dittmar T, Duke N C, Kristensen E, Lee S Y, Marchand C, Middelburg J J, Rivera-Monroy V H, Smith Iii T J, Twilley R R. 2008. Mangrove production and carbon sinks: A revision of global budget estimates. Glob Biogeochem Cycle, 22: GB2013
- Cai P, Chen W, Dai M, Wan Z, Wang D, Li Q, Tang T, Lv D. 2008. A high-resolution study of particle export in the southern South China Sea based on <sup>234</sup>Th:<sup>238</sup>U disequilibrium. J Geophys Res, 113: C04019
- Cai P, Huang Y, Chen M, Guo L, Liu G, Qiu Y. 2002. New production based on <sup>228</sup>Ra-derived nutrient budgets and thorium-estimated POC export at the intercalibration station in the South China Sea. Deep-Sea Res Part I-Oceanogr Res Pap, 49: 53–66
- Cai P, Zhao D, Wang L, Huang B, Dai M. 2015. Role of particle stock and phytoplankton community structure in regulating particulate organic carbon export in a large marginal sea. J Geophys Res, 120: 2063–2095
- Cai W J. 2011. Estuarine and coastal ocean carbon paradox: CO<sub>2</sub> sinks or sites of terrestrial carbon incineration? Annu Rev Mar Sci, 3: 123–145
- Cai W J, Dai M. 2004. Comment on “enhanced open ocean storage of CO<sub>2</sub> from shelf sea pumping”. Science, 306: 1477c
- Cai W J, Dai M, Wang Y. 2006. Air-sea exchange of carbon dioxide in ocean margins: A province-based synthesis. Geophys Res Lett, 33: L12603
- Cai W J, Hu X, Huang W J, Murrell M C, Lehrter J C, Lohrenz S E, Chou W C, Zhai W, Hollibaugh J T, Wang Y, Zhao P, Guo X, Gundersen K, Dai M, Gong G C. 2011. Acidification of subsurface coastal waters enhanced by eutrophication. Nat Geosci, 4: 766–770
- Cai W J, Wang Y, Krest J, Moore W S. 2003. The geochemistry of dissolved inorganic carbon in a surficial groundwater aquifer in North Inlet, South Carolina, and the carbon fluxes to the coastal ocean. Geochim Cosmochim Acta, 67: 631–639
- Cao Z, Dai M. 2011. Shallow-depth CaCO<sub>3</sub> dissolution: Evidence from excess calcium in the South China Sea and its export to the Pacific Ocean. Glob Biogeochem Cycle, 25: GB2019
- Cao Z, Dai M, Evans W, Gan J, Feely R. 2014. Diagnosing CO<sub>2</sub> fluxes in the upwelling system off the Oregon-California coast. Biogeosciences, 11: 6341–6354
- Cao Z, Dai M, Lu Z, Zhou K. 2009. CaCO<sub>3</sub> to organic carbon ratio in the South China Sea. Adv Geosci, 12: 109–125
- Chao S Y, Shaw P T, Wu S Y. 1996. Deep water ventilation in the South China Sea. Deep-Sea Res Part I-Oceanogr Res Pap, 43: 445–466
- Chen C T A, Borges A V. 2009. Reconciling opposing views on carbon cycling in the coastal ocean: Continental shelves as sinks and near-shore ecosystems as sources of atmospheric CO<sub>2</sub>. Deep-Sea Res Part II-Top Stud Oceanogr, 56: 578–590
- Chen C T A, Huang T H, Chen Y C, Bai Y, He X, Kang Y. 2013. Air-sea exchanges of CO<sub>2</sub> in the world’s coastal seas. Biogeosciences, 10: 6509–6544
- Chen C T A, Wang S L. 1999. Carbon, alkalinity and nutrient budgets on the East China Sea continental shelf. J Geophys Res, 104: 20675–20686
- Chen C T A, Wang S L, Chou W C, Sheu D D. 2006. Carbonate chemistry and projected future changes in pH and CaCO<sub>3</sub> saturation state of the South China Sea. Mar Chem, 101: 277–305
- Chen J, Zheng L, Wiesner M G, Chen R, Zheng Y, Wong H K. 1998. Estimations of primary production and export production in the South China Sea based on sediment trap experiments. Chin Sci Bull, 43: 583–586
- Chen W, Cai P, Dai M, Wei J. 2008. <sup>234</sup>Th/<sup>238</sup>U disequilibrium and particulate organic carbon export in the northern South China Sea. J Oceanogr, 64: 417–428
- Chen Y L L. 2005. Spatial and seasonal variations of nitrate-based new production and primary production in the South China Sea. Deep-Sea Res Part I-Oceanogr Res Pap, 52: 319–340
- Cheng X L, Luo Y Q, Xu Q, Lin G H, Zhang Q F, Chen J K, Li B. 2010. Seasonal variation in CH<sub>4</sub> emission and its <sup>13</sup>C-isotopic signature from *Spartina alterniflora* and *Scirpus mariqueter* soils in an estuarine wetland. Plant Soil, 327: 85–94
- Choi S H, Kim D, Shim J H, Kim K H, Min H S, Kim K R. 2012. Seasonal variations of surface /CO<sub>2</sub> and sea-air CO<sub>2</sub> fluxes in the Ulleung Basin of the East/Japan Sea. Terr Atmos Ocean Sci, 23: 343–353
- Chou W C, Chen Y L L, Sheu D D, Shih Y Y, Han C A, Cho C L,

- Tseng C M, Yang Y J. 2006. Estimated net community production during the summertime at the SEATS time-series study site, northern South China Sea: Implications for nitrogen fixation. *Geophys Res Lett*, 33: L22610
- Chou W C, Gong G C, Hung C C, Wu Y H. 2013. Carbonate mineral saturation states in the East China Sea: Present conditions and future scenarios. *Biogeosciences*, 10: 6453–6467
- Chou W C, Gong G C, Sheu D D, Hung C C, Tseng T F. 2009. Surface distributions of carbon chemistry parameters in the East China Sea in summer 2007. *J Geophys Res*, 114: C07026
- Chou W C, Gong G C, Tseng C M, Sheu D D, Hung C C, Chang L P, Wang L W. 2011. The carbonate system in the East China Sea in winter. *Mar Chem*, 123: 44–55
- Chou W C, Sheu D D D, Chen C T A, Wang S L, Tseng C M. 2005. Seasonal variability of carbon chemistry at the SEATS site, northern South China Sea between 2002 and 2003. *Terr Atmos Ocean Sci*, 16: 445–465
- Chou W C, Sheu D D, Chen C T A, Wen L S, Yang Y, Wei C L. 2007. Transport of the South China Sea subsurface water outflow and its influence on carbon chemistry of Kuroshio waters off southeastern Taiwan. *J Geophys Res*, 112: C12008
- Chou W C, Tishchenko P Y, Chuang K Y, Gong G C, Shkirnikova E M, Tishchenko P P. 2017. The contrasting behaviors of CO<sub>2</sub> systems in river-dominated and ocean-dominated continental shelves: A case study in the East China Sea and the Peter the Great Bay of the Japan/East Sea in summer 2014. *Mar Chem*, 195: 50–60
- Caias P, Sabine C, Bala G, Bopp L, Brovkin V, Canadell J, Chhabra A, DeFries R, Galloway J, Heimann M, Jones C, Le Quéré C, Myneni R B, Piao S, Thornton P. 2013. Carbon and other biogeochemical cycles. In: Stocker T F, Qin D, Plantner G K, Tignor M, Allen S K, Boschung J, Nauels A, Xia Y, Bex V, Midgley P M, eds. *Climate Change 2013: The Physical Science Basis. Contribution of Working Group I to the Fifth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change*. Cambridge: Cambridge University Press. 465–570
- Copin-Montégut C, Bégoovic M, Merlivat L. 2004. Variability of the partial pressure of CO<sub>2</sub> on diel to annual time scales in the Northwestern Mediterranean Sea. *Mar Chem*, 85: 169–189
- Dai A. 2016. Historical and future changes in streamflow and continental runoff: A review. In: Tang Q, Oki T, eds. *Terrestrial Water Cycle and Climate Change: Natural and Human-Induced Impacts*, Geophysical Monograph 221. AGU: John Wiley & Sons. 17–37
- Dai M, Cao Z, Guo X, Zhai W, Liu Z, Yin Z, Xu Y, Gan J, Hu J, Du C. 2013. Why are some marginal seas sources of atmospheric CO<sub>2</sub>? *Geophys Res Lett*, 40: 2154–2158
- Dai M, Guo X, Zhai W, Yuan L, Wang B, Wang L, Cai P, Tang T, Cai W J. 2006. Oxygen depletion in the upper reach of the Pearl River estuary during a winter drought. *Mar Chem*, 102: 159–169
- Dai M, Meng F, Tang T, Kao S J, Lin J, Chen J, Huang-Chuan J, Tian J, Gan J, Yang S. 2009. Excess total organic carbon in the intermediate water of the South China Sea and its export to the North Pacific. *Geochem Geophys Geosyst*, 10: Q12002
- Dai M, Yin Z, Meng F, Liu Q, Cai W J. 2012. Spatial distribution of riverine DOC inputs to the ocean: An updated global synthesis. *Curr Opin Env Sust*, 4: 170–178
- Dai M, Wang L, Guo X, Zhai W, Li Q, He B, Kao S J. 2008. Nitrification and inorganic nitrogen distribution in a large perturbed river/estuarine system: The Pearl River Estuary, China. *Biogeosciences*, 5: 1227–1244
- DeGrandpre M D, Olbu G J, Beatty C M, Hammar T R. 2002. Air-sea CO<sub>2</sub> fluxes on the US Middle Atlantic Bight. *Deep-Sea Res Part II-Top Stud Oceanogr*, 49: 4355–4367
- Deng B, Zhang J, Wu Y. 2006. Recent sediment accumulation and carbon burial in the East China Sea. *Glob Biogeochem Cycle*, 20: GB3014
- DeVries T, Holzer M, Primeau F. 2017. Recent increase in oceanic carbon uptake driven by weaker upper-ocean overturning. *Nature*, 542: 215–218
- Doney S C. 2010. The growing human footprint on coastal and open-ocean biogeochemistry. *Science*, 328: 1512–1516
- Duan X, Wang X, Fei L, Ouyang Z. 2008. Primary evaluation of carbon sequestration potential of wetlands in China. *Acta Ecol Sin*, 28: 463–469
- Elderfield H. 2002. Climate change: Carbonate mysteries. *Science*, 296: 1618–1621
- Evans W, Hales B, Strutton P G. 2011. Seasonal cycle of surface ocean pCO<sub>2</sub> on the Oregon shelf. *J Geophys Res*, 116: C05012
- Evans W, Hales B, Strutton P G, Ianson D. 2012. Sea-air CO<sub>2</sub> fluxes in the western Canadian coastal ocean. *Prog Oceanogr*, 101: 78–91
- Fransson A, Chierici M, Nojiri Y. 2006. Increased net CO<sub>2</sub> outgassing in the upwelling region of the southern Bering Sea in a period of variable marine climate between 1995 and 2001. *J Geophys Res*, 111: C08008
- Friederich G E, Ledesma J, Ulloa O, Chavez F P. 2008. Air-sea carbon dioxide fluxes in the coastal southeastern tropical Pacific. *Prog Oceanogr*, 79: 156–166
- Friederich G E, Walz P M, Burczynski M G, Chavez F P. 2002. Inorganic carbon in the central California upwelling system during the 1997–1999 El Niño-La Niña event. *Prog Oceanogr*, 54: 185–203
- Gagan M K, Ayliffe L K, Opdyke B N, Hoppley D, Scott-Gagan H, Cowley J. 2002. Coral oxygen isotope evidence for recent

- groundwater fluxes to the Australian Great Barrier Reef. *Geophys Res Lett*, 29: 43-1–43-4
- Gan J, Li H, Curchitser E N, Haidvogel D B. 2006. Modeling South China Sea circulation: Response to seasonal forcing regimes. *J Geophys Res*, 111: C06034
- Gao Z, Chen L, Sun H, Chen B, Cai W J. 2012. Distributions and air-sea fluxes of carbon dioxide in the Western Arctic Ocean. *Deep-Sea Res Part II-Top Stud Oceanogr*, 81-84: 46–52
- Giering S L C, Sanders R, Lampitt R S, Anderson T R, Tamburini C, Boutrif M, Zubkov M V, Marsay C M, Henson S A, Saw K, Cook K, Mayor D J. 2014. Reconciliation of the carbon budget in the ocean's twilight zone. *Nature*, 507: 480–483
- Guo X, Cai W J, Zhai W, Dai M, Wang Y, Chen B. 2008. Seasonal variations in the inorganic carbon system in the Pearl River (Zhujiang) estuary. *Cont Shelf Res*, 28: 1424–1434
- Guo X, Dai M, Zhai W, Cai W J, Chen B. 2009. CO<sub>2</sub> flux and seasonal variability in a large subtropical estuarine system, the Pearl River Estuary, China. *J Geophys Res*, 114: G03013
- Guo H Q, Noormets A, Zhao B, Chen J Q, Sun G, Gu Y J, Li B, Chen J K. 2009. Tidal effects on net ecosystem exchange of carbon in an estuarine wetland. *Agric For Meteorol*, 149: 1820–1828
- Guo X H, Zhai W D, Dai M H, Zhang C, Bai Y, Xu Y, Li Q, Wang G Z. 2015. Air-sea CO<sub>2</sub> fluxes in the East China Sea based on multiple-year underway observations. *Biogeosciences*, 12: 5495–5514
- Guo X, Zhang Y, Zhang F, Cao Q. 2010. Characteristics and flux of settling particulate matter in neritic waters: The southern Yellow Sea and the East China Sea. *Deep-Sea Res Part II-Top Stud Oceanogr*, 57: 1058–1063
- Hales B, Takahashi T, Bandstra L. 2005. Atmospheric CO<sub>2</sub> uptake by a coastal upwelling system. *Glob Biogeochem Cycle*, 19: GB1009
- Hopkinson C S, Cai W J, Hu X. 2012. Carbon sequestration in wetland dominated coastal systems—A global sink of rapidly diminishing magnitude. *Curr Opin Env Sust*, 4: 186–194
- Ho T Y, You C F, Chou W C, Pai S C, Wen L S, Sheu D D. 2009. Cadmium and phosphorus cycling in the water column of the South China Sea: The roles of biotic and abiotic particles. *Mar Chem*, 115: 125–133
- Hood E M, Merlivat L, Johannessen T. 1999. Variations of  $f\text{CO}_2$  and air-sea flux of CO<sub>2</sub> in the Greenland Sea gyre using high-frequency time series data from CARIOCA drift buoys. *J Geophys Res*, 104: 20571–20583
- Huang T H, Chen C T A, Tseng H C, Lou J Y, Wang S L, Yang L, Kandasamy S, Gao X, Wang J T, Aldrian E, Jacinto G S, Anshari G Z, Sompongchaiyakul P, Wang B J. 2017. Riverine carbon fluxes to the South China Sea. *J Geophys Res*, 122: 1239–1259
- Hung C C, Tseng C W, Gong G C, Chen K S, Chen M H, Hsu S C. 2013. Fluxes of particulate organic carbon in the East China Sea in summer. *Biogeosciences*, 10: 6469–6484
- Ito R G, Schneider B, Thomas H. 2005. Distribution of surface  $f\text{CO}_2$  and air-sea fluxes in the Southwestern subtropical Atlantic and adjacent continental shelf. *J Mar Syst*, 56: 227–242
- Jiao N Z, Herndl G J, Hansell D A, Benner R, Kattner G, Wilhelm S W, Kirchman D L, Weinauer M G, Luo T W, Chen F, Azam F. 2010. Microbial production of recalcitrant dissolved organic matter: Long-term carbon storage in the global ocean. *Nat Rev Microbiol*, 8: 593–599
- Kang D J, Kim J Y, Lee T, Kim K R. 2010. The East Sea (Sea of Japan). In: Liu K K, Atkinson L, Quiñones R, Talaue-Mamanus L, eds. *Carbon and Nutrient Fluxes in Continental Margins: A global Synthesis*. Heidelberg: Springer-Verlag. 383–393
- Laruelle G G, Dürr H H, Slomp C P, Borges A V. 2010. Evaluation of sinks and sources of CO<sub>2</sub> in the global coastal ocean using a spatially-explicit typology of estuaries and continental shelves. *Geophys Res Lett*, 37: L15607
- Laruelle G G, Lauwald R, Pfeil B, Regnier P. 2014. Regionalized global budget of the CO<sub>2</sub> exchange at the air-water interface in continental shelf seas. *Glob Biogeochem Cycle*, 28: 1199–1214
- Le Quéré C, Andrew R M, Friedlingstein P, Sitch S, Pongratz J, Manning A C, Korsbakken J I, Peters G P, Canadell J G, Jackson R B, Boden T A, Tans P P, Andrews O D, Arora V K, Bakker D C E, Barbero L, Becker M, Betts R A, Bopp L, Chevallier F, Chini L P, Ciais P, Cosca C E, Cross J, Currie K, Gasser T, Harris I, Hauck J, Haverd V, Houghton R A, Hunt C W, Hurtt G, Ilyina T, Jain A K, Kato E, Kautz M, Keeling R F, Klein Goldewijk K, Körtzinger A, Landschützer P, Lefèvre N, Lenton A, Lienert S, Lima I, Lombardozzi D, Metzl N, Millero F, Monteiro P M S, Munro D R, Nabel J E M S, Nakaoka S, Nojiri Y, Padín X A, Peregon A, Pfeil B, Pierrot D, Poulter B, Rehder G, Reimer J, Rödenbeck C, Schwinger J, Séférian R, Skjelvan I, Stocker B D, Tian H, Tilbrook B, van der Laan-Luijkx I T, van der Werf G R, van Heuven S, Viovy N, Vuichard N, Walker A P, Watson A J, Wiltshire A J, Zaehle S, Zhu D. 2017. Global carbon budget 2017. *Earth Syst Sci Data*, 10: 405–448
- Li H, Wiesner M G, Chen J, Ling Z, Zhang J, Ran L. 2017. Long-term variation of mesopelagic biogenic flux in the central South China Sea: Impact of monsoonal seasonality and mesoscale eddy. *Deep-Sea Res Part I-Oceanogr Res Pap*, 126: 62–72
- Li L, Qu T D. 2006. Thermohaline circulation in the deep South China Sea basin inferred from oxygen distributions. *J Geophys Res*, 111: C05017
- Liu K K, Atkinson L, Quiñones R, Talaue-Mcmanus L. 2010a. *Carbon and Nutrient Fluxes in Continental Margins: A Global Synthesis*.

- Heidelberg: Springer. 741
- Liu K K, Atkinson L, Quiñones R, Talaue-Mcmanus L. 2010b. Biogeochemistry of the Kuroshio and the East China Sea. In: Liu K K, Atkinson L, Quiñones R, Talaue-Mcmanus L, eds. Carbon and Nutrient Fluxes in Continental Margins: A Global Synthesis. IGBP Book Series. Heidelberg: Springer. 3–24
- Liu K K, Chao S Y, Marra J, Snidvongs A. 2006. Monsoonal forcing and biogeochemical environments of outer southeast Asia seas. In: Robinson A, Brink K H, eds. The Sea: Ideas and Observations on Progress in the Study of Seas, the Global Coastal Ocean: Interdisciplinary Regional Studies and Synthesis. Cambridge: Harvard University Press. 673–721
- Liu K K, Iseki K, Chao S Y. 2000. Continental margin carbon fluxes. In: Hanson R B, Ducklow H W, Field J G, eds. The Changing Ocean Carbon Cycle. Cambridge: Cambridge University Press. 187–239
- Liu Q, Charette M A, Henderson P B, McCorkle D C, Martin W, Dai M. 2014. Effect of submarine groundwater discharge on the coastal ocean inorganic carbon cycle. *Limnol Oceanogr*, 59: 1529–1554
- Liu Q, Dai M, Chen W, Huh C A, Wang G, Li Q, Charette M A. 2012. How significant is submarine groundwater discharge and its associated dissolved inorganic carbon in a river-dominated shelf system? *Biogeosciences*, 9: 1777–1795
- Liu Z, Zhang L, Cai W J, Wang L, Xue M, Zhang X. 2014. Removal of dissolved inorganic carbon in the Yellow River Estuary. *Limnol Oceanogr*, 59: 413–426
- Luo X, Wei H, Liu Z, Zhao L. 2015. Seasonal variability of air-sea CO<sub>2</sub> fluxes in the Yellow and East China Seas: A case study of continental shelf sea carbon cycle model. *Cont Shelf Res*, 107: 69–78
- Maher D T, Santos I R, Golsby-Smith L, Gleeson J, Eyre B D. 2013. Groundwater-derived dissolved inorganic and organic carbon exports from a mangrove tidal creek: The missing mangrove carbon sink? *Limnol Oceanogr*, 58: 475–488
- McKee B A. 2003. RiOMar: The Transport, Transformation and Fate of Carbon in River-Dominated Ocean Margins. RiOMar Workshop. New Orleans: Tulane University
- Moore W S. 1999. The subterranean estuary: A reaction zone of ground water and sea water. *Mar Chem*, 65: 111–125
- Nakaoka S I, Aoki S, Nakazawa T, Hashida G, Morimoto S, Yamanouchi T, Yoshikawa-Inoue H. 2006. Temporal and spatial variations of oceanic pCO<sub>2</sub> and air-sea CO<sub>2</sub> flux in the Greenland Sea and the Barents Sea. *Tellus Ser B-Chem Phys Meteorol*, 58: 148–161
- Ni H G, Lu F H, Luo X L, Tian H Y, Zeng E Y. 2008. Riverine inputs of total organic carbon and suspended particulate matter from the Pearl River Delta to the coastal ocean off South China. *Mar Pollut Bull*, 56: 1150–1157
- Nozaki Y, Yamamoto Y. 2001. Radium 228 based nitrate fluxes in the eastern Indian Ocean and the South China Sea and a silicon-induced “alkalinity pump” hypothesis. *Glob Biogeochem Cycle*, 15: 555–567
- Oh D C, Park M K, Kim K R. 2000. CO<sub>2</sub> exchange at air-sea interface in the Huanghai Sea. *Acta Oceanol Sin*, 19: 79–89
- Omar A M, Johannessen T, Olsen A, Kaltin S, Rey F. 2007. Seasonal and interannual variability of the air-sea CO<sub>2</sub> flux in the Atlantic sector of the Barents Sea. *Mar Chem*, 104: 203–213
- Peng T H, Hung J J, Wanninkhof R, Millero F J. 1999. Carbon budget in the East China Sea in spring. *Tellus Ser B-Chem Phys Meteorol*, 51: 531–540
- Qu B X, Song J M, Yuan H M, Li X G, Li N. 2014. Air-sea CO<sub>2</sub> exchange process in the southern Yellow Sea in April of 2011, and June, July, October of 2012. *Cont Shelf Res*, 80: 8–19
- Qu T, Girton J B, Whitehead J A. 2006. Deepwater overflow through Luzon strait. *J Geophys Res*, 111: C01002
- Ran L, Lu X X, Sun H, Han J, Li R, Zhang J. 2013. Spatial and seasonal variability of organic carbon transport in the Yellow River, China. *J Hydrol*, 498: 76–88
- Redfield A C B, Ketchum B H, Richards F A. 1963. The influence of organisms on the composition of sea water. In: Hill M N, ed. The Sea. Wiley-Interscience. 26–77
- Regnier P, Friedlingstein P, Ciais P, Mackenzie F T, Gruber N, Janssens I A, Laruelle G G, Lauerwald R, Luyssaert S, Andersson A J, Arndt S, Arnosti C, Borges A V, Dale A W, Gallego-Sala A, Godderis Y, Goossens N, Hartmann J, Heinze C, Ilyina T, Joos F, LaRowe D E, Leifeld J, Meysman F J R, Munhoven G, Raymond P A, Spahni R, Suntharalingam P, Thullner M. 2013. Anthropogenic perturbation of the carbon fluxes from land to ocean. *Nat Geosci*, 6: 597–607
- Rehder G, Suess E. 2001. Methane and pCO<sub>2</sub> in the Kuroshio and the South China Sea during maximum summer surface temperatures. *Mar Chem*, 75: 89–108
- Revelle R, Suess H E. 1957. Carbon dioxide exchange between atmosphere and ocean and the question of an increase of atmospheric CO<sub>2</sub> during the past decades. *Tellus*, 9: 18–27
- Richardson T L, Jackson G A. 2007. Small phytoplankton and carbon export from the surface ocean. *Science*, 315: 838–840
- Sadat-Noori M, Maher D T, Santos I R. 2016. Groundwater discharge as a source of dissolved carbon and greenhouse gases in a subtropical estuary. *Estuaries Coasts*, 39: 639–656
- Sanders C J, Maher D T, Tait D R, Williams D, Holloway C, Sippo J Z, Santos I R. 2016. Are global mangrove carbon stocks driven by rainfall? *J Geophys Res*, 121: 2600–2609

- Santos I R, Burnett W C, Dittmar T, Suryaputra I G N A, Chanton J. 2009. Tidal pumping drives nutrient and dissolved organic matter dynamics in a gulf of mexico subterranean estuary. *Geochim Cosmochim Acta*, 73: 1325–1339
- Sarmiento J L, Gruber N. 2002. Sinks for anthropogenic carbon. *Phys Today*, 55: 30–36
- Semiletov I P, Pipko I I, Repina I, Shakhova N E. 2007. Carbonate chemistry dynamics and carbon dioxide fluxes across the atmosphere-ice-water interfaces in the Arctic Ocean: Pacific sector of the Arctic. *J Mar Syst*, 66: 204–226
- Sheu D D, Chou W C, Chen C T A, Wei C L, Hsieh H L, Hou W P, Dai M. 2009. Riding over the Kuroshio from the South to the East China Sea: Mixing and transport of DIC. *Geophys Res Lett*, 36: L07603
- Sheu D D, Chou W C, Wei C L, Hou W P, Wong G T F, Hsu C W. 2010. Influence of El Niño on the sea-to-air CO<sub>2</sub> flux at the SEATS time-series site, northern South China Sea. *J Geophys Res*, 115: C10021
- Shi J H, Gao H W, Zhang J, Tan S C, Ren J L, Liu C G, Liu Y, Yao X. 2012. Examination of causative link between a spring bloom and dry/wet deposition of Asian dust in the Yellow Sea, China. *J Geophys Res*, 117: D17304
- Shim J H, Kim D, Kang Y C, Lee J H, Jang S T, Kim C H. 2007. Seasonal variations in pCO<sub>2</sub> and its controlling factors in surface seawater of the northern East China Sea. *Cont Shelf Res*, 27: 2623–2636
- Sippo J Z, Maher D T, Tait D R, Ruiz-Halpern S, Sanders C J, Santos I R. 2017. Mangrove outwelling is a significant source of oceanic exchangeable organic carbon. *Limnol Oceanogr*, 2: 1–8
- Skjelvan I, Johannessen T, Miller L A. 1999. Interannual variability of  $\delta\text{CO}_2$  in the Greenland and Norwegian Seas. *Tellus Ser B-Chem Phys Meteorol*, 51: 477–489
- Slagstad D, Downing K, Carlotti F, Hirche H J. 1999. Modelling the carbon export and air-sea flux of CO<sub>2</sub> in the Greenland Sea. *Deep-Sea Res Part II-Top Stud Oceanogr*, 46: 1511–1530
- Søvik A K, Kløve B. 2007. Emission of N<sub>2</sub>O and CH<sub>4</sub> from a constructed wetland in southeastern Norway. *Sci Total Environ*, 380: 28–37
- Sundquist E T, Plummer L N, Wigley T M L. 1979. Carbon dioxide in the ocean surface: The homogeneous buffer factor. *Science*, 204: 1203–1205
- Sutula M A, Perez B C, Reyes E, Childers D L, Davis S, Day Jr. J W, Rudnick D, Sklar F. 2003. Factors affecting spatial and temporal variability in material exchange between the Southern Everglades wetlands and Florida Bay (USA). *Estuar Coast Shelf Sci*, 57: 757–781
- Takahashi T, Sutherland S C, Wanninkhof R, Sweeney C, Feely R A, Chipman D W, Hales B, Friederich G, Chavez F, Sabine C, Watson A, Bakker D C E, Schuster U, Metzl N, Yoshikawa-Inoue H, Ishii M, Midorikawa T, Nojiri Y, Körtzinger A, Steinhoff T, Hoppema M, Olafsson J, Arnarson T S, Tilbrook B, Johannessen T, Olsen A, Bellerby R, Wong C S, Delille B, Bates N R, de Baar H J W. 2009. Climatological mean and decadal change in surface ocean pCO<sub>2</sub>, and net sea-air CO<sub>2</sub> flux over the global oceans. *Deep-Sea Res Part II-Top Stud Oceanogr*, 56: 554–577
- Tan S C, Shi G Y, Shi J H, Gao H W, Yao X. 2011. Correlation of Asian dust with chlorophyll and primary productivity in the coastal seas of China during the period from 1998 to 2008. *J Geophys Res*, 116: G02029
- Tan S C, Wang H. 2014. The transport and deposition of dust and its impact on phytoplankton growth in the Yellow Sea. *Atmos Environ*, 99: 491–499
- Thomas H, Schneider B. 1999. The seasonal cycle of carbon dioxide in Baltic Sea surface waters. *J Mar Syst*, 22: 53–67
- Thomas H, Bozec Y, de Baar H J W, Elkalay K, Frankignoulle M, Schiettecatte L S, Kattner G, Borges A V. 2005. The carbon budget of the North Sea. *Biogeosciences*, 2: 87–96
- Thomas H, Bozec Y, Elkalay K, de Baar H J W. 2004. Enhanced open ocean storage of CO<sub>2</sub> from shelf sea pumping. *Science*, 304: 1005–1008
- Tian J W, Yang Q X, Liang X F, Xie L L, Hu D X, Wang F, Qu T D. 2006. Observation of Luzon Strait transport. *Geophys Res Lett*, 33: L19607
- Torres R, Turner D R, Rutllant J, Lefèvre N. 2003. Continued CO<sub>2</sub> outgassing in an upwelling area off northern Chile during the development phase of El Niño 1997–1998 (July 1997). *J Geophys Res*, 108: 3336
- Torres R, Pantoja S, Harada N, González H E, Daneri G, Frangopoulos M, Rutllant J A, Duarte C M, Ruiz-Halpern S, Mayol E, Fukasawa M. 2011. Air-sea CO<sub>2</sub> fluxes along the coast of Chile: From CO<sub>2</sub> outgassing in central northern upwelling waters to CO<sub>2</sub> uptake in southern Patagonian fjords. *J Geophys Res*, 116: C09006
- Tseng C M, Liu K K, Gong G C, Shen P Y, Cai W J. 2011. CO<sub>2</sub> uptake in the East China Sea relying on Changjiang runoff is prone to change. *Geophys Res Lett*, 38: L24609
- Tseng C M, Shen P Y, Liu K K. 2014. Synthesis of observed air-sea CO<sub>2</sub> exchange fluxes in the river-dominated East China Sea and improved estimates of annual and seasonal net mean fluxes. *Biogeosciences*, 11: 3855–3870
- Tseng C M, Wong G T F, Chou W C, Lee B S, Sheu D D, Liu K K. 2007. Temporal variations in the carbonate system in the upper layer at the SEATS station. *Deep-Sea Res Part II-Top Stud Oceanogr*, 54: 1448–1468

- Tsunogai S, Watanabe S, Sato T. 1999. Is there a “continental shelf pump” for the absorption of atmospheric CO<sub>2</sub>? *Tellus Ser B-Chem Phys Meteorol*, 51: 701–712
- Vandemark D, Salisbury J E, Hunt C W, Shellito S M, Irish J D, McGillivray W R, Sabine C L, Maenner S M. 2011. Temporal and spatial dynamics of CO<sub>2</sub> air-sea flux in the Gulf of Maine. *J Geophys Res*, 116: C01012
- Wang G, Dai M, Shen S S P, Bai Y, Xu Y. 2014. Quantifying uncertainty sources in the gridded data of sea surface CO<sub>2</sub> partial pressure. *J Geophys Res*, 119: 5181–5189
- Wang H, Dai M, Liu J, Kao S J, Zhang C, Cai W J, Wang G, Qian W, Zhao M, Sun Z. 2016. Eutrophication-driven hypoxia in the East China Sea off the Changjiang Estuary. *Environ Sci Technol*, 50: 2255–2263
- Wang G, Wang Z, Zhai W, Moore W S, Li Q, Yan X, Qi D, Jiang Y. 2015. Net subterranean estuarine export fluxes of dissolved inorganic C, N, P, Si, and total alkalinity into the Jiulong River estuary, China. *Geochim Cosmochim Acta*, 149: 103–114
- Wang S L, Arthur Chen C T, Hong G H, Chung C S. 2000. Carbon dioxide and related parameters in the East China Sea. *Cont Shelf Res*, 20: 525–544
- Wang X, Ma H, Li R, Song Z, Wu J. 2012. Seasonal fluxes and source variation of organic carbon transported by two major Chinese Rivers: The Yellow River and Changjiang (Yangtze) River. *Glob Biogeochem Cycle*, 26: GB2025
- Wei C L, Lin S Y, Sheu D D D, Chou W C, Yi M C, Santschi P H, Wen L S. 2011. Particle-reactive radionuclides (<sup>234</sup>Th, <sup>210</sup>Pb, <sup>210</sup>Po) as tracers for the estimation of export production in the South China Sea. *Biogeosciences*, 8: 3793–3808
- Wu K, Dai M, Chen J, Meng F, Li X, Liu Z, Du C, Gan J. 2015. Dissolved organic carbon in the South China Sea and its exchange with the Western Pacific Ocean. *Deep-Sea Res Part II-Top Stud Oceanogr*, 122: 41–51
- Wu Y, Zhang J, Liu S M, Zhang Z F, Yao Q Z, Hong G H, Cooper L. 2007. Sources and distribution of carbon within the Yangtze River system. *Estuar Coast Shelf Sci*, 71: 13–25
- Xia B, Zhang L. 2011. Carbon distribution and fluxes of 16 rivers discharging into the Bohai Sea in summer. *Acta Oceanol Sin*, 30: 43–54
- Xu X, Zang K, Zhao H, Zheng N, Huo C, Wang J. 2016. Monthly CO<sub>2</sub> at A4HDYD station in a productive shallow marginal sea (Yellow Sea) with a seasonal thermocline: Controlling processes. *J Mar Syst*, 159: 89–99
- Xue L, Xue M, Zhang L, Sun T, Guo Z, Wang J. 2012. Surface partial pressure of CO<sub>2</sub> and air-sea exchange in the northern Yellow Sea. *J Mar Syst*, 105–108: 194–206
- Xue L, Zhang L, Cai W J, Jiang L Q. 2011. Air-sea CO<sub>2</sub> fluxes in the southern Yellow Sea: An examination of the continental shelf pump hypothesis. *Cont Shelf Res*, 31: 1904–1914
- Yang W F, Huang Y P, Chen M, Qiu Y S, Peng A G, Zhang L. 2009. Export and remineralization of POM in the Southern Ocean and the South China Sea estimated from <sup>210</sup>Po/<sup>210</sup>Pb disequilibria. *Chin Sci Bull*, 54: 2118–2123
- Zhai W D, Dai M. 2009. On the seasonal variation of air-sea CO<sub>2</sub> fluxes in the outer Changjiang (Yangtze River) Estuary, East China Sea. *Mar Chem*, 117: 2–10
- Zhai W D, Dai M, Cai W J. 2009. Coupling of surface *p*CO<sub>2</sub> and dissolved oxygen in the northern South China Sea: Impacts of contrasting coastal processes. *Biogeosciences*, 6: 2589–2598
- Zhai W D, Dai M, Cai W J, Wang Y, Hong H. 2005. The partial pressure of carbon dioxide and air-sea fluxes in the northern South China Sea in spring, summer and autumn. *Mar Chem*, 96: 87–97
- Zhai W D, Dai M H, Chen B S, Guo X H, Li Q, Shang S L, Zhang C Y, Cai W J, Wang D X. 2013. Seasonal variations of sea-air CO<sub>2</sub> fluxes in the largest tropical marginal sea (South China Sea) based on multiple-year underway measurements. *Biogeosciences*, 10: 7775–7791
- Zhai W D, Dai M, Guo X H. 2007. Carbonate system and CO<sub>2</sub> degassing fluxes in the inner estuary of Changjiang (Yangtze) River, China. *Mar Chem*, 107: 342–356
- Zhai W D, Yan X L, Qi D. 2017. Biogeochemical generation of dissolved inorganic carbon and nitrogen in the North Branch of inner Changjiang Estuary in a dry season. *Estuar Coast Shelf Sci*, 197: 136–149
- Zhang J. 1994. Atmospheric wet deposition of nutrient elements: Correlation with harmful biological blooms in Northwest Pacific coastal zones. *Ambio*, 23: 464–468
- Zhang F, Liu A, Li Y, Zhao L, Wang Q, Du M. 2008. CO<sub>2</sub> flux in alpine wetland ecosystem on the Qinghai-Tibetan Plateau, China. *Acta Ecol Sin*, 28: 453–462

(责任编辑: 张传伦)