



洪泛区岩石有机碳氧化速率较高

彭淑鑫^{1,2}, 李向应^{1,2*}, 苏茜蕊^{1,2}

1. 陕西省地表系统与环境承载力重点实验室, 西安 710127;

2. 西北大学城市与环境学院, 西安 710127

* 联系人, E-mail: shaanxilxy@163.com

Higher rates of petrogenic organic carbon oxidation in floodplain

Shuxin Peng^{1,2}, Xiangying Li^{1,2*} & Xirui Su^{1,2}

¹ Shaanxi Key Laboratory of Earth Surface System and Environmental Carrying Capacity, Xi'an 710127, China;

² College of Urban and Environmental Sciences, Northwest University, Xi'an 710127, China

* Corresponding author, E-mail: shaanxilxy@163.com

doi: [10.1360/TB-2024-0132](https://doi.org/10.1360/TB-2024-0132)

在地质时期, 构造、气候、侵蚀和生物过程的相互作用调节着地球系统的碳循环, 地球气候也发生了巨大变化. 在超过10万年的时间尺度上, 大气二氧化碳(CO₂)浓度主要受碳收支平衡的反馈机制影响^[1]. 然而, 地球系统如何响应碳收支的短暂不平衡引起了争论. 先前研究重点关注硅酸盐风化的碳汇作用^[2], 近期研究强调了沉积岩氧化风化作为碳源的重要性^[3]. 尽管沉积岩氧化风化受到的关注相对较少, 但对碳循环和氧循环的影响不容忽视. 在氧化风化过程中, 沉积岩中的岩石有机碳(petrogenic organic carbon, OC_{petro})不仅吸收氧气, 还向大气中释放CO₂, 从而在碳循环中发挥着重要作用. 已有研究大多量化了河流沉积物中颗粒OC_{petro}输出通量^[4,5], 只有少数研究估算了OC_{petro}在氧化风化过程中的氧化速率^[3]. 一些关键研究指出, 在沉积岩为主的高海拔岛屿^[6]和部分山区流域^[7], OC_{petro}的氧化通量较高, 这说明侵蚀作用具有持续向地表输送OC_{petro}并促进CO₂释放的能力^[8]. 因此, 在许多侵蚀环境中, OC_{petro}氧化与耦合硫化物氧化的碳酸盐风化共同释放的CO₂可能大于硅酸盐风化吸收的CO₂^[3], 这对山地化学风化是碳汇的传统观点提出了挑战.

山区侵蚀增强了氧化风化过程中的物质补给和风化通量^[6], 但总体上减弱了风化强度^[9], 导致大量未风化的颗粒OC_{petro}被输送到洪泛区, 这一过程对于深入理解侵蚀风化与碳循环之间的关系至关重要. 有研究指出, 这些OC_{petro}在洪泛区可被充分氧化并释放出大量的CO₂, 这与沉积物滞留时间以及洪泛区气候条件密切相关^[10]. 因此, 山区和洪泛区共同作用的流域CO₂释放量可能超过仅受山区作用的流域. 此外, 陆地流域水系系统在10~100万年的时间尺度上可能会发生显著变化^[11], 这也可能导致已经形成洪泛区的山脉在氧化风

化和CO₂释放方面与尚未发育洪泛区的高海拔山脉不同. 尽管认识到地貌特征会影响氧化风化过程^[3], 但山区和洪泛区风化作用对OC_{petro}氧化及其CO₂释放的相对贡献仍然未知, 这主要是由于展开山区和洪泛区OC_{petro}氧化风化研究时采用了不同的方法. 山区常使用河流溶解态铈(Re)通量来量化OC_{petro}的氧化通量^[6], 而洪泛区则使用河道沉积物通量和放射性碳同位素来量化^[10]. 相比沉积物通量, Re通量更容易估算, 但对Re的来源解析和基岩中Re/OC_{petro}的估算仍有较大不确定性. 此外, 由于在不同时空尺度上获取的水量和沉积物通量资料难以直接比较, 因此在对比山区和洪泛区OC_{petro}的氧化通量时存在问题. 总之, 洪泛区OC_{petro}氧化对碳收支的影响仍不清楚^[3].

2023年, Dellinger等人^[12]发现, 在安第斯山区、亚马孙前陆及安第斯洪泛区, OC_{petro}的氧化风化过程存在显著差异, 特别是洪泛区OC_{petro}氧化作用较强且CO₂释放速率较大. 这一发现为评估洪泛区在碳循环中的作用提供了科学依据. 具体来说, 该研究通过分析亚马孙典型流域溶解态和颗粒态Re的来源和通量, 量化了流域尺度上不同地貌类型OC_{petro}氧化释放的CO₂通量; 随后将洪泛区干流特定监测点与上游支流交汇处的年平均溶解态Re通量相比, 揭示了不同河段间OC_{petro}的氧化状况, 并据此确定了洪泛区OC_{petro}氧化发生的位置, 进而证实了洪泛区较强的风化作用.

在安第斯山区(海拔>500 m), 侵蚀作用导致基岩中41%的OC_{petro}被氧化, 未被氧化的OC_{petro}则通过河流输移至亚马孙前陆和安第斯洪泛区(海拔<500 m), 并经历进一步的氧化风化. 考虑到前陆的河流补给并不直接源自安第斯山, 而洪泛区河流则直接源于安第斯山, 该研究区分了这两种地貌的

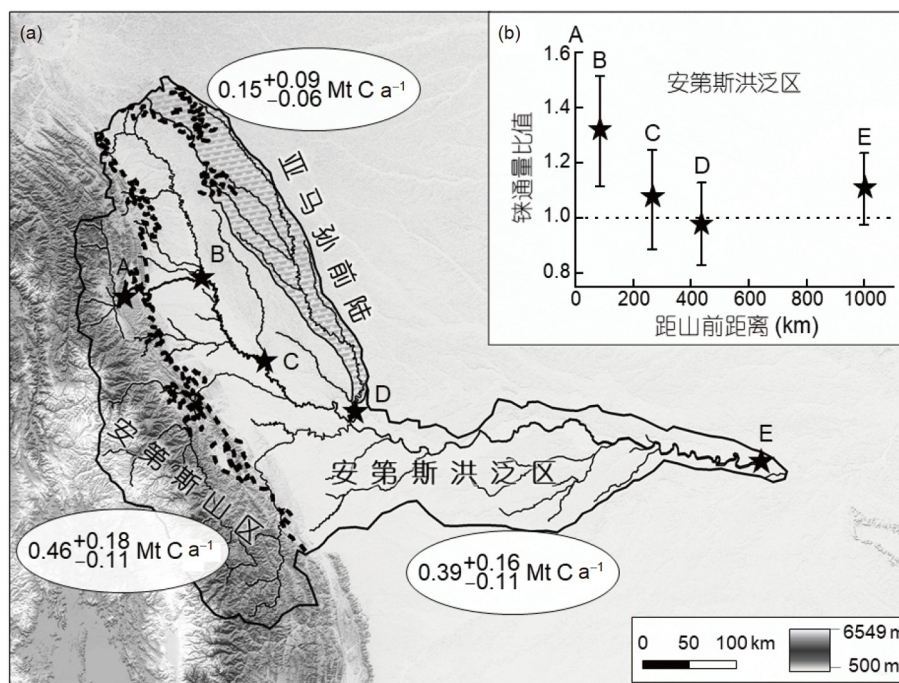


图1 亚马孙Madre de Dios流域岩石有机碳(OC_{petro})氧化示意图。(a)不同地貌中 OC_{petro} 氧化释放的 CO_2 通量。黑色虚线为500 m等高线。(b)安第斯洪泛区不同地点的年平均溶解态铼(Re)通量比值。比值大于1表示Re通量增加,同时表明 OC_{petro} 发生了氧化。阴影区域为有别于安第斯洪泛区的亚马孙前陆。修改自文献[12]

Figure 1 The oxidation of petrogenic organic carbon (OC_{petro}) in the Madre de Dios watershed, Amazon Basin. (a) The CO_2 flux released from OC_{petro} oxidation in different geomorphic zones. The dashed black line corresponds to the 500-m elevation contour. (b) Ratios of the annual average dissolved rhenium (Re) flux at different locations in the Andean-fed floodplain. A ratio greater than 1 indicates an increase in the flux of Re, which also suggests that OC_{petro} oxidation. The shaded area represents the Amazon foreland, which is different from the Andean-fed floodplain. Revised from Ref. [12]

风化作用。结果显示,在Madre de Dios流域, OC_{petro} 氧化主要发生在安第斯山区(通量为 $0.46^{+0.18}_{-0.11} \text{ Mt C a}^{-1}$)和洪泛区($0.39^{+0.16}_{-0.11} \text{ Mt C a}^{-1}$),亚马孙前陆的氧化通量($0.15^{+0.09}_{-0.06} \text{ Mt C a}^{-1}$; 图1(a))则较小。相较于山区,洪泛区沉积物在输移过程中具有不同的机制。当河流经过洪泛区时,河水和泥沙的相互作用延长了沉积物滞留时间[13],洪泛区的水文和地质结构则影响了水量和氧化还原条件,这些因素共同促进了 OC_{petro} 的氧化风化反应。此外,洪泛区的气候条件[8]和河流的长度及河湾迁移速率[14](即一定时间内河流弯曲部分水平位置上的移动速度,与河流携带的沉积物通量有关)也可能是影响反应速率的重要因素。实验表明,在河道内输移过程中沉积物的原位氧化作用较弱[15],这意味着沉积物滞留在洪泛区期间发生的氧化作用可能更为关键[16]。总之,洪泛区 OC_{petro} 氧化可能主要发生在沉积物的滞留期间,而非河道内的输移过程中。

在洪泛区, OC_{petro} 氧化主要发生在距安第斯山前约85 km的范围内(A-B点; 图1(b))。A-B点河段的年平均Re通量显著增加,而水同位素表明该河段没有支流汇入,排除了其他 OC_{petro} 补给的可能[12]。因此,该河段Re通量的增加可归因于安第斯沉积物中 OC_{petro} 的氧化。相比之下,B-C点河段虽然有较大支

流汇入,但Re通量增幅有所减小。硫酸盐的同位素组成表明,A-C点河段几乎没有发生硫酸盐的还原反应[17],这意味着该河段的氧气补给充足,为 OC_{petro} 氧化提供了有利条件。温暖的气候条件也可能加快了 OC_{petro} 的氧化速率[8]。B-C点河段Re通量增幅减小可能与上游侵蚀作用补给的 OC_{petro} 耗竭有关。C-D点河段Re通量略微下降也可能归因于类似的原因。至于D-E点河段,输移长度的增加导致沉积物滞留时间延长,支流汇入也为这一河段补给了 OC_{petro} ,这使得Re通量出现了小幅上升。考虑到估算结果的不确定性($\pm 13\% \sim \pm 20\%$; 图1(b)),未来应加强实地观测和模型优化。

该研究向山地化学风化是碳汇的传统观点提出了挑战,并为岩石风化的气候正反馈效应提供了新证据。先前对亚马孙流域的研究发现,在沉积物从山前输移至河流洪泛区的过程中, OC_{petro} 氧化释放了大量 CO_2 ,且下游河口处的 OC_{petro} 含量远低于其上游支流[4]。据估计,该支流洪泛区 OC_{petro} 氧化释放的 CO_2 量为 0.50 Mt C a^{-1} [4],这与Dellinger等人估算的Madre de Dios洪泛区 CO_2 释放量($0.39^{+0.16}_{-0.11} \text{ Mt C a}^{-1}$)相近。在整个Madre de Dios流域, OC_{petro} 氧化释放的 CO_2 ($1.00^{+0.43}_{-0.28} \text{ Mt C a}^{-1}$)是硅酸盐风化吸收量($0.43^{+0.22}_{-0.09} \text{ Mt C a}^{-1}$ [18])的2倍以上。考虑到

硫化物氧化对碳酸盐风化的促进作用, 该流域的化学风化可能更倾向于成为碳源而非碳汇^[3].

如果将流域研究结果外推至全球, 洪泛区风化将在 OC_{petro} 氧化及 CO_2 释放方面发挥较大作用. 正如观测的那样, 沉积岩抬升和剥蚀会增加风化带中 OC_{petro} 的补给^[6,8], 进而增强 OC_{petro} 氧化和碳释放速率(图1(a)). 然而, 化学风化强度总体较低, 只有约20%~50%的 OC_{petro} 被氧化, 这说明还有进一步氧化并释放 CO_2 的潜力. 在台湾等高海拔岛屿, 洪泛区内河流长度较短, 甚至不足5 km, 这使得未风化的 OC_{petro} 更易于在

近海被掩埋^[5]. 然而, 如果构造条件利于大型洪泛区的形成, 即使其河流长度只有约100 km, 也可能显著增强 OC_{petro} 的氧化作用(图1(b)). 在这种情境下, 只有极其难以氧化的 OC_{petro} 才不会被氧化^[10]. 总之, 洪泛区会使得沉积物中 OC_{petro} 的氧化更充分. 在数百万年时间尺度上, 洪泛区和其他陆地环境沉积物储量的变化^[11]可以调节地球历史时期的碳循环. 未来的岩石风化与碳循环研究应考虑洪泛区沉积岩氧化风化, 并确定温度和氧气补给如何影响洪泛区 OC_{petro} 的氧化速率^[8].

致谢 感谢国家自然科学基金(42171123, 41671053)和陕西省杰出青年科学基金(2024JC-JCQN-38)资助. 感谢课题组苏昊海、雷田旺、易童、杨瑞、邓春燕、张凯强在文章修改方面提供的帮助.

推荐阅读文献

- Berner R A, Lasaga A C, Garrels R M. The carbonate-silicate geochemical cycle and its effect on atmospheric carbon dioxide over the past 100 million years. *Am J Sci*, 1983, 283: 641–683
- Raymo M E, Ruddiman W F, Froelich P N. Influence of late Cenozoic mountain building on ocean geochemical cycles. *Geology*, 1988, 16: 649–653
- Hilton R G, West A J. Mountains, erosion and the carbon cycle. *Nat Rev Earth Environ*, 2020, 1: 284–299
- Clark K E, Hilton R G, West A J, et al. Erosion of organic carbon from the Andes and its effects on ecosystem carbon dioxide balance. *JGR Biogeosci*, 2017, 122: 449–469
- Sparkes R B, Hovius N, Galy A, et al. Survival of graphitized petrogenic organic carbon through multiple erosional cycles. *Earth Planet Sci Lett*, 2020, 531: 115992
- Hilton R G, Gaillardet J, Calmels D, et al. Geological respiration of a mountain belt revealed by the trace element rhenium. *Earth Planet Sci Lett*, 2014, 403: 27–36
- Hilton R G, Turowski J M, Winnick M, et al. Concentration-discharge relationships of dissolved rhenium in alpine catchments reveal its use as a tracer of oxidative weathering. *Water Resour Res*, 2021, 57: e2021WR029844
- Soulet G, Hilton R G, Garnett M H, et al. Temperature control on CO_2 emissions from the weathering of sedimentary rocks. *Nat Geosci*, 2021, 14: 665–671
- Hilton R G, Galy A, Hovius N, et al. Efficient transport of fossil organic carbon to the ocean by steep mountain rivers: An orogenic carbon sequestration mechanism. *Geology*, 2011, 39: 71–74
- Bouchez J, Beyssac O, Galy V, et al. Oxidation of petrogenic organic carbon in the Amazon floodplain as a source of atmospheric CO_2 . *Geology*, 2010, 38: 255–258
- Salles T, Husson L, Rey P, et al. Hundred million years of landscape dynamics from catchment to global scale. *Science*, 2023, 379: 918–923
- Dellinger M, Hilton R G, Baronas J J, et al. High rates of rock organic carbon oxidation sustained as Andean sediment transits the Amazon foreland-floodplain. *Proc Natl Acad Sci USA*, 2023, 120: e2306343120
- Dosseto A, Bourdon B, Gaillardet J, et al. Weathering and transport of sediments in the Bolivian Andes: Time constraints from uranium-series isotopes. *Earth Planet Sci Lett*, 2006, 248: 759–771
- Constantine J A, Dunne T, Ahmed J, et al. Sediment supply as a driver of river meandering and floodplain evolution in the Amazon Basin. *Nat Geosci*, 2014, 7: 899–903
- Scheingross J S, Hovius N, Dellinger M, et al. Preservation of organic carbon during active fluvial transport and particle abrasion. *Geology*, 2019, 47: 958–962
- Scheingross J S, Repasch M N, Hovius N, et al. The fate of fluvially-deposited organic carbon during transient floodplain storage. *Earth Planet Sci Lett*, 2021, 561: 116822
- Burt E I, Coayla Rimachi D H, Ccahuana Quispe A J, et al. Isotope-derived young water fractions in streamflow across the tropical Andes mountains and Amazon floodplain. *Hydrol Earth Syst Sci*, 2023, 27: 2883–2898
- Moquet J S, Crave A, Viers J, et al. Chemical weathering and atmospheric/soil CO_2 uptake in the Andean and Foreland Amazon basins. *Chem Geol*, 2011, 287: 1–26