

环境科学

(HUANJING KEXUE)

ENVIRONMENTAL SCIENCE

第34卷 第7期

Vol.34 No.7

2013

中国科学院生态环境研究中心 主办
科学出版社 出版



目次

唐山市大气颗粒物 OC/EC 浓度谱分布观测研究	郭育红, 辛金元, 王跃思, 温天雪, 李杏茹, 封孝信 (2497)
北京东灵山地区主要大气污染物浓度变化特征	于阳春, 胡波, 王跃思 (2505)
奥运前期与奥运期间北京市大气细颗粒物特征比较分析	张菊, 欧阳志云, 苗鸿, 王效科, 任玉芬, 宋文质 (2512)
华东森林及高山背景区域臭氧变化特征及影响因素	苏彬彬 (2519)
北京市居家空气微生物粒径及分布特征研究	方治国, 孙平, 欧阳志云, 刘芄, 孙力, 王小勇 (2526)
民用燃煤源中多环芳烃排放因子实测及其影响因素研究	海婷婷, 陈颖军, 王艳, 田崇国, 林田 (2533)
醇类汽油车醇醛酮、芳香烃和烯烃类排放的试验研究	张凡, 王建海, 王小臣, 王建昕 (2539)
微波解吸-催化燃烧净化甲苯研究	曹晓强, 张浩, 黄学敏 (2546)
生物滴滤池对 BTEX 的去除及相应细菌群落分析	李建军, 廖东奇, 许玫英, 孙国萍 (2552)
炼油厂废水处理站挥发性羰基化合物成分谱研究	周博宇, 刘旺, 王伯光, 周咪, 黄青, 周磊 (2560)
春季东、黄海溶解甲烷的分布和海气交换通量	曹兴朋, 张桂玲, 马啸, 张国玲, 刘素美 (2565)
千岛湖湖泊区水体季节性分层特征研究	董春颖, 虞左明, 吴志旭, 吴春金 (2574)
新安江流域土地利用结构对水质的影响	曹芳芳, 李雪, 王东, 赵越, 王玉秋 (2582)
长江中下游草型湖泊浮游植物群落及其与环境因子的典范对应分析	孟睿, 何连生, 过龙根, 席北斗, 李中强, 舒俭民, 刁晓君, 李必才 (2588)
河口盐度梯度下溶解态核酸的微生物可利用性	杨青青, 李朋辉, 黄清辉 (2597)
水藻暴发的影响因素定量化研究初步	张卓, 宋志尧, 黄昌春, 俞肇元 (2603)
深水型水库藻类功能组时空演替及生境变化的影响	卢金锁, 胡亚潘 (2611)
结合水体光学分类反演太湖总悬浮物浓度	周晓宇, 孙德勇, 李云梅, 李俊生, 龚绍琦 (2618)
Subwet 模型在人工湿地设计中的应用	李慧峰, 黄津辉, 林超 (2628)
白洋淀荷茎叶提取液对铜绿微囊藻及四尾栅藻化感效应	何连生, 孟繁丽, 刁晓君, 李一葳, 孟睿, 席北斗, 舒俭民 (2637)
苦草 (<i>Vallisneria spiralis</i>) 对城市缓流河道黑臭底泥理化性质的影响	许宽, 刘波, 王国祥, 马久远, 曹勋, 周峰 (2642)
铁屑-微生物协同还原去除水体中 Cr(VI) 研究	汤洁, 王卓行, 徐新华 (2650)
铁铜催化剂非均相 Fenton 降解苯酚及机制研究	杨岳主, 李玉平, 杨道武, 段锋, 曹宏斌 (2658)
不同形态无机氮对水中微量药物安替比林光降解效能影响	赵倩, 陈超, 封莉, 张立秋 (2665)
邻苯二甲酸二甲酯的紫外光-H ₂ O ₂ 降解机制研究	刘青, 陈成, 陈泓哲, 杨绍贵, 何欢, 孙成 (2670)
二胺基改性有序多孔 SBA-15 对溶液中 Cd ²⁺ 离子的吸附研究	张萌, 杨亚提, 秦睿, 王力, 张增强, 李忠宏, 李荣华, 孟昭福 (2677)
酸化蛭石的表面有机修饰及其对疏水性微污染物的吸附	蒋争明, 于旭彪, 胡芸, 任源, 李雪辉, 韦朝海 (2686)
基于废陶瓷的多孔陶瓷研制及其对 Ni ²⁺ 的吸附性能	张永利, 王承智, 史册, 尚玲玲, 马瑞, 董婉莉 (2694)
树皮支持的厌氧生物法去除地下水中的高氯酸盐	王蕊, 刘菲, 陈楠, 陈鸿汉 (2704)
Cr(VI) 污染地下水修复的 PRB 填料实验研究	朱文会, 董良飞, 王兴润, 翟亚丽 (2711)
化学沉淀法去除稀土湿法冶炼废水中钙与高浓度氨氮研究	王浩, 成官文, 宋晓薇, 徐子涵, 蒙金结, 董传强 (2718)
镍铁尾矿硫酸浸出动力学研究	陈安安, 周少奇, 黄鹏飞 (2729)
HRT 对 A ² O 工艺中典型多环麝香迁移转化的影响	刘鹏程, 黄满红, 陈东辉, 陈亮 (2735)
发酵液作为 EBPR 碳源的动力学模拟	张超, 陈银广 (2741)
强化污泥利用水解反应器改善碳源与污泥减量作用研究	熊娅, 王强, 宋英豪, 朱民, 林秀军 (2748)
污泥胞外聚合物的提取方法及其对污泥脱水性能的影响	周俊, 周立祥, 黄焕忠 (2752)
不同粒径铁铝泥对砷(Ⅲ)的吸附效果	林璐, 胥嘉瑞, 吴昊, 王昌辉, 裴元生 (2758)
我国畜禽粪便污染的区域差异与发展趋势分析	仇焕广, 廖绍攀, 井月, 栾江 (2766)
浙北平原富硒土壤资源区硒来源的定量分离	徐明星, 潘卫丰, 岑静, 马学文 (2775)
三江平原土地利用方式变化对土壤锰形态影响	张仲胜, 吕宪国, 宋晓林 (2782)
吉林前郭水田土壤有机碳垂直分布规律和储量研究	汤洁, 张雯辉, 李昭阳, 张楠, 胡猛 (2788)
关中地区农田土壤有机碳固存速率及影响因素: 以陕西武功县为例	张晓伟, 许明祥 (2793)
三峡库区不同林草措施土壤活性有机碳及抗蚀性研究	黄茹, 黄林, 何丙辉, 周立江, 于传, 王峰 (2800)
土壤自养微生物同化碳向土壤有机碳库输入的定量研究: ¹⁴ C 连续标记法	史然, 陈晓娟, 吴小红, 简燕, 袁红朝, 葛体达, 隋方功, 童成立, 吴金水 (2809)
西南丘陵区保护性耕作下小麦农田土壤呼吸及影响因素分析	张赛, 张晓雨, 王龙昌, 罗海秀, 周航飞, 马仲炼, 张翠微 (2815)
丹江口水库迁建区土壤有机氯农药的分布特征及风险评价	李子成, 秦延文, 郑丙辉, 张雷, 赵艳民, 时瑶 (2821)
农药企业场地苯系物污染风险及调控对策	庞博, 王铁宇, 杜立宇, 谭冰, 朱朝云, 吕永龙 (2829)
水分管理对硫铁镉在水稻根区变化规律及其在水稻中积累的影响	张雪霞, 张晓霞, 郑煜基, 王荣萍, 陈能场, 卢普相 (2837)
硝酸盐对沉积物中有机物氧化减量及微生物群落结构的影响	刘近, 邓代永, 孙国萍, 刘永定, 许玫英 (2847)
零价铁对脱色希瓦氏菌 S12 偶氮还原的促进作用	周庆, 陈杏娟, 郭俊, 孙国萍, 许玫英 (2855)
2 株好氧反硝化菌的筛选及其强化贫营养生物膜脱氮效果	全向春, 岑艳, 钱殷 (2862)
反硝化聚磷菌快速富集、培养及其荧光原位杂交技术鉴别	刘立, 汤兵, 黄绍松, 付丰连, 张启泰, 黎健彬, 罗建中 (2869)
1 株反硝化除磷菌的鉴定及其反硝化功能基因研究	张倩, 王弘宇, 桑穗姣, 李孟, 杨开, 马放 (2876)
1 株高效 BBP 降解菌的分离与特性研究	陈湖星, 杨雪, 张凯, 钟秋, 郭佳, 王攀, 熊丽, 刘德立 (2882)
微生物-化学水解联合作用下烟嘧磺隆的降解	张小林, 李咏梅, 袁志文 (2889)
扑草净降解菌的分离、筛选与鉴定及降解特性初步研究	周际海, 孙向武, 胡锋, 李辉信 (2894)
固定化 <i>Lysinibacillus cresolovorans</i> 的 PVA-SA-PHB-AC 复合载体制备及间甲酚的降解	李婷, 任源, 韦朝海 (2899)
生物破乳菌 <i>Alcaligenes</i> sp. S-XJ-1 表面活性物质提取与其破乳特性分析	黄翔峰, 张树聪, 彭开彰, 陆丽君, 刘佳 (2906)
A ² O 工艺活性污泥中可培养丝状细菌的多样性	高莎, 金德才, 赵志瑞, 齐嵘, 彭霞薇, 白志辉 (2912)
生活垃圾堆肥渗滤液污染物组成与演化规律研究	李丹, 何小松, 席北斗, 魏自民, 潘红卫, 赵国鹏, 崔东宇 (2918)
专辑征稿通知 (2551) 《环境科学》征稿简则 (2685) 《环境科学》征订启事 (2868) 信息 (2875)	

春季东、黄海溶解甲烷的分布和海气交换通量

曹兴朋, 张桂玲*, 马啸, 张国玲, 刘素美

(中国海洋大学海洋化学理论与工程技术教育部重点实验室, 青岛 266100)

摘要: 于2011年3月17日~4月6日对东、黄海海域进行了大面调查, 采集了45个站位不同深度的海水样品, 对溶解甲烷(CH_4)浓度进行了测定, 并估算了其海-气交换通量. 结果表明, 东、黄海表层海水中溶解甲烷的浓度变化范围是 $2.39 \sim 29.67 \text{ nmol} \cdot \text{L}^{-1}$, 底层海水中甲烷浓度范围是 $2.63 \sim 30.63 \text{ nmol} \cdot \text{L}^{-1}$, 底层浓度略高于表层, 表明底层水体或沉积物中存在甲烷的源. 春季东、黄海海域表、底层溶解甲烷的分布特征基本一致, 即从近岸向远海逐渐降低, 主要受长江冲淡水输入和黑潮水入侵的影响. 春季东、黄海海域表层海水中 CH_4 饱和度为 $93\% \sim 1038\%$. 利用Liss and Merlivat公式(LM86)、Wanninkhof公式(W92)和现场测定的风速估算出春季东、黄海海域 CH_4 的海-气交换通量分别为 $(2.85 \pm 5.11) \mu\text{mol} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{d})^{-1}$ 和 $(5.18 \pm 9.99) \mu\text{mol} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{d})^{-1}$, 根据本研究结果和文献数据初步估算出东海和黄海年释放甲烷量分别为 $7.05 \times 10^{-2} \sim 12.0 \times 10^{-2} \text{ Tg} \cdot \text{a}^{-1}$ 和 $1.17 \times 10^{-2} \sim 2.20 \times 10^{-2} \text{ Tg} \cdot \text{a}^{-1}$. 春季东、黄海海域表层海水中 CH_4 均呈过饱和状态, 是大气中 CH_4 的净源.

关键词: 东海; 黄海; 甲烷; 分布; 海气交换通量

中图分类号: X16 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2013)07-2565-09

Distribution and Air-Sea Fluxes of Methane in the Yellow Sea and the East China Sea in the Spring

CAO Xing-peng, ZHANG Gui-ling, MA Xiao, ZHANG Guo-ling, LIU Su-mei

(Key Laboratory of Marine Chemistry Theory and Technology, Ministry of Education, Ocean University of China, Qingdao 266100, China)

Abstract: A survey was carried out in the Yellow Sea and the East China Sea from March 17 to April 06 of 2011. Dissolved CH_4 in various depths were measured and sea-to-air fluxes were estimated. Methane concentrations in surface and bottom waters ranged between $2.39 \sim 29.67 \text{ nmol} \cdot \text{L}^{-1}$ and $2.63 \sim 30.63 \text{ nmol} \cdot \text{L}^{-1}$, respectively. Methane concentrations in bottom waters were slightly higher than those in surface waters, suggesting the existence of methane source in bottom waters or sediments. The horizontal distribution of dissolved CH_4 showed a decrease from the river mouth to the open sea, and was influenced by the freshwater discharge and the Kuroshio intrusion. Surface methane saturations ranged from $93\% \sim 1038\%$. Sea to air CH_4 fluxes were $(2.85 \pm 5.11) \mu\text{mol} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{d})^{-1}$, $(5.18 \pm 9.99) \mu\text{mol} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{d})^{-1}$ respectively, calculated using the Liss and Merlivat (LM86), the Wanninkhof (W92) relationships and in situ wind speeds, and estimated emission rates of methane from the East China Sea and the Yellow Sea range from $7.05 \times 10^{-2} \sim 12.0 \times 10^{-2} \text{ Tg} \cdot \text{a}^{-1}$ and $1.17 \times 10^{-2} \sim 2.20 \times 10^{-2} \text{ Tg} \cdot \text{a}^{-1}$, respectively. The Yellow Sea and East China Sea are the net sources of atmospheric methane in the spring.

Key words: East China Sea; Yellow Sea; methane; distribution; sea-to-air fluxes

甲烷是大气中的一种微量气体, 对温室效应有重要贡献, 同时对平流层和对流层化学也有重要影响^[1]. 尽管大气中 CH_4 浓度比 CO_2 小很多, 但其单分子辐射能力比 CO_2 高20倍, 且在大气中停留时间较长, 因此 CH_4 对温室效应的贡献高达20%^[2]. CH_4 通过参与控制对流层中 O_3 和OH自由基浓度的光化学反应而间接影响气候变化^[1]. 自1750年以来大气中 CH_4 的浓度每年以0.5%~1%的速度增长, 2005年已达 1774×10^{-9} ^[2].

海洋作为大气 CH_4 的重要自然源, 每年向大气输送5~50 Tg CH_4 , 约占全球释放总量的1%~10%^[3,4]. 海洋向大气释放 CH_4 的量存在较大的时空变化, 寡营养的开阔大洋区域一般和大气达到气

体交换平衡^[5], 因此对海洋释放甲烷量贡献较少, 然而仅占世界海洋面积约16%的陆架及沿海区域, 其甲烷释放量却占全球海洋甲烷释放总量的约75%^[4], 因此研究陆架及近岸海区溶解甲烷的分布及释放具有重要意义.

东、黄海是西北太平洋的边缘海, 总面积约117万 km^2 , 其中大陆架面积占海区总面积的70%以上, 是世界上最具有代表性的大陆架浅海区之一^[6]. 这片

收稿日期: 2012-10-10; 修订日期: 2012-12-17

基金项目: 国家自然科学基金国际合作项目(41020164005); 国家重点基础研究发展规划(973)项目(2010CB428901); 科技部国际合作项目(2010DFA91350)

作者简介: 曹兴朋(1987~), 女, 硕士, 主要研究方向为海洋环境科学, E-mail: xingpeng212@163.com

* 通讯联系人, E-mail: guilingzhang@ouc.edu.cn

海区处于黑潮、台湾暖流、对马暖流、黄海沿岸流、东海沿岸流、朝鲜沿岸流和长江冲淡水的综合作用区,水文条件很复杂^[7,8],其中黑潮从台湾以东海域流入东海后沿陆坡北上,入侵到整个东海陆架,并与陆架水相互交换^[9]. 黑潮表层水和次表层水中的溶解甲烷浓度较低^[10,11],因此这种交换作用会影响到溶解甲烷在东海的分布. 另外,长江携带大量淡水、悬浮泥沙和营养盐从西侧汇入东、黄海^[12,13]. 研究表明,世界河流中溶解甲烷浓度普遍较高,约为 $4.8 \sim 1\,500 \text{ nmol} \cdot \text{L}^{-1}$ ^[14-16],同时通过陆地径流输入的大量营养盐和有机质也为甲烷的生物产生提供了有利条件,因此长江输入也会影响到溶解甲烷在东、黄海的分布.

本研究基于 2011 年 3~4 月对东、黄海的调查数据,对春季东、黄海海域 CH_4 的分布及其影响因素进行了初步探讨,并结合历史数据初步估算了东、黄海海域向大气释放的 CH_4 通量以及对全球 CH_4 海-气交换通量的区域性贡献.

1 材料与方法

1.1 研究区域

于 2011 年 3 月 17 日到 4 月 6 日对东、黄海海域进行了大面调查,调查区域及站位如图 1 所示,其中包括 8 个断面,共调查了 45 个站位. 在大部分站位采集了不同深度(5~7 层)的样品,对东、黄海海域的溶解 CH_4 水平分布和垂直分布进行了研究.

1.2 样品采集

海水样品由 10 L Niskin 采水器采集. 在采样前先用海水冲洗玻璃样品瓶 3 次,然后将乳胶管插入瓶底慢慢注入海水,注入速度要快,但要保证避免产生气泡和漩涡,并使海水溢出约瓶体积的一半后,加入 1.0 mL 饱和 HgCl_2 抑制微生物活动,然后用带 PTFE 衬层的橡胶塞和铝帽将样品瓶密封. 样品采集后于箱中低温避光保存,待返回陆地实验室后在样品保存期内尽快测定(样品保存期约为 2 个月)^[6]. 所有样品均为双样采集,现场海水温度、盐度等参数由 CTD 在海水采集时同步测定. 现场风速由船上的自动气象站测定. 其中还在长江口外的 P01 站和北黄海的 A02 站采用箱式采泥器采集了多根沉积物柱子,每根柱子内径 5 cm,长 30 cm,采得的沉积柱高度在(20~30)cm. 采样后立即用橡胶塞将沉积柱底部密封,然后尽快开始沉积物-水界面 CH_4 交换通量的培养实验.

1.3 分析方法

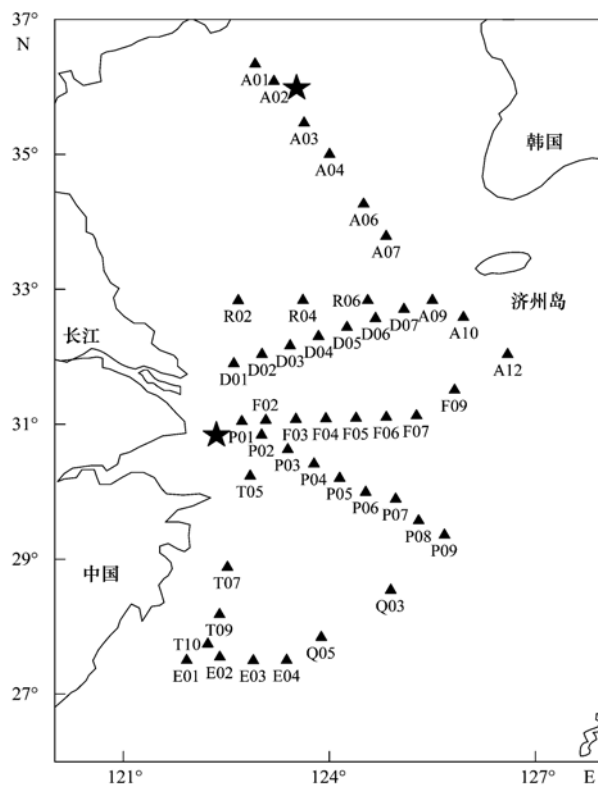


图 1 2011 年 3 月东、黄海海域采样站位示意

Fig. 1 Sampling locations in the Yellow Sea and the East China Sea

海水样品中 CH_4 采用吹扫捕集-气相色谱法测定^[17]. 用高纯 N_2 ($80 \text{ mL} \cdot \text{min}^{-1}$) 吹扫水样,吹扫气体经冰浴聚四氟乙烯管和无水 CaCl_2 干燥管去除水蒸气,然后再进入内填 Porapark-Q (80/100 目) 填料并置于液氮中的不锈钢吸附管中富集 7 min,富集结束后将吸附管迅速加热到 100°C 解析,被吸附的 CH_4 经解析后进入气相色谱仪(岛津 GC-14B)中测定. 检测器为 FID,色谱柱为 $3 \text{ m} \times 3 \text{ mm}$ 的不锈钢填充柱(Porapark-Q, 80/100 目),色谱柱温为 50°C ,进样口温度为 100°C ,检测器温度为 175°C . 所用载气为高纯 N_2 ,流量为 $50 \text{ mL} \cdot \text{min}^{-1}$. 检测器信号采用一定体积分数的 CH_4 标气(2.01 、 4.02 和 50.3×10^{-6} , CH_4/N_2 , 国家标准物质中心)校正. 因 FID 检测器的响应信号与 CH_4 浓度之间有良好的线性关系,故采用同一浓度不同体积的多点校正法建立色谱峰面积与甲烷浓度的线性关系,然后根据待测样品校正空白后的色谱峰面积,利用标准曲线进行校正. 本方法的检出限为 $0.06 \text{ nmol} \cdot \text{L}^{-1}$,精密性 $<3\%$ ^[6].

1.4 饱和度及海-气交换通量的计算方法

海水中溶解 CH_4 的饱和度 $R(\%)$ 及海-气交换通量 F 可由下列公式计算得出:

$$R = c_{\text{obs}}/c_{\text{eq}} \times 100\% \quad (1)$$

$$F = k_w \times (c_{\text{obs}} - c_{\text{eq}}) \quad (2)$$

式中, c_{obs} 为溶解甲烷在表层海水中的实测浓度; c_{eq} 为甲烷在表层海水中与大气达平衡时的浓度, 可根据大气中甲烷浓度、现场水温、盐度等, 利用 Wiesenburg 公式^[18] 计算得到. 由于本项目没有测定大气中甲烷浓度, 因此根据目前大气甲烷浓度的每年平均增长率 0.5% ~ 1% 及 2005 年全球大气甲烷平均浓度为 1774×10^{-9} ^[2], 估算出 2011 年大气中甲烷的浓度约为 1860×10^{-9} . k_w 为气体交换速率, 可根据经验公式计算得到. 通常利用 Liss and Merlivat 公式^[19]、Wanninkhof 公式^[20] (简称 LM86 公式、W92 公式) 来计算 k_w , 分别代表了对海-气交换通量估算的较低值与较高值.

2 结果与讨论

2.1 春季东、黄海海域表、底层 CH_4 水平分布

春季东、黄海海域表、底层海水中溶解 CH_4 浓度、温度和盐度的水平分布如图 2 所示. 东、黄海表、底层温度的分布特征大致相同, 即水温从黄海西北部向东南部逐渐升高, 在东海从北向南逐渐升高. 东、黄海表层盐度变化幅度较大, 在 29.776 ~ 34.604 之间波动, 长江口附近出现盐度最低值, 并向四周逐渐升高, 这主要是受长江冲淡水的影响. 东、黄海底层盐度变化范围不大, 在 32.005 ~ 34.490 之间波动.

表、底层 CH_4 浓度的变化范围分别是 2.39 ~ 29.67 $\text{nmol} \cdot \text{L}^{-1}$ 和 2.63 ~ 30.63 $\text{nmol} \cdot \text{L}^{-1}$, 平均值分别为 $(4.47 \pm 4.09) \text{ nmol} \cdot \text{L}^{-1}$ 和 $(5.10 \pm 4.97) \text{ nmol} \cdot \text{L}^{-1}$, 底层海水中甲烷浓度略高于表层, 表明底层水体或沉积物中存在甲烷的源. 其中表层海水甲烷的高值出现在长江口附近的 T05 (29.67 $\text{nmol} \cdot \text{L}^{-1}$) 和 P01 (10.14 $\text{nmol} \cdot \text{L}^{-1}$) 站, 由于在春季长江下游表层水中的溶解甲烷浓度变化范围是 112 ~ 190 $\text{nmol} \cdot \text{L}^{-1}$, 比在开阔海洋中溶解甲烷的浓度高出近 2 个数量级^[21], 因此长江口附近表层水中高浓度甲烷是受富甲烷长江冲淡水的影响. 而在东海陆架的东南部, 表层水中甲烷的浓度非常低 (2.0 ~ 2.5 $\text{nmol} \cdot \text{L}^{-1}$), 这是受到贫甲烷黑潮水的影响.

底层海水中溶解甲烷浓度的高值出现在 F03 (30.63 $\text{nmol} \cdot \text{L}^{-1}$)、F04 (19.58 $\text{nmol} \cdot \text{L}^{-1}$)、P01 (11.62 $\text{nmol} \cdot \text{L}^{-1}$)、T05 (9.65 $\text{nmol} \cdot \text{L}^{-1}$) 以及 P02 (9.43 $\text{nmol} \cdot \text{L}^{-1}$) 站位, 这些站位主要位于舟山群岛、杭州湾外和长江口附近, 沉积物释放可能是造成这些站位甲烷浓度较高的主要原因. 从图 2 中还可以看出, 春季东、黄海海域 CH_4 浓度的表、底层分布特征大致相同: 即由近岸向远海逐渐降低. 其中表层甲烷浓度和表层盐度呈现了很好的负相关 (如图 3 所示, $y = 1.8482x^2 - 122.47x + 2031.6$, $R^2 = 0.7555$), Zhang 等^[22] 在长江口及其邻近海域观测到类似现象, 以上特点表明长江口及东海溶解 CH_4 的分布受长江等陆地径流输入的显著影响.

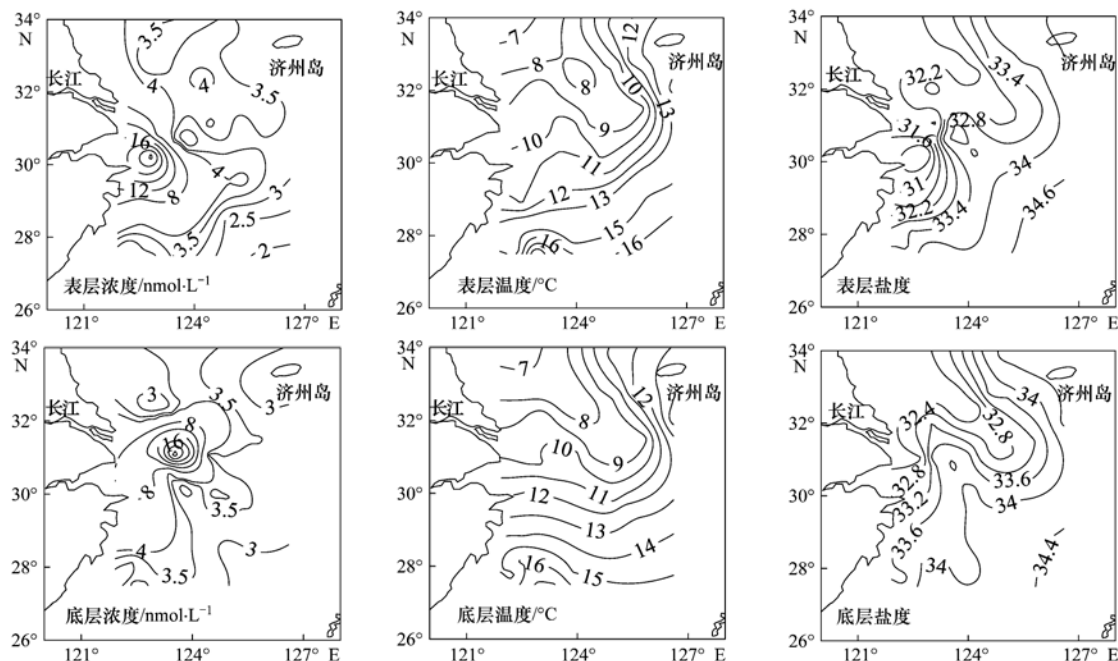


图 2 东、黄海海域表、底层海水中 CH_4 、温度、盐度的水平分布

Fig. 2 Horizontal distributions of methane, temperature and salinity in surface and bottom waters of the Yellow Sea and the East China Sea

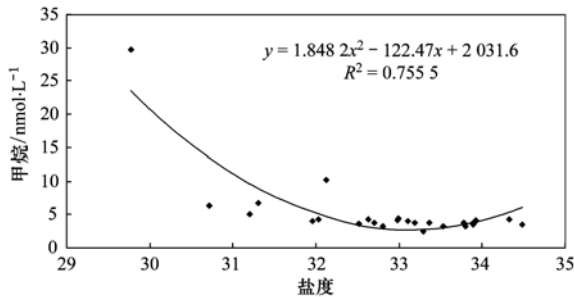


图3 春季航次中长江口外 F、D、P 和 T 断面的表层海水中甲烷浓度和盐度关系

Fig. 3 Plots of methane concentrations versus salinity for surface seawaters of F,D,P and T transects beyond the Yangtze River estuary

2.2 春季东、黄海溶解甲烷的垂直分布

东海由于受到大陆沿岸水和外海高温、高盐水(黑潮)的影响,其水文状况和化学特征复杂,简而言之,主要的水文特征是不同的水团的混合,包括长江冲淡水,台湾暖流,陆架混合水,黑潮水和对马暖流等^[7,8]. 本研究调查的采样站位最深只有 106 m,研究的区域主要集中在沿岸及陆架中部. 本研究按照自北向南的顺序依次讨论 A、D、F、P、T 和 E 断面.

穿越黄海经济州岛至东海北部的 A 断面溶解甲烷,温度和盐度的垂直分布如图 4 所示,从中可以看到 A 断面的温度和盐度在垂直方向上都混合得比较均匀,没有明显的跃层. 由于 A 断面离岸较远,受陆源输入的影响较小,所以溶解甲烷浓度比较低 ($2.33 \sim 4.93 \text{ nmol} \cdot \text{L}^{-1}$),尤其是在断面南部的 A10 站和 A11 站,次表层及底层甲烷浓度均低于 $3 \text{ nmol} \cdot \text{L}^{-1}$,这可能是受对马暖流的影响. 在该断面北部的 A3 站底层水出现甲烷的高值,并由底部向周围水体扩散,表明沉积物释放可能是此处甲烷的主要来源.

为了定量研究该海域沉积物释放甲烷的情况,在该断面的 A02 站进行了 12 h 的沉积物-水界面 CH_4 交换通量的培养实验,在培养过程中水体中甲烷浓度随时间增加而线性增加 ($y = 0.301x + 3.668$, $R^2 = 0.810$). 根据甲烷浓度的增加速率和培养室中水体的高度,计算了 A02 站沉积物释放甲烷的潜在速率为 $1.28 \mu\text{mol} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{d})^{-1}$,表明沉积物释放是 A 断面底层甲烷高值的可能来源.

由长江口至济州岛的 D 断面的溶解甲烷、温度和盐度的垂直分布如图 5 所示. D 断面各站位温盐的垂直分布也较均匀,但自长江口向外温度和盐度先逐渐降低,在 D05 站附近出现了温度和盐度的最

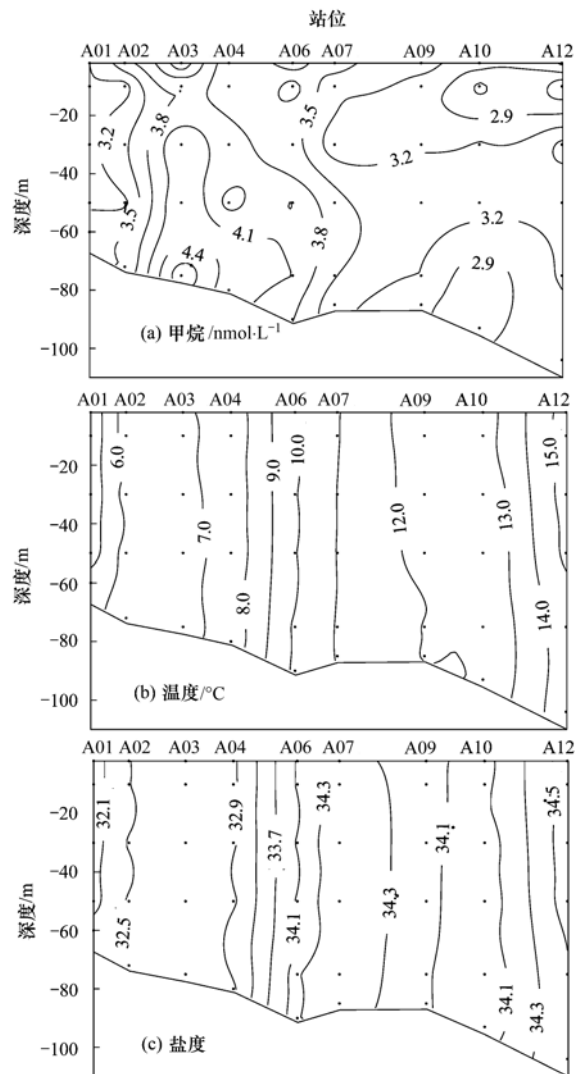


图4 A 断面甲烷、温度和盐度分布

Fig. 4 Vertical distributions of methane, temperature and salinity along the section A

低值,然后温度和盐度向济州岛方向逐渐增加. D 断面溶解甲烷的浓度变化范围是 $3.09 \sim 4.46 \text{ nmol} \cdot \text{L}^{-1}$,自长江口向外呈逐渐降低趋势. 在 D 断面中部的 D04 和 D05 站的 30 m 水深处出现甲烷浓度的高值,并由底部向上层及周围水体扩散,表明底层水体可能存在甲烷的现场产生.

自长江口至东海陆架的 F 断面溶解甲烷、温度和盐度的垂直分布如图 6 所示. 该断面的温盐在垂直方向上变化不大,温度和盐度从 F01 站开始向外海呈现先逐渐升高,在 F03 和 F04 站达到最高,后又逐渐降低,表明该断面中部可能受到北上的台湾暖流的影响. F 断面溶解甲烷的浓度变化范围是 $3.22 \sim 30.63 \text{ nmol} \cdot \text{L}^{-1}$. 在该断面 F03 站的底层出现了甲烷浓度的高值,并且由底层向上层水体扩散,表明此处沉积物可能释放大量甲烷,甲烷可以通过细菌

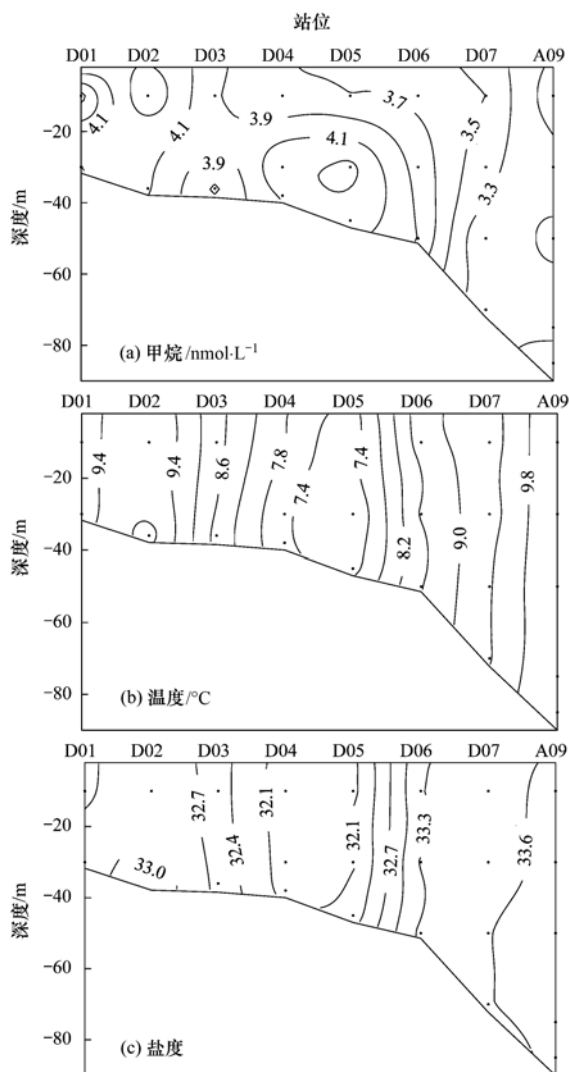


图5 D断面甲烷、温度和盐度分布

Fig. 5 Vertical distributions of methane, temperature and salinity along the section D

作用在富含有机物的缺氧沉积物中产生,并通过沉积物-水界面交换扩散至底层海水中。在该断面 F05 和 F06 站的(20~50)m 层出现了甲烷浓度低值。

P 断面的溶解甲烷、温度和盐度的垂直分布如图 7 所示。该断面的温盐垂直分布相对较均匀,呈现出自长江口向外海温度和盐度均逐渐增加的趋势。但是在断面中部的 P04~P06 站位之间区域温度和盐度变化不大,较为均匀。P 断面溶解甲烷的浓度变化范围是 $3.00 \sim 11.62 \text{ nmol} \cdot \text{L}^{-1}$,受长江冲淡水的影响呈现出从近岸向外海逐渐降低的趋势。在该断面的 P01 站进行的 12 h 沉积物-水界面 CH_4 交换通量的培养实验表明,在 P01 站沉积物培养过程中,水体中甲烷浓度随时间变化而线性增加($y = 0.725x + 6.176, R^2 = 0.704$),计算出 P01 沉积物-水

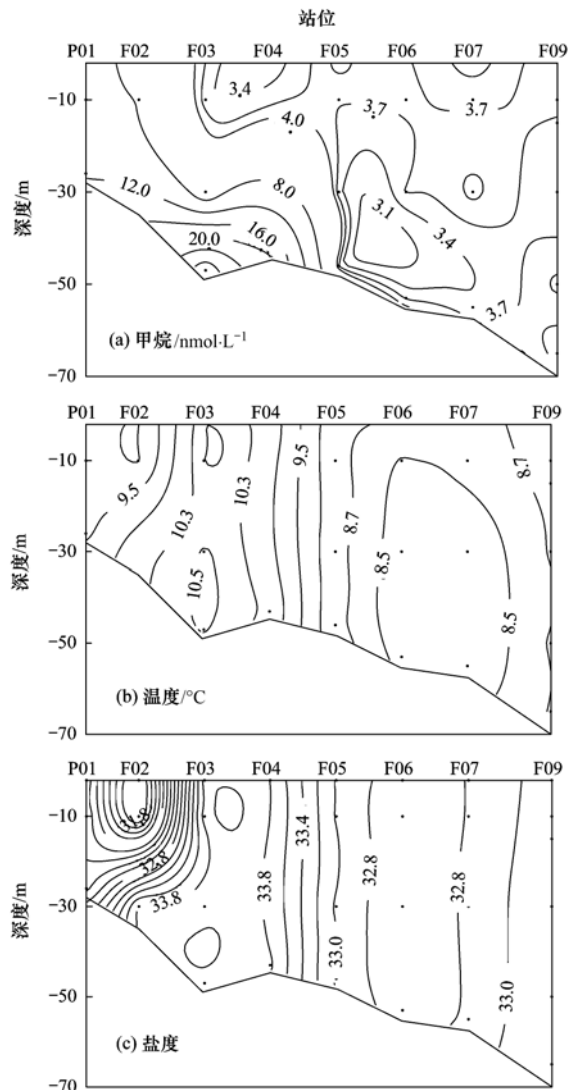


图6 F断面甲烷、温度和盐度分布

Fig. 6 Vertical distributions of methane, temperature and salinity along the section F

界面 CH_4 交换通量为 $2.86 \mu\text{mol} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{d})^{-1}$, 约是 A2 站的 2 倍,这与 P01 站底层水体中 CH_4 的较高浓度是一致的。

自长江口至浙闽沿岸的 T 断面的溶解甲烷、温度和盐度的垂直分布如图 8 所示。T 断面溶解甲烷浓度变化范围为 $2.50 \sim 36.51 \text{ nmol} \cdot \text{L}^{-1}$ 。T 断面温度和盐度自北向南逐渐增加,南部两站位温度和盐度均较高,甲烷浓度较低($2.8 \sim 3.6 \text{ nmol} \cdot \text{L}^{-1}$),主要受到北上的台湾暖流的影响。该断面北侧站位表层盐度较低,表明受冲淡水的影响较大,尤其是 T05 站上层水体中出现了甲烷浓度高值($28 \text{ nmol} \cdot \text{L}^{-1}$),且上层水体明显高于底层。

位于东海南部陆架 E 断面的溶解甲烷、温度和盐度的垂直分布如图 9 所示。E 断面温盐分布的特

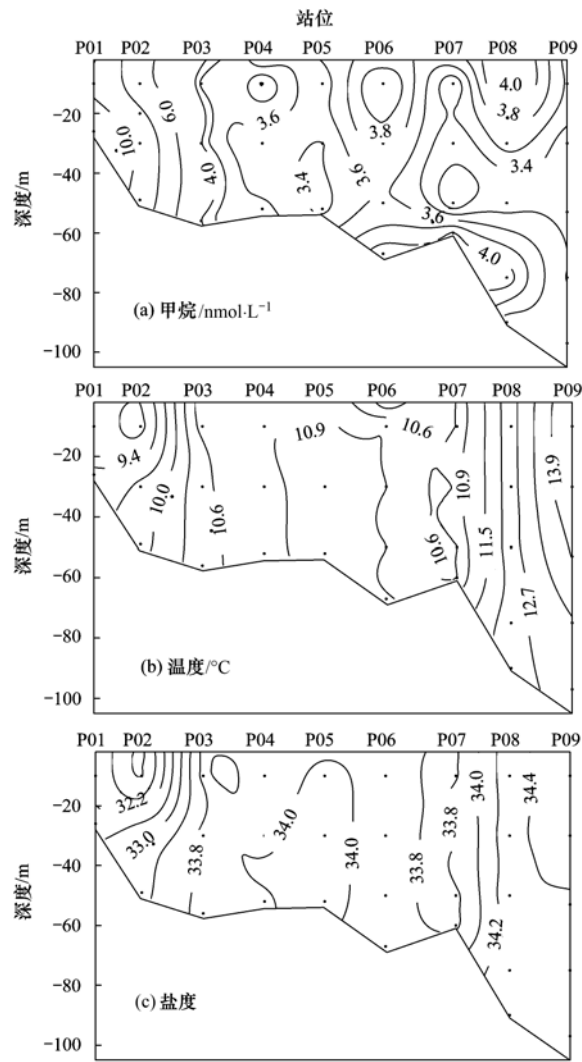


图7 P断面甲烷、温度和盐度分布

Fig. 7 Vertical distributions of methane, temperature and salinity along the section P

点是:E02 和 E03 站之间的区域温盐垂直分布十分均匀且存在明显的温度和盐度梯度,而在该区域两侧温度和盐度都变化不大,表明 E 断面可能受到 2 个水团的影响,内侧是低温低盐的沿岸流,外侧是高温高盐的外海水. E 断面溶解甲烷浓度变化范围是 $2.19 \sim 3.70 \text{ nmol} \cdot \text{L}^{-1}$,受这两个水团的影响,E 断面西侧站点溶解甲烷浓度较高,而东侧站点溶解甲烷浓度较低.

2.3 东、黄海海域 CH_4 的饱和度和海-气交换通量
春季东、黄海海域表层海水中甲烷的饱和度范围是 $92.9\% \sim 1038.2\%$, 平均值是 $(158.3 \pm 142.0)\%$,其中所测站中饱和度的最高值出现在 T05 站. 除了个别站位(A01、Q03、T10)外,其他站位的甲烷饱和度均大于 100% ,表明春季东、黄海是大气甲烷的一个净源. 表1总结了已发表的中国近

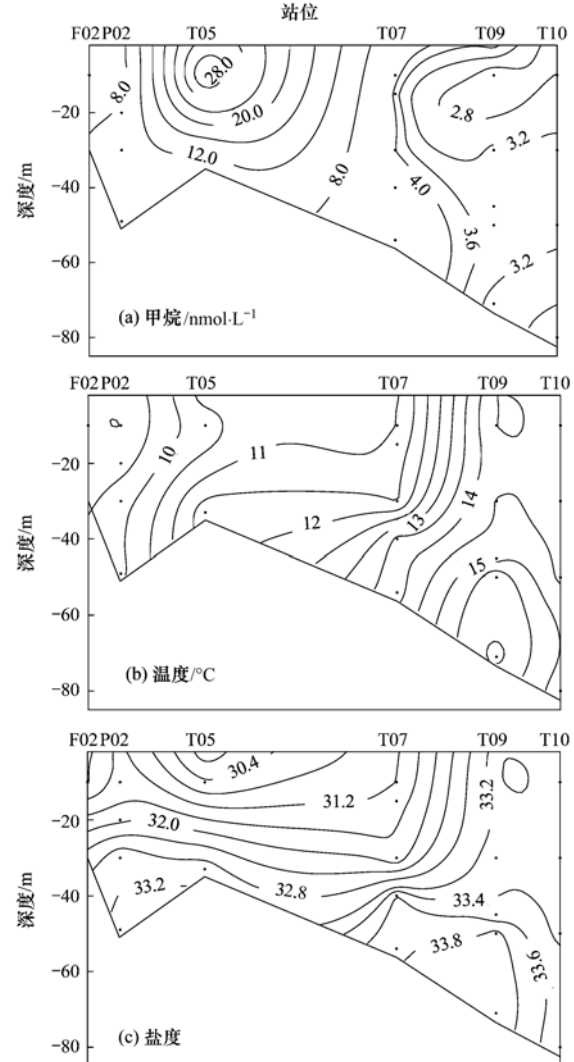


图8 T断面甲烷、温度和盐度分布

Fig. 8 Vertical distributions of methane, temperature and salinity along the section T

海不同季节溶解 CH_4 浓度,从中可以看出,我国近海表层溶解 CH_4 浓度范围为 $2.5 \sim 50 \text{ nmol} \cdot \text{L}^{-1}$,饱和度范围为 $121\% \sim 487\%$,本次春季调查的东、黄海甲烷的表层浓度和饱和度在这个范围之内,但是本次调查的结果明显高于 2001 年春季的结果. 我国近海甲烷浓度有明显的季节变化,夏、秋季浓度较高,春、冬季浓度较低.

该航次调查期间风速变化范围较大($0.2 \sim 13.5 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$),利用现场风速和 LM86 公式计算出所有站位的 CH_4 的瞬时海-气交换通量范围为 $-0.88 \sim 32.47 \text{ } \mu\text{mol} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{d})^{-1}$,平均值为 $(2.85 \pm 5.11) \text{ } \mu\text{mol} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{d})^{-1}$,利用 W92 公式计算出所有站位 CH_4 的海-气交换通量范围为 $-1.67 \sim 63.82 \text{ } \mu\text{mol} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{d})^{-1}$,平均值为 (5.18 ± 9.99)

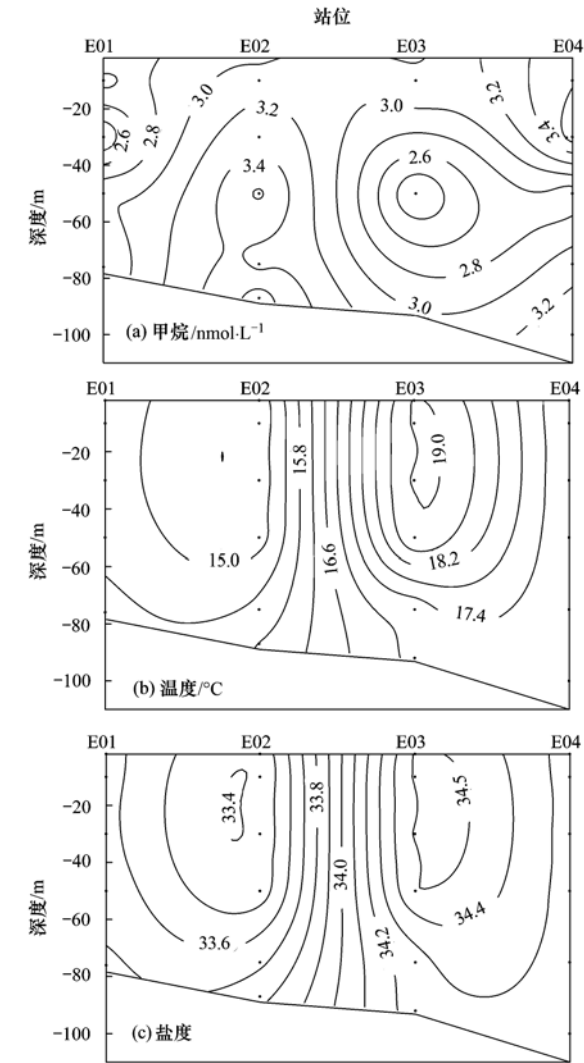


图9 E断面甲烷、温度和盐度分布

Fig. 9 Vertical distributions of methane, temperature and salinity along the section E

$\mu\text{mol}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{d})^{-1}$,约是利用 LM86 公式计算结果的 1.8 倍.

世界部分海域表层海水中溶解 CH_4 的海-气交换通量列于表 2 中. 从中可看出,不同海区不同季节溶解甲烷的海-气交换通量的变化范围是 $0.0095\sim470\mu\text{mol}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{d})^{-1}$,差异很大,这与不同研究者采样时的时空差异、风速和上升流等物理过程、计算通量时采用的不同模型等因素均有关. 但整体上, CH_4 的海-气交换通量为河口、海湾区>陆架区>大洋区. 根据本航次的站位分布,分别估算出黄海的海气交换通量为 $(1.69\pm1.94)\mu\text{mol}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{d})^{-1}$ (LM86 公式) 和 $(3.06\pm3.74)\mu\text{mol}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{d})^{-1}$ (W92 公式),东海的海气交换通量为 $(3.14\pm5.63)\mu\text{mol}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{d})^{-1}$ (LM86 公式) 和 $(5.73\pm11.02)\mu\text{mol}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{d})^{-1}$ (W92 公式). 本航次观测到的春季东海和黄海的海-气交换通量均明显高于 2001 年春季调查的结果^[21],约是 2001 年春季东、黄海海-气交换通量的 2 倍. 从该表中还可以看出,东海 CH_4 的海-气交换通量有明显的季节变化,夏季约是春季的 13 倍. 根据东、黄海的平均甲烷海气交换通量 $[15.29\sim25.98\mu\text{mol}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{d})^{-1}$ 和 $5.25\sim9.90\mu\text{mol}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{d})^{-1}]$ 及东、黄海的面积($79\times10^4\text{ km}^2$ 和 $38\times10^4\text{ km}^2$),初步估算出东、黄海年释放甲烷量分别为 $7.05\times10^{-2}\sim12.0\times10^{-2}\text{ Tg}\cdot\text{a}^{-1}$ 和 $1.17\times10^{-2}\sim2.20\times10^{-2}\text{ Tg}\cdot\text{a}^{-1}$. 东、黄海面积分别占全球海洋的 0.22% 和 0.11%,根据东、黄海年释放甲烷量估算出东、黄海向大气释放的甲烷占全球海洋年释放甲烷总量($10.9\sim17.8\text{ Tg}$)^[36] 的 0.65%~0.67% 和 0.11%~0.12%.

表 1 中国近海溶解 CH_4 的浓度和饱和度

Table 1 Concentrations and saturation degrees of dissolved CH_4 in the Chinese sea waters

海域	站位	时间	表层浓度/ $\text{nmol}\cdot\text{L}^{-1}$		饱和度/%		文献
			范围	平均值	范围	平均值	
东海北部	21	2003 年 9 月	2.75~49.0	9.49 ± 11.00	148~2490	487 ± 555	[26]
东海	29	2001 年 4 月	2.52~5.48	3.24 ± 0.59	—	141 ± 23.6	[21]
黄海	14	2001 年 3~4 月	3.14~3.79	3.43 ± 0.23	—	121 ± 5.4	[21]
南黄海	30	2009 年 2 月	3.74~4.79	4.14 ± 0.32	124~142	142 ± 14	[31]
北黄海	59	2006 年 8 月	5.12~39.73	12.02 ± 5.71	233~1680	515.2 ± 231.5	[32]
南海北部	22	2008 年 8~9 月	2.80~22.0	7.9 ± 4.7	—	426 ± 257	[33]
渤海	28	2008 年 8 月	3.37~11.46	5.87 ± 2.02	164~560	288 ± 99	[34]
东、黄海	45	2011 年 3~4 月	2.39~29.67	4.47 ± 4.09	92.9~1038.2	158.3 ± 142.0	本文

3 结论

(1)春季东、黄海表、底层溶解 CH_4 浓度均处于世界近海溶解甲烷浓度范围之内,底层浓度略高

于表层. 表、底层溶解 CH_4 的分布特征为由近岸向外海浓度逐渐降低.

(2)春季东、黄海表、底层海水中溶解 CH_4 的分布明显受陆源输入(主要是长江径流)、沉积物释

表 2 文献报道的部分海域表层海水中 CH₄ 的海-气交换通量

Table 2 Air-sea CH₄ fluxes from surface waters of different sea areas

类型	海域	站位数	采样时间	通量 ¹⁾ /μmol·(m ² ·d) ⁻¹	文献
河口海湾区	珠江口	27	2006 年 9 月	(3 ~ 114.3) ^a ; (6.4 ~ 240.2) ^b	[3]
	长江口	10	2002 年 5 月	(21.1 ± 9.6) ^a ; (41.1 ± 18.7) ^b	[22]
	Pulicat 湖	52	2000 年 12 月	(54) ^a ; (280) ^b	[23]
	维哥湾	40	2003 年 4 月	(138) ^a ; (277) ^b	[24]
	Danube 河口	35	1995 年 7 ~ 8 月	(260) ^a ; (470) ^b	[25]
陆架区	东海	29	2001 年 4 月	(1.63 ± 1.67) ^a ; (2.77 ± 2.71) ^b	[21]
		35	2011 年 3 ~ 4 月	(3.14 ± 5.63) ^a ; (5.73 ± 11.02) ^b	本研究
		24	2003 年 9 月	(28.2 ± 55.3) ^a ; (47.7 ± 95.4) ^b	[6]
	黄海	14	2001 年 3 ~ 4 月	(0.81 ± 0.50) ^a ; (1.33 ± 0.76) ^b	[21]
		9	2011 年 3 ~ 4 月	(1.69 ± 1.94) ^a ; (3.06 ± 3.74) ^b	本研究
	南黄海	30	2009 年 2 月	(2.7 ± 2.8) ^a ; (6.4 ± 7.0) ^b	[31]
	北黄海	59	2006 年 8 月	(11.8 ± 10.2) ^a ; (21.1 ± 16.4) ^b	[32]
	North Sea	117	1992 年 9 月	(2.16 ± 1.99) ^a	[4]
	黑海西北部	80	1995 年 7 ~ 8 月	(32) ^a ; (53) ^b	[25]
	波罗的海	63	1992 年 2 月	(0.009 5 ~ 14.5) ^a	[4]
		23	1992 年 7 月	(0.101 ~ 1 200) ^a	[4]
	南爱琴海	30	1993 年 7 月	(1.90) ^a	[28]
	阿拉伯海	19	1995 年 7 ~ 8 月	(5.02 ± 4.59) ^a	[27]
大洋区	赤道大西洋	46	1993 年 1 ~ 3 月	(1.2) ^a ; (2.0) ^b	[29]
	热带大西洋	连续走航	2005 年 3 月, 2007 年 02 月	(0.6) ^a ; (1.0) ^b	[30]
	热带太平洋	6	2005 年 5 月 ~ 2006 年 6 月	2.30	[35]

1) a 表示使用 LM86 公式, b 表示使用 W92 公式, 未标注为使用其它公式

放和不同水团混合的影响。

(3) 春季东、黄海甲烷基本呈过饱和状态, 是大气中甲烷的净源。初步估算出东海和黄海年释放甲烷量分别为 $7.05 \times 10^{-2} \sim 12.0 \times 10^{-2} \text{ Tg} \cdot \text{a}^{-1}$ 和 $1.17 \times 10^{-2} \sim 2.20 \times 10^{-2} \text{ Tg} \cdot \text{a}^{-1}$ 。

致谢: 感谢中国海洋大学海洋化学理论与工程技术教育部重点实验室的同学们在采样中提供的帮助, 感谢中国海洋大学物理海洋教育部重点实验室江文胜教授提供温盐数据。

参考文献:

[1] Crutzen P J. Methane's sinks and sources[J]. Nature, 1991, **350**(6317): 380-381.

[2] IPCC. Climate Change 2007: the physical science basis[M]. New York: Cambridge University Press, 2007.

[3] Zhou H Y, Yin X J, Yang Q H, et al. Distribution, source and flux of methane in the western Pearl River Estuary and northern South China Sea[J]. Marine Chemistry, 2009, **117**(1-4): 21-31.

[4] Bange H W, Bartell U H, Rapsomanikis S, et al. Methane in the Baltic and North Seas and a reassessment of the marine emissions of methane[J]. Global Biogeochemical Cycles, 1994, **8**(4): 465-480.

[5] Bates T S, Kelly K C, Johnson J E, et al. A revaluation of the open ocean source of methane to the atmosphere[J]. Journal of Geophysical Research, 1996, **101**(D3): 6953-6961.

[6] 张桂玲. 中国近海部分海域溶解甲烷和氧化亚氮的生物地球

化学研究[D]. 青岛: 中国海洋大学, 2004.

[7] Su J L. Circulation dynamics of the China seas north of 18°N [A]. In: Robinson A R, Brink K (Eds.). The Sea, The Global Coastal Ocean: Regional Studies and Syntheses[M]. New York: John Wiley, 1998, 483-505.

[8] Lee H J, Jung K T, Foreman M G G, et al. A three-dimensional mixed finite-difference Galerkin function model for the oceanic circulation in the Yellow Sea and the East China Sea[J]. Continental Shelf Research, 2000, **20**(8): 863-895.

[9] Liu K K, Peng T H, Shaw P T, et al. Circulation and biogeochemical processes in the East China Sea and the vicinity of Taiwan: an overview and a brief synthesis [J]. Deep Sea Research, 2003, **50**(6-7): 1055-1064.

[10] Tsurushima N, Watanabe S, Tsunogai S. Methane in the East China Sea water[J]. Journal of Oceanography, 1996, **52**(2): 221-233.

[11] Rehder G, Suess E. Methane and pCO₂ in the Kuroshio and the South China Sea during maximum summer surface temperatures [J]. Marine Chemistry, 2001, **75**(1-2): 89-108.

[12] Tian R C, Hu F X, Martin J M. Summer nutrient fronts in the Changjiang (Yangtze River) estuary[J]. Estuarine Coastal Shelf Science, 1993, **37**(1): 27-41.

[13] Zhang J. Nutrient elements in large Chinese estuaries [J]. Continental Shelf Research, 1996, **16**(8): 1023-1045.

[14] Scranton M I, McShane K. Methane fluxes in the southern North Sea: the role of European rivers[J]. Continental Shelf Research, 1991, **11**(1): 37-52.

[15] De Angelis M A, Lilley M D. Methane in surface waters of

- Oregon estuaries and rivers[J]. *Limnology and Oceanography*, 1987, **32**(3): 716-722.
- [16] De Angelis M A, Scranton M I. Fate of methane in the Hudson River and Estuary[J]. *Global Biogeochemical Cycles*, 1993, **7**(3): 509-523.
- [17] 张桂玲, 张经. 海洋中溶存甲烷研究进展[J]. *地球科学进展*, 2001, **16**(6): 829-835.
- [18] Wiesenburg D A, Guinasso N L Jr. Equilibrium solubilities of methane, carbon monoxide and hydrogen in water and seawater [J]. *Journal of Chemical Engineering Data*, 1979, **24**(4): 356-360.
- [19] Liss P S, Merlivat L. Air-sea gas exchange rates: introduction and synthesis[A]. In: Buat-menard P (Ed.). *The Role of Air-Sea Exchange in Geochemical Cycling* [C]. New York: D. Reidel Publishing Company NATO ASI Series, 1986. 113-127.
- [20] Wanninkhof R. Relationship between wind speed and gas exchange over the ocean[J]. *Journal of Geophysical Research*, 1992, **97**(C5): 7373-7382.
- [21] Zhang G L, Zhang J, Kang Y B, *et al.* Distributions and fluxes of dissolved methane in the East China Sea and the Yellow Sea in spring[J]. *Journal of Geophysical Research*, 2004, **109**(C7): C07011.
- [22] Zhang G L, Zhang J, Liu S M, *et al.* Methane in the Changjiang (Yangtze River) Estuary and its adjacent marine area: riverine input, sediment release and atmospheric fluxes [J]. *Biogeochemistry*, 2008, **91**(1): 71-84.
- [23] Shalini A, Ramesh R, Purvaja R, *et al.* Spatial and temporal distribution of methane in an extensive shallow estuary, south India[J]. *Journal of Earth System Science*, 2006, **115**(4): 451-460.
- [24] Kitidisv, Tizzardl, Uherg, *et al.* The biogeochemical cycling of methane in Ria de Vigo, NW Spain: sediment processing and sea-air exchange[J]. *Journal of Marine Systems*, 2007, **66**(1-4): 258-271.
- [25] Amouroux D, Roberts G, Rapsomanikis S, *et al.* Biogenic Gas (CH_4 , N_2O , DMS) Emission to the Atmosphere from Near-shore and Shelf Waters of the North-western Black Sea[J]. *Estuarine, Coastal and Shelf Science*, 2002, **54**(3): 575-587.
- [26] Zhang G L, Zhang J, Ren J L, *et al.* Distributions and sea-to-air fluxes of methane and nitrous oxide in the North East China Sea in summer[J]. *Marine Chemistry*, 2008, **110**(1-2): 42-55.
- [27] Patra P K, Lal S, Venkataramani S, *et al.* Seasonal variability in distribution and fluxes of methane in the Arabian Sea [J]. *Geophysical Research*, 1998, **103**(C1): 1167-1176.
- [28] Bange H W, Rapsomanikis S, Andrae M O. The Aegean Sea as a source of atmospheric nitrous oxide and methane[J]. *Marine Chemistry*, 1996, **53**(1-2): 41-49.
- [29] Oudot C, Jean-Baptiste P, Fourre E, *et al.* Transatlantic equatorial distribution of nitrous oxide and methane[J]. *Deep-Sea Research*, 2002, **49**(7): 1175-1193.
- [30] Kock A, Gebhard T S, Bange H W. Methane emissions from the upwelling area off Mauritania (NW Africa) [J]. *Biogeosciences Discussions*, 2008, **5**(1): 297-315.
- [31] 李佩佩. 黄河口及黄、渤海溶存甲烷和氧化亚氮的分布与释放通量[D]. 青岛: 中国海洋大学, 2010. 55-58.
- [32] Yang J, Zhang G L, Zheng L X, *et al.* Seasonal variation of fluxes and distributions of dissolved methane in the North Yellow Sea[J]. *Continental Shelf Research*, 2010, **30**(2): 187-192.
- [33] 赵静. 长江和海南东部典型水体中溶存甲烷和氧化亚氮的分布与释放[D]. 青岛: 中国海洋大学, 2009.
- [34] 李佩佩, 张桂玲, 赵玉川, 等. 夏季渤海溶解甲烷的分布与通量研究[J]. *海洋科学进展*, 2010, **28**(4): 478-488.
- [35] Sansone F J, Popp B N, Gasc A, *et al.* Highly elevated methane in the Eastern Tropical North Pacific and associated isotopically enriched fluxes to the atmosphere [J]. *Geophysical Research Letters*, 2001, **28**(24): 4567-4570.
- [36] Cicerone R J, Oremland R S. Biogeochemical aspects of atmospheric methane[J]. *Global Biogeochemical Cycles*, 1988, **2**(4): 299-327.

CONTENTS

Observation of Size Distribution of Atmospheric OC/EC in Tangshan, China	GUO Yu-hong, XIN Jin-yuan, WANG Yue-si, <i>et al.</i> (2497)
Changing Characteristics of the Main Air Pollutants of the Dongling Mountain in Beijing	YU Yang-chun, HU Bo, WANG Yue-si (2505)
Characteristic Comparative Study of Particulate Matters in Beijing Before and During the Olympics	ZHANG Ju, OUYANG Zhi-yun, MIAO Hong, <i>et al.</i> (2512)
Characteristics and Impact Factors of O ₃ Concentrations in Mountain Background Region of East China	SU Bin-bin (2519)
Studies on the Size Distribution of Airborne Microbes at Home in Beijing	FANG Zhi-guo, SUN Ping, OUYANG Zhi-yun, <i>et al.</i> (2526)
Emission Factors of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons (PAHs) in Residential Coal Combustion and Its Influence Factors	HAI Ting-ting, CHEN Ying-jun, WANG Yan, <i>et al.</i> (2533)
Experimental Research on Alcohols, Aldehydes, Aromatic Hydrocarbons and Olefins Emissions from Alcohols Fuelled Vehicles	ZHANG Fan, WANG Jian-hai, WANG Xiao-cheng, <i>et al.</i> (2539)
Combination Process of Microwave Desorption-Catalytic Combustion for Toluene Treatment	CAO Xiao-qiang, ZHANG Hao, HUANG Xue-min (2546)
Removal of BTEX by a Biotrickling Filter and Analysis of Corresponding Bacterial Communities	LI Jian-jun, LIAO Dong-qi, XU Mei-ying, <i>et al.</i> (2552)
Source Profile of Volatile Carbonyl Compounds in Wastewater Treatment Plant of an Oil Refinery	ZHOU Bo-yu, LIU Wang, WANG Bo-guang, <i>et al.</i> (2560)
Distribution and Air-Sea Fluxes of Methane in the Yellow Sea and the East China Sea in the Spring	CAO Xing-peng, ZHANG Gui-ling, MA Xiao, <i>et al.</i> (2565)
Study on Seasonal Characteristics of Thermal Stratification in Lacustrine Zone of Lake Qiandao	DONG Chun-ying, YU Zuo-ming, WU Zhi-xu, <i>et al.</i> (2574)
Effects of Land Use Structure on Water Quality in Xin'anjiang River	CAO Fang-fang, LI Xue, WANG Dong, <i>et al.</i> (2582)
Canonical Correspondence Analysis Between Phytoplankton Community and Environmental Factors in Macrophtic Lakes of the Middle and Lower Reaches of Yangtze River	MENG Rui, HE Lian-sheng, GUO Long-gen, <i>et al.</i> (2588)
Microbial Bioavailability of Dissolved Nucleic Acids Across the Estuarine Salinity Gradient	YANG Qing-qing, LI Peng-hui, HUANG Qing-hui (2597)
Elementary Quantitative Study on Factors of Phytoplankton Bloom	ZHANG Zhuo, SONG Zhi-yao, HUANG Chang-chun, <i>et al.</i> (2603)
Spatiotemporal Succession of Algae Functional Groups and the Influence of Environment Change in a Deep-water Reservoir	LU Jin-suo, HU Ya-pan (2611)
Hyperspectral Remote Sensing of Total Suspended Matter Concentrations in Lake Taihu Based on Water Optical Classification	ZHOU Xiao-yu, SUN De-yong, LI Yun-mei, <i>et al.</i> (2618)
Application of Subwet Model in the Design of Constructed Wetland	LI Hui-feng, HUANG Jin-hui, LIN Chao (2628)
Allelopathic Effect of <i>Nelumbo nucifera</i> Stem and Leaf Tissue Extract on the Growth of <i>Microcystis aeruginosa</i> and <i>Scenedesmus quadricauda</i>	HE Lian-sheng, MENG Fan-li, DIAO Xiao-jun, <i>et al.</i> (2637)
Influence of <i>Vallisneria spiralis</i> on the Physicochemical Properties of Black-odor Sediment in Urban Sluggish River	XU Kuan, LIU Bo, WANG Guo-xiang, <i>et al.</i> (2642)
Removal of Cr(VI) by Iron Filings with Microorganisms to Recover Iron Reactivity	TANG Jie, WANG Zhuo-xing, XU Xin-hua (2650)
Degradation of Phenol with a Fe/Cu-Catalytic Heterogeneous-Fenton Process	YANG Yue-zhu, LI Yu-ping, YANG Dao-wu, <i>et al.</i> (2658)
Effect of Different Forms of Inorganic Nitrogen on the Photodegradation of Antipyrine in Water	ZHAO Qian, CHEN Chao, FENG Li, <i>et al.</i> (2665)
Degradation Mechanisms of Dimethyl Phthalate in the UV-H ₂ O ₂ System	LIU Qing, CHEN Cheng, CHEN Hong-zhe, <i>et al.</i> (2670)
Adsorption of Cd ²⁺ Ions in Aqueous by Diamine-Modified Ordered Mesoporous SBA-15 Particles	ZHANG Meng, YANG Ya-ti, QIN Rui, <i>et al.</i> (2677)
Surface Organic Modification of Acid Vermiculite and Its Adsorption of Hydrophobic Micro Pollutants in Aqueous Solutions	JIANG Zheng-ming, YU Xu-biao, HU Yun, <i>et al.</i> (2686)
Preparation of Porous Ceramics Based on Waste Ceramics and Its Ni ²⁺ Adsorption Characteristics	ZHANG Yong-li, WANG Cheng-zhi, SHI Ce, <i>et al.</i> (2694)
Perchlorate Removal from Underground Water by Anaerobic Biological Reduction with Bark	WANG Rui, LIU Fei, CHEN Nan, <i>et al.</i> (2704)
Experimental Study on the Remediation of Chromium Contaminated Groundwater with PRB Media	ZHU Wen-hui, DONG Liang-fei, WANG Xing-run, <i>et al.</i> (2711)
Removal of Calcium and High-strength Ammonia Nitrogen from the Wastewater of Rare-earth Elements Hydrometallurgical Process by Chemical Precipitation	WANG Hao, CHENG Guan-wen, SONG Xiao-wei, <i>et al.</i> (2718)
Leaching Kinetics of Josephinite Tailings with Sulfuric Acid	CHEN An-an, ZHOU Shao-qi, HUANG Peng-fei (2729)
Effects of HRT on Fate of Typical Polycyclic Musk by A ² O Process	LIU Peng-cheng, HUANG Man-hong, CHEN Dong-hui, <i>et al.</i> (2735)
Kinetic Simulation of Enhanced Biological Phosphorus Removal with Fermentation Broth as Carbon Source	ZHANG Chao, CHEN Yin-guang (2741)
Effluent Carbon Source Improvement and Sludge Reduction by Hydrolysis Reactor with Enhanced Sludge Utilization	XIONG Ya, WANG Qiang, SONG Ying-hao, <i>et al.</i> (2748)
Optimization of Extracellular Polymeric Substance Extraction Method and Its Role in the Dewaterability of Sludge	ZHOU Jun, ZHOU Li-xiang, WONG Woo-chung (2752)
Effectiveness of Arsenite Adsorption by Ferric and Alum Water Treatment Residuals with Different Grain Sizes	LIN Lu, XU Jia-rui, WU Hao, <i>et al.</i> (2758)
Regional Differences and Development Tendency of Livestock Manure Pollution in China	QIU Huan-guang, LIAO Shao-pan, JING Yue, <i>et al.</i> (2766)
Quantitative Partitioning of Soil Selenium in the Selenium-Rich Area of Northern Zhejiang Plain	XU Ming-xing, PAN Wei-feng, CENG Jing, <i>et al.</i> (2775)
Effects of Land Use on Manganese Distribution and Fractions in Wetland Soil of Sanjiang Plain, Northeast China	ZHANG Zhong-sheng, LU Xian-guo, SONG Xiao-lin (2782)
Research on Vertical Distribution Pattern and Reserve of Organic Carbon in Paddy Field Soil of Qianguo, Jilin	TANG Jie, ZHANG Wen-hui, LI Zhao-yang, <i>et al.</i> (2788)
Soil Organic Carbon Sequestration Rate and Its Influencing Factors in Farmland of Guanzhong Plain; A Case Study in Wugong County, Shanxi Province	ZHANG Xiao-wei, XU Ming-xiang (2793)
Effects of Biological Regulated Measures on Active Organic Carbon and Erosion-Resistance in the Three Gorges Reservoir Region Soil	HUANG Ru, HUANG Lin, HE Bing-hui, <i>et al.</i> (2800)
Quantifying Soil Autotrophic Microbes-Assimilated Carbon Input into Soil Organic Carbon Pools Following Continuous ¹⁴ C Labeling	SHI Ran, CHEN Xiao-juan, WU Xiao-hong, <i>et al.</i> (2809)
Analysis of Soil Respiration and Influence Factors in Wheat Farmland Under Conservation Tillage in Southwest Hilly Region	ZHANG Sai, ZHANG Xiao-yu, WANG Long-chang, <i>et al.</i> (2815)
Distribution Characteristics and Risk Evaluation of Organochlorine Pesticides in Soil from Relocation Areas of the Danjiangkou Reservoir	LI Zi-cheng, QIN Yan-wen, ZHENG Bing-hui, <i>et al.</i> (2821)
Risk Assessment and Countermeasure of BTEX in Pesticide Factory	PANG Bo, WANG Tie-yu, DU Li-yu, <i>et al.</i> (2829)
Accumulation of S, Fe and Cd in Rhizosphere of Rice and Their Uptake in Rice with Different Water Managements	ZHANG Xue-xia, ZHANG Xiao-xia, ZHENG Yu-ji, <i>et al.</i> (2837)
Effects of Nitrate on Organic Removal and Microbial Community Structure in the Sediments	LIU Jin, DENG Dai-yong, SUN Guo-ping, <i>et al.</i> (2847)
Zero-Valent Iron-Enhanced Azoreduction by the <i>Shewanella decolorationis</i> S12	ZHOU Qing, CHEN Xing-juan, GUO Jun, <i>et al.</i> (2855)
Isolation, Identification of Two Aerobic Denitrifiers and Bioaugmentation for Enhancing Denitrification of Biofilm Under Oligotrophic Conditions	QUAN Xiang-chun, CEN Yan, QIAN Yin (2862)
Rapid Enrichment and Cultivation of Denitrifying Phosphate-Removal Bacteria and Its Identification by Fluorescence <i>in situ</i> Hybridization Technology	LIU Li, TANG Bing, HUANG Shao-song, <i>et al.</i> (2869)
Identification of a Denitrifying Polyphosphate-accumulating Organism (DPAO) and Study on Its Denitrifying Functional Genes	ZHANG Qian, WANG Hong-yu, SANG Wen-jiao, <i>et al.</i> (2876)
Isolation and Characterization of a Highly Efficient BBP-degrading Bacterium	CHEN Hu-xing, YANG Xue, ZHANG Kai, <i>et al.</i> (2882)
Degradation of Nicosulfuron by Combination Effects of Microorganisms and Chemical Hydrolysis	ZHANG Xiao-lin, LI Yong-mei, YUAN Zhi-wen (2889)
Isolation, Screening and Identification of Prometryne-Degrading Bacteria and Their Degrading Characteristics	ZHOU Ji-hai, SUN Xiang-wu, HU Feng, <i>et al.</i> (2894)
Preparation of PVA-SA-PHB-AC Composite Carrier and <i>m</i> -Cresol Biodegradation by Immobilized <i>Lysinibacillus cresolivorans</i>	LI Ting, REN Yuan, WEI Chao-hai (2899)
Extraction of Surface Active Substance and Analysis of Demulsifying Characteristics for the Demulsifying Strain <i>Alcaligenes</i> sp. S-XJ-1	HUANG Xiang-feng, ZHANG Shu-cong, PENG Kai-ming, <i>et al.</i> (2906)
Diversity of Culturable Filamentous Bacteria in the Activated Sludge from A ² O Wastewater Treatment Process	GAO Sha, JIN De-cai, ZHAO Zhi-rui, <i>et al.</i> (2912)
Composition and Transformation of Leachates During Municipal Solid Waste Composting	LI Dan, HE Xiao-song, XI Bei-dou, <i>et al.</i> (2918)

《环境科学》第6届编辑委员会

主 编: 欧阳自远

副主编: 赵景柱 郝吉明 田 刚

编 委: (按姓氏笔画排序)

万国江 王华聪 王凯军 王绪绪 田 刚 田 静 史培军
朱永官 刘志培 汤鸿霄 陈吉宁 孟 伟 周宗灿 林金明
欧阳自远 赵景柱 姜 林 郝郑平 郝吉明 聂永丰 黄 霞
黄 耀 鲍 强 潘 纲 潘 涛 魏复盛

环 境 科 学

(HUANJING KEXUE)

(月刊 1976年8月创刊)

2013年7月15日 34卷 第7期

ENVIRONMENTAL SCIENCE

(Monthly Started in 1976)

Vol. 34 No. 7 Jul. 15, 2013

主 管	中国科学院	Superintended	by	Chinese Academy of Sciences
主 办	中国科学院生态环境研究中心	Sponsored	by	Research Center for Eco-Environmental Sciences, Chinese Academy of Sciences
协 办	(以参加先后为序) 北京市环境保护科学研究院 清华大学环境学院	Co-Sponsored	by	Beijing Municipal Research Institute of Environmental Protection School of Environment, Tsinghua University
主 编	欧阳自远	Editor-in -Chief		OUYANG Zi-yuan
编 辑	《环境科学》编辑委员会 北京市2871信箱(海淀区双清路 18号, 邮政编码:100085) 电话:010-62941102, 010-62849343 传真:010-62849343 E-mail: hjkx@ rcees. ac. cn http://www. hjkx. ac. cn	Edited	by	The Editorial Board of Environmental Science (HUANJING KEXUE) P. O. Box 2871, Beijing 100085, China Tel:010-62941102, 010-62849343; Fax:010-62849343 E-mail: hjkx@ rcees. ac. cn http://www. hjkx. ac. cn
出 版	科 学 出 版 社 北京东黄城根北街16号 邮政编码:100717	Published	by	Science Press 16 Donghuangchenggen North Street, Beijing 100717, China
印 刷 装 订	北京北林印刷厂	Printed	by	Beijing Bei Lin Printing House
发 行	科 学 出 版 社 电话:010-64017032 E-mail: journal@ mail. sciencep. com	Distributed	by	Science Press Tel:010-64017032 E-mail: journal@ mail. sciencep. com
订 购 处	全国各地邮电局	Domestic		All Local Post Offices in China
国外总发行	中国国际图书贸易总公司 (北京399信箱)	Foreign		China International Book Trading Corporation (Guoji Shudian), P. O. Box 399, Beijing 100044, China

中国标准刊号: ISSN 0250-3301
CN 11-1895/X

国内邮发代号: 2-821

国内定价: 90.00元

国外发行代号: M 205

国内外公开发行