

北黄海溶解氧化亚氮的分布与通量的季节变化

杨晶, 张桂玲*, 郑立晓, 张峰

(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: 根据2005年3月、2006年4月和8月、2007年4月和10月对北黄海进行的大面调查, 分析研究了不同季节表层海水中溶解氧化亚氮(N_2O)的水平分布及海-气交换通量. 结果表明, 北黄海海水中溶解 N_2O 浓度的季节变化不大(约为 $12 \text{ nmol} \cdot \text{L}^{-1}$), 但其饱和度呈现明显的季节变化, 夏、秋季远高于春季, 并且春季3个航次表层海水中溶解的 N_2O 随水温的升高由不饱和逐渐转变为过饱和, 相关性分析显示, 温度是影响溶解 N_2O 饱和度的主要因素. 利用Liss和Merlivat公式(LM86)以及Wanninkhof公式(W92)分别估算了北黄海春、夏、秋3个季节 N_2O 的海-气交换通量, 其平均值分别为 (0.6 ± 1.7) 、 (5.8 ± 8.4) 、 $(7.9 \pm 8.2) \mu\text{mol} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{d})^{-1}$ 和 (1.1 ± 2.7) 、 (10.2 ± 13.6) 、 $(13.8 \pm 14.3) \mu\text{mol} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{d})^{-1}$, 呈现明显的季节性变化, 夏、秋两季高于春季. 根据北黄海3个季节的平均 N_2O 海-气交换通量和北黄海的面积, 初步估算出北黄海 N_2O 的年释放量为 $(5.3 \times 10^{-3} \sim 9.2 \times 10^{-3}) \text{ Tg} \cdot \text{a}^{-1}$, 表明北黄海海域是大气 N_2O 的净源.

关键词: 北黄海; 氧化亚氮; 分布; 海-气交换通量

中图分类号: X145 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2009)03-0656-07

Seasonal Variations of Fluxes and Distributions of Dissolved N_2O in the North Yellow Sea

YANG Jing, ZHANG Gui-ling, ZHENG Li-xiao, ZHANG Feng

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

Abstract: The concentrations and air-sea fluxes of dissolved N_2O were investigated in the North Yellow Sea during March 2005, April and August 2006, April and October 2007. Seasonal variations of dissolved N_2O concentrations (about $12 \text{ nmol} \cdot \text{L}^{-1}$) in the North Yellow Sea were not obvious. The saturations of dissolved N_2O in the North Yellow Sea showed obvious seasonal variations with higher values occurring in summer and autumn and lower in spring, and the dissolved N_2O of the surface water was from undersaturated to oversaturated with the water temperature gradually increasing during three cruises in Spring. The correlation analysis shows that temperature was the main factor to influence N_2O saturations. The estimated average N_2O fluxes using the Liss and Merlivat (LM86) and Wanninkhof formula (W92) were (0.6 ± 1.7) , (5.8 ± 8.4) , $(7.9 \pm 8.2) \mu\text{mol} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{d})^{-1}$ and (1.1 ± 2.7) , (10.2 ± 13.6) , $(13.8 \pm 14.3) \mu\text{mol} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{d})^{-1}$, respectively, for spring, summer and autumn. Air-sea fluxes of dissolved N_2O showed obvious seasonal variations, with the N_2O fluxes of summer and autumn higher than those of spring. Based on the average annual N_2O flux and the area of the North Yellow Sea, the annual N_2O emission from the studied area was estimated to be $(5.3 \times 10^{-3} \sim 9.2 \times 10^{-3}) \text{ Tg} \cdot \text{a}^{-1}$. From the above results, it can be seen that the North Yellow Sea was a net source of atmospheric N_2O .

Key words: North Yellow Sea; nitrous oxide; distribution; air-sea flux

氧化亚氮(N_2O)是大气中的重要微量气体, 它既能通过形成 $\text{NO} \cdot$ 而导致平流层中臭氧损耗^[1], 又能产生温室效应^[2]. 目前大气中 N_2O 的浓度已达到 320×10^{-9} 左右, 并且以每年约0.3%的速率增长^[3]. 海洋是大气 N_2O 的重要自然源和汇, 其每年向大气净输送的 N_2O 占大气中年总输入量的20%^[4,5]. 由于 N_2O 在大气化学和全球变暖方面的重要作用, 国内外科学家对全球许多海域中 N_2O 的产生、分布和海-气交换通量进行了广泛研究^[5~16], 然而由于时间和空间覆盖的不完整性, 对 N_2O 海-气交换通量的估算还有很大的不确定性^[11]. 国内目前已报道的有关此方面的研究主要集中在胶州湾^[12]、东海^[13]、长

江口^[14]和南海^[15,16]等海域, 但对于作为渤海与南黄海物质与能量交换纽带的北黄海^[17]的研究却鲜有报道. 本研究首次对不同季节北黄海溶解 N_2O 的水平分布及其影响因素进行了探讨, 估算了北黄海向大气释放的 N_2O 通量以及其对全球 N_2O 海-气交换通量的区域性贡献, 丰富了我国在海洋溶解 N_2O 领域的研究, 以期为准准确估算中国近海对大气 N_2O 的

收稿日期: 2008-04-07; 修订日期: 2008-07-30

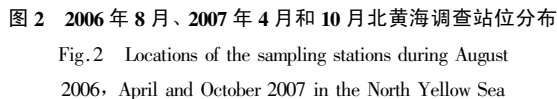
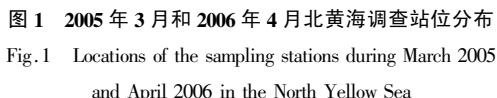
基金项目: 国家自然科学基金重大项目(40490265); 国家自然科学基金青年基金项目(40506025); 国家海洋局908专项项目(908-01-ST02)

作者简介: 杨晶(1983~), 女, 硕士研究生, 主要研究方向为海洋环境科学, E-mail: jjphenix@163.com

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

1 材料与方法

分别于 2005 年 3 月、2006 年 4 月和 8 月, 2007 年 4 月和 10 月随“东方红 2 号”调查船对北黄海进行了大面调查. 调查海区及站位如图 1 和 2 所示. 其中 2006 年 8 月和 2007 年 2 个航次包括了 7 个纵跨陆架的断面(A1 ~ A7)、2 个横过陆架的断面(B1 ~ B2)和 10 个斜穿陆架的断面(C1 ~ C10). 其中 C5 断面横贯北黄海冷水团中心^[18], C1001 位于鸭绿江口低盐区, C202 和 C104 位于夏季常出现的“低温带”上^[19]. 在调查中采集所有站位的表层海水, 对北黄海不同季节表层海水中溶解的 N_2O 水平分布及海-气交换通量进行了研究.



海水样品由 8L Niskin 采水器采集. 分装样品前要先用海水涤荡采样瓶 (117 mL 玻璃瓶), 然后将乳胶管插入瓶底注入海水, 待水样溢出约瓶体积的一半后, 缓慢抽出乳胶管, 并加入 1 mL 饱和 HgCl_2 溶液抑制微生物活动, 然后用带 PTFE 衬层的橡胶塞和铝帽将样品瓶密封, 尽量避免瓶中存有气泡. 样品采集后于木箱中低温避光保存, 待返回陆地实验室后尽快测定 (样品保存期约为 2 个月)^[20]. 现场海水温度、盐度等参数由 CTD 在海水采集时同步测定, 风速由安装于船头的风速自动分析仪现场测定.

所有样品均采用静态顶空-气相色谱法测定^[21]. 先将一根插有长针头的去掉推拉杆的塑料注射器插入样品瓶的橡胶塞,再用气密性注射器向瓶内注入 10.0 mL 的高纯 N_2 ($>99.999\%$),同时有 10.0 mL 水样通过塑料注射器自瓶内排出,形成瓶内的顶空.在室温下将样品瓶剧烈振荡 5 min,然后静置 2~4 h,使瓶内的气-液两相达到平衡,然后用气密性注射器抽取顶空气体注入气相色谱仪进行测定.

在开始测定样品前,用气密性注射器抽取相同体积的不同浓度的 N_2O 标准气体($\text{N}_2\text{O}/\text{N}_2$ 体积分数分别为 330×10^{-9} 、 380×10^{-9} 和 5.08×10^{-6} , 国家标准物质研究中心), 分别平行测定 6 次, 得出色谱峰面积与气体中 N_2O 浓度的关系曲线. 在测定同时记录大气压及室温, 则可以根据待测样品的色谱峰面积计算出样品顶空气中 N_2O 的浓度. 然后根据平衡温度、海水盐度和所测的顶空气中 N_2O 的浓度, 利用 Weiss 等^[22] 提供的溶解度数据计算出海水样品中溶解 N_2O 的浓度.

北黄海不同季节表层海水中溶解 N_2O 浓度如表 1 所示. 从中可以看出, 调查海域溶解 N_2O 浓度的季节变化不明显, 各航次表层海水中 N_2O 浓度均约

为 $12\text{ nmol}\cdot\text{L}^{-1}$.但是夏季海水中溶解 N_2O 浓度的变化范围明显大于其他两季节,这主要是受到夏季航次站位之间表层水温温差较大的影响.

根据 1998 年全球大气中 N_2O 的平均浓度 314×10^{-9} 和年增长率 $0.6\times 10^{-9}[23]$,可推算出 2005、2006 和 2007 年全球大气中 N_2O 平均浓度分别为 319.4×10^{-9} 、 320×10^{-9} 和 320.6×10^{-9} ,结合现场测定的表层海水温度、盐度数据,计算得到各个航次各站位表层海水中溶解 N_2O 的饱和度(见表 1).春季 3 个航次表层海水中溶解 N_2O 的饱和度相差较大,其中水温较低的 2005 年 3 月和 2006 年 4 月航次大部分站位表层海水中溶解 N_2O 处于不饱和状态,而 2007 年 4 月航次由于水温较高,仅有少部分站位处于不饱和状态,因此春季北黄海可能处于由大气 N_2O 汇向

源的转化阶段. 3 个季节中夏季的 N_2O 饱和度最高,主要是因为温度升高会降低 N_2O 在海水中的溶解度,从而使饱和度增加,另外夏季正好处于河流的汛期,河水径流量加大,从而增加了陆源淡水向海水中输送溶解 N_2O 的能力. 总体而言,夏季和秋季各站位 N_2O 饱和度要比春季高出 50% ~ 70%. 将所有航次 N_2O 饱和度对表层海水温度做相关性分析(如图 3),结果显示两者有良好的相关性($n = 211$, $r^2 = 0.446$),表明在北黄海温度是影响溶解 N_2O 饱和度的主要因素.一方面较高的温度会使 N_2O 在海水中的溶解度降低从而增加了其饱和度;另一方面海水中 N_2O 主要通过硝化和反硝化等生物过程产生^[24],较高的温度可以提高生物活性有利于 N_2O 的产生,使海水中溶解 N_2O 浓度增加从而提高了其饱和度.

表 1 北黄海表层海水中溶解氧化亚氮浓度和饱和度

Table 1 Concentrations and saturations of the dissolved N_2O in the surface seawaters of the North Yellow Sea

时间	站位数	平均水温/ $^{\circ}\text{C}$	表层 N_2O 浓度/ $\text{nmol}\cdot\text{L}^{-1}$		表层 N_2O 饱和度/%	
			浓度范围	平均值 $\pm$ S. D.	饱和度范围	平均值 $\pm$ S. D.
2005-03	3	3.85 ± 0.58	10.19 ~ 15.27	11.94 ± 2.88	75.9 ~ 115.1	89.6 ± 22.0
2006-04	12	6.00 ± 1.27	8.96 ~ 13.15	11.78 ± 1.84	70.3 ~ 125.5	96.4 ± 16.6
2007-04	77	9.30 ± 1.00	10.02 ~ 15.14	11.56 ± 0.82	92.2 ~ 135.3	106.1 ± 7.2
2006-08	30	22.14 ± 2.14	6.99 ~ 20.13	11.68 ± 3.34	92.6 ~ 265.0	162.9 ± 44.8
2007-10	80	18.38 ± 0.53	9.29 ~ 16.12	11.90 ± 1.62	114.5 ~ 204.9	148.6 ± 20.1

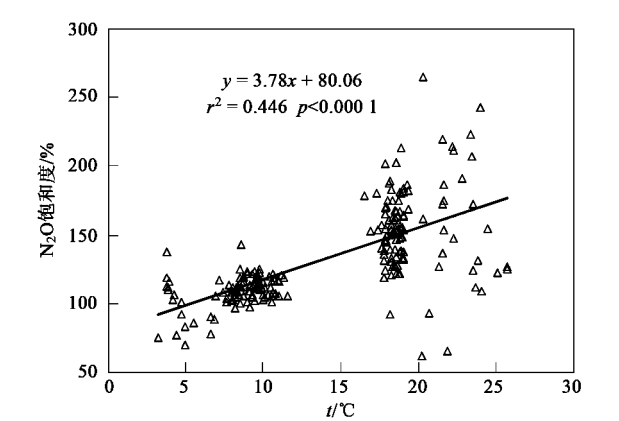


图 3 北黄海表层海水氧化亚氮饱和度与表层海水温度的关系

Fig.3 Correlation between dissolved N_2O saturation and temperature of the surface seawaters in the North Yellow Sea

总体来看, 3 个季节北黄海表层海水中的 N_2O 饱和度要高于 Bange 等^[25]根据多项研究得出的开阔大洋和近岸及边缘海表层水中 N_2O 的平均饱和度(分别为 101% 和 109%),因此北黄海水域表层海水中的 N_2O 将通过海-气交换释放到大气中,造成海水中溶解 N_2O 的净损失.

各季节北黄海表层海水中溶解 N_2O 浓度以及盐度和温度水平分布如图 4 所示.从中可以看出, 3 个季节北黄海表层海水中 N_2O 浓度水平分布特征基本相同:即从近岸向外海逐渐降低,但是每个季节又呈现出各自的特点.

春季在烟台威海近岸出现 N_2O 浓度低值区域,对比温盐分布图可以发现,此低值可能是该区域相对较高的温度和盐度所导致的.夏季在渤海海峡附近出现 N_2O 浓度最大值,文献报道该区域在夏季会出现“低温带”^[19],温度的降低会促使 N_2O 溶解度升高,故而产生了高值区.研究表明河流中通常含有较高浓度的 N_2O (约为 $8 \sim 527\text{ nmol}\cdot\text{L}^{-1}$)[^{20, 26 ~ 31}],所以由于受到鸭绿江冲淡水的影响,在鸭绿江口外出现了低温、低盐、高 N_2O 的现象.威海沿海附近有一浓度极大值区,也可能是受陆源输入的影响.

2.2 北黄海水域 N_2O 的海-气交换通量

各个航次调查期间,利用自动气象站在船上连续测定了现场风速.根据每站测定的平均现场风速、表层海水中溶解 N_2O 的浓度、现场水温和盐度以及笔者假定的北黄海上方大气中 N_2O 的浓度,利用

Liss 和 Merlivat 公式^[32](LM86)以及 Wanninkhof 公式^[33](W92)分别计算了各站位的瞬时 N₂O 海-气交换通量,结果见表 2(正值表示海洋释放 N₂O,负值表示海洋吸收 N₂O).

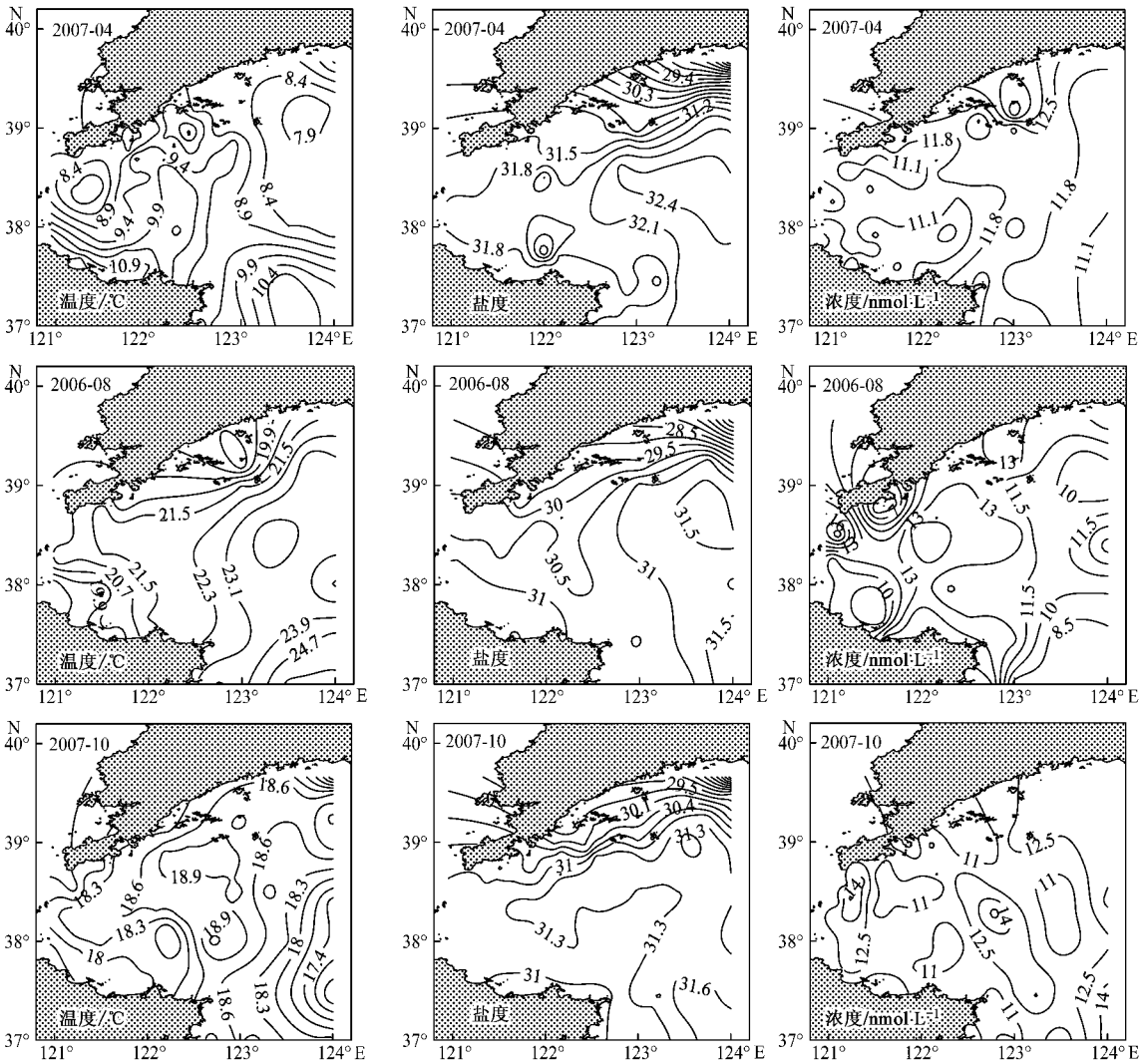


图 4 北黄海 3 个航次表层海水中温度、盐度和 N₂O 浓度水平分布

Fig.4 Horizontal distributions of temperature, salinity and N₂O concentrations in the three cruises of the North Yellow Sea

表 2 北黄海海域氧化亚氮海-气交换通量

Table 2 N ₂ O air-sea fluxes from the surface waters of the North Yellow Sea						
季节	时间	平均风速/ $\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$	$F(\text{LM86})/\mu\text{mol}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{d})^{-1}$		$F(\text{W92})/\mu\text{mol}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{d})^{-1}$	
			通量范围	平均值 $\pm$ S.D.	通量范围	平均值 $\pm$ S.D.
春季	2005-03	4.43 ± 3.71	-5.7 ~ 1.9	-1.3 ± 4.0	-8.9 ~ 3.1	-1.9 ± 6.2
	2006-04	6.80 ± 1.40	-3.8 ~ 6.0	-0.4 ± 2.8	-6.0 ~ 9.5	-0.7 ± 4.5
	2007-04	5.89 ± 2.28	-1.2 ~ 4.0	0.9 ± 1.3	-2.0 ~ 6.9	1.5 ± 2.0
	春季平均		-5.7 ~ 6.0	0.6 ± 1.7	-8.9 ~ 9.5	1.1 ± 2.8
夏季	2006-08	4.97 ± 2.17	-0.1 ~ 36.6	6.5 ± 8.3	-0.3 ~ 62.5	11.3 ± 13.4
秋季	2007-10	6.43 ± 2.75	0.1 ~ 34.4	7.9 ± 8.2	0.1 ~ 61.6	13.8 ± 14.3
年平均			-5.7 ~ 36.6	4.6 ± 7.4	-8.9 ~ 64.2	8.1 ± 12.7

从表 2 可以看出, 5 个航次使用 W92 公式估算的结果约是使用 LM86 公式估算结果的 1.7 倍, 因此使用不同的气体交换模型导致海-气交换通量估算有很大的不确定性. 通过结果还可以看出, 虽然 3 个

季节海水中溶解 N_2O 浓度相差不大,但北黄海海域 N_2O 的海-气交换通量却有明显的季节性变化.这主要是由海水中溶解 N_2O 饱和度和风速的差别引起的.由于春季相对较低的水温导致海水中溶解 N_2O 饱和度处于低值水平,所以其海-气交换通量值也低于夏秋两季;春季 3 个航次中,海-气交换通量同表层海水中溶解 N_2O 饱和度的变化趋势一样即随水温的不断升高而逐渐增大,表明了春季北黄海可能处于由大气 N_2O 汇向源的转化阶段;虽然秋季海水中溶解 N_2O 饱和度低于夏季,但是其海-气交换通量值却是夏季的 1.4 倍,这主要是由于风速不同引起的,秋季的平均风速明显高于夏季;另外夏、秋两季节 N_2O 海-气交换通量的变化幅度较春季要大.

表 3 给出了文献报道的不同海域不同季节的 N_2O 海-气交换通量,其范围为 $0.1 \sim 266 \mu\text{mol} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{d})^{-1}$,表现出较大的时空变化.这主要是由于不同的文献在测定时存在时间和空间的差异,而且计算通量时所采用的模型和气体交换速率公式

也不尽相同,再加上风速、上升流等物理过程的影响,导致了已报道的不同海域中的 N_2O 海-气交换通量有一定差异.但是总的来说,不同海域 N_2O 海-气交换通量以河口和海湾区最高,陆架区次之,大洋区最低.本研究在北黄海海域测定的 N_2O 海-气交换通量与文献报道的其他陆架区(如孟加拉湾^[34]、阿拉伯海^[35,36]、黑海陆架区^[10]等)相应季节的结果相近.

根据北黄海 3 个季节的平均 N_2O 海-气交换通量和北黄海的面积,初步估算出北黄海 N_2O 的年释放量为 $5.3 \times 10^{-3} \sim 9.2 \times 10^{-3} \text{Tg} \cdot \text{a}^{-1}$,其中低限是根据 LM86 公式估算出的结果,高限是根据 W92 公式估算的结果.根据以上结果,可以估算出北黄海对全球海洋释放 N_2O 的区域性贡献,结果表明,北黄海面积占全球海洋的面积的 0.02%,而其向大气释放的 N_2O 却占全球海洋 N_2O 年释放量($1.9 \sim 10.7 \text{Tg} \cdot \text{a}^{-1}$,按平均值 $6.3 \text{Tg} \cdot \text{a}^{-1}$ 计算)^[52] 的 0.1% 左右,北黄海是全部位于大陆架上的半封闭浅海,由以上结果可以看出陆架海区虽然只占全球海洋的一小部

表 3 部分海域表层海水中氧化亚氮海-气交换通量¹⁾

Table 3 N_2O air-sea fluxes from the surface waters of different oceanographic regions

海域		站位数	通量/ $\mu\text{mol}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{d})^{-1}$	采样时间	文献
河口 海湾区	Clone 河口	10 ~ 16	266	2001-08/09, 2002-02/05	[30]
	Tamar 河口	18 ~ 29	10.6	1988-08/10, 1989-03, 1990-06	[48]
	长江口	25	4.1 ^a , 8.0 ^b	2006-06	[39]
		31	20.9 ^a , 40.6 ^b	2006-08	[39]
		30	13.2 ^a , 25.7 ^b	2006-10	[39]
	东京湾	23	28.6 ^a	1994-05 ~ 1994-10	[43]
	胶州湾	19	9.3 ^a , 19.2 ^b	2003-05/08/12	[12]
陆架区	东海	31	4.4 ^a , 7.4 ^b	2006-11	[40]
		21	9.8 ^a , 17.1 ^b	2003-09	[13]
	孟加拉湾	48	0.7	1991-03 ~ 1991-04	[34]
		12	1.4 ^a	1995-02, 1996-02	[41]
	阿拉伯海 东部中心	7	5.1 ^a	1995-02 ~ 1995-03	[35]
		7	10.0 ^a	1995-07 ~ 1995-08	[35]
	阿拉伯海 西北中心(> 6°N)	连续走航	1.1 ^a , 2.0 ^b	1997-03/05 ~ 1997-07	[42]
	阿拉伯海 西北中心(> 15°N)	16	8.6 ^a	1986-09	[36]
	黑海陆架区	30	2.7 ^a , 4.4 ^b	1995-07 ~ 1995-08	[10]
	南波罗的海	19	2.4 ^a , 4.0 ^b	overall	[38]
	智利中部陆架(~ 36°S)	18	9.8 ^b	夏季	[37]
		18	1.3 ^b	冬季	[37]
	加勒比海	3	0.069 ^a	1995-04	[50]
		3	0.014 ^a	1996-06	[50]
	大洋区	北大西洋(1.5° ~ 12°N)	连续走航	0.52 ^c	2002-10 ~ 2002-11
赤道大西洋		46	1.1 ^a , 1.8 ^b	1993-01 ~ 1993-03	[9]
亚热带北太平洋		9	1.1 ^b	1999-07	[45]
西太平洋		连续走航	(0.1 ~ 0.2) ^a	1987-05 ~ 1987-07	[46]
太平洋(45°N ~ 40°S)		20	7.1	1977-09 ~ 1977-12	[47]
东印度洋		连续走航	(2.6 ~ 5.2) ^a	1987-05 ~ 1987-07	[46]
南大洋		16	0.4 ^c	1999-02	[51]

1) a 表示使用 LM86 公式^[32]; b 表示使用 W92 公式^[33]; c 表示使用 N00 公式^[49]

分,但却对全球海洋 N_2O 年释放量贡献较大. 由于气象条件和季节变化都会导致同一海区 N_2O 的海-气交换通量有较大的差异,所以在进行 N_2O 海-气交换通量估算时,必须重视季节变化的影响. 但是由于缺少北黄海冬季相关方面的结果,所以文中对北黄海 N_2O 的年释放量的估算可能还有不确定之处,在今后的工作中需加强对北黄海 N_2O 海气交换通量的季节变化研究.

3 结论

(1)北黄海不同季节表层海水中 N_2O 浓度变化不大,其水平分布特征也基本相同:即 N_2O 浓度从近岸向海外海逐渐降低,但是每个季节又呈现出各自的特点.

(2)北黄海表层海水中溶解 N_2O 的饱和度表现出明显的季节变化,其中夏、秋两季各站位 N_2O 饱和度要明显高于春季. 温度是影响北黄海表层海水中 N_2O 饱和度的主要因素.

(3)北黄海水域 N_2O 的海-气交换通量有明显的季节性变化,夏秋两季明显高于春季. 根据北黄海 3 个季节的平均 N_2O 海-气交换通量和北黄海的面积,初步估算出北黄海 N_2O 的年释放量为 $5.3 \times 10^{-3} \sim 9.2 \times 10^{-3} \text{Tg} \cdot \text{a}^{-1}$. 虽然北黄海面积只占全球海洋面积的 0.02%,但其对全球海洋释放 N_2O 的贡献却达到 0.1%,因此北黄海是大气 N_2O 的重要净源.

致谢:感谢“东方红 2 号”考察船船员和海洋生物地球实验室成员在各个航次中协助采样;感谢国家自然科学基金重大项目“上层海洋-低层大气生物地球化学与物理过程耦合研究”(40490265)和国家海洋局 908 专项(908-01-ST02)项目组提供水文和气象数据.

参考文献:

[1] Crutzen P J. The influence of nitrous oxide on the atmospheric ozone content [J]. Qua J Royal Meteorol society, 1970, **96**: 320-327.

[2] Ramanathan V, Cicerone R J, Singh H B, *et al.* Trace gas trends and their potential role in climate change [J]. J Geophys Res, 1985, **90**: 5547-5566.

[3] IPCC. Climate Change 2001: The Scientific Basis [M]. New York: Cambridge University Press, 2001. 1-881.

[4] Bouwman A F, Van der Hoek K W, Olivier J G J. Uncertainties in the global source distribution of nitrous oxide [J]. J Geophys Res, 1995, **100**: 2785-2800.

[5] Bange H W. New directions: the importance of the oceanic nitrous oxide emissions [J]. Atmos Environ, 2006, **40**(1): 198-199.

[6] Dore J E, Popp B N, Karl D M, *et al.* A large source of atmospheric nitrous oxide from subtropical North Pacific surface waters [J]. Nature, 1998, **396**: 63-66.

[7] Bange H W, Andreae M O, Lal S, *et al.* Nitrous oxide emissions from the Arabian Sea: A synthesis [J]. Atmos Chem Phys, 2001, **1**: 61-71.

[8] Ferrón S, Ortega T, Gómez-Parra A, *et al.* Seasonal study of dissolved CH_4 , CO_2 and N_2O in a shallow tidal system of the bay of Cádiz (SW Spain) [J]. J Mar Syst, 2007, **66**(1-4): 244-257.

[9] Oudot C, Jean-Baptiste P, Fourre E, *et al.* Transatlantic equatorial distribution of nitrous oxide and methane [J]. Deep-Sea Res, 2002, **49**(7): 1175-1193.

[10] 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]. Estuar Coast Shelf Sci, 2002, **54**(3): 575-587.

[11] Bange H W. Nitrous oxide and methane in European coastal water [J]. Estuar Coast Shelf Sci, 2006, **70**(3): 361-374.

[12] Zhang G L, Zhang J, Xu J, *et al.* Distributions, sources and atmospheric fluxes of nitrous oxide in Jiaozhou Bay [J]. Estuar Coast Shelf Sci, 2006, **68**(3-4): 557-566.

[13] 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]. Mar Chem, 2008, **110**(1-2): 42-55.

[14] Zhang G L, Zhang J. CH_4 and N_2O emissions from the oxygen deficient region in the Yangtze River Estuary [J]. IMBER Update, 2007, **7**: 4-6.

[15] 徐继荣,王友绍,张凤琴,等. 南海东北部海水中 N_2O 分布与产生机制的初步研究[J]. 热带海洋学报, 2006, **25**(4): 66-74.

[16] 郑立晓,张桂玲,许洁,等. 春季南海溶存 N_2O 的分布特征和海气交换通量[J]. 海洋环境科学, 2009, **28**(3): 1-8.

[17] 吕晓霞,宋金明,李学刚,等. 北黄海沉积物中氮的地球化学特征及其早期成岩作用[J]. 地质学报, 2005, **79**(1): 114-123.

[18] 江蓓洁,鲍献文,吴德星,等. 北黄海冷水团温、盐多年变化特征及影响因素[J]. 海洋学报, 2007, **29**(4): 1-10.

[19] 苏育嵩,苏洁. 渤、黄海夏季低温带及其形成机制初析[J]. 海洋学报, 1996b, **18**(1): 13-20.

[20] 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. 40-41.

[21] Walter S, Peeken I, Lochte K, *et al.* Nitrous oxide measurements during EIFEX, the European iron fertilization experiment in the subpolar South Atlantic Ocean [J]. Geophys Res Lett, 2005, **32**, L23613, doi: 10.1029/2005GL024619.

[22] Weiss R F, Price B A. Nitrous oxide solubility in water and seawater [J]. Mar Chem, 1980, **8**(4): 347-359.

[23] Khalil M A K, Rasmussen R A, Shearer M J. Atmospheric nitrous oxide: patterns of global change during recent decades and centuries [J]. Chemosphere, 2002, **47**(8): 807-821.

[24] Patricia B, Christian T, Valerie M. Determination of the bacterial processes which are sources of nitrous oxide production in marine samples [J]. Water Res, 2002, **36**(3): 722-732.

[25] Bange H W, Rapsomanikis S, Andreae M O. Nitrous oxide in coastal

- waters [J]. *Glob Biogeochem Cycles*, 1996a, **10**(1): 197-207.
- [26] De Angelis M A, Gordon L I. Upwelling and river runoff as sources of dissolved nitrous oxide to the Alsea estuary, Oregon [J]. *Estuar Coast Shelf Sci*, 1985, **20**(4): 375-386.
- [27] Dennehy K F, McMahon P B. Concentrations of nitrous oxide in two western rivers [A]. In: *Proceedings of the American Geophysical Union 2000 Spring Meeting* [C]. Washington D C: 1999. S187.
- [28] Marty D, Bonin P, Michotey V, *et al.* Bacterial biogas production in coastal systems affected by freshwater inputs [J]. *Cont Shelf Res*, 2001, **21**(18-19): 2105-2115.
- [29] Dong L F, Nedwell D B, Underwood G J C, *et al.* Nitrous oxide formation in the Colne Estuary, England: the central role of nitrite [J]. *Appl Environ Microbiol*, 2002, **68**(3): 1240-1249.
- [30] Dong L F, Nedwell D B, Colbeck I, *et al.* Nitrous oxide emission from some English and Welsh rivers and estuaries [J]. *Water Air Soil Pollut Focus*, 2004, **4**(6): 127-134.
- [31] 徐继荣, 王友绍, 殷建平, 等. 珠江口入海河段 DIN 形态转化与硝化和反硝化作用[J]. *环境科学学报*, 2005, **25**(5): 686-692.
- [32] Liss P S, Merlivat L G. Air-sea gas exchange rates: Introduction and synthesis [A]. In: *The role of air-sea exchange in geochemical cyclings* [C]. New York: D. Reidel Publishing Company, NATO ASI Series, 1986. 113-127.
- [33] Wanninkhof R. Relationship between wind speed and gas exchange over the ocean [J]. *J Geophys Res*, 1992, **97**(C5): 7373-7382.
- [34] Naqvi S W A, Jayakumar D A, Nair M, *et al.* Nitrous oxide in the western bay of Bengal [J]. *Mar Chem*, 1994, **47**(3-4): 269-278.
- [35] Lal S, Patra P K. Variabilities in the fluxes and annual emissions of nitrous oxide from the Arabian Sea [J]. *Glob Biogeochem Cycles*, 1998, **12**(2): 321-327.
- [36] Law C S, Owens N J P. Significant flux of atmospheric nitrous oxide from the northwest Indian Ocean [J]. *Nature*, 1990, **346**: 826-828.
- [37] Cornejo M, Farfas L, Gallegos M. Seasonal cycle of N₂O vertical distribution and air-sea fluxes over the continental shelf waters off central Chile (~ 36°S) [J]. *Prog Oceanogr*, 2007, **75**(3): 383-395.
- [38] Bange H W, Dahlke S, Ramesh R, *et al.* Seasonal study of methane and nitrous oxide in the coastal waters of the Southern Baltic Sea [J]. *Estuar Coast Shelf Sci*, 1998, **47**(6): 807-817.
- [39] 张峰. 黄海及长江口海域溶存氧化亚氮和甲烷的分布及海-气交换通量研究[D]. 青岛: 中国海洋大学, 2004. 32-48.
- [40] 郑立晓. 中国近海部分典型海洋环境中溶存氧化亚氮的分布及海-气交换通量研究[D]. 青岛: 中国海洋大学, 2008. 13-48.
- [41] Hashimoto S, Kurita Y, Takasu Y, *et al.* Significant difference in the vertical distribution of nitrous oxide in the central Bay of Bengal from that in the western area [J]. *Deep-Sea Res*, 1998, **45**(2-3): 301-316.
- [42] Bange H W, Rixen T, Johansen A M, *et al.* A revised nitrogen budget for the Arabian Sea [J]. *Glob Biogeochem Cycles*, 2002, **14**(4): 1283-1297.
- [43] Hashimoto S, Gojo K, Hikota S, *et al.* Nitrous oxide emissions from coastal waters in Tokyo Bay [J]. *Mar Environ Res*, 1999, **47**(3): 213-223.
- [44] Walter S, Bange H W, Wallace D W R. Nitrous oxide in the surface layer of the tropical North Atlantic Ocean along a west to east transect [J]. *Geophys Res Lett*, 2004, **31**, L23S07, doi: 10.1029/2004GL019937.
- [45] Popp B N, Westley M B, Toyoda S, *et al.* Nitrogen and oxygen isotopic constraints on the origins and sea-to-air flux of N₂O in the oligotrophic subtropical North Pacific gyre [J]. *Glob Biogeochem Cycles*, 2002, **16**(4): 1064-1073.
- [46] Butler J H, Elkins J W, Thompson T M, *et al.* Tropospheric and dissolved N₂O of the West Pacific and East Indian Oceans during the El Nino Southern Oscillation event of 1987 [J]. *J Geophys Res*, 1989, **94**(D2): 14865-14877.
- [47] Singh H B, Louis J S, Shigeishi H. The distribution of nitrous oxide in the global atmosphere and the Pacific Ocean [J]. *Tellus*, 1979, **31**: 313-320.
- [48] Law C S, Rees A P, Owens N J P. Nitrous oxide: Estuarine sources and atmospheric flux [J]. *Estuar Coast Shelf Sci*, 1992, **35**(3): 301-314.
- [49] Nightingale P D, Malin G, Law C S, *et al.* *In situ* evaluation of air-sea gas exchange parameterizations using novel conservative and volatile tracers. [J]. *Glob Biogeochem Cycles*, 2000, **14**(1): 373-387.
- [50] Morell J M, Capella J, Mercado A, *et al.* Nitrous oxide fluxes in Caribbean and tropical Atlantic waters: evidence for near surface production [J]. *Mar Chem*, 2001, **74**(2-3): 131-134.
- [51] Law C S, Ling R D. Nitrous oxide flux and response to increased iron availability in the Antarctic Circumpolar Current [J]. *Deep-Sea Res*, 2001, **48**(11-12): 2509-2527.
- [52] Nevison C D, Weiss R F, Erickson D J. Global oceanic emissions of nitrous oxide [J]. *J Geophys Res*, 1995, **100**(C8): 15809-15820.