

常思琦, 王东启, 俞琳, 等. 上海城市河流温室气体排放特征及其影响因素[J]. 环境科学研究, 2015, 28(9): 1375-1381.

CHANG Siqi, WANG Dongqi, YU Lin, et al. Greenhouse gas emission characteristics from urban rivers in Shanghai[J]. Research of Environmental Sciences, 2015, 28(9): 1375-1381.

上海城市河流温室气体排放特征及其影响因素

常思琦¹, 王东启^{1*}, 俞琳¹, 任名成¹, 胡蓓蓓², 陈振楼¹

1. 华东师范大学地理科学学院, 地理信息科学教育部重点实验室, 上海 200241

2. 天津师范大学城市与环境科学学院, 天津 300387

摘要: 为研究城区和郊区河流3种温室气体(N_2O 、 CH_4 和 CO_2)排放通量的差异, 分别于春季(2013年4月)、夏季(2013年7月)、秋季(2013年10月)和冬季(2014年1月)利用浮箱法和扩散模型法对上海市城区河流(苏州河)和郊区河流(淀浦河)的温室气体排放通量进行了观测; 并探讨了人类活动干扰下环境因子对温室气体排放的影响。结果表明: 研究区内2条河流是温室气体的排放源, 城区河流 N_2O 和 CH_4 的扩散排放通量和浮箱排放通量年均值均比郊区河流大1~2个量级, CO_2 两种排放通量在城郊区2条河流的年均值相当。苏州河 N_2O 、 CO_2 和 CH_4 扩散排放通量年均值分别为15.88、6748.27和84.98 $\mu\text{mol}/(\text{m}^2\cdot\text{h})$; 淀浦河分别为0.61、2978.98和9.61 $\mu\text{mol}/(\text{m}^2\cdot\text{h})$ 。苏州河 N_2O 、 CO_2 和 CH_4 浮箱排放通量年均值为15.77、4041.61和6721.08 $\mu\text{mol}/(\text{m}^2\cdot\text{h})$; 淀浦河为0.60、1214.77和59.58 $\mu\text{mol}/(\text{m}^2\cdot\text{h})$ 。城市河流呈现出高氮负荷及缺氧的特征, 是影响中心城区河流 N_2O 、 CO_2 和 CH_4 扩散排放通量偏高的重要因素。 CH_4 浮箱排放通量和扩散排放通量的差异显示, 城市河流中的富碳氮缺氧环境条件有利于随机气泡排放的发生, 增强了温室气体的排放。

关键词: 温室气体; 排放通量; 城市河流; 上海

中图分类号: X511

文章编号: 1001-6929(2015)09-1375-07

文献标志码: A

DOI: 10.13198/j.issn.1001-6929.2015.09.06

Greenhouse Gas Emission Characteristics from Urban Rivers in Shanghai

CHANG Siqi¹, WANG Dongqi^{1*}, YU Lin¹, REN Mingcheng¹, HU Beibei², CHEN Zhenlou¹

1. Key Laboratory of Geographic Information Science of the Ministry of Education, School of Geographical Sciences, East China Normal University, Shanghai 200241, China

2. School of Urban and Environmental Science, Tianjin Normal University, Tianjin 300387, China

Abstract: The floating chamber and diffusive models were used to investigate the differences of greenhouse gas (N_2O , CH_4 and CO_2) fluxes between an urban river (Suzhou River) and a suburban river (Dianpu River) in Shanghai during April, July and October in 2013 and January in 2014. The influence of environmental variables on greenhouse gas emissions under the disturbance of anthropogenic activities was also discussed. The results demonstrated that the two rivers were main sources of N_2O , CH_4 and CO_2 . N_2O and CH_4 fluxes from the urban river were one to two magnitudes higher than those from the suburban river. CO_2 fluxes from the two rivers were at the same magnitude. Estimated annual N_2O , CO_2 and CH_4 fluxes by the diffusive model were 15.88, 6748.27 and 84.98 $\mu\text{mol}/(\text{m}^2\cdot\text{h})$ in Suzhou River, and 0.61, 2978.98 and 9.61 $\mu\text{mol}/(\text{m}^2\cdot\text{h})$ in Dianpu River. Estimated annual N_2O , CO_2 and CH_4 fluxes by the floating chamber method were 15.77, 4041.61 and 6721.08 $\mu\text{mol}/(\text{m}^2\cdot\text{h})$ in Suzhou River, and 0.60, 1214.77 and 59.58 $\mu\text{mol}/(\text{m}^2\cdot\text{h})$ in Dianpu River. Significant correlations between dissolved oxygen, nitrate, ammonium and N_2O fluxes indicated that the enrichment of dissolved inorganic nitrogen and depletion of oxygen might enhance microbial denitrification, resulting in high N_2O fluxes from the urban river. At the same time, high emissions of CH_4 occurred in hypoxia conditions in the urban river. Water temperature greatly controlled CO_2 fluxes, probably through stimulating the microbial activities of CO_2 production. The difference between floating chamber and diffusive model fluxes of CH_4 indicated that the nitrogen-rich and oxygen-deficit conditions in urban river were favorable for bubble events, which could enhance CH_4 emission.

Keywords: greenhouse gas; flux; urban river; Shanghai

收稿日期: 2015-03-08

修订日期: 2015-05-20

基金项目: 国家自然科学基金项目(40903049, 41301221, 41473094)

作者简介: 常思琦(1990-), 女, 山西太原人, leochsq@126.com.

* 责任作者: 王东启(1976-), 男, 江苏邳州人, 副研究员, 主要从事环境地学研究, dqwang@geo.ecnu.edu.cn

CO_2 、 CH_4 和 N_2O 是大气中最重要的3种温室气体, 对全球总辐射的贡献率分别达到64%、18%和6%。河流是温室气体的重要排放源, 据估算, 水生系

统对大气 CH_4 的贡献超过 50%^[1], 全球河流的 N_2O 排放量已逐渐超过人类排放量的 10%^[2]. 相对于自然河流, 城市河流的温室气体排放更显著. Beaulieu 等^[3]报道, N_2O 最大排放出现在城市中心区河流. 韩玉等^[4-5]发现, 受人类活动影响大的河流的 N_2O 和 CH_4 排放通量比受影响小的河流大 1 个数量级. Rosamond 等^[6]研究发现, 尽管城市河段流域只占城区总面积的 5%, 但其 N_2O 排放通量却占城区总排放量的 8%~36%. 因而, 城市河流的 N_2O 、 CH_4 和 CO_2 排放通量测定, 无论对于阐明人类活动胁迫下河流生态系统的温室气体产生与排放机制, 还是对于在区域尺度上估算其排放量, 都具有重要意义.

研究^[7-8]认为, 河流 N_2O 、 CO_2 和 CH_4 主要来自于沉积物的微生物降解、乙酸发酵、氨氧化和反硝化等微生物过程. 可溶无机氮和可溶有机碳作为反应基质, 其含量的增加会刺激水生环境中的微生物活动, 促进 CO_2 、 CH_4 和 N_2O 的产生^[5, 9-10]. 李哲等^[11]对三峡水库支流的 CO_2 和 CH_4 排放通量的研究显示, 有机质和氮含量高的河流, 其温室气体排放通量水平也较高. Baulch 等^[12]研究发现, 高硝态氮浓度会导致水生系统 N_2O 通量增加. 胡蓓蓓^[13]发现, 河流铵态氮与 CH_4 、 N_2O 排放通量, 硝态氮与 N_2O 排放通量均呈正相关. 但是, 近期也有研究^[14]显示, 城市河流 N_2O 排放通量过高会使其与硝态氮浓度相关性的不确定性增加, 大面积的缺氧更有可能导致 N_2O 排放通量的增加^[6]; 与此同时, 缺氧和充足的碳氮供应为气泡排放通量的产生提供了有利条件^[15].

上海市地处长江三角洲, 河网密布, 河流面积占全市总面积的 8.32%, 城市化水平高. 随着近年来城市化水平的急剧上升, 人为输入的碳氮负荷不断累积, 成为温室气体的潜在重要源. 孙玮玮等^[15-16]在不同季节对上海城市河网 CH_4 和 N_2O 排放特征进行了分析. 但是对城郊区不同城市水平河流温室气体排放的研究仍然缺乏. 因此, 为了进一步了解人类活动胁迫下河流生态系统的温室气体排放特征和影响因素, 笔者分别以上海市中心城区河流和郊区河流为研究对象, 通过对 N_2O 、 CO_2 和 CH_4 排放通量的年度观测, 估算城市河流温室气体排放通量, 通过分析城郊区河流温室气体排放通量的时空差异, 探讨影响城市河流温室气体排放的主要环境因子.

1 材料与方法

1.1 研究区概况

选取位于郊区的淀浦河青浦段 (31.11°N、

121.05°E) 和位于上海市中心城区的苏州河普陀段 (31.22°N、121.40°E) 作为研究对象, 于春季 (2013 年的 4 月 8—17 日)、夏季 (7 月 22—29 日)、秋季 (10 月 21—26 日)、冬季 (2014 年的 1 月 1—11 日) 的 09:00、13:00 和 17:00 进行野外采样. 苏州河和淀浦河观测点水深分别为 1.6~3.2 和 2.6~4.0 m, 河流宽度分别为 45 和 120 m, 观测点均位于河流中央. 无水生植物存在.

1.2 温室气体采集与测定

温室气体排放通量的采集和测定采用浮箱法和扩散模型法 2 种方法. 浮箱法利用漂浮的静态通量箱直接观测水-气界面温室气体交换通量, 通过一定时间内箱内温室气体浓度差异计算. 浮箱箱体由有机玻璃圆柱体和塑料泡沫板组成, 覆以绝热材料和反光铝箔保证隔热性. 箱体安装平衡管以消除箱体内外可能的气压差. 每次采样时使用 3 个平行浮箱. 采样前将浮箱倒置以使箱内气体混合均匀, 然后将浮箱置于水面. 在浮箱安置好后, 于 0、20、40、60 min 用注射器采集箱内气体 100 mL, 并在 48 h 内分析完毕. 对每个样品的 $\varphi(\text{CO}_2)$ 、 $\varphi(\text{CH}_4)$ 和 $\varphi(\text{N}_2\text{O})$ 与相应采样时间进行线性回归, 选取拟合优度最高的 40 min 作为采样时间进行计算.

浮箱法排放通量计算:

$$F = (\Delta c / \Delta t) \times V / T / S \quad (1)$$

式中: F 为水-气界面温室气体排放通量, $\mu\text{mol}/(\text{m}^2 \cdot \text{h})$; V 为浮箱的容积, L; $\Delta c / \Delta t$ 为温室气体浓度在观测时间内的变化率, $\mu\text{mol}/(\text{L} \cdot \text{h})$.

扩散模型法是通过表层水体和大气气体浓度梯度测定水-气界面交换速率的方法^[17]. 在采集浮箱气体样品的同时, 分别采集 3 个现场大气平行样品和 3 个水体平行样品. 水样注入 137 mL 有机玻璃管密封, 用 30 mL 氮气置换出有机玻璃管中等体积水体, 充分震荡达到水气平衡后, 采集有机玻璃管顶空气体. 各气体样品采集后用于测定 CO_2 、 CH_4 和 N_2O 浓度. 扩散模型法排放通量计算:

$$F = k \times (C_w - C_a) \quad (2)$$

式中: k 为气体扩散速率, 基于风速和施密特数^[18]计算, 选用 Raymond and Cole 模型^[19]; C_a 为大气中温室气体浓度, $\mu\text{mol}/\text{L}$; C_w 为水体中温室气体浓度, $\mu\text{mol}/\text{L}$. 根据水气平衡前和平衡后采样管顶部气体中温室气体浓度和 Bunsen 系数计算, 其中 Bunsen 系数使用水温 and 盐度进行校正.

采用气相色谱仪 (GC 7890A, Agilent Technologies,

USA) 分析 $\varphi(\text{CO}_2)$ 、 $\varphi(\text{CH}_4)$ 和 $\varphi(\text{N}_2\text{O})$. $\varphi(\text{CO}_2)$ 、 $\varphi(\text{CH}_4)$ 采用离子化火焰检测器(FID)测定; $\varphi(\text{N}_2\text{O})$ 采用电子捕获检测器(ECD)测定^[19].

1.3 环境参数测定

各环境参数在采集气体样品的同时测定. 水温和 $\rho(\text{DO})$ 使用便携式溶解氧仪(Sentry M-2, Myratek Inc., USA)测定; 风速采用对应区域中国天气网(www.weather.com.cn)发布的每 h 平均 10 m 高度的风速计算. $\rho(\text{NO}_3^-)$ 使用连续流动分析仪(Futura, Alliance Instruments, France)测定; $\rho(\text{NH}_4^+)$ 采用纳氏试剂-分

光光度法^[20]测定; $\rho(\text{DOC})$ 采用总有机碳分析仪(Liqui TOC II, Elementar Analysensysteme, Germany)测定.

2 结果与讨论

2.1 环境参数

采样期间, 光合有效辐射和水温季节变化(见图 1)明显, 表现为夏季最高, 冬季最低, 春、秋季居中的特征. 苏州河和淀浦河光合有效辐射分别为 $34.2 \sim 822.6$ 和 $27.0 \sim 1\,009.8 \mu\text{mol}/(\text{m}^2 \cdot \text{s})$, 水温分别为 $6.9 \sim 36.6$ 和 $3.0 \sim 35.8 \text{ }^\circ\text{C}$.

从氮负荷和 $\rho(\text{DO})$ 来看, 淀浦河水体相对清洁

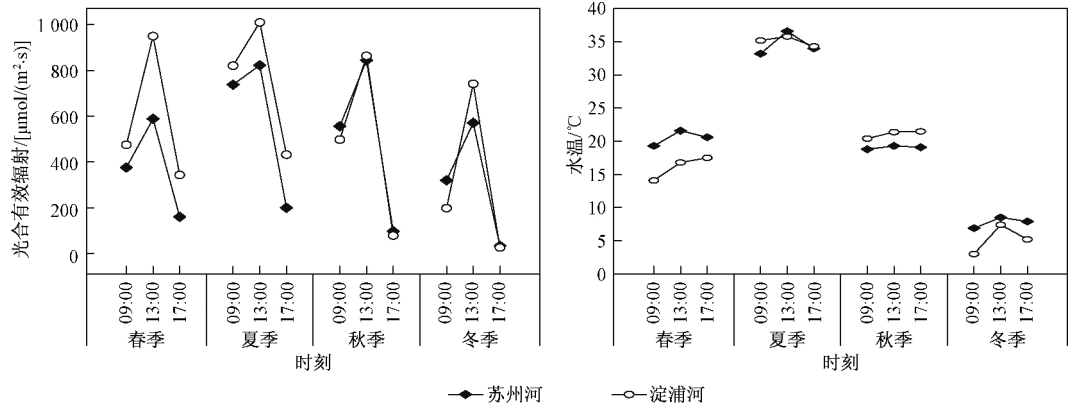


图 1 采样期间光合有效辐射和水温特征

Fig. 1 Characters of PAR (photosynthetically active radiation) and water temperature during sampling time

(见表 1) $\rho(\text{NH}_4^+)$ 和 $\rho(\text{NO}_3^-)$ 年均值分别为 0.90 和 1.28 mg/L, 显著低于苏州河 ($P < 0.05$, t -test). 淀浦河水体的 $\rho(\text{DO})$ 为 8.62 mg/L, 显著高于苏州河的 2.19 mg/L ($P < 0.05$). 受人类活动影响, 淀浦河的 $\rho(\text{DOC})$ 略低于苏州河, 分别为 26.55 和 37.86 mg/L, 差异并不显著 ($P = 0.230$).

表 1 淀浦河和苏州河水体环境参数年均值

Table 1 The annual value of environmental variables in Dianpu River and Suzhou River

河流	$\rho/(\text{mg/L})$			
	DO	DOC	NH_4^+	NO_3^-
淀浦河	8.62	26.55	0.90	1.28
苏州河	2.19	37.86	6.76	2.06

2.2 排放通量时空分布特征

从空间分布上看, N_2O 、 CO_2 和 CH_4 浮箱排放通量和扩散排放通量年均值在苏州河均大于淀浦河(见图 2). 苏州河 N_2O 、 CO_2 和 CH_4 扩散排放通量年均值分别为 15.88 、 $6\,748.27$ 和 $84.98 \mu\text{mol}/(\text{m}^2 \cdot \text{h})$; 浮箱排放通量年均值分别为 15.77 、 $4\,041.61$ 和 $6\,721.08 \mu\text{mol}/(\text{m}^2 \cdot \text{h})$. 淀浦河 N_2O 、 CO_2 和 CH_4 扩散排放通量

年均值分别为 0.61 、 $2\,978.98$ 和 $9.61 \mu\text{mol}/(\text{m}^2 \cdot \text{h})$; 浮箱排放通量年均值分别为 0.60 、 $1\,214.77$ 和 $59.58 \mu\text{mol}/(\text{m}^2 \cdot \text{h})$.

从各采样点 N_2O 、 CO_2 和 CH_4 排放通量的季节波动上看, 淀浦河的 2 种排放通量波动均小于苏州河. 苏州河 N_2O 、 CO_2 和 CH_4 扩散排放通量波动分别在 $2.76 \sim 33.47$ 、 $959.35 \sim 13\,272.62$ 和 $23.28 \sim 169.25 \mu\text{mol}/(\text{m}^2 \cdot \text{h})$ 之间; 淀浦河分别在 $0.29 \sim 1.24$ 、 $-162.08 \sim 11\,733.58$ 和 $0.78 \sim 20.95 \mu\text{mol}/(\text{m}^2 \cdot \text{h})$ 之间. 苏州河 N_2O 、 CO_2 和 CH_4 浮箱排放通量分别在 $0.84 \sim 91.38$ 、 $490.47 \sim 8\,855.46$ 和 $3.04 \sim 40\,395.36 \mu\text{mol}/(\text{m}^2 \cdot \text{h})$ 之间; 淀浦河分别在 $0.07 \sim 1.93$ 、 $-264.87 \sim 5\,832.87$ 和 $2.69 \sim 199.96 \mu\text{mol}/(\text{m}^2 \cdot \text{h})$ 之间. 淀浦河温室气体排放通量均在夏季高、冬季低. 苏州河只有 CO_2 排放通量呈夏季高、冬季低的规律, N_2O 排放通量在春、冬季较高, CH_4 排放通量的季节差异不明显.

无论在淀浦河还是苏州河, N_2O 和 CO_2 浮箱排放通量的年均值均小于各自的扩散排放通量, 但差异并不显著 ($P > 0.05$, t -test); CH_4 浮箱排放通量年均

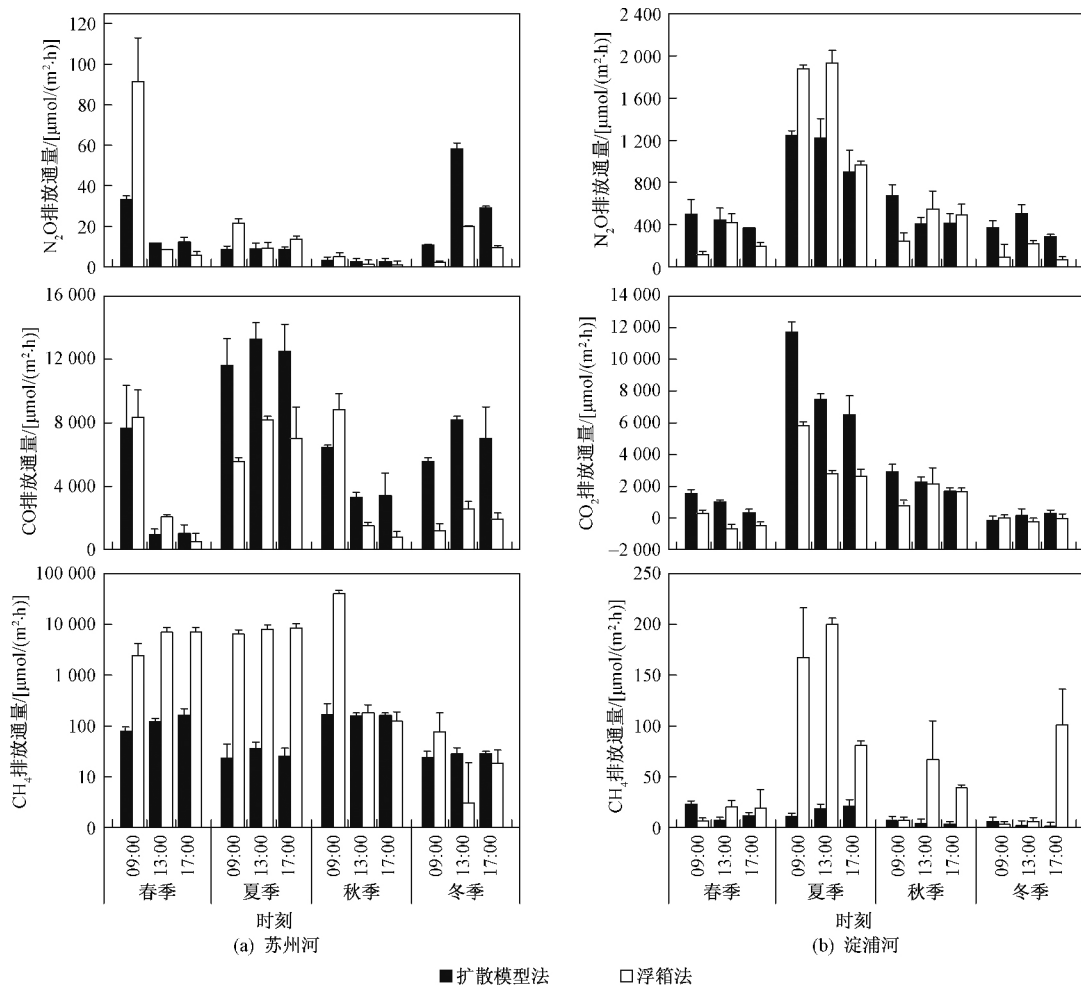


图2 苏州河和淀浦河的 CO_2 、 CH_4 和 N_2O 排放通量的季节分布

Fig. 2 Seasonal characters of CO_2 , CH_4 and N_2O fluxes in Suzhou River and Dianpu River

值显著大于扩散排放通量 ($P < 0.05$)。淀浦河 N_2O 和 CO_2 浮箱排放通量年均值均小于苏州河, 淀浦河分别为 0.60 和 1 214.77 $\mu\text{mol}/(\text{m}^2 \cdot \text{h})$, 苏州河分别为 15.77 和 4 041.61 $\mu\text{mol}/(\text{m}^2 \cdot \text{h})$ 。淀浦河 N_2O 、 CO_2 的扩散排放通量和浮箱排放通量均呈极显著相关 (R (相关系数) = 0.93, $P < 0.01$; $R = 0.94$, $P < 0.01$, 见图 3), 其 R^2 (拟合优度) 分别达到 0.91 和 0.87; CH_4 两种排放通量的相关性不显著, R^2 为 0.39, 拟合优度较低。在苏州河, 尽管 CO_2 的扩散排放通量和浮箱排放通量呈显著相关 (R 为 0.70, $P < 0.05$), 但 R^2 仅为 0.44; N_2O 2 种排放通量相关性不显著, R^2 仅为 0.70; CH_4 两种排放通量的相关性均不显著, R^2 仅为 0.05。

2.3 排放通量与环境参数的相关性

城市河流 N_2O 、 CO_2 和 CH_4 排放通量和 $\rho(\text{DOC})$ 相关性不显著 (见表 2)。 CO_2 两种排放通量和水温

均呈极显著正相关 ($P < 0.01$), 与 $\rho(\text{DO})$ 也均呈极显著负相关 ($P < 0.01$)。 N_2O 两种排放通量与 $\rho(\text{DO})$ 均呈显著负相关 ($P < 0.05$), 与 $\rho(\text{NH}_4^+)$ 均呈极显著正相关 ($P < 0.01$), N_2O 的扩散排放通量与 $\rho(\text{NO}_3^-)$ 呈极显著正相关 ($P < 0.01$)。 CH_4 扩散排放通量与 $\rho(\text{DO})$ 呈极显著负相关 ($P < 0.01$), 与 $\rho(\text{NH}_4^+)$ 呈极显著正相关 ($P < 0.01$)。

2.4 河流温室气体排放通量年均值的时空分布特征

城市河流是温室气体的重要排放源。与国内外河流对比, 苏州河和淀浦河的 N_2O 排放通量处于较高水平, 高于美国、澳洲河流^[13 21-22] ($-310 \sim 9\,520 \text{ nmol}/(\text{m}^2 \cdot \text{h})$), 和加拿大河流 ($-1\,460 \sim 17\,500 \text{ nmol}/(\text{m}^2 \cdot \text{h})$)^[10] 相当。 CO_2 排放通量与长江流域^[5] ($1\,712.33 \sim 3\,778.17 \mu\text{mol}/(\text{m}^2 \cdot \text{h})$) 相近, 远低于欧洲和美洲^[23-24] 河网 ($4\,160 \sim 20\,830$ 、 $3\,078 \sim 14\,258 \mu\text{mol}/(\text{m}^2 \cdot \text{h})$)。苏州河和淀浦河的 CH_4 两种排放通

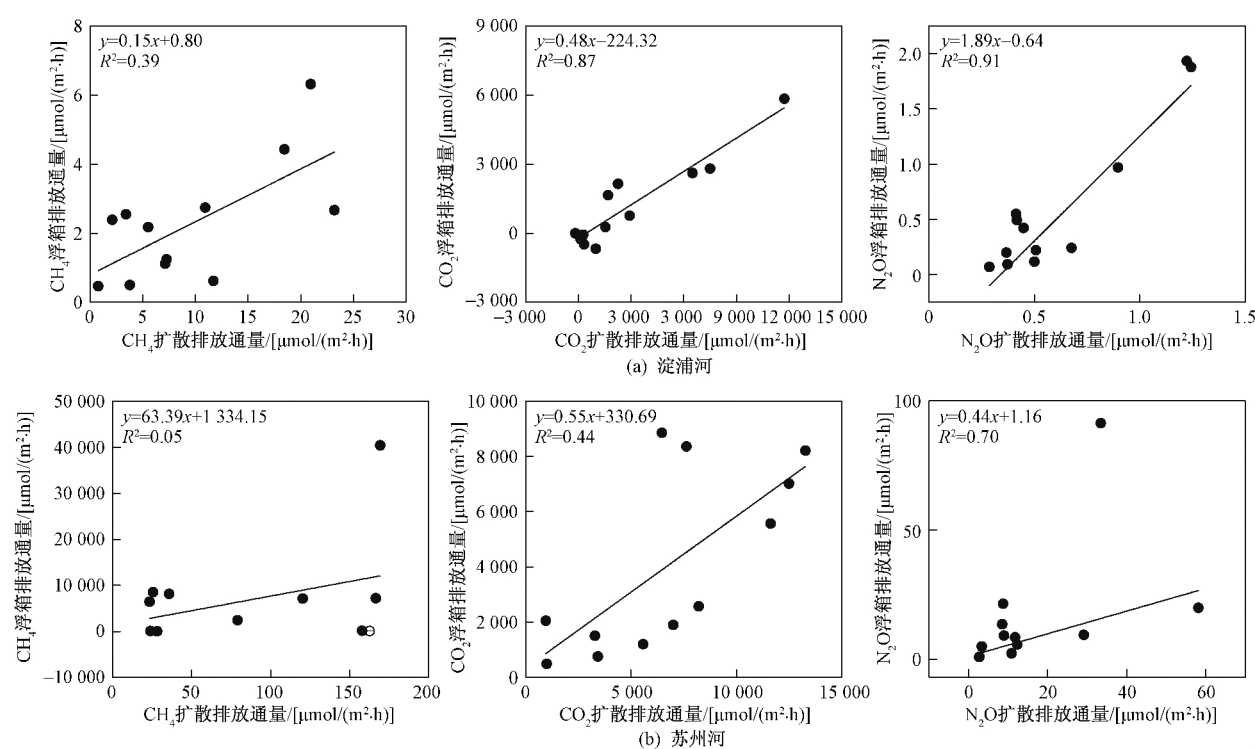


图 3 CO₂、CH₄ 和 N₂O 排放通量浮箱法和扩散模型法观测结果的回归分析

Fig. 3 Regression analysis of the floating chamber and diffusion model methods for CO₂ , CH₄ and N₂O fluxes

表 2 CO₂、CH₄ 和 N₂O 排放通量与环境变量的相关性

Table 2 The correlation coefficients among CO₂ , CH₄ and N₂O fluxes and corresponding environmental variables

项目	温室气体	ρ(DO)	水温	ρ(NH ₄ ⁺)	ρ(NO ₃ ⁻)	ρ(DOC)
扩散排放通量	N ₂ O	-0.487*	-0.224	0.679**	0.655**	0.321
	CH ₄	-0.550**	0.041	0.577**	0.239	-0.059
	CO ₂	-0.576**	0.646**	0.151	-0.188	-0.045
浮箱排放通量	N ₂ O	-0.440*	0.062	0.530**	0.155	0.099
	CH ₄	-0.382	0.155	0.250	-0.011	-0.021
	CO ₂	-0.584**	0.571**	0.257	-0.210	-0.017

注: * 代表 $P < 0.05$; ** 代表 $P < 0.01$. $n = 24$.

量差异较大,但均处于世界偏低水平 (2.08 ~ 264.17 $\mu\text{mol}/(\text{m}^2 \cdot \text{h})$)^[16-24-25].

通过对碳氮负荷与 N₂O、CH₄ 和 CO₂ 排放通量差异的显著性检验发现,污染负荷大的苏州河温室气体排放通量年均值显著大于淀浦河. 韩洋等^[5-9-26]也发现类似结果. 苏州河 N₂O、CO₂ 和 CH₄ 浮箱排放通量的年均值分别是淀浦河年均值的 26.34、1.43 和 112.80 倍,苏州河 N₂O、CO₂ 和 CH₄ 扩散排放通量年均值分别是淀浦河年均值的 25.95、2.27 和 8.84 倍. 这与海南和南京河流的研究结果相一致,即 N₂O 和 CH₄ 排放通量在人类活动影响大的区域比影响小的区域高 1 个数量级^[12-16]. Kroeze 等^[10]对城市不同区域河流的研究也表明, N₂O 排放通量在城市中间河段最大,尽管该段河流面积占比仅为 5%,但对 N₂O 的

贡献却达到总区域河流排放量的 36% ~ 38%. 城区河流温室气体排放量季节波动范围远大于郊区河流,并且分布规律上也有较大差异. 相对于郊区河流温室气体排放通量与水温呈显著相关,城区河流的 N₂O 和 CH₄ 排放通量受水温影响小,呈现出差异较大的时间分布特征,与普遍报道的温室气体排放规律并不一致.

2.5 城市河流温室气体扩散排放通量的影响因素

N₂O 主要产生于硝化、反硝化和耦合的硝化-反硝化作用. 城市河流水体中有机氮富集较多,有利于矿化作用产生无机氮,并消耗 DO. 较高的氮负荷和厌氧环境可促使反硝化作用产生较多的 N₂O,并向水体扩散^[5],从而表现为 N₂O 扩散排放通量与 $\rho(\text{NH}_4^+)$ 、 $\rho(\text{NO}_3^-)$ 呈显著正相关,与 $\rho(\text{DO})$ 呈显著负相关(见

表2)。DO是产 CH_4 过程的关键控制因素,其不仅抑制了 CH_4 的产生,还可以在传输过程中将其氧化,因此,中心城区河流的低 $\rho(\text{DO})$ [(2.19 ± 0.94) mg/L]可促进 CH_4 的产生和排放,并表现为 CH_4 扩散排放通量与 $\rho(\text{DO})$ 呈显著负相关。此外,氨氧化菌可以与甲烷氧化菌竞争氧气和甲烷单加氧酶,通过抑制 CH_4 氧化促进其排放^[27],使得 CH_4 扩散排放通量与 $\rho(\text{NH}_4^+)$ 呈显著正相关。河流 CO_2 扩散排放通量与水温呈显著正相关,应是由于沉积物微生物活性随温度升高而增加所致。研究^[28]表明,当温度从4℃升至20~37℃时,微生物降解产生 CO_2 的能力明显增强,同时消耗大量的氧气。 N_2O 浮箱排放通量和 $\rho(\text{NO}_3^-)$ 关系并不明显, CH_4 浮箱排放通量与 $\rho(\text{DO})$ 、 $\rho(\text{NH}_4^+)$ 相关性并不显著,说明有其他因素影响城市河流温室气体的排放。

2.6 随机气泡排放的影响

城市河流的高碳氮负荷有利于随机性的气泡产生。气泡通常发生在富含不稳定有机质、缺氧以及富含电子受体的环境中^[13]。淀浦河和苏州河可溶有机碳浓度都较高,为产甲烷菌提供了丰富的基质。这些气泡里通常含有10%~90%的 CH_4 、1%~10%的 CO_2 ,并且排放量大,对总排放通量贡献可达到60%以上^[29-30]。因此, CO_2 和 N_2O 的浮箱排放通量和扩散排放通量相当,但 CH_4 的浮箱排放通量比扩散排放通量高1~2个数量级。扩散模型是气体溶存浓度以及水-气界面传输速率的函数,未考虑气泡通量,导致对 CH_4 排放通量的低估。气泡排放是随机事件,高浓度气泡的出现会削弱扩散排放通量的排放特征。苏州河10月09:00和淀浦河12月16:00的 CH_4 排放通量均比其余时段通量高至少1个量级,这不仅造成浮箱排放通量的季节特征不明显,也使得 CH_4 扩散排放通量不能和浮箱排放通量很好地拟合。

3 结论

a) 上海市城市河流是温室气体的重要排放源,城区河流 N_2O 和 CH_4 扩散排放通量和浮箱排放通量年均值均比郊区河流高1~2个量级。苏州河 N_2O 、 CO_2 和 CH_4 扩散排放通量年均值分别为15.88、6 748.27和84.98 $\mu\text{mol}/(\text{m}^2 \cdot \text{h})$;淀浦河分别为0.61、2 978.98和9.61 $\mu\text{mol}/(\text{m}^2 \cdot \text{h})$ 。苏州河 N_2O 、 CO_2 和 CH_4 浮箱排放通量年均值为15.77、4 041.61和6 721.08 $\mu\text{mol}/(\text{m}^2 \cdot \text{h})$;淀浦河分别为0.60、1 214.77和59.58 $\mu\text{mol}/(\text{m}^2 \cdot \text{h})$ 。

b) 城市河流呈现出高氮负荷及缺氧的特征,是

中心城区河流 N_2O 、 CO_2 和 CH_4 扩散排放通量偏高的主要因素。表现为 $\rho(\text{NH}_4^+)$ 、 $\rho(\text{NO}_3^-)$ 、 $\rho(\text{DO})$ 与 N_2O 扩散排放通量呈显著相关, $\rho(\text{NH}_4^+)$ 、 $\rho(\text{DO})$ 与 CH_4 扩散排放通量呈显著相关,水温、 $\rho(\text{DO})$ 与 CO_2 扩散排放通量呈显著相关。

c) 城市河流中缺氧和富碳氮的环境条件有利于随机气泡排放的发生,增强温室气体排放量,削弱扩散排放通量排放特征。可通过控制河流碳氮输入抑制温室气体的产生,从而降低河流对大气温室气体的贡献。

参考文献(References):

- [1] KHALIL M A K, RASMUSSEN A. Sources, sinks, and seasonal cycles of atmospheric methane [J]. *Journal of Geophysical Research*, 1983, 88(C9): 5131-5144.
- [2] BEAULIEU J J, TANK J L, HAMILTON S K, et al. Nitrous oxide emission from denitrification in stream and river networks [J]. *Proceedings of the National Academy of Sciences*, 2011, 108(1): 214-219.
- [3] BEAULIEU J J, SHUSTER W D, REBHOLZ J A. Nitrous oxide emissions from a large, impounded river: the Ohio River [J]. *Environmental Science & Technology*, 2010, 44(19): 7527-7533.
- [4] 韩玉, 张桂玲, 赵玉川. 海南东部沿岸河流和潟湖中溶存甲烷的分布及通量[J]. *热带海洋学报*, 2012, 31(2): 87-95.
HAN Yu, ZHANG Guiling, ZHAO Yuchuan. Distribution and fluxes of methane in tropical rivers and lagoons of eastern Hainan [J]. *Journal of Tropical Oceanography*, 2012, 31(2): 87-95.
- [5] 韩洋, 郑有飞, 吴荣军, 等. 南京河流夏季水-气界面 N_2O 排放通量[J]. *环境科学*, 2014, 35(1): 348-355.
HAN Yang, ZHENG Youfei, WU Rongjun, et al. Nitrous oxide flux at the water-air interface of the rivers in Nanjing during summer [J]. *Environmental Science*, 2014, 35(1): 348-355.
- [6] ROSAMOND M S, THUSS S J, SCHIFF S L. Dependence of riverine nitrous oxide emissions on dissolved oxygen levels [J]. *Nature Geoscience*, 2012, 5: 715-718.
- [7] BEAULIEU J J, ARANGO C P, HAMILTON S K, et al. The production and emission of nitrous oxide from headwater streams in the Midwestern United States [J]. *Global Change Biology*, 2007, 14(4): 878-894.
- [8] ALGESTEN G, SOBEK S, BERGSTROM A K, et al. Contribution of sediment respiration to summer CO_2 emission from low productive boreal and subarctic lakes [J]. *Microbial Ecology*, 2005, 50(4): 529-535.
- [9] GAMIER J, BILLEM G, CEBRON A. Modelling nitrogen transformations in the lower Seine river and estuary (France): impact of wastewater release on oxygenation and N_2O emission [J]. *Hydrobiologia*, 2007, 588: 291-302.
- [10] KROEZE C, DUMONT E, SEITZINGER S. Future trends in emissions of N_2O from rivers and estuaries [J]. *Journal of Integrative Environmental Sciences*, 2010, 7: 71-78.

- [11] 李哲,白镭,郭劲松,等. 三峡水库两条支流水-气界面 CO_2 , CH_4 通量比较初探[J]. 环境科学 2013 34(3): 1008-1016.
LI Zhe, BAI Lei, GUO Jinsong, *et al.* Comparative study on water-air CO_2 , CH_4 flux in two tributaries in the three gorges reservoir, China[J]. Environmental Science 2013 34(3): 1008-1016.
- [12] BAULCH H M, SCHIFF S L, MARANGER R, *et al.* Nitrogen enrichment and the emission of nitrous oxide from streams [J]. Global Biogeochemical Cycles 2011 25(4): GB4013. doi: 10.1029/2011GB004047.
- [13] 胡蓓蓓,谭永洁,王东启,等. 冬季平原河网水体溶存甲烷和氧化亚氮浓度特征及排放通量[J]. 中国科学 B 辑: 化学 2013, 43(7): 919-929.
HU Beibei, TAN Yongjie, WANG Dongqi, *et al.* Methane and nitrous oxide dissolved concentration and emission flux of plain river network in winter[J]. Scientia Sinica: Chimica 2013 43(7): 919-929.
- [14] BAULCH H M, DILLON P J, MARANGER R, *et al.* Diffusive and ebullitive transport of methane and nitrous oxide from streams: are bubble-mediated fluxes important? [J]. Journal of Geophysical Research 2011 116(G4): G04028. doi: 10.1029/2011JG001656.
- [15] 孙玮玮,王东启,陈振楼,等. 长江三角洲平原河网水体溶存 CH_4 和 N_2O 浓度及其排放通量[J]. 中国科学: 化学 2009 39(2): 165-175.
- [16] SLATER P G, LISS P S. Flux of gases across the air-sea interface [J]. Nature 1974 247: 181-184.
- [17] WANNINKHOF R. Relationship between wind speed and gas exchange over the ocean [J]. Journal of Geophysical Research 1992 97(C5): 7373-7738.
- [18] RAYMOND P, COLE J. Gas exchange in rivers and estuaries: choosing a gas transfer velocity [J]. Estuaries 2001 24(2): 312-317.
- [19] 胡泓,王东启,李杨杰,等. 崇明东滩芦苇湿地温室气体排放通量及其影响因素[J]. 环境科学研究 2014 27(1): 43-50.
HU Hong, WANG Dongqi, LI Yangjie, *et al.* Greenhouse gases fluxes at Chongming Dongtan *Phragmites australis* wetland and the influencing factors[J]. Research of Environmental Sciences 2014, 27(1): 43-50.
- [20] KRUG F J, RUZICKA J, HANSEN E H. Determination of ammonia in low concentrations with Nessler's reagent by flow injection analysis [J]. Analyst 1979 104: 47-54.
- [21] HINSHAW S E, DAHLGREN R A. Dissolved nitrous oxide concentrations and fluxes from the eutrophic San Joaquin River, California [J]. Environmental Science & Technology 2013 47(3): 1313-1322.
- [22] CLOUGH T J, BERTRAM J E, SHERLOCK R R, *et al.* Comparison of measured and EF5-derived N_2O fluxes from a spring-fed river [J]. Global Change Biology 2006 12(3): 477-488.
- [23] FRANKIGNOULLE M, ABRIL G, BORGES A, *et al.* Carbon dioxide emission from European estuaries [J]. Science 1998 282(5388): 434-436.
- [24] BUTMAN D, RAYMOND P A. Significant efflux of carbon dioxide from streams and rivers in the United States [J]. Nature Geoscience 2011 4: 839-842.
- [25] STRIEGL R G, DOMBLASER M M, MCDONALD C P, *et al.* Carbon dioxide and methane emissions from the Yukon River system [J]. Global Biogeochemical Cycles 2012 26(4): GB0E05.
- [26] BAULCH H M, SCHIFF S L, THUSS S J, *et al.* Isotopic character of nitrous oxide emitted from streams [J]. Environmental Science & Technology 2011 45(11): 4682-4688.
- [27] KHALI M I, BAGGS M. CH_4 oxidation and N_2O emissions at varied soil water-filled pore spaces and headspace CH_4 concentrations [J]. Soil Biology and Biochemistry 2005 37(10): 1785-1794.
- [28] 杨磊,林逢凯,胥峥,等. 底泥修复中温度对微生物活性和污染物释放的影响[J]. 环境污染与防治 2007 29(1): 22-25.
YANG Lei, LIN Fengkai, XU Zheng, *et al.* Effect of temperature on the activities of microorganism and the pollutants in the bioremediation of the sediment [J]. Environmental Pollution & Control 2007 29(1): 22-25.
- [29] DUC N T, SILVERSTEIN S, LUNDMARK L, *et al.* Automated flux chamber for investigating gas flux at water-air interfaces [J]. Environmental Science & Technology 2013 47(2): 968-975.
- [30] SMITH L K, LEWIS W M, CHANTON J P, *et al.* Methane emissions from the Orinoco River floodplain, Venezuela [J]. Biogeochemistry 2000 51(2): 113-140.

(责任编辑: 孙彩萍)