

环境科学

(HUANJING KEXUE)

ENVIRONMENTAL SCIENCE

第38卷 第1期

Vol.38 No.1

2017

中国科学院生态环境研究中心 主办
科学出版社 出版



目次

南京北郊冬季挥发性有机物来源解析及苯系物健康评估	张玉欣, 安俊琳, 林旭, 王俊秀, 师远哲, 刘静达 (1)
南京冬季重污染过程中黑碳气溶胶的混合态及粒径分布	蒋磊, 汤莉莉, 潘良宝, 刘丹彤, 花艳, 张运江, 周宏仓, 崔玉航 (13)
基于 GAM 模型分析影响因素交互作用对 PM _{2.5} 浓度变化的影响	贺祥, 林振山 (22)
模拟烹饪油烟的粒径分布与扩散	李双德, 徐俊波, 莫胜鹏, 李文辉, 高佳佳, 曹亚裙, 陈运法 (33)
基于光谱分析仪的通量-梯度法测量小型池塘水-气界面温室气体交换通量	赵佳玉, 张弥, 肖薇, 王伟, 吴红艳, 张圳, 肖启涛, 胡诚, 于洲, 曹正达, 徐敬争, 刘寿东, 李旭辉 (41)
闽江口短叶茳茅 + 芦苇沼泽湿地大、小潮日土壤间隙水溶解性 CH ₄ 与 CO ₂ 浓度日动态	谭立山, 杨平, 何露露, 黄佳芳, 胡智强, 全川 (52)
河南鸡冠洞 CO ₂ 季节和昼夜变化特征及影响因子比较	张萍, 杨琰, 孙喆, 梁沙, 张娜, 田宁, 李建仓, 凌新有, 张志钦 (60)
蠡湖表层沉积物荧光溶解性有机质 (FDOM) 荧光光谱特征	陈俊伊, 王书航, 姜霞, 黄晓峰, 赵丽 (70)
滇池沉积物有机质沉积特征与来源解析	韩秀秀, 黄晓虎, 余丽燕, 杨浩, 黄昌春, 黄涛, 余艳红, 罗玉 (78)
紫色土小流域浅层井水中胶体颗粒的季节变化	张维, 唐翔宇, 鲜青松 (87)
太湖湖滨带春季悬浮物沉降特征与水体营养盐响应	祁闯, 王国祥, 吴馨婷, 许晓光, 韩睿明, 吴松峻 (95)
基于 LDI 的土地利用类型与湿地水质的相关性: 以苏州太湖三山岛国家湿地公园为例	杨朝辉, 苏群, 陈志辉, 白俊武, 钱新强, 张志敏 (104)
基于分位数回归的洱海藻类对氮、磷及水温的响应特征	陈小华, 李小平, 钱晓雍, 胡双庆 (113)
深水型水库藻形态功能组 (MBFG) 的季节演替特征	杨毓, 卢金锁, 张颖 (121)
三峡库区水体中可溶性 C、N 变化及影响因素	范志伟, 郝庆菊, 黄哲, 柴雪思, 江长胜 (129)
三峡库区古夫河小流域氮磷排放特征	华玲玲, 李文超, 翟丽梅, 崔超, 刘宏斌, 任天志, 张富林, 雷秋良 (138)
黄土高原坝系流域干湿季交替下氮输出特征及其源解析: 以羊圈沟为例	贾珺杰, 高扬, 陈维梁, 郝卓, 汪亚峰, 陈利顶 (147)
5 种沉水植物的氮、磷吸收和水质净化能力比较	金树权, 周金波, 包薇红, 陈君, 李丹丹, 李洋 (156)
骆马湖表层水体中 32 种 PPCPs 类物质的污染水平、分布特征及风险评估	张芹, 张圣虎, 汪贞, 郭敏, 刘济宁, 石利利, 古文 (162)
大冶湖表层沉积物-水中多环芳烃的分布、来源及风险评价	张家泉, 胡天鹏, 邢新丽, 郑煌, 张丽, 占长林, 刘红霞, 肖文胜, 祁士华 (170)
pH 和络合剂对五价锑在水钠锰矿和水铁矿表面吸附行为的影响	王华伟, 李晓月, 李卫华, 孙英杰 (180)
紫外辐射对高岭土混凝过程的影响机制	王文东, 王昌鑫, 刘荟, 韩雨 (188)
水环境中溶解态腐殖酸对锌抗甲状腺激素干扰效应的影响	艾扬, 孔东东, 于畅, 沈扬, 李剑 (195)
污水中常见违禁药物分析方法优化及验证	高婷婷, 杜鹏, 徐泽琼, 杨军, 张华方, 李喜青 (201)
阴极电场增强活性炭纤维-臭氧体系去除水中硝基苯	赵纯, 张帅, 周宇, 李琨, 周炜, 黎鹏宇, 杨广, 孙志华, 郑怀礼 (212)
碳纳米管改性 PVDF 中空纤维超滤膜处理二级出水抗污染性能研究	王利颖, 石洁, 王凯伦, 关羽琪, 郭瑾 (220)
曝气生物滤池 (Fe ²⁺) -臭氧组合工艺强化处理石化二级出水	徐敏, 吴昌永, 周岳溪, 郭明昆, 王翼 (229)
4 种反应器中厌氧氨氧化菌完整梯烷脂的特异性	王晗, 方芳, 李凯, 邢晖, 郭劲松, 陈猷鹏, 曾前松 (238)
疏自养填充床反应器降解水中高浓度高氯酸盐的特性及菌群分析	张超, 陶华强, 宋圆圆, 逯彩彩, 郭延凯, 廉静, 郭建博 (247)
CANON 在 SBAF 中的快速启动及其微生物特征	刘竹寒, 岳秀, 于广平, 金腊华, 唐嘉丽, 吉世明 (253)
高浓度游离氨冲击负荷对生物硝化的影响机制	季民, 刘灵婕, 翟洪艳, 刘京, 苏晓 (260)
有机物对亚硝化颗粒污泥中功能菌活性的影响	王书永, 钱飞跃, 王建芳, 沈耀良 (269)
一种新型生物膜法除磷工艺中聚磷菌的富集培养过程	郑莹, 潘杨, 周晓华, 廖炬弘, 孟璇, 夏健伟 (276)
应用于矿山修复的高效菌株鉴定与溶岩机制: 基于增强回归树分析	吴雁雯, 张金池, 郭晓平, 刘鑫 (283)
镉对铜绿假单胞菌降解水体中壬基酚的影响	史广宇, 程媛媛, 施维林 (294)
华北平原不同农田管理措施对于土壤碳库的影响	石小霞, 赵诣, 张琳, 吴文良, 孟凡乔 (301)
缙云山柑橘林土壤微生物磷脂脂肪酸 (PLFAs) 及酶活性的季节变化特征	李南洁, 曾清苹, 何丙辉, 周飞 (309)
中条山十八河铜尾矿库微生物群落组成与环境适应性	刘晋仙, 李鑫, 景炬辉, 贾彤, 刘兴港, 王小云, 柴宝峰 (318)
安徽省部分城市土壤中全氯化物空间分布及来源解析	李法松, 倪卉, 黄涵宇, 徐志兵, 张倩, 李长霞, 黄文秀, 金陶胜 (327)
不同温度制备的生物质炭对土壤有机碳及其组分的影响: 对土壤活性有机碳的影响	赵世翔, 于小玲, 李忠徽, 杨艳, 刘丹, 王旭东, 张阿凤 (333)
水分管理模式与土壤 Eh 值对水稻 Cd 迁移与累积的影响	田桃, 曾敏, 周航, 徐珺, 杨文强, 辜娇峰, 邹佳玲, 张平, 彭佩钦, 廖柏寒 (343)
砒、镉单一及复合污染胁迫下土壤生态功能稳定性的影响机制	陈欣瑶, 杨惠子, 李敏, 牛晓丛, 苏雨轩, 张园 (352)
生物炭、蒙脱石及其混合添加对复合污染土壤中重金属形态的影响	高瑞丽, 唐茂, 付庆灵, 郭光光, 李晚, 胡红青 (361)
某电镀厂六价铬污染土壤还原稳定化试剂筛选与过程监测	李培中, 吕晓健, 王海见, 杨苏才, 魏文侠, 宋云 (368)
多孔 SBA-15 颗粒对 Cd(II) 的吸附缝合及其对土壤 Cd(II) 的修复潜力	黄辉, 宁西翠, 郭瞻宇, 郭堤, 张增强, 李荣华, 王力, Ali Amjad (374)
卤系阻燃剂在东江鱼体中的生物富集	何明靖, 杨婷, 李琦, 王登祥, 赵佳渊 (382)
广州市蔬菜中重金属污染特征研究与评价	陈志良, 黄玲, 周存宇, 钟松雄, 王欣, 戴玉, 蒋晓璐 (389)
蔬菜镉 (Cd) 富集因子变化特征及其影响因素	杨阳, 李艳玲, 陈卫平, 王美娥, 彭驰 (399)
施用污泥堆肥品对土壤和植物总汞及甲基汞的影响	余亚伟, 杨雨洽, 张成, 易建婷, 安思危, 王定勇 (405)
大气臭氧污染对冬小麦气孔吸收通量的影响机制及其时空格局	赵辉, 郑有飞, 曹嘉晨, 徐静馨, 黄积庆, 袁月 (412)
《环境科学》征稿简则 (12) 《环境科学》征订启事 (194) 信息 (21, 51)	

基于光谱分析仪的通量-梯度法测量小型池塘水-气界面温室气体交换通量

赵佳玉^{1,2}, 张弥², 肖薇², 王伟², 吴红艳¹, 张圳², 肖启涛², 胡诚², 于洲², 曹正达², 徐敬争², 刘寿东², 李旭辉²

(1. 南京信息工程大学物理与光电工程学院, 南京 210044; 2. 南京信息工程大学大气环境中心, 气象灾害教育部重点实验室, 气候与环境变化国际合作联合实验室, 气象灾害预报预警与评估协同创新中心, 南京 210044)

摘要: 小型池塘作为内陆水体的一部分, 是被忽视的温室气体重要排放源. 本研究主要利用通量-梯度方法测量长江三角洲地区的一处小型池塘水-气界面温室气体(CO_2 和 CH_4) 交换通量. 结果表明: ①零梯度测试结果显示本套通量-梯度系统测量 H_2O 、 CO_2 和 CH_4 通量的精度分别为 $7.525 \text{ W} \cdot \text{m}^{-2}$ 、 $0.022 \text{ mg} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{s})^{-1}$ 、 $0.054 \text{ } \mu\text{g} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{s})^{-1}$, 并且在正常实验观测期间3种气体(H_2O 、 CO_2 和 CH_4) 的通量值分别有84%、80%和94%的结果高于零梯度测试精度, 以上结果可以保证本套通量-梯度系统具有足够的精度测量池塘水-气界面温室气体交换通量; ②通量-梯度计算结果表明此小型池塘在夏季为 CO_2 和 CH_4 的排放源, 其排放通量平均值分别为 $0.038 \text{ mg} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{s})^{-1}$ 和 $0.889 \text{ } \mu\text{g} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{s})^{-1}$, 其中 CH_4 排放通量远高于内陆湖泊甲烷排放通量的中值, 说明小型池塘的温室气体排放量是估算内陆水体温室气体排放量特别是 CH_4 排放量中不可忽视的重要量值, 本研究结果可为准确估算区域温室气体排放量提供科学参考.

关键词: 小型池塘; 温室气体通量; 水-气界面; 通量-梯度方法; 涡度相关方法; 光谱分析仪

中图分类号: X16 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2017)01-0041-11 DOI: 10.13227/j.hj.kx.201605142

Greenhouse Gas Fluxes at Water-Air Interface in Small Pond Using Flux-Gradient Method Based on Spectrum Analyzer

ZHAO Jia-yu^{1,2}, ZHANG Mi², XIAO Wei², WANG Wei², WU Hong-yan¹, ZHANG Zhen², XIAO Qi-tao², HU Cheng², YU Zhou², CAO Zheng-da², XU Jing-zheng², LIU Shou-dong², LI Xu-hui²

(1. School of Physics and Optoelectronic Engineering, Nanjing University of Information Science and Technology, Nanjing 210044, China; 2. Yale-NUIST Center on Atmospheric Environment, Key Laboratory of Meteorological Disaster of Ministry of Education, Joint International Research Laboratory of Climate and Environment Change, Collaborative Innovation Center on Forecast and Evaluation of Meteorological Disasters, Nanjing University of Information Science and Technology, Nanjing 210044, China)

Abstract: As an important part of inland waters, small pond is a neglected source of greenhouse gas. The main objective of the study was to quantify greenhouse gas fluxes (CO_2 and CH_4) from small pond in the Yangtze Delta using flux-gradient method. The results showed that: ① zero-gradient test indicated that the flux measurement precision for water vapor, CO_2 , and CH_4 was $7.525 \text{ W} \cdot \text{m}^{-2}$, $0.022 \text{ mg} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{s})^{-1}$, and $0.054 \text{ } \mu\text{g} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{s})^{-1}$, respectively. During the test period, 84%, 80%, and 94% of half-hourly flux data for H_2O , CO_2 , and CH_4 were higher than the zero-gradient measurement precision. ② Based on the measurement, the small pond was the source of CO_2 and CH_4 for the atmosphere in summer, the mean emission flux of CO_2 and CH_4 was $0.038 \text{ mg} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{s})^{-1}$ and $0.889 \text{ } \mu\text{g} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{s})^{-1}$, respectively. The CH_4 emission fluxes from the small pond were more higher than the median value of emission for global lakes. The results indicated that greenhouse gas emission from small pond was an important part for estimating inland water greenhouse gas emissions, especially for CH_4 emission. These results can provide scientific reference for making emission inventory of regional greenhouse gas.

Key words: small pond; greenhouse gas fluxes; water-air interface; flux-gradient method; eddy covariance method; spectrum analyzer

小型池塘作为一类重要的内陆人工水体, 其总面积只占全球水体分布总面积的8.6%^[1], 但相比大型和中型水体, 由于小型池塘具有较高的周长面积比和较浅的水深, 能够积累更多的外来陆地有机碳作为有机质供池塘底泥微生物进行呼吸作用, 因此有利于底泥 CO_2 和 CH_4 的产生^[2~6], 同时小型池塘较浅的水深导致水体和大气之间能够快速混合交

换, 意味着 CH_4 有更快的排放速度可以减小其在水体中被氧化的几率, 有利于 CH_4 的排放^[7,8]. 基于

收稿日期: 2016-05-20; 修订日期: 2016-08-03

基金项目: 国家自然科学基金项目(41575147, 41475141); 国家自然科学基金青年科学基金项目(41505005); 江苏省自然科学基金青年项目(BK20150900); 南京信息工程大学人才启动项目(2014r046); 江苏省“青蓝工程”项目

作者简介: 赵佳玉(1992~), 女, 硕士研究生, 主要研究方向为地-气温室气体交换, E-mail: jiayuzhao317@gmail.com

以上原因,小型池塘逐渐成为温室气体排放的研究热点^[9]. 并且,根据 Holgerson 等^[1]对现有水体温室气体通量研究统计的结果,小型池塘的 CO_2 和 CH_4 排放比例分别占内陆水体总 CO_2 和 CH_4 排放的 15.1% 和 40.6%. 但在过去由于小型池塘面积较小,研究者在估算内陆水体温室气体排放量时通常将小型池塘忽略掉^[10],而只关注大型或中型水体,从而导致全球水体温室气体排放估算存在很大的不确定性,可能会产生低估的现象. 因此,研究小型池塘温室气体交换通量对准确估算全球温室气体交换通量具有重要贡献.

测定水-气界面温室气体通量的方法主要有箱式法、水平衡法、微气象学方法和遥感反演法等^[11]. 在野外观测中最常用的方法为前 3 种. 箱式法和水平衡法,其装置简单、易于操作,常被使用. 但是,箱式法代表区域小,无法进行高频的测量^[12,13]. 而利用水平衡法进行观测时,观测的甲烷会产生偏低的现象,因为该方法无法观测到甲烷冒泡的现象,但在水体中冒泡是甲烷的主要排放方式之一^[6]. 相比这两种方法,涡度相关方法(eddy covariance, EC)和通量-梯度方法(flux gradient, FG)等微气象观测方法由于其测量的连续性和对测量环境的非干扰性已经得到广泛的关注并开始使用^[14]. 当前,野外使用的 EC 方法常采用开路式红外气体分析仪对气体浓度进行测量,但该仪器测量精度容易受到大气水汽密度和气温波动的影响(主要影响测量光谱),并且该仪器本身存在的自加热效应会影响或掩盖地-气交换中较小通量的信号^[15,16]. FG 方法是利用大气气体浓度梯度和气体湍流扩散系数的乘积来确定地-气气体交换通量^[17]. 根据 Xiao 等^[14]的研究,使用高精度闭路式气体分析仪测量水-气界面温室气体交换通量的 FG 方法最主要的优点是其计算结果不需要进行密度校正,并且有足够的精度能够观测到甲烷的小梯度和通量信号. 但在实际应用中 FG 方法也有一定的局限性,FG 方法中涉及到的重要参数:气体湍流扩散系数 K ,其会受到大气层结条件、气流垂直切变等湍流外因参数的影响,特别是在大气稳定($\zeta > 0.5$)和强不稳定($\zeta < -1$)时不容易确定^[18].

长江三角洲地区水域辽阔,水系发达,是良好的水产养殖区域,其中淡水养殖面积为 $1.38 \times 10^{10} \text{ m}^2$,占全国淡水养殖面积的 22.7%^[19],这类池塘水-气界面的温室气体交换通量对于大气中温室气体浓度的影响不容忽视,但对于此区域的小型池塘温室

气体交换通量研究还尚不明确. 因此,本研究利用基于离轴积分输出腔光谱技术(off-axis integrated cavity output spectroscopy, OA-ICOS)的分析仪构成的通量-梯度系统于 2015 年 7 月 15 日(日序 196 d)至 24 日(日序 205 d)对南京浦浩生态园内的一处小型池塘的水-气界面 CO_2 、 CH_4 以及 H_2O 交换通量进行原位连续观测,以明确:①通量-梯度系统在观测小型水体温室气体通量的性能;②定量估算夏季小型池塘水-气界面温室气体交换通量. 本研究结果可为准确观测及估算内陆水域温室气体交换通量研究提供方法基础及基本数据,同时也为制定渔业温室效应减排政策提供参考.

1 材料与方法

1.1 研究区域

本实验的研究地点设在南京浦浩生态园内的一处‘L’型小型鱼类养殖池塘(32.24°N, 118.69°E, 如图 1),占地面积为 3 720 m^2 ,平均水深为 1.5 m;在观测期间,其水体的 pH 和水温平均值分别为 7.9 和 27.4°C. 鱼塘内每天 15:00~16:00 要施加 1 次饵料,1 次施加量约为 10~20 kg,施加饵料的成分主要有:蛋白质 $\geq 32.0\%$,粗纤维 $\leq 9.0\%$,粗脂肪 $\geq 3.5\%$,粗灰分 $\leq 18.0\%$,总磷 $\geq 1.0\%$,赖氨酸 $\geq 1.4\%$.



图中红色方框包围区域为研究池塘,红色星星代表通量-梯度系统所在位置

图 1 研究区域示意

Fig. 1 Location of the study area

1.2 通量-梯度观测

FG 计算方法的基本假设是在近地层中物质的传输与其物理属性的梯度成正比,其比例系数即为湍流扩散系数 K ^[20],通量-梯度计算方法如公式(1)所示:

$$F = c\rho_a K \frac{r_1 - r_2}{z_1 - z_2} \quad (1)$$

式中, F 代表的是气体通量值 [CO_2 : $\text{mg} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{s})^{-1}$, CH_4 : $\mu\text{g} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{s})^{-1}$, H_2O : $\text{g} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{s})^{-1}$]; r_1 和 r_2 分别代表在 z_1 和 z_2 高度所测得 0.5 h 气体混合比 [CO_2 : $\mu\text{mol} \cdot \text{mol}^{-1}$, CH_4 : $\text{nmol} \cdot \text{mol}^{-1}$, H_2O : $\mu\text{mol} \cdot \text{mol}^{-1}$]. 测量仪器为便携式温室气体分析仪(型号:915-0011-CUSTOM, 美国:Los Gatos Research 公司),其测量原理为离轴积分输出腔光谱技术,该仪器能够同时测量 CO_2 、 CH_4 和 H_2O 浓度值,测量频率为 1 Hz,根据用户手册提供,分析仪测量 3 种气体 (CO_2 、 CH_4 和 H_2O) 的 100 s 测量精度分别为 0.100 $\mu\text{mol} \cdot \text{mol}^{-1}$ 、0.600 $\text{nmol} \cdot \text{mol}^{-1}$ 和 0.060 $\text{mmol} \cdot \text{mol}^{-1}$. 本研究中将原始 1 Hz 数据按照上下进气口分类之后分别计算 30 min 算术平均值; ρ_a 代表空气密度 ($\text{kg} \cdot \text{m}^{-3}$); c 是不同气体的单位转换常数 (CO_2 : 44/29, CH_4 : 16/29, H_2O : 18/29); 湍流扩散系数 K ($\text{m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$),根据空气动力学原理结合莫宁-奥布霍夫相似理论进行确定^[14],如公式(2)所示:

$$K = k\mu_* \times z_g / \varphi_h \quad (2)$$

式中, k 代表 Von-Karma 常数 (≈ 0.4); μ_* 代表摩擦风速 ($\text{m} \cdot \text{s}^{-1}$); z_g 为两个测量高度的几何平均高度 [$z_g = (z_1 z_2)^{1/2}$, m]; φ_h 为关于稳定度参数的普适函数,对于普适函数的确定则使用奥布霍夫稳定方程进行确定,如公式(3)所示:

$$\varphi_h = 1 + 5\zeta \quad (\zeta > 0, \text{稳定条件})$$

$$\varphi_h = (1 - 16\zeta)^{1/2}$$

$$(\zeta < 0, \text{中性或不稳定条件}) \quad (3)$$

式中, ζ 为稳定度参数,利用 z_g/L 进行确定,其中 L 为莫宁-奥布霍夫长度 (m),对于 L 值则使用公式(4)进行确定:

$$L = -\mu_*^3 / [k(g/\theta_v) \overline{\omega'\theta'}] \quad (4)$$

式中, g 是重力加速度 ($\approx 9.8 \text{ m} \cdot \text{s}^{-2}$), θ_v 是虚位温 (K), $\overline{\omega'\theta'}$ 是动量显热通量 ($\text{m} \cdot \text{K} \cdot \text{s}^{-1}$),对于 μ_* 和 $\overline{\omega'\theta'}$ 可以从涡度相关观测数据计算获得. 对于湍流扩散系数 K 值,本研究通过将 FG 方法得到的结果与修正的波文比方法(modified bowen-ratio, MBR 方法)^[21] 计算得到的结果进行比较,验证计算得到 K 值的准确度.

根据 FG 计算原理设计的通量-梯度系统如图 2 所示,放置在距离池塘边 1.5 m 处;两个进气口位于小型池塘内,距离水面的高度设置分别为 0.35 m 和 1.05 m,利用外置泵(流速: $1.5 \text{ L} \cdot \text{min}^{-1}$) 对上下进气口两条管路同时进行抽气并进行气体分析. 气体在进入分析仪之前,首先通过 $7 \mu\text{m}$ 的空气过滤器(型号:SS-4FW-7, 美国:Swagelok 公司)进行过滤,之后通过 4 L 的混合瓶使其充分混合(可以保证在测量过程中不受空气湍流波动的影响),最后利用电磁阀(型号:T3NCSS-078, 美国:IQ Valves 公司)对上下进气口的气体进行梯度切换,切换时间为 60 s. 并且,为了降低切换对测量的影响,尽量缩短电磁阀和分析仪之间的距离(实际距离为: 0.1 m). 同时为了防止在夏季夜晚野外观测时通量-梯度系统管路出现凝露现象,致使仪器抽取水分损坏仪器,因此,在整个便携式通量-梯度系统内部加了一圈恒温加热系统,在实验期间设定其温度为 30°C . 在实验观测期间,仪器大约需要 25 s 切换后能够达到稳定状态. 图 3 是在实验观测期间节选的 5 min 气体

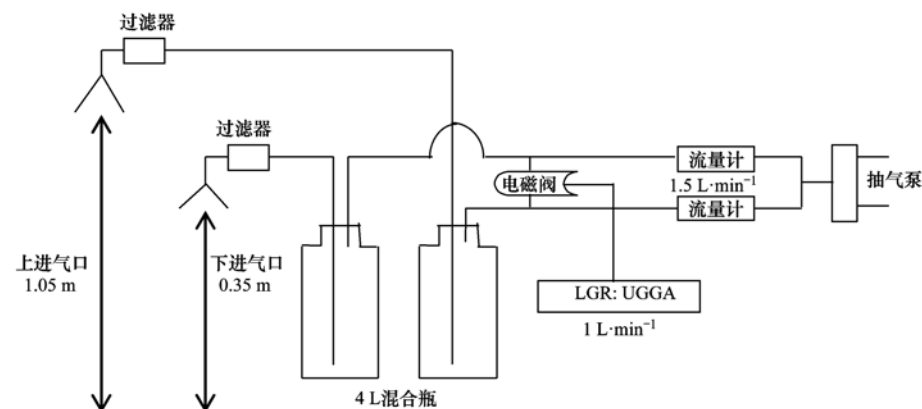
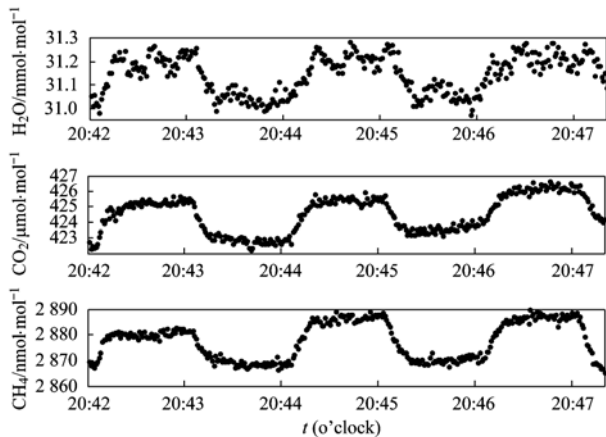


图 2 通量-梯度系统的设计

Fig. 2 Schematic design diagram of flux-gradient system

原始浓度变化时间序列,在这 5 min 的测量过程中,3 种气体(H_2O 、 CO_2 和 CH_4) 的浓度梯度差分别为 $0.156 \text{ mmol}\cdot\text{mol}^{-1}$ 、 $2.450 \text{ }\mu\text{mol}\cdot\text{mol}^{-1}$ 和 $15 \text{ nmol}\cdot\text{mol}^{-1}$,可以证明该通量-梯度系统能够观测到大气中气体的梯度变化. 为了保证通量-梯度系统具有足够的精度测量水-气界面温室气体交换通量,本研究通过零梯度测试定量验证通量-梯度系统及配套分析仪的测量偏差及精度.



实验观测期间:2015-07-20(日序:201 d)20:42~20:47

图3 H_2O 、 CO_2 和 CH_4 混合比的 5 min 时间序列

Fig. 3 The 5 min time series of H_2O , CO_2 , and CH_4 mixing ratios

本实验观测期间的风向玫瑰图如图 4(a) 所示. 由于小型池塘附近下垫面类型较多,为保证信号来源全部来自小型池塘内部,因此对数据信号作风向筛选,所选择的风向范围为 $92^\circ \sim 106^\circ$ 和 $161^\circ \sim 182^\circ$,在这两个风向范围内可以保证信号来源不受其他下垫面类型的信号以及仪器支架的干扰,实际观测中 $161^\circ \sim 182^\circ$ 风向范围内的数据量较少,因此忽略不计. 根据 FSAM 模型^[22] 计算得到,在 $92^\circ \sim$

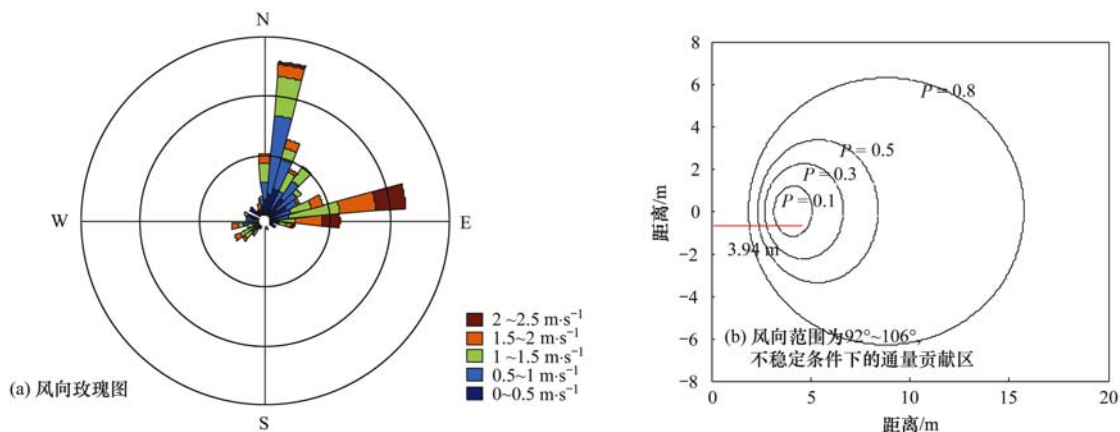
106° 风向范围内,大部分数据处于大气层结不稳定条件下,其通量贡献区中对观测通量贡献最大的点距离观测点的水平距离为 3.94 m,当其通量贡献率(P)为 80% 时,通量-梯度方法测定的代表面积约为 118 m^2 [图 4(b)],同时结合鱼塘的边界范围,可以保证在 $92^\circ \sim 106^\circ$ 风向范围内的所有数据信号全部来自小型池塘内部.

1.3 涡度相关观测

本研究中涡度相关观测系统距离通量-梯度系统水平距离为 2 m,架设高度距离水面 1.5 m,观测仪器主要包括两部分:三维超声风速仪(测量三维风速/超声虚温,型号:CSAT3A,美国:Campbell Scientific 公司)和开路式红外气体分析仪(测量大气 H_2O 和 CO_2 密度,型号:EC150,美国:Campbell Scientific 公司),采样频率均为 10 Hz,由数据采集器(型号:CR3000,美国:Campbell Scientific 公司)在线计算 30 min 平均的动量、感热、潜热和 CO_2 通量等数据. 对 EC 测量的通量数据后处理过程包括:①根据降水记录值进行剔除;②对数据进行两次坐标旋转^[23];③进行超声虚温订正和密度响应校正(WPL 校正)^[16,23].

1.4 修正的波文比方法(modified bowen-ratio, MBR 方法)

MBR 方法主要用来估计痕量气体的交换速率^[21],其基本假设认为所有的气体传输系数(k)值相同,计算公式如公式(5)所示. 假设有两种不同的气体(1 号和 2 号),其气体浓度分别为 c_1 和 c_2 ,其中 F_{c_1} 为已知气体(1 号)通量值,并且已知 Δc_1 和 Δc_2 ,分别为 1 号和 2 号气体的浓度梯度差,根据 MBR 方法的假设,由于所有气体的传输系数 k 值相



图(b)中 P 代表水平通量贡献率,红线代表对观测通量贡献最大的点距离观测点的水平距离(m)

图4 实验观测期间风向玫瑰图及通量贡献区

Fig. 4 Wind rose and flux footprint during experimental observation period

同,因此根据公式(5)即可求得 2 号气体通量 F_{c_2} (假设两种气体两个观测高度差相等,即 $\Delta z_1 = \Delta z_2$, 其中 Δz 已经包括在 k 值的计算中).

$$F_{c_2} = F_{c_1} \frac{\Delta c_2}{\Delta c_1} = k \Delta c_2 \quad (5)$$

在本研究中,由于 EC 观测得到的潜热通量 (latent flux, LE) 和 FG 方法观测得到的潜热通量具有较好的一致性(图 5). 因此,利用 EC 观测得到的水汽通量值和 FG 观测到的 H_2O 浓度差结合公式(5)计算气体交换系数 k ,再结合 FG 观测得到的 CO_2 和 CH_4 浓度梯度差,利用公式(5)计算 CO_2 通量和 CH_4 通量,将 MBR 方法计算结果和 FG 计算结果进行对比,验证 FG 方法中对于湍流扩散系数 K 值计算的准确度.

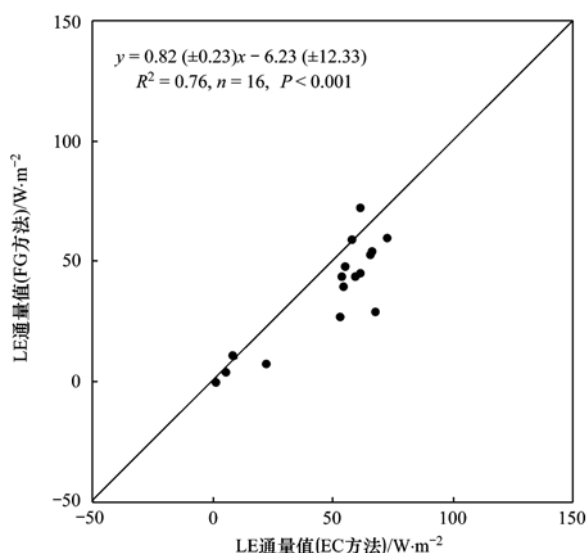


图 5 比较梯度相关和通量-梯度方法计算得到的潜热通量

Fig. 5 Comparison of latent flux (LE) calculated with the EC method and the FG method

1.5 辅助观测

其他辅助观测包括风速风向传感器(型号: 05103, 美国: R M Young 公司), 架设高度距离水面 3.5 m, 测量频率为 1 Hz, 为了配合通量数据计算, 将风速和风向数据计算为 30 min 矢量平均.

2 结果与讨论

2.1 FG 方法稳定性测试

2.1.1 零梯度测试结果

零梯度测试方法是将通量-梯度系统的两个进气口放置在同一高度上进行测量. 本套通量-梯度系统共进行了两次零梯度测试, 分别是在实验室内和野外进行. 第一次测试时间从日序 128 d 的 21:30 到日序 129 d 的 19:00, 这段期间的数据主要用来分析通量-梯度系统测量 0.5 h 气体混合比差 (混合比差等于下进气口气体浓度减去上进气口气体浓度) 的偏差. 第二次测试时间从日序 195 d 的 16:00 到日序 196 d 的 17:00, 这段期间的数据主要用来分析通量-梯度系统测量气体通量的偏差.

零梯度测试期间 3 种气体 (H_2O 、 CO_2 、 CH_4) 0.5 h 的混合比差的平均值和标准差及频数分布图分别如表 1 和图 6 所示, 0.5 h H_2O 混合比差的标准差为 $0.006 \text{ mmol} \cdot \text{mol}^{-1}$, 约小于零梯度测试期间大气中 H_2O 浓度 ($19.776 \text{ mmol} \cdot \text{mol}^{-1}$) 3 个量级; 同样地, CO_2 和 CH_4 的 0.5 h 混合比差的标准差分别为 $0.110 \text{ } \mu\text{mol} \cdot \text{mol}^{-1}$ 和 $0.104 \text{ nmol} \cdot \text{mol}^{-1}$, 小于零梯度测试期间大气浓度值 (CO_2 : $461.830 \text{ } \mu\text{mol} \cdot \text{mol}^{-1}$, CH_4 : $2.072 \text{ nmol} \cdot \text{mol}^{-1}$) 的 3 个量级. 同时根据图 6 中 3 种气体 0.5 h 混合比差的频数分布图可以看出, H_2O 、 CO_2 、 CH_4 混合比差的变化区间分别为 $-0.010 \sim 0.012 \text{ mmol} \cdot \text{mol}^{-1}$ 、 $-0.400 \sim$

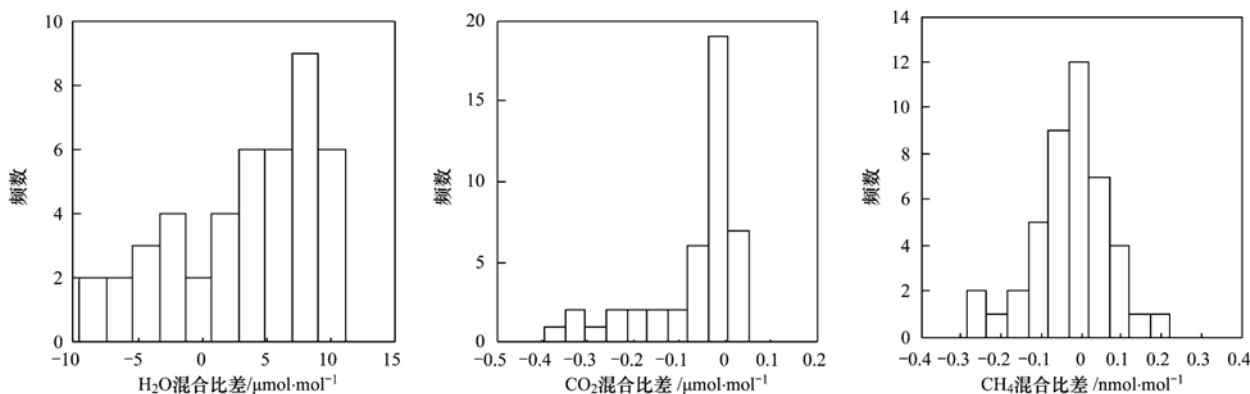


图 6 零梯度测试期间 H_2O 、 CO_2 、 CH_4 的混合比差频数分布

Fig. 6 Frequency distribution of the H_2O , CO_2 , and CH_4 mixing ratio differences during the zero-gradient test

0.100 $\mu\text{mol}\cdot\text{mol}^{-1}$ 、 $-0.300\sim0.200\text{ nmol}\cdot\text{mol}^{-1}$. 该结果表明通量-梯度系统测量气体浓度梯度的偏差较小,并且偏差范围分布较为集中.

表1 零梯度测试期间0.5 h的H₂O、CO₂、CH₄的混合比差的平均值和标准差

项目	混合比差		
	H ₂ O/ $\text{mmol}\cdot\text{mol}^{-1}$	CO ₂ / $\mu\text{mol}\cdot\text{mol}^{-1}$	CH ₄ / $\text{nmol}\cdot\text{mol}^{-1}$
平均值	0.003	-0.070	0.032
标准差	0.006	0.110	0.104

当上下进气口在同一高度进行零梯度测试时,潜热通量(LE)、CO₂通量(F_c)以及CH₄通量(F_m)的理想值应为0. 本研究零梯度测试的LE、 F_c 、 F_m

的平均值及标准差和频数分布图分别如表2和图7所示,零梯度测试期间LE、 F_c 、 F_m 的平均值($\pm$ 标准差)分别为 $-7.443(\pm 7.525)\text{ W}\cdot\text{m}^{-2}$ 、 $-0.004(\pm 0.022)\text{ mg}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{s})^{-1}$ 和 $-0.077(\pm 0.054)\mu\text{g}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{s})^{-1}$,其量级都较小. 同时由图7频数分布可知,对于LE和 F_c ,其中80%的数据所在的范围是 $-11.347\sim2.712\text{ W}\cdot\text{m}^{-2}$ 和 $-0.030\sim0.030\text{ mg}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{s})^{-1}$,90%的 F_m 数据落在 $-0.150\sim-0.040\mu\text{g}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{s})^{-1}$ 范围. 在零梯度测试期间,湍流扩散系数K的平均值和标准差分别为 $0.045\text{ m}^2\cdot\text{s}^{-1}$ 和 $0.014\text{ m}^2\cdot\text{s}^{-1}$,K值的变化范围为 $0.022\sim0.075\text{ m}^2\cdot\text{s}^{-1}$. 该结果表明通量-梯度系统测量气体通量值具有较低的测量偏差,并且测量偏差分布范围较为集中.

表2 零梯度测试期间0.5 h的H₂O、CO₂、CH₄的通量和湍流扩散系数K的平均值和标准差

项目	通量值			扩散系数
	LE/ $\text{W}\cdot\text{m}^{-2}$	$F_c/\text{mg}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{s})^{-1}$	$F_m/\mu\text{g}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{s})^{-1}$	$K/\text{m}^2\cdot\text{s}^{-1}$
平均值	-7.443	-0.004	-0.077	0.045
标准差	7.525	0.022	0.054	0.014

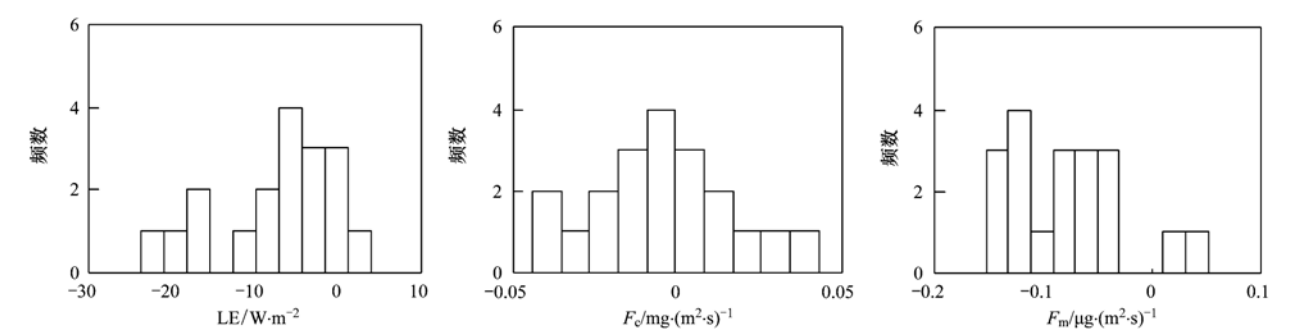


图7 零梯度测试期间H₂O、CO₂、CH₄的通量频数分布

Fig. 7 Frequency distribution of the H₂O, CO₂, and CH₄ fluxes during the zero-gradient test

零梯度测试期间所测得的气体混合比差及通量值的标准差可以作为此套通量-梯度系统及分析仪的测量精度值^[14]. 与其他公开发表文献的零梯度测试结果进行比较,比较结果如表3和表4所示:①本套通量-梯度系统观测到的H₂O和CO₂混合比差较太湖^[14]、Lake Gårdsjön研究结果^[21]偏高一些,

CH₄偏差则较小,总体上处于合理范围之内;②与文献调研得到的CH₄通量测试结果比较,本研究的零梯度测试通量结果处于中上等位置. 综合以上结果可以证明本套通量-梯度系统的零梯度测试结果具有较低的测量偏差,可以保证本套通量-梯度系统具有足够的精度测量气体交换通量.

表3 本研究与不同文献中零梯度测试得到气体混合比差的结果¹⁾

测量地点	测量方法	气体混合比差			文献
		H ₂ O/ $\mu\text{mol}\cdot\text{mol}^{-1}$	CO ₂ / $\mu\text{mol}\cdot\text{mol}^{-1}$	CH ₄ / $\text{nmol}\cdot\text{mol}^{-1}$	
太湖	通量-梯度方法	-0.740 (± 20)	-0.033 (± 0.041)	0.200 (± 0.360)	[14]
Lake Gårdsjön	通量-梯度方法	-1.100 (± 3.200)	0.033 (± 0.026)	—	[21]
水稻田	通量-梯度方法	—	—	0.200	[18]
小型池塘(本研究)	通量-梯度方法	3.320 (± 5.550)	-0.070 (± 0.110)	0.032 (± 0.104)	本研究

1) 括号中的数字代表相应的标准差;“—”表示文献中没有相关数据,下同

表 4 本研究与不同文献中零梯度测试得到气体通量的结果

Table 4 Gas flux during zero-gradient test in this study and in other literature researches

测量地点	测量方法	气体通量值			文献
		$LE/W \cdot m^{-2}$	$F_c/mg \cdot (m^2 \cdot s)^{-1}$	$F_m/\mu g \cdot (m^2 \cdot s)^{-1}$	
太湖	通量-梯度方法	$-0.050 (\pm 4.800)$	$-0.008 (\pm 0.010)$	$0.016 (\pm 0.029)$	[14]
泥炭地	闭路式箱式法	—	—	0.026	[24]
	波文比能量平衡法	—	—	0.600 ~ 7.080	
乳牛场	涡度相关方法	—	—	$0.670 (\pm 0.530)$	[25]
池塘	自动箱式法	—	—	0.053	[12]
小型池塘(本研究)	通量-梯度方法	$-7.443 (\pm 7.525)$	$-0.004 (\pm 0.022)$	$-0.077 (\pm 0.054)$	本研究

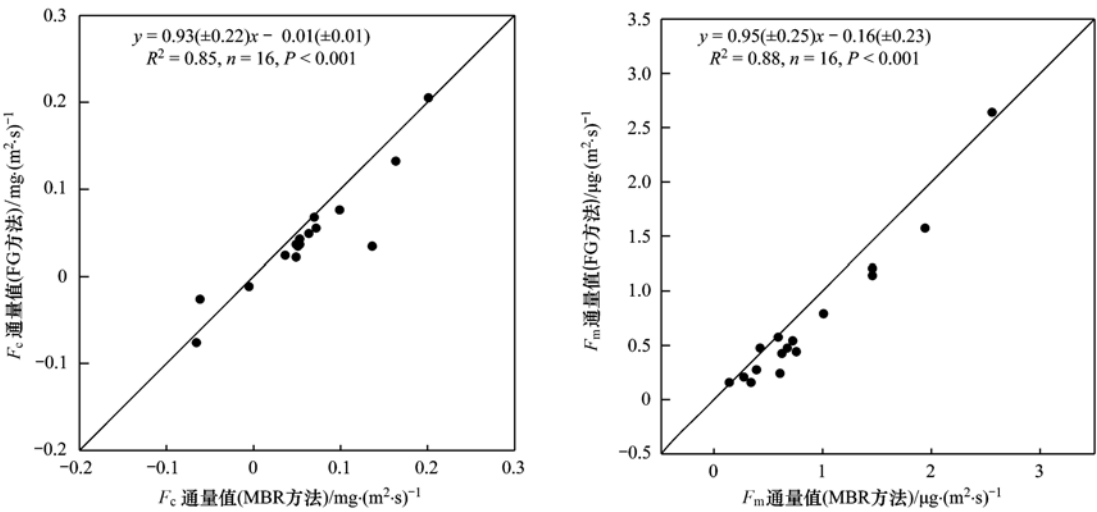


图 8 比较由 MBR 方法和 FG 方法计算的 F_c 和 F_m 通量值

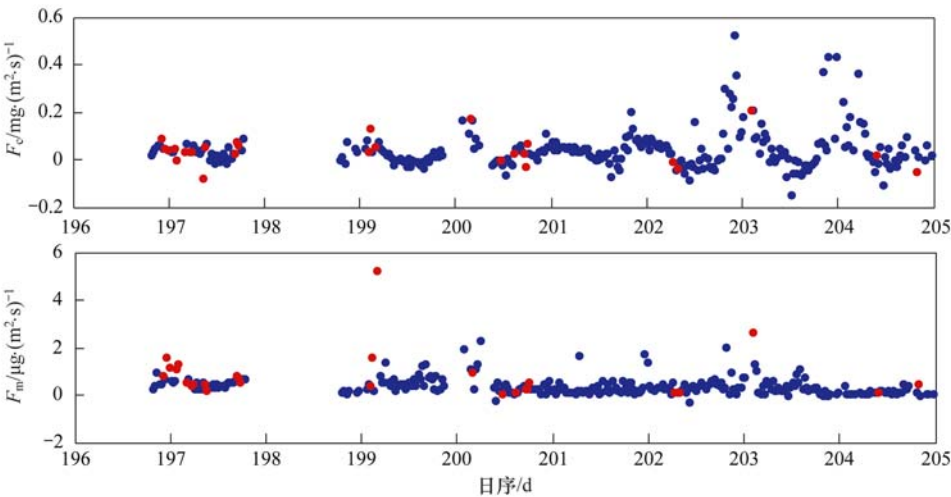
Fig. 8 Comparison of CO_2 flux (F_c) and CH_4 flux (F_m) measured by the FG method with that calculated by the MBR method

2.1.2 FG 和 MBR 方法计算结果比较

FG 方法和 MBR 方法所计算得到的 CO_2 和 CH_4 通量比较结果如图 8 所示. 对于 F_c , 两种计算方法得到结果的平均误差 (mean error, ME, FG-MBR)、均方根误差 (root mean squares error, RMSE) 以及一致性指数 (index of agreement, IOA) [26] 分别为 $-0.010 \text{ mg} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{s})^{-1}$ 、 $0.028 \text{ mg} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{s})^{-1}$ 和 0.948. 对于 F_m , 两者的 ME、RMSE 以及 IOA 分别为 $-0.147 \text{ } \mu\text{g} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{s})^{-1}$ 、 $0.180 \text{ } \mu\text{g} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{s})^{-1}$ 和 0.968. 以上的比较分析结果表明, MBR 方法和 FG 方法计算的 CO_2 和 CH_4 通量之间具有较小的误差和较高的一致性, 因此可以判断 FG 方法中对于 K 值的计算是准确的. 并且, 在实验观测期间大气稳定度 ζ 所处范围 $-0.2 \sim 0.2$, 有利于 K 值的计算. 通过以上对零梯度测试结果以及 FG 方法和 MBR 方法计算结果的比较, 可以证明本套通量-梯度系统具有较高测量精度, 并且可以用于水-气界面气体交换通量的观测.

2.2 小型池塘温室气体排放通量

正常观测期间 CO_2 和 CH_4 通量的时间序列如图 9 所示, 其分别表示了来自陆地与池塘的通量信号. 为更加清晰了解池塘的温室气体通量排放强度及变化范围, 只挑选来源于池塘信号温室气体通量数据进行分析. 实验观测期间, 池塘水-气界面 CO_2 通量有 80% 的数据高于零梯度测试精度 [CO_2 : $0.022 \text{ mg} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{s})^{-1}$], 其平均排放量为 $0.038 (\pm 0.060) \text{ mg} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{s})^{-1}$, 变化范围为 $-0.066 \sim 0.207 \text{ mg} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{s})^{-1}$, 在整个测量时间段出现吸收峰值和排放峰值的时间分别为日序 197 d 的 09:00 和日序 203 d 的 02:00. 观测的 CH_4 通量有 94% 的数据高于零梯度测试精度 [CH_4 : $0.054 \text{ } \mu\text{g} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{s})^{-1}$], 其平均排放量为 $0.889 (\pm 1.051) \text{ } \mu\text{g} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{s})^{-1}$, 变化范围为 $0.040 \sim 5.239 \text{ } \mu\text{g} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{s})^{-1}$, 在整个测量时间段出现最低值和最高值的时间分别为日序 200 d 的 11:00 和日序 199 d 的 03:30.



图中红色点代表风向来源于池塘方向的信号,蓝色点代表风向来源于陆地的信号

图9 CO₂ 和 CH₄ 通量的时间序列

Fig. 9 Time series of CO₂ and CH₄ flux

表5 不同时间段的 CO₂ 及 CH₄ 通量值¹⁾

Table 5 CO₂ and CH₄ fluxes in different time periods

项目	00:00 ~ 06:00 (n = 8)	06:30 ~ 12:00 (n = 6)	12:30 ~ 18:00 (n = 7)	18:30 ~ 23:30 (n = 5)
$F_c/\text{mg} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{s})^{-1}$	0.076 (0.068)	-0.006 (0.051)	0.018 (0.038)	0.063 (0.040)
$F_m/\mu\text{g} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{s})^{-1}$	1.662 (1.475)	0.194 (0.152)	0.483 (0.278)	1.215 (0.370)

1) n 代表相应时段的数据量; 通量后面括号里的数值代表相应时段的标准差

为清晰了解池塘温室气体交换的日变化特征,对温室气体通量按照不同的时间段进行统计分析.将一天分为4个时间段,不同时间段对应的气体通量值如表5所示,对于CO₂通量,池塘白天水-气界面CO₂通量总体为净排放,其平均值为0.006 mg·(m²·s)⁻¹,排放量值较小,主要是在06:30~12:00这段期间出现了CO₂的净吸收现象,而在夜晚全部为净排放,其排放量平均值为0.070 mg·(m²·s)⁻¹,远高于白天排放值.决定水体是CO₂的源还是汇主要取决于水体新陈代谢的结果^[4],当水体中的水生植物进行光合作用的强度高于水体中植物及微生物呼吸作用强度时,池塘作为CO₂的汇,反之呼吸作用占主导因子时,池塘作为CO₂的源.白天池塘中的水生植物进行光合作用吸收固定二氧化碳,当光合作用大于呼吸作用时,可能会产生部分CO₂吸收现象,而在夜晚由于没有太阳辐射,植物以及底泥的微生物只进行呼吸作用,释放CO₂,因此池塘呈现CO₂排放源.总体来说该小型池塘在夏季表现为CO₂的排放源.对于CH₄通量,在夏季小型池塘为排放源,并且在夜晚排放的平均值[1.439 μg·(m²·s)⁻¹]高于白天排放的平均值[0.339 μg·(m²·s)⁻¹].甲烷主要是底泥中甲烷细

菌在厌氧条件下分解有机质而产生的^[27].本研究中CH₄的排放值夜晚高于白天,一方面由于夜晚池塘植物及微生物进行呼吸作用时会消耗大量氧气,产生厌氧环境,这有利于甲烷的产生;另一方面,由于池塘水深较浅,白天强烈的太阳辐射会导致池塘出现上层水温高于下层水温的稳定热力层结情况,不利用甲烷的扩散,而在夜晚水体辐射冷却出现下层水温高于上层水温的不稳定热力层结,水层容易混合,因此更有利于甲烷的传输^[28].

为了明确该小型池塘夏季温室气体排放量值在不同区域、不同气候条件下小型水体排放量值中所处的水平,同时也为了解在不同地区、不同气候条件及不同季节的条件下,造成小型池塘温室气体排放差别的可能原因,将本研究结果与已有研究结果进行对比,其中杨平等^[29]在2011年10月20~21日使用箱式法测量闽江口养虾塘(面积:330 m²;平均水深:0.8 m)和鱼虾混养塘(面积:650 m²;平均水深:1.0 m)水-气界面温室气体交换通量,观测结果显示在秋季2个养殖塘全天整体上表现为CO₂的汇和CH₄的源,其中养虾塘CO₂和CH₄通量的平均值分别为-0.014 mg·(m²·s)⁻¹和0.280 μg·(m²·s)⁻¹,鱼虾混养塘CO₂和CH₄通量的平均

值分别为 $-0.029 \text{ mg} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{s})^{-1}$ 和 $1.590 \text{ } \mu\text{g} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{s})^{-1}$, 与本研究结果小型池塘在夏季为大气 CO_2 的源不同, 闽江口的两个养殖塘在秋季都表现为大气 CO_2 的汇, 产生差异的原因主要是由于两者水体中水温和初级生产力水平不同有关. 其中本研究观测在夏季, 观测期间水温的变化范围为 $26.1 \sim 30.5^\circ\text{C}$, 平均值为 27.4°C , 一方面当水温较高时会加快水中微生物分解作用, 另一方面本研究池塘的有机质浓度主要来源于底泥残余有机饲料、腐败水草等, 池塘内的水生植物较少, 因此当在整体光合强度较弱的条件下, 呼吸强度占主导因素, 小型池塘表现为 CO_2 的排放源. 而闽江口池塘观测研究在秋季, 其池塘的水温变化范围为 $19.5 \sim 20.6^\circ\text{C}$, 平均值为 20.5°C , 其水温相对本研究较低, 并且闽江口研究的两个养殖塘其水体有机质主要来源于水体中较多的水生浮游植物, 其含有较多能够反映光合作用水平的叶绿素 a ^[30], 因此整体光合作用强度高于呼吸作用强度, 最终池塘表现为 CO_2 的汇.

利用箱式法对瑞典 Linköping 大学附近的一处小型浅水池塘 (面积: 1200 m^2 , 平均水深: 1.2 m , 观测时间 2010-06-21 ~ 2010-10-10) 温室气体通量观测研究表明^[31], 其小型池塘生长季节里的 CH_4 和 CO_2 平均排放量分别为 $1.480 (\pm 0.570) \text{ } \mu\text{g} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{s})^{-1}$ 和 $0.001 (\pm 0.004) \text{ mg} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{s})^{-1}$, 总体为温室气体的排放源, 与本研究结果类似, 但是与本研究的量值存在差异. 本研究的小型池塘的 CH_4 排放量偏小, 主要是由于高纬度水体中存在更多的有机质, 因此产生 CH_4 的底物较为丰富, 从而会出现较高的 CH_4 排放量. 同时与该研究比, 本研究的 CO_2 的排放量偏高, 产生此现象的原因除了与高纬度地区气温低于本研究亚热带区域, 从而不利于呼吸作用之外, 还与池塘的生产力有关, 此研究的小型池塘含有大量的水生植物 (包括芦苇、宽叶香蒲和眼子菜等), 其光和作用强度相比本研究较高, 因此, 在高光合作用及较低的呼吸作用下, Linköping 大学附近的小型浅水池塘 CO_2 排放量偏小. 根据 Holgerson 等^[1] 的调研统计结果, 其中处于 $0.001 \sim 0.01 \text{ km}^2$ 范围内的水体温室气体 (CO_2 和 CH_4) 排放通量分别为 $0.040 (\pm 0.010) \text{ mg} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{s})^{-1}$ 和 $0.160 (\pm 0.040) \text{ } \mu\text{g} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{s})^{-1}$, 本研究中长江三角洲地区小型池塘的结果与其相比, CO_2 排放量相当, 本研究的 CH_4 排放量高于调研统计的 CH_4 排放量, 这主要是由于 Holgerson 等^[1] 在调研统计过程中对于 CH_4 通量, 只考虑了

CH_4 以扩散方式排放的通量, 并没有计算以冒泡形式排放的 CH_4 通量, 而相比扩散, 在水体中以冒泡形式排放的甲烷所占比例约为 50%^[6], 特别是在浅水湖泊^[31]、热溶喀斯特池塘^[32] 和 水体边缘^[27] 等区域容易产生甲烷冒泡现象. 因此, 忽略甲烷以冒泡形式排放的通量会产生严重低估现象, 而本研究所使用的通量-梯度方法可以观测到 CH_4 以所有方式排放的通量值, 因此 CH_4 排放量较 Holgerson 等^[1] 的调研结果偏高.

进一步了解池塘温室气体排放过程中 CO_2 和 CH_4 所占的比例. 本研究结果表明, CO_2 和 CH_4 含碳比值为 12.26, 而百年尺度上甲烷的全球温室潜能是相同质量 CO_2 的 25 倍^[33], 将 CH_4 转换为 CO_2 当量之后, 其含 C 通量比值 (CO_2/CH_4) 为 1.35. 而 Holgerson 等^[1] 的统计结果表明处于 $0.001 \sim 0.01 \text{ km}^2$ 范围内的水体的 CO_2 和 CH_4 排放碳通量的比值为 3.57, 并且随着水体面积范围的增大, 其比值不断增加. 本研究与文献的调研结果都表明小型池塘在温室气体排放过程其 CH_4 相比 CO_2 占有更重要的角色. 本研究结果 C 通量比值更低的原因同样是因为, 在通量估算过程中, 文献统计结果只考虑了扩散, 而没有对甲烷冒泡通量进行考虑, 对甲烷的排放产生了低估.

3 结论

(1) 零梯度测试结果表明本套通量-梯度系统具有较高的测量精度和较小的测量偏差, 并且在正常实验观测期间通量观测数据 (H_2O 、 CO_2 和 CH_4) 分别有 84%、80% 和 94% 的结果高于零梯度测试精度. 同时将本研究的零梯度测试结果与其他文献零梯度测试结果对比, 本研究的测试结果处于中上等位置, 再次表明本套通量-梯度系统有足够的测量精度满足温室气体交换通量的观测.

(2) FG 方法测得的 CO_2 与 CH_4 通量和 MBR 方法计算结果具有较好的一致性, 表明 FG 方法中对于 K 的计算准确.

(3) 基于通量-梯度观测本研究的小型池塘在夏季为 CO_2 和 CH_4 的排放源, 观测期间其排放量分别为 $0.038 (\pm 0.060) \text{ mg} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{s})^{-1}$ 和 $0.889 (\pm 1.051) \text{ } \mu\text{g} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{s})^{-1}$, 夜晚温室气体排放量高于白天排放值, 并且小型池塘中 CH_4 排放相比 CO_2 排放占有更重要的角色.

(4) 本研究的结果由于只进行了夏季的观测, 因此无法清晰了解小型池塘温室气体通量的季节动

态变化特征,为了准确定量估算内陆水体中小型池塘的温室气体排放量特别是 CH_4 排放量,在未来的工作中需要进行长期连续的温室气体交换通量测量,在长期测量过程中,应配套使用稳定性更佳的分析仪,并且注意在平时加强仪器维护工作,以期得到更完善的测量结果,为准确估算区域水体温室气体交换通量提供科学依据。

参考文献:

- [1] Holgersson M A, Raymond P A. Large contribution to inland water CO_2 and CH_4 emissions from very small ponds[J]. *Nature Geoscience*, 2016, **9**(3): 222-226.
- [2] Hope D, Kratz T K, Riera J L. Relationship between pCO_2 and dissolved organic carbon in northern Wisconsin lakes[J]. *Journal of Environmental Quality*, 1996, **25**(6): 1442-1445.
- [3] Kelly C A, Fee E, Ramlal P S, *et al.* Natural variability of carbon dioxide and net epilimnetic production in the surface waters of boreal lakes of different sizes [J]. *Limnology and Oceanography*, 2001, **46**(5): 1054-1064.
- [4] Kortelainen P, Rantakari M, Huttunen J T, *et al.* Sediment respiration and lake trophic state are important predictors of large CO_2 evasion from small boreal lakes[J]. *Global Change Biology*, 2006, **12**(8): 1554-1567.
- [5] Kankaala P, Huotari J, Tulonen T, *et al.* Lake-size dependent physical forcing drives carbon dioxide and methane effluxes from lakes in a boreal landscape[J]. *Limnology and Oceanography*, 2013, **58**(6): 1915-1930.
- [6] Bastviken D, Cole J, Pace M, *et al.* Methane emissions from lakes: dependence of lake characteristics, two regional assessments, and a global estimate[J]. *Global Biogeochemical Cycles*, 2004, **18**(4), doi: 10.1029/2004GB002238.
- [7] Bastviken D, Tranvik L J, Downing J A, *et al.* Freshwater methane emissions offset the continental carbon sink [J]. *Science*, 2011, **331**(6013): 50.
- [8] Juutinen S, Rantakari M, Kortelainen P, *et al.* Methane dynamics in different boreal lake types [J]. *Biogeosciences*, 2009, **6**(2): 209-223.
- [9] Holgersson M A. Drivers of carbon dioxide and methane supersaturation in small, temporary ponds [J]. *Biogeochemistry*, 2015, **124**(1-3): 305-318.
- [10] Raymond P A, Hartmann J, Lauerwald R, *et al.* Global carbon dioxide emissions from inland waters[J]. *Nature*, 2013, **503**(7476): 355-359.
- [11] 赵炎, 曾源, 吴炳方, 等. 水库水气界面温室气体通量监测方法综述[J]. *水科学进展*, 2011, **22**(1): 135-146.
Zhao Y, Zeng Y, Wu B F, *et al.* Review of methods for measuring greenhouse gas flux from the air-water interface of reservoirs[J]. *Advances in Water Science*, 2011, **22**(1): 135-146.
- [12] Duc N T, Silverstein S, Lundmark L, *et al.* Automated flux chamber for investigating gas flux at water-air interfaces [J]. *Environmental Science & Technology*, 2012, **47**(2): 968-975.
- [13] Podgrajsek E, Sahlée E, Bastviken D, *et al.* Comparison of floating chamber and eddy covariance measurements of lake greenhouse gas fluxes [J]. *Biogeosciences*, 2014, **11**(15): 4225-4233.
- [14] Xiao W, Liu S D, Li H C, *et al.* A flux-gradient system for simultaneous measurement of the CH_4 , CO_2 , and H_2O fluxes at a lake-air interface[J]. *Environmental Science & Technology*, 2014, **48**(24): 14490-14498.
- [15] Miller S D, Marandino C, Saltzman E S. Ship-based measurement of air-sea CO_2 exchange by eddy covariance[J]. *Journal of Geophysical Research-Atmospheres*, 2010, **115**(D2), doi: 10.1029/2009JD012193.
- [16] Lee X, Massman W J. A perspective on thirty years of the Webb, Pearman and Leuning density corrections[J]. *Boundary-Layer Meteorology*, 2011, **139**(1): 37-59.
- [17] Baldocchi D D, Hincks B B, Meyers T P. Measuring biosphere-atmosphere exchanges of biologically related gases with micrometeorological methods[J]. *Ecology*, 1988, **69**(5): 1331-1340.
- [18] Simpson I J, Thurtell G W, Kidd G E, *et al.* Tunable diode laser measurements of methane fluxes from an irrigated rice paddy field in the Philippines[J]. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 1995, **100**(D4): 7283-7290.
- [19] 农业部渔业渔政管理局. 中国渔业统计年鉴 2015 [M]. 北京: 中国农业出版社, 2015. 55-62.
- [20] 于贵瑞, 孙晓敏. 陆地生态系统通量观测的原理与方法 [M]. 北京: 高等教育出版社, 2006. 169-171.
- [21] Meyers T P, Hall M E, Lindberg S E, *et al.* Use of the modified bowen-ratio technique to measure fluxes of trace gases [J]. *Atmospheric Environment*, 1996, **30**(19): 3321-3329.
- [22] 赵晓松, 关德新, 吴家兵, 等. 长白山阔叶红松林通量观测的 footprint 及源区分布[J]. *北京林业大学学报*, 2005, **27**(3): 17-23.
Zhao X S, Guan D X, Wu J B, *et al.* Distribution of footprint and flux source area of the mixed forest of broad-leaved and Korean pine in Changbai Mountain [J]. *Journal of Beijing Forestry University*, 2005, **27**(3): 17-23.
- [23] Lee X, Finnigan J, Paw U K T. Coordinate systems and flux bias error[A]. In: Lee X, Massman W, Law B (Eds.). *Handbook of Micrometeorology*[M]. Netherlands: Springer, 2005. 33-66.
- [24] Chan A S K, Prueger J H, Parkin T B. Comparison of closed-chamber and bowen-ratio methods for determining methane flux from peatland surfaces[J]. *Journal of Environmental Quality*, 1998, **27**(1): 232-239.
- [25] Kroon P S, Hensen A, Jonker H J J, *et al.* Uncertainties in eddy covariance flux measurements assessed from CH_4 and N_2O observations[J]. *Agricultural and Forest Meteorology*, 2010, **150**(6): 806-816.
- [26] Willmott C J. On the validation of models [J]. *Physical Geography*, 1981, **2**(2): 184-194.
- [27] Bastviken D, Cole J J, Pace M L, *et al.* Fates of methane from different lake habitats: Connecting whole-lake budgets and CH_4 emissions[J]. *Journal of Geophysical Research: Biogeosciences*, 2008, **113**(G2), doi: 10.1029/2007JG000608.
- [28] Bartlett K B, Crill P M, Bonassi J A, *et al.* Methane flux from the Amazon river floodplain: emissions during rising water[J]. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 1990, **95**(D10): 16773-16788.
- [29] 杨平, 仝川, 何清华, 等. 闽江口养殖塘水-大气界面温室气体通量日进程特征[J]. *环境科学*, 2012, **33**(12): 4194-4204.

- Yang P, Tong C, He Q H, *et al.* Diurnal variations of greenhouse gas fluxes at the water-air interface of aquaculture ponds in the Min River Estuary [J]. *Environmental Science*, 2012, **33**(12): 4194-4204.
- [30] 吕迎春, 刘丛强, 王仕禄, 等. 贵州喀斯特水库红枫湖、百花湖 $p(\text{CO}_2)$ 季节变化研究[J]. *环境科学*, 2007, **28**(12): 2674-2681.
- Lv Y C, Liu C Q, Wang S L, *et al.* Seasonal variability of $p(\text{CO}_2)$ in the two karst reservoirs, Hongfeng and Baihua lakes in Guizhou Province, China[J]. *Environmental Science*, 2007, **28**(12): 2674-2681.
- [31] Natchimuthu S, Selvam B P, Bastviken D. Influence of weather variables on methane and carbon dioxide flux from a shallow pond [J]. *Biogeochemistry*, 2014, **119**(1-3): 403-413.
- [32] Sepulveda-Jauregui A, Walter Anthony K M, Martinez-Cruz K, *et al.* Methane and carbon dioxide emissions from 40 lakes along a north-south latitudinal transect in Alaska[J]. *Biogeosciences*, 2015, **12**(11): 3197-3223.
- [33] Solomon S, Qin D, Manning M, *et al.* Climate change 2007-the physical science basis: Working group I contribution to the fourth assessment report of the IPCC [M]. Cambridge: Cambridge University Press, 2007. 337-383.

《环境科学》多项引证指标名列前茅

2016 年 10 月 12 日,中国科学技术信息研究所在中国科技论文统计结果发布会上公布了 2015 年度中国科技论文统计结果. 统计结果显示《环境科学》2015 年度总被引频次 8 844, 影响因子 1. 617, 多项引证指标位居环境科学技术及资源科学技术类科技期刊前列.

CONTENTS

Source Apportionment of Volatile Organic Compounds and Health Assessment of Benzene Series in Northern Suburb of Nanjing in Winter	ZHANG Yu-xin, AN Jun-lin, LIN Xu, <i>et al.</i> (1)
Size Distribution and Mixing State of Black Carbon Aerosol in Nanjing During a Heavy Winter Pollution Event	JIANG Lei, TANG Li-li, PAN Liang-bao, <i>et al.</i> (13)
Interactive Effects of the Influencing Factors on the Changes of PM _{2.5} Concentration Based on GAM Model	HE Xiang, LIN Zhen-shan (22)
Particle Size Distribution and Diffusion for Simulated Cooking Fume	LI Shuang-de, XU Jun-bo, MO Sheng-peng, <i>et al.</i> (33)
Greenhouse Gas Fluxes at Water-Air Interface in Small Pond Using Flux-Gradient Method Based on Spectrum Analyzer	ZHAO Jia-yu, ZHANG Mi, XIAO Wei, <i>et al.</i> (41)
Diurnal Variations of Concentration of Porewater Dissolved CH ₄ and CO ₂ in a Brackish Marsh Dominated by <i>Cyperus malaccensis</i> and <i>Phragmites australis</i> During Neap and Spring Tidal Days in the Minjiang River Estuary	TAN Li-shan, YANG Ping, HE Lu-lu, <i>et al.</i> (52)
Comparisons Between Seasonal and Diurnal Patterns of Cave Air CO ₂ and Control Factors in Jiguan Cave, Henan Province, China	ZHANG Ping, YANG Yan, SUN Zhe, <i>et al.</i> (60)
Fluorescence Spectral Characteristics of Fluorescent Dissolved Organic Matter (FDOM) in the Surface Sediments from Lihu Lake	CHEN Jun-yi, WANG Shu-hang, JIANG Xia, <i>et al.</i> (70)
Sedimentary Characteristics and Sources of Organic Matter in Sediments of Dianchi Lake	HAN Xiu-xiu, HUANG Xiao-hu, YU Li-yan, <i>et al.</i> (78)
Seasonal Variation of Colloid Particles in the Shallow Well Water of a Small Watershed of Purple Soil	ZHANG Wei, TANG Xiang-yu, XIAN Qing-song (87)
Deposition Characteristics of Suspended Solids and the Response of Dissolved Nutrients in Spring in the Western Lakeside of Taihu Lake	QI Chuang, WANG Guo-xiang, WU Xin-ting, <i>et al.</i> (95)
Correlation Between LDI-based Land Use Types and Water Quality in Sanshan Island of Taihu Lake National Wetland Park, Suzhou	YANG Zhao-hui, SU Qun, CHEN Zhi-hui, <i>et al.</i> (104)
Response Characteristics of Algal Chlorophyll-a to Nitrogen, Phosphorus and Water Temperature in Lake Erhai Based on Quantile Regression	CHEN Xiao-hua, LI Xiao-ping, QIAN Xiao-yong, <i>et al.</i> (113)
Seasonal Succession Characteristics of the Morphologically-based Functional Groups (MBFG) in Deep-water Reservoir	YANG Yu, LU Jin-suo, ZHANG Ying (121)
Change and Influencing Factors of Dissolved Carbon and Dissolved Nitrogen in Water of the Three Gorges Reservoir	FAN Zhi-wei, HAO Qing-ju, HUANG Zhe, <i>et al.</i> (129)
Characteristics of Nitrogen and Phosphorus Emissions in the Gufu River Small Watershed of the Three Georges Reservoir Area	HUA Ling-ling, LI Wen-chao, ZHAI Li-mei, <i>et al.</i> (138)
Characteristics of Nitrogen Transport and Its Source Trace in Loess Plateau's Dam Watershed in Alternating Wet and Dry Seasons: A Case Study of Yangjuangou Watershed	JIA Jun-jie, GAO Yang, CHEN Wei-liang, <i>et al.</i> (147)
Comparison of Nitrogen and Phosphorus Uptake and Water Purification Ability of Five Submerged Macrophytes	JIN Shu-quan, ZHOU Jin-bo, BAO Wei-hong, <i>et al.</i> (156)
Pollution Level, Distribution Characteristics and Risk Assessment of 32 PPCPs in Surface Water of Luomahu Lake	ZHANG Qin, ZHANG Sheng-hu, WANG Zhen, <i>et al.</i> (162)
Distribution, Sources and Risk Assessment of the PAHs in the Surface Sediments and Water from the Daye Lake	ZHANG Jia-quan, HU Tian-peng, XING Xin-li, <i>et al.</i> (170)
Effects of pH and Complexing Agents on Sb(V) Adsorption onto Birnessite and Ferrihydrite Surface	WANG Hua-wei, LI Xiao-yue, LI Wei-hua, <i>et al.</i> (180)
Effects of UV Radiation on the Coagulation Process of Kaolin and Involved Mechanisms	WANG Wen-dong, WANG Chang-xin, LIU Hui, <i>et al.</i> (188)
Effect of Dissolved Humic Acid on Thyroid Receptor Antagonistic Activity of Zinc in Aquatic Environment	AI Yang, KONG Dong-dong, YU Chang, <i>et al.</i> (195)
Optimization and Validation of the Analytical Method to Detect Common Illicit Drugs in Wastewater	GAO Ting-ting, DU Peng, XU Ze-qiong, <i>et al.</i> (201)
Cathode Electric Field Enhanced Removal of Nitrobenzene from Aqueous Solution Based on Activated Carbon Fibers (ACF)-Ozone Technique	ZHAO Chun, ZHANG Shuai, ZHOU Yu, <i>et al.</i> (212)
Effect of PVDF Hollow Fiber Ultrafiltration Membranes Modification with Carbonnanotube on Membrane Fouling Control During Ultrafiltration of Sewage Effluent	WANG Li-ying, SHI Jie, WANG Kai-lun, <i>et al.</i> (220)
Enhanced Treatment of Petrochemical Secondary Effluent by Biological Aerated Filter (Fe ²⁺)-Ozonation Process	XU Min, WU Chang-yong, ZHOU Yue-xi, <i>et al.</i> (229)
Specificity of Intact Ladderane Lipids in Anaerobic Ammonium Oxidizing Bacteria from Four Reactors	WANG Han, FANG Fang, LI Kai, <i>et al.</i> (238)
Characteristics of Perchlorate Reduction and Analysis of Consortium Structure in a Sulfur-Based Reactor at a High Perchlorate Concentration	ZHANG Chao, TAO Hua-qiang, SONG Yuan-yuan, <i>et al.</i> (247)
Fast Start-up of SBAF System Assisted CANON Process and the Microbial Analysis	LIU Zhu-han, YUE Xiu, YU Guang-ping, <i>et al.</i> (253)
Mechanism for Effects of High Free Ammonia Loadings on Biological Nitrification	JI Min, LIU Ling-jie, ZHAI Hong-yan, <i>et al.</i> (260)
Impact of Biodegradable Organic Matter on the Functional Microbe Activities in Partial Nitrification Granules	WANG Shu-yong, QIAN Fei-yue, WANG Jian-fang, <i>et al.</i> (269)
Process of Enrichment and Culture of PAOs on a Novel Biofilm Process of Dephosphorization	ZHENG Ying, PAN Yang, ZHOU Xiao-hua, <i>et al.</i> (276)
Identification of Efficient Strain Applied to Mining Rehabilitation and Its Rock Corrosion Mechanism: Based on Boosted Regression Tree Analysis	WU Yan-wen, ZHANG Jin-chi, GUO Xiao-ping, <i>et al.</i> (283)
Effect of Cadmium on Biodegradation of Nonylphenol by <i>Pseudomonas aeruginosa</i>	SHI Guang-yu, CHENG Yuan-yuan, SHI Wei-lin (294)
Effects of Different Agricultural Practices on Soil Carbon Pool in North China Plain	SHI Xiao-xia, ZHAO Yi, ZHANG Lin, <i>et al.</i> (301)
Seasonal Variations of Soil Microbial PLFAs and Soil Enzyme Activity Under the Citrus Plantation in Mt. Jinyun, Chongqing	LI Nan-jie, ZENG Qing-ping, HE Bing-hui, <i>et al.</i> (309)
Composition and Environmental Adaptation of Microbial Community in Shibaohe Copper Tailing in Zhongtiao Mountain in Shanxi	LIU Jin-xian, LI Cui, JING Jun-hui, <i>et al.</i> (318)
Spatial Distribution and Source of Perfluorinated Compounds in Urban Soil from Part of Cities in Anhui Province, China	LI Fa-song, NI Hui, HUANG Han-yu, <i>et al.</i> (327)
Effects of Biochar Pyrolyzed at Varying Temperatures on Soil Organic Carbon and Its Components; Influence on the Soil Active Organic Carbon	ZHAO Shi-xiang, YU Xiao-ling, LI Zhong-hui, <i>et al.</i> (333)
Effects of Different Water Managements and Soil Eh on Migration and Accumulation of Cd in Rice	TIAN Tao, ZENG Min, ZHOU Hang, <i>et al.</i> (343)
Mechanism of Soil Eco-Functional Stability Under Pyrene/Cadmium Simplex and Combined Pollution Stress	CHEN Xin-yao, YANG Hui-zi, LI Min, <i>et al.</i> (352)
Fractions Transformation of Heavy Metals in Compound Contaminated Soil Treated with Biochar, Montmorillonite and Mixed Addition	GAO Rui-li, TANG Mao, FU Qing-ling, <i>et al.</i> (361)
Screening of the Reduction/Stabilization Reagent for Cr(VI) Contaminated Soil in a Planting Site and Reaction Process Monitoring	LI Pei-zhong, LÜ Xiao-jian, WANG Hai-jian, <i>et al.</i> (368)
Cd(II) Ion Adsorption and Sealing onto SBA-15 Mesoporous Particles and the Related Potential on Cd(II) Polluted Soil Remediation	HUANG Hui, NING Xi-cui, GUO Zhan-yu, <i>et al.</i> (374)
Bioaccumulation of Halogenated Flame Retardants in Fish of Dongjiang River	HE Ming-jing, YANG Ting, LI Qi, <i>et al.</i> (382)
Characteristics and Evaluation of Heavy Metal Pollution in Vegetables in Guangzhou	CHEN Zhi-liang, HUANG Ling, ZHOU Cun-yu, <i>et al.</i> (389)
Variation Characteristics of Vegetables Cadmium Uptake Factors and Its Relations to Environmental Factors	YANG Yang, LI Yan-ling, CHEN Wei-ping, <i>et al.</i> (399)
Effect of Sewage Sludge Compost Products Application on Total Mercury and Methylmercury in Soil and Plants	YU Ya-wei, YANG Yu-han, ZHANG Cheng, <i>et al.</i> (405)
Influencing Mechanism and Spatio-temporal Pattern of Stomatal Ozone Flux of Winter Wheat Under Ozone Pollution	ZHAO Hui, ZHENG You-fei, CAO Jia-chen, <i>et al.</i> (412)

《环境科学》第6届编辑委员会

主 编: 赵进才

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 刘 毅 汤鸿霄 孟 伟 周宗灿 林金明
赵进才 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)

2017年1月15日 第38卷 第1期

ENVIRONMENTAL SCIENCE

(Monthly Started in 1976)

Vol. 38 No. 1 Jan. 15, 2017

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	赵进才	Editor-in -Chief		ZHAO Jin-cai
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	北京宝昌彩色印刷有限公司	Printed	by	Beijing Baochang Color Printing Co., Ltd.
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	中国国际图书贸易集团有限公司 (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: 140.00元

国外发行代号: M 205

国内外公开发行人

ISSN 0250-3301



9 770250 330172