

Distribution and Fluxes of Nitrous Oxide in the Bohai Sea in Summer

Da Song, Guiling Zhang, Peipei Li, Sumei Liu

Key Laboratory of Marine Chemistry Theory and Technology, Ministry of Education, Ocean University of China, Qingdao Shandong

Email: mu_mu_sd@aliyun.com

Received: May 4th, 2015; accepted: May 23rd, 2015; published: Jun. 1st, 2015

Copyright © 2015 by authors and Hans Publishers Inc.

This work is licensed under the Creative Commons Attribution International License (CC BY).

<http://creativecommons.org/licenses/by/4.0/>



Open Access

Abstract

Nitrous oxide (N_2O) in the surface and bottom waters of the Bohai Sea was measured during a survey from 26 August to 11 September of 2008. N_2O concentrations in the surface and bottom waters were 7.14 - 8.32 nmol/L with a mean of (7.56 ± 0.33) nmol/L, and 7.22 - 10.98 nmol/L with a mean of (8.14 ± 0.89) nmol/L, respectively. Horizontal distribution of N_2O showed great spatial variation and was influenced by land source input, sediment release and water temperature. N_2O concentrations and saturations in the bottom waters are usually higher than those in the surface. The estimated air-sea N_2O fluxes using the Liss and Merlivat (1986) and Wanninkhof (1992) formula were (0.7 ± 0.2) and (1.9 ± 0.7) $\mu\text{mol}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{d}^{-1}$, respectively; hence the Bohai Sea is a net source of atmospheric N_2O .

Keywords

Bohai Sea, Nitrous Oxide, Distribution, Air-Sea Flux, The Yellow River

夏季渤海溶解氧化亚氮的分布与通量

宋 达, 张桂玲, 李佩佩, 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, 山东 青岛

Email: mu_mu_sd@aliyun.com

收稿日期: 2015年5月4日; 录用日期: 2015年5月23日; 发布日期: 2015年6月1日

摘要

于2008年8~9月对渤海海域进行了调查,采集了28个站位的表、底层海水样品及部分站位的中层水样,对溶解氧化亚氮(N_2O)浓度及海气交换通量进行了研究。结果表明:夏季渤海表层海水溶解 N_2O 浓度范围为7.14~8.32 nmol/L,平均浓度为 (7.56 ± 0.33) nmol/L。底层浓度范围为7.22~10.98 nmol/L,平均浓度为 (8.14 ± 0.89) nmol/L。其水平分布有较大空间变化,受到陆源输入、沉积物释放和水温的影响。表层海水中 N_2O 的浓度和饱和度均低于底层。利用LM86和W92模型初步估算出夏季渤海溶解 N_2O 的海-气交换通量分别为 (0.7 ± 0.2) 和 (1.9 ± 0.7) $\mu\text{mol}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{d}^{-1}$ 。渤海海域表、底层海水中 N_2O 呈过饱和状态,是大气中 N_2O 的净源。

关键词

渤海, 氧化亚氮, 分布, 海气交换通量, 黄河

1. 引言

氧化亚氮(N_2O)是大气中重要的温室气体,其单分子吸收辐射的能力是二氧化碳(CO_2)的298倍,对温室效应的贡献约为6% [1] [2]。自工业化革命以来,受人类活动影响,全球大气中 N_2O 的浓度已自270 ppb增加至324 ppb [1],表明其源汇不平衡。

海洋是大气 N_2O 的重要自然排放源,每年向大气净输送的 N_2O 占大气总输入量的20% [3],其中占海洋总面积约15.2%的河口、陆架等近海向大气释放的 N_2O 量占全球海洋 N_2O 总释放量的60% [4]。 N_2O 是海洋中氮循环的重要副产物或中间产物,参与水环境中的硝化作用($NH_4^+ \rightarrow NO_2^- \rightarrow NO_3^-$)和反硝化($NO_3^- \rightarrow NO_2^- \rightarrow NO \rightarrow N_2O$)作用。据估计,近几十年来在人类活动影响下,通过陆源输入到河口和海洋中的总氮不断增加,而其中约1%~5%的氮可能转化为了 N_2O [5]。因此,在受人类活动影响较大的近岸海域开展溶解 N_2O 的分布及释放研究,对认识全球气候变化及大气化学有重要意义。

渤海南北长约480 km,东西最宽约300 km,面积77,284 km^2 ,平均水深18 m [6],是深入中国大陆的半封闭型的浅海,三面环陆,仅通过东面的渤海海峡与黄海相通。渤海沿岸河流众多,主要有黄河、滦河、海河和辽河等,虽然近年来径流量都有较大减少[7],但受人类活动的影响较大。本研究利用2008年夏季渤海航次所得数据,对渤海溶解 N_2O 的时空分布与释放通量进行了初步探讨,以期能为更准确的估算中国近海对全球大气中 N_2O 的区域性贡献提供科学依据。

2. 材料与方法

2.1. 采样站位和时间

于2008年8月26日至9月11日搭乘“向阳红九号”科考船对渤海进行了大面调查,共设28个站位,调查区域及站位如图1所示。所有站位均采集了表、底层海水样品,部分站位加采了中层海水样品,并测定其溶解 N_2O 浓度。

2.2. 样品采集

不同深度的海水样品用8 L的Niskin采水器采集。在现场将首先用海水涤荡样品瓶两遍,然后硅胶管插入样品瓶底部平稳注入海水(避免产生气泡),待水样装满并溢出约瓶体积的一半后,缓慢抽出硅胶管,用注射器加入适量饱和氯化汞($HgCl_2$)溶液以抑制微生物活动,用带有聚四氟乙烯衬层的橡胶塞和铝帽将

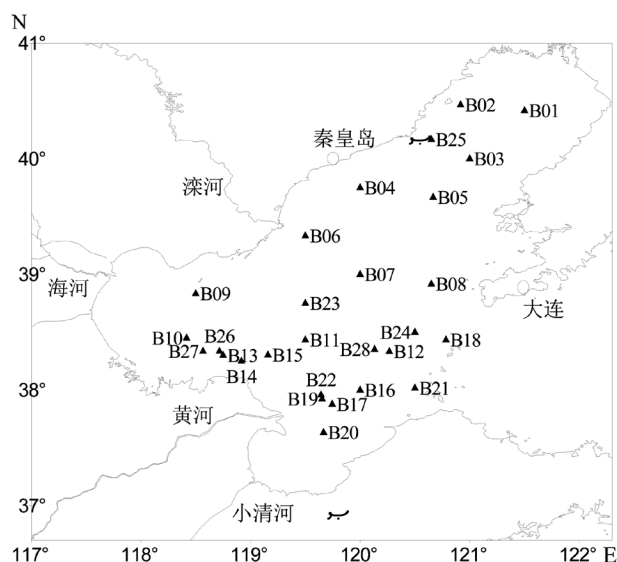


Figure 1. Locations of the survey stations in the Bohai Sea

图 1. 渤海调查站位分布图

样品瓶密封, 并将其上下颠倒几次, 使 HgCl_2 均匀分散开。所有样品均取双样, 并放入样品箱中低温避光保存, 返回陆地实验室后尽快测定(样品保存期约为 2 个月[8])。海水温度、盐度等参数由船载 CTD 在海水采集时同步测定。

为考察黄河输入对渤海溶解 N_2O 分布的影响, 于 2008 年 11 月~2009 年 12 月每月中上旬在黄河下游垦利(37°36.325'N, 118°31.780'E)用 10 L 塑料桶采集黄河表层水样品, 测定其溶解 N_2O 浓度。

2.3. 样品测定

水样中溶解 N_2O 浓度用静态顶空 - 气相色谱法测定[9]。用注射器向样品瓶中注入 5 mL 高纯 N_2 (>99.999%)取代 5 mL 水样, 形成顶空, 在室温下用漩涡混合器剧烈震荡样品瓶 3 min, 静置 3~4 h, 使瓶内的气 - 液两相达到平衡, 然后抽取顶空气注入气相色谱仪(岛津 GC-2014)进行分离和测定。所用色谱柱为 3 m × 3 mm 的不锈钢填充柱(内填 80/100 目的 Porapark-Q), 柱温 60°C, 进样口温度 90°C, 载气为 Ar/CH_4 , 流量为 35 mL/min, 所用检测器为电子捕获检测器(ECD), 检测器温度 300°C。检测器的响应信号利用 3 种不同浓度的标准气体(0.291×10^{-6} 、 0.617×10^{-6} 和 4.980×10^{-6} $\text{N}_2\text{O}/\text{N}_2$, 国家标准物质中心), 得出标准气体浓度与其对应色谱峰面积之间的关系曲线[8]进行校正。每次测定时需同时记录大气压及室温, 然后根据平衡温度、海水盐度和所测顶空气中 N_2O 的峰面积, 利用 Weiss 等[10]给出的公式计算海水样品中溶解 N_2O 浓度。本方法的检出限为 $1.04 \text{ nmol}\cdot\text{L}^{-1}$, 精密度 < 3% [8] [10]。

2.4. 饱和度和通量的计算方法

溶解 N_2O 的饱和度 $R(\%)$ 和海 - 气交换通量 $F(\mu\text{mol}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{d}^{-1})$ 可根据以下公式计算得出[11]。

$$R = c_{\text{obs}}/c_{\text{eq}} \times 100\%$$

$$F = k(u_{10}) \times (c_{\text{obs}} - c_{\text{eq}})$$

式中, c_{obs} 为 N_2O 在表层海水中的实测浓度; c_{eq} 为表层海水中 N_2O 与大气达平衡时的浓度(nmol/L)。k 为气体交换速率(cm/h), 为水面上方 10 m 高度处风速(u_{10})与施密特数(S_c)的函数[12]。常用经验公式 Liss 和 Merlivat (1986) [11]和 Wanninkhof (1992) [13] (以下分别简称为 LM86 和 W92 公式)来估算, 分别代表

了 k 的较低值和较高值。

3. 结果与讨论

3.1. 夏季渤海表、底层海水中温度与盐度分布

夏季渤海表、底层海水的温度、盐度和溶解 N_2O 浓度水平分布见图 2。表层水温大致呈现由海峡向近岸逐渐升高趋势，在渤海中部和西部沿岸较高。底层温度由西南向东北呈逐渐降低趋势，在大连西部沿岸出现低值区。这是由于夏季黄海暖水自海峡中部和南部进入渤海，主流沿莱州湾沿岸流动，经黄河口转向西进入渤海湾南部[14]，所以在这部分区域温度出现高值。表、底层盐度变化并不明显，均在 30~32 之间波动，变化趋势也近似。在渤海湾口和辽东湾中部的盐度相对略高，莱州湾附近出现盐度低值，并向北逐渐升高，这主要是受黄河冲淡水的影响。研究表明黄河冲淡水入海后，在渤海环流作用下，主要沿东偏南方向进入莱州湾与海水混合[15]。

3.2. 夏季渤海表、底层海水中溶解 N_2O 浓度分布

夏季渤海各个站位表层海水溶解 N_2O 浓度范围为 7.14~8.32 nmol/L，平均浓度为 (7.56 ± 0.33) nmol/L。底层浓度范围为 7.22~10.98 nmol/L，平均浓度为 (8.14 ± 0.89) nmol/L。其中，表层海水中 N_2O 浓度高值(8.1 nmol/L)出现在大连西部沿岸地区，此处恰好对应水温低值。据文献报道，渤海海峡在夏季出现低温带[16]，这可能是导致此处 N_2O 出现高值的原因。另一个高值区出现在黄河口外，主要是受黄河冲淡水的影响。黄河携带大量泥沙和含氮有机物进入渤海，同时黄河水自身 N_2O 浓度也较高，使河口邻近海域表层溶解 N_2O 浓度较高。另外，在渤海湾口的北部沿岸也有 N_2O 高值，可能是受海河和蓟运河入渤海湾的影响。

底层海水溶解 N_2O 浓度相对表层较高，且变化幅度更大，在渤海中央偏南部的底层海水出现 N_2O 浓度最高值(B11 站，10.98 nmol/L)，并向周围逐渐降低。研究表明，在夏季黄河入海口附近，尤其是底层，悬浮物浓度常常出现高值[15]，且利用 CTD 检测到该站的底层海水浊度可达 21.86，表明此处可能有较强的底层沉积物再悬浮现象，不仅能加速沉积物中 N_2O 向水体中的扩散，同时也有利于硝化作用的发生[17]。

部分代表性站位溶解 N_2O 浓度的垂直分布图 3 所示。大部分站位 N_2O 浓度垂直分布基本呈由表至底上升的趋势，表明底层水体或者沉积物中存在 N_2O 的源。

3.3. 夏季渤海表层海水中溶解 N_2O 的海 - 气交换通量

根据 2008 年全球大气中 N_2O 的平均浓度 321 ppb，结合现场测定的表、底层水温和盐度数据，计算得出本航次各站位表、底层海水溶解 N_2O 饱和度范围和平均值分别为 106.9%~125.9%和 $(114.1 \pm 4.8)\%$ ，105.1%~144.8%和 $(117.1 \pm 8.4)\%$ 。夏季渤海各个站位 N_2O 均处于轻度过饱和状态，是大气中 N_2O 的源。夏季渤海 6~8 月平均风速变化不大，一般为 4~5 m/s [6]，根据日瞬时风速，假定采样期间平均风速为 4.5 m/s，根据现场海水温度、盐度以及实验测得的 N_2O 浓度，分别利用 LM86 和 W92 公式，计算了各个站位 N_2O 的海 - 气交换通量(图 4)。利用 LM86 和 W92 公式计算得到的 N_2O 海气交换通量范围和平均值分别为 $0.4\sim 1.4 \mu\text{mol}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{d}^{-1}$ ， $(0.7 \pm 0.2) \mu\text{mol}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{d}^{-1}$ 和 $0.9\sim 3.5 \mu\text{mol}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{d}^{-1}$ ， $(1.9 \pm 0.7) \mu\text{mol}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{d}^{-1}$ ，其中用 W92 公式估算的结果约是用 LM86 公式的 2.7 倍。

文献报道的世界部分海域表层海水中溶解 N_2O 海 - 气交换通量列于表 1 中。不同海域不同季节溶解 N_2O 海 - 气交换通量有较大时空差异，范围为 $0.1\sim 266 \mu\text{mol}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{d}^{-1}$ 。但总体来讲，在受人类活动影响较大的河口、海湾区 N_2O 浓度高于陆架区，大洋区浓度最低[18]。夏季渤海 N_2O 的海 - 气交换通量远低于同季节的北黄海[19]和东海[20]，约是其十分之一。根据渤海面积，估算出渤海 N_2O 的夏季释放量约为 $1.99 \times 10^8\sim 5.40 \times 10^8$ g。

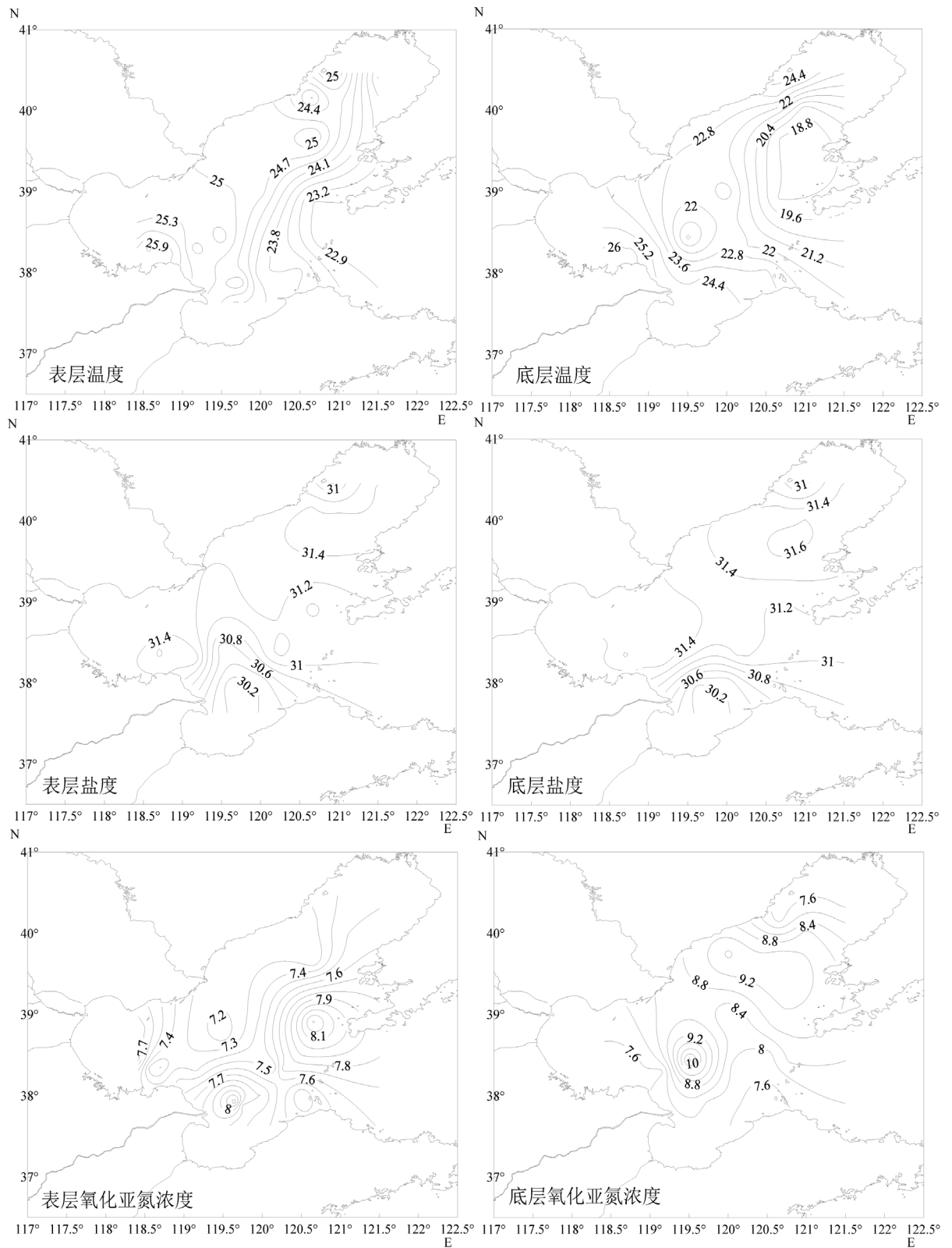


Figure 2. Horizontal distribution of temperature, salinity and N_2O concentration in the surface and bottom layer of the Bohai Sea in summer
图 2. 夏季渤海表、底层海水中温度(t , $^{\circ}C$)、盐度(S)和 N_2O 浓度($nmol/L$)水平分布

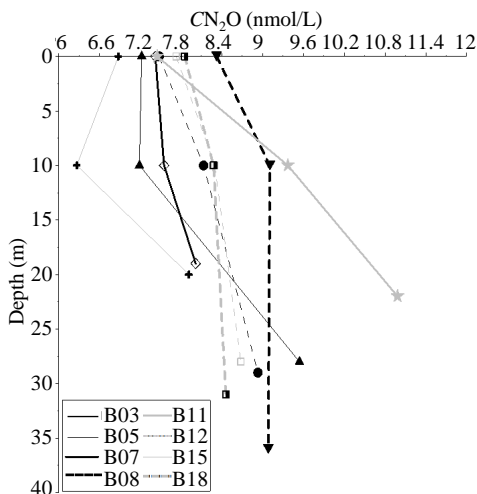


Figure 3. Vertical distributions of N₂O at some stations in the Bohai Sea
图 3. 渤海部站点 N₂O 浓度的垂直分布

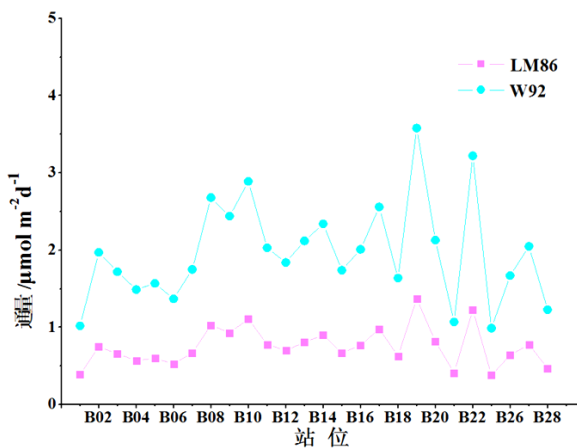


Figure 4. N₂O air-sea flux at all the stations in the Bohai Sea in summer
图 4. 夏季渤海各个站点 N₂O 的海气交换通量

Table 1. Compilation of N₂O air-sea fluxes from different sea areas
表 1. 文献报道部分海域表层海水中 N₂O 的海 - 气交换通量

	海域	站位数	时间	通量(μmol·m ⁻² ·d ⁻¹)	参考文献
河口、海湾区	胶州湾	10	2006-08/12	9.3 ^a ; 19.2 ^b	[27]
	Clone Estuaries	10~16	2003.09	266 ^a	[30]
	长江口	31	2006.08	20.9 ^a , 40.6 ^b	[31]
陆架区	东海	21	2011.05~6	(9.8 ± 16.0) ^a (17.1 ± 26.4) ^b	[20]
	东海	/	2011.12	4.05 ^a , 7.74 ^b	
	南海北部	15	2005.04~05	9.07 ^a , 14.78 ^b	[32]
	北黄海	30	2005.04/08	(6.5 ± 8.3) ^a (11.3 ± 13.4) ^b	[19]
大洋区	北大西洋	连续走航	2002.10~11	0.52 ^c	[33]
	南大洋	16	1999.02	0.4 ^c	[34]

注: ^a表示使用 LM86 公式; ^b表示使用 W92 公式; ^c表示使用 N00 公式[35]。

3.4. 影响夏季渤海溶解 N₂O 分布的因素

渤海是一个半封闭型海湾，水浅、水动力活跃，受陆源因素影响强烈，故其溶解 N₂O 的分布与产生受众多因素的影响，较为复杂。

研究表明，河流中通常富含 N₂O，浓度变化范围为 6~530 nmol/L [21] [22]。因此河流输入是陆架海中溶解 N₂O 的重要源。渤海沿岸河流众多，主要有黄河、滦河、海河等，年平均径流量在 640 亿 m³/a 以上，其中黄河的平均径流量可达 338.5 亿 m³/a [23]。为了考察河流输入对渤海溶解 N₂O 的影响，选取径流量最大的黄河为研究对象，于 2008 年 11 月~2009 年 12 月，每月在黄河下游垦利定点观测溶解 N₂O 的浓度，同时收集与垦利直线距离约 29 km 的利津站的黄河流量数据[24]，黄河溶解 N₂O 浓度和流量的月变化见图 5 所示。

黄河溶解 N₂O 浓度具有明显的季节变化，其中 7 月最高，9 月最低。在整个观测期间，N₂O 变化范围和平均浓度分别为 8.78~24.26 nmol/L 和(17.80 ± 4.90) nmol/L，明显高于渤海中溶解 N₂O 浓度。除 7 月外，黄河水中溶解的 N₂O 浓度和温度呈现较好的负相关($y = -0.4x + 21.0$, $r^2 = 0.5$, $n = 12$, $p < 0.05$)，而 7 月较高的温度虽然使水体中 N₂O 的溶解度降低，但较高的温度使微生物活动加剧，进而促使了 N₂O 的产生，水体中 N₂O 的浓度反而升高。根据所测的 N₂O 浓度和利津站月平均流量，初步估算出黄河向渤海 N₂O 总输入量为 1.72×10^5 mol/yr。因此淡水输入会对渤海 N₂O 分布产生明显影响。

除了河流输入外，渤海沿岸还分布着 90 多个排污口、许多重要的港口和养殖区[25]。资料显示：近年来，大连废水污染物排放中氨氮在 1 亿 t/a 以上[26]。在胶州湾进行的研究也表明：胶州湾溶解 N₂O 的季节变化范围仅为 8.05~20.1 nmol/L，而胶州湾周边各个污水处理厂排放废水中溶解 N₂O 浓度高达 1.78×10^3 nmol/L，排入量为 435×10^3 mol/yr [27]。在排污较多的河口区还发现 N₂O 浓度和无机氮含量显著相关[27]，因此排污对渤海溶解 N₂O 的影响也是不可忽视的。据文献报道，2005 年黄河口附近海域的 DIN 中 NO₃-N 的比例最大，8 月占 82.3% [28] [29]，其水平分布受到黄河和小清河排放污染物的影响，由北向南呈明显的增加趋势，在黄河口东南部出现高值区，高含量的 DIN 为沉积物和水体中硝化及反硝化作

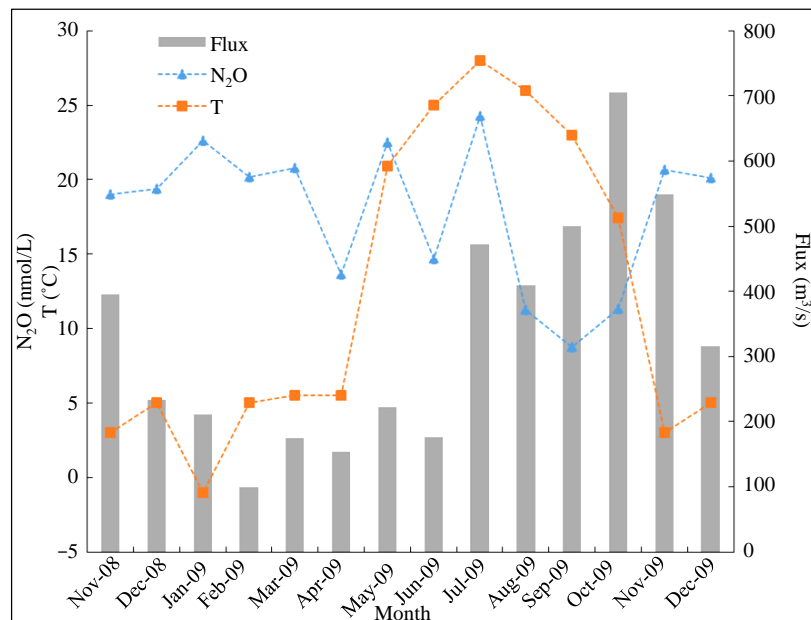


Figure 5. Monthly variations of dissolved N₂O concentrations, water temperature, atmospheric N₂O flux at the lower stream of Yellow River and the water discharge
图 5. 黄河下游溶解 N₂O 浓度、水温、水气交换通量和径流量的月际变化

用提供了有利条件。本文在渤海中央区西南部海域底层(B11)观测到溶解的高浓度 N_2O ，也是由于黄河携带的大量泥沙、无机氮和有机物等进入渤海，有机物进入渤海后在分解过程中大量消耗溶解氧，造成沉积物缺氧环境，且此区域底层沉积物以粘土质软泥为主[28]，易造成不透气的厌氧环境，有利于硝化和反硝化作用而产生大量 N_2O 。

另外，温度也是影响渤海溶解 N_2O 的重要因素，在本次调查中，底层 N_2O 浓度与温度明显负相关($y = -0.007x^2 - 0.6t + 18.6, r^2 = 0.6, p < 0.0001$)，研究表明，温度每降低 $1^\circ C$ ， N_2O 在水中溶解度提高 3% [8]。

4. 结论

1) 夏季渤海表、底层海水中溶解 N_2O 浓度分布有很大空间差异，表层在大连西部沿岸和莱州湾口北部出现 N_2O 高值区；底层在渤海中央区西南部和大连至秦皇岛之间海域出现 N_2O 高值区。

2) 夏季渤海大部分站位 N_2O 浓度由表至底呈逐渐增加趋势，底层浓度略高于表层。

3) 夏季渤海表、底层海水中溶解 N_2O 的水平分布受到陆源输入、沉积物释放和水温的影响。根据黄河溶解 N_2O 浓度和径流量初步估算出黄河向渤海年输入 N_2O 量约为 $1.72 \times 10^5 \text{ mol/yr}$ 。

4) 夏季渤海表层海水中 N_2O 均呈过饱和状态，是大气 N_2O 的净源。根据渤海的面积，估算出夏季渤海 N_2O 的释放量为 $(1.99 - 5.4) \times 10^8 \text{ g}$ 。

基金项目

国家自然科学基金项目(41376088, 41076067); 国家自然科学基金创新研究群体基金项目(41221004)。

参考文献 (References)

- [1] IPCC (2013) Climate change 2013: The physical science basis. Stocker, T.F., Qin, D., Plattner, G.K., Tignor, M., Allen, S.K., Boschung, J., Nauels, A., Xia, Y., Bex, V. and Midgley, P.M., Eds., *Contribution of Working Group I to the Fifth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change*, Cambridge University Press, Cambridge, United Kingdom and New York, 1535 p.
- [2] Lashof, D.A. and Ahuja, D. (1990) Relative contributions of greenhouse gas emission to the global warming. *Nature*, **344**, 529-531.
- [3] Prinn, R., Cunnold, D., Rasmussen, R., et al. (1990) Atmospheric emissions and trends of nitrous oxide deduced from ten years of ALE-GAGE data. *Journal of Geophysical Research*, **95**, 18369-18385.
- [4] IPCC (2007) Climate change 2007: The physical science basis. Cambridge University Press, New York, 1-996.
- [5] Seitzinger, S.P. and Kroeze, C. (1998) Global distribution of nitrous oxide production and N inputs in freshwater and coastal marine ecosystems. *Global Biogeochemical Cycles*, **12**, 93-113.
- [6] 沈文周 (2006) 中国近海空间地理. 海洋出版社, 北京.
- [7] 孙湘平 (2006) 中国近海区域海洋. 海洋出版社, 北京.
- [8] Zhang, G.L., Zhang, J., Ren, J.L., et al. (2008) Distributions and sea-to-air fluxes of methane and nitrous oxide in the North East China Sea in summer. *Marine Chemistry*, **110**, 42-55.
- [9] Walter, S., Peeken, I., Lochte, K., et al. (2005) Nitrous oxide measurements during EIFEX, the European iron fertilization experiment in the subpolar South Atlantic Ocean. *Geophysical Research Letters*, **32**, L23613.
- [10] Weiss, R.F. and Price, B.A. (1980) Nitrous oxide solubility in water and seawater. *Marine Chemistry*, **8**, 347-359.
- [11] Liss, P.S. and Merlivat, L. (1986) Air-sea gas exchange rates: introduction and synthesis. *The Role of Air-Sea Exchange in Geochemical Cycling*, **185**, 113-127.
- [12] Raymond, P.A. and Cole, J.J. (2001) Gas exchange in rivers and estuaries: Choosing a gas transfer velocity. *Estuaries*, **24**, 312-317.
- [13] Wanninkhof, R. (1992) Relationship between wind speed and gas exchange over the ocean. *Journal of Geophysical Research*, **97**, 7373-7382.
- [14] 窦振兴, 张存智, 张砚峰 (1986) 渤海风海流的数值计算. *海洋学报*, **5**, 527-533.
- [15] 边昌伟 (2012) 中国近岸泥沙在渤海、黄海和东海的输运. 博士论文, 中国海洋大学, 青岛.

- [16] 苏育嵩, 苏洁 (1996) 渤、黄海夏季低温带及其形成机制初析. *海洋学报*, **1**, 13-20.
- [17] Balls, P.W., Brockie, N., Dobson, J. and Johnston, W. (1996) Dissolved oxygen and nitrification in the upper forth estuary during summer (1982-92): Patterns and trends. *Estuarine, Coastal and Shelf Science*, **42**, 117-134.
- [18] Bange, H.W., Rixen, T., Johansen, A.M., Siefert, R.L., Ramesh, R., Ittekkot, V., *et al.* (2002) A revised nitrogen budget for the Arabian Sea. *Global Biogeochemical Cycles*, **14**, 1283-1297.
- [19] 杨晶, 张桂玲, 郑立晓, 张峰 (2009) 北黄海溶解氧化亚氮的分布与通量的季节变化. *环境科学*, **3**, 656-662.
- [20] 马啸, 张桂玲, 曹兴朋, 宋国栋, 王岚, 刘素美 (2014) 春季东海溶存氧化亚氮的分布和和海气交换通量. *海洋科学*, **2**, 21-28.
- [21] Upstill-Goddard, R.C., Barnes, J. and Owens, N.J.P. (1999) Nitrous oxide and methane during the 1994 SW monsoon in the Arabian Sea/Northwestern Indian Ocean. *Geophysical Research*, **104**, 30067-30084.
- [22] McMahan, P.B. and Dennehy, K.F. (1999) N₂O emission from a nitrogen-enriched river. *Environmental Science and Technology*, **33**, 21-25.
- [23] 王修林, 崔正国, 李克强, 梁生康, 祝陈坚, 郭全 (2009) 渤海 COD 入海通量估算及其分配容量优化研究. *海洋环境科学*, **5**, 497-500.
- [24] 水利部水文局(水利信息中心) (2009) 全国水雨情信息——黄河实时水情. 水利部水文局, 北京.
- [25] 国家海洋环境监测中心 (2009) 2008 年中国海洋环境质量公报. 2009-01-19.
- [26] 董彬 (2012) 渤海污染现状与对策分析. *生态科学*, **5**, 596-600.
- [27] 李佩佩, 张桂玲, 赵静, 杨晶, 陆小兰, 宁宇, 王振 (2009) 胶州湾及周边海域大气和海水中 N₂O 和 CH₄ 的分布及海气交换通量. *中国海洋大学学报*, **4**, 805-814.
- [28] 马红波, 宋金明, 吕晓霞, 袁华茂 (2003) 渤海沉积物中氮的形态及其在循环中的作用. *地球化学*, **1**, 48-54.
- [29] 马绍赛, 幸福言, 崔毅, 乔向英 (2004) 黄河和小清河主要污染物入海量的估算. *海洋水产研究*, **5**, 47-51.
- [30] Dong, L.F., Nedwell, D.B., Colbeck, I. and Finch, J. (2004) Nitrous oxide emission from some English and Welsh rivers and estuaries. *Water, Air, and Soil Pollution*, **4**, 127-134.
- [31] 张峰 (2007) 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. 硕士论文, 中国海洋大学, 青岛.
- [32] 郑立晓 (2009) 桑沟湾溶存 N₂O 的分布和海气交换同量的季节变化. *海洋科学*, **12**, 18-23.
- [33] Walter, S., Bange, H.W. and Wallace, D.W.R. (2004) Nitrous oxide in the surface layer of the tropical North Atlantic Ocean along a west to east transect. *Geophysical Research Letters*, **31**, Article ID: L23S07.
- [34] Law, C.S. and Ling, R.D. (2001) Nitrous oxide flux and response to increased iron availability in the Antarctic Circumpolar Current. *Deep-Sea Research*, **48**, 2509-2527.
- [35] Nightingale, P.D., Malin, G., Law, C.S., Watson, A.J., Liss, P.S., Liddicoat, M.I., *et al.* (2000) *In situ* evaluation of air-sea gas exchange parameterizations using novel conservative and volatile tracers. *Global Biogeochemical Cycles*, **14**, 373-387.