

# 结合 Peepers 采样与 Picarro 测定技术研究河流系统中甲烷和氧化亚氮浓度及释放通量

Science of the Total Environment 715 (2020) 136920



Contents lists available at ScienceDirect

Science of the Total Environment

journal homepage: [www.elsevier.com/locate/scitotenv](http://www.elsevier.com/locate/scitotenv)



## Methane and nitrous oxide porewater concentrations and surface fluxes of a regulated river



Jorge A. Villa<sup>a,b,\*</sup>, Garrett J. Smith<sup>c</sup>, Yang Ju<sup>a</sup>, Lupita Renteria<sup>d</sup>, Jordan C. Angle<sup>c</sup>, Evan Arntzen<sup>d</sup>, Samuel F. Harding<sup>d</sup>, Huiying Ren<sup>d</sup>, Xingyuan Chen<sup>d</sup>, Audrey H. Sawyer<sup>e</sup>, Emily B. Graham<sup>d</sup>, James C. Stegen<sup>d</sup>, Kelly C. Wrighton<sup>f</sup>, Gil Bohrer<sup>a</sup>

<sup>a</sup> Department of Civil, Environmental and Geodetic Engineering, Ohio State University, 470 Hitchcock Hall, 2070 Neil Avenue, Columbus, OH 43210, USA

<sup>b</sup> School of Geosciences, University of Louisiana at Lafayette, 323 Hamilton Hall, 611 McKinley Street, Lafayette, LA 70504, USA

<sup>c</sup> Department of Microbiology, Ohio State University, 105 Biological Sciences Building, 484 W. 12 Ave., Columbus, OH 43210, USA

<sup>d</sup> Pacific National Northwest Laboratory, 902 Battelle Blvd, Richland, WA 99354, USA

<sup>e</sup> School of Earth Sciences, Ohio State University, 125 Oval Dr S, Columbus, OH 43210, USA

<sup>f</sup> Department of Soil and Crop Sciences, Colorado State University, 307 University Ave, Fort Collins, CO 80521, USA

## 1. 前言

尽管河流在陆地系统中仅有 0.47% 的占比，但河流系统却是温室气体（GHG）的重要来源。每年，河流向大气中释放 6.6 Pg 的 CO<sub>2</sub>，26.8 Tg 的甲烷，以及 1.1 Tg 的 N<sub>2</sub>O，相当于化石燃料和工业排放产生的 CO<sub>2</sub> 的 12%，以及全球甲烷和 N<sub>2</sub>O 排放的 5% 和 10%。然而，由于缺乏河流温室气体的实测数据，对其产生和排放时空动态变化的认知不足，河流的温室气体排放通常是当前全球温室气体模型中缺失的关键组成部分。

河流潜流带通常是温室气体产生的热点区域，因此，本研究选取了哥伦比亚河的典型河段作为研究区，结合 Peepers 采样技术和 Picarro 测量技术，系统研究了在不同水位条件下河流温室气体的产生和释放特征，研究结果将进一步加强河流温室气体时空动态变化的认识。

## 2. 材料与方法

### (1) 采样点设置

该研究在美国华盛顿州汉福德河段哥伦比亚河“温室气体基因组观测站”进行(图1)。每个观测点包括3个平行的孔隙水采样器(Peepers),分布在沿沙滩至河流6米长的过渡区,代表不同的水位梯度:浅水区,过渡区以及深水区(图1B)。在2018年4月25日至8月25日期间对孔隙水甲烷、CO<sub>2</sub>以及N<sub>2</sub>O浓度以及水面通量进行了测量,以反映温室气体浓度和通量在典型水文年三个水位条件下的特征:(1)春季积雪融化后河流水位上升阶段;(2)在六月水位峰值之后,夏季河流水位降落阶段;(3)在夏季之后,积雪融化之前,河流水位极低阶段。

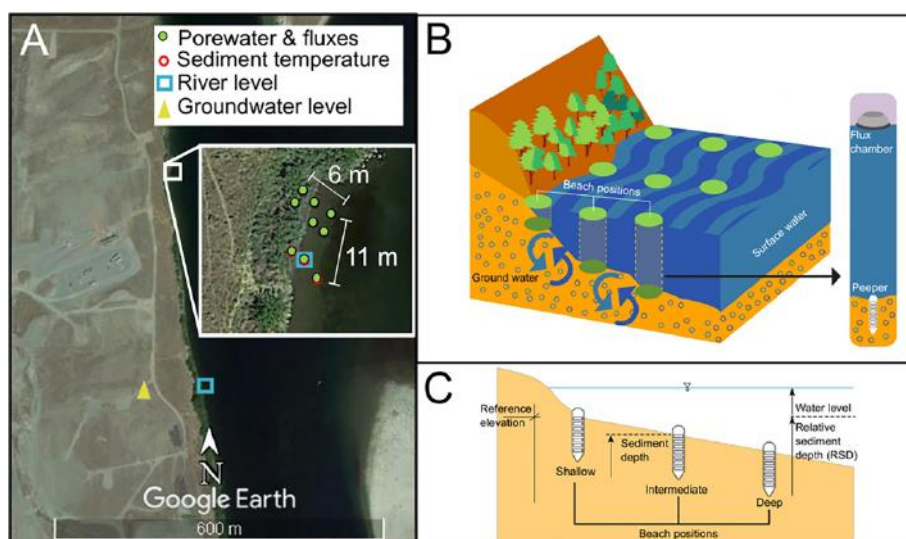
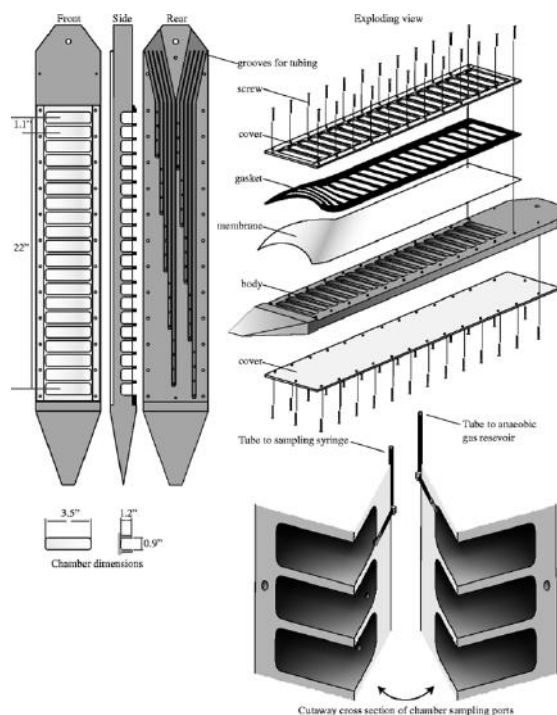


图1 采样点设置与采样示意图

### (2) 孔隙水采集与处理

利用如下图所示的 Peepers 采样装置,在每个观测点进行非破坏性取样。从装置的顶部开始,每隔一层采集孔隙水样品,共采集十个腔体的样本。在转移样品 Peepers 获得的样品时,从腔体中抽取 10 mL 的水,同时保持另一个腔体与装满 N<sub>2</sub> 的容器相连,以避免

氧气侵入，扰乱细胞内和周围的厌氧环境。随后，样品放置在 10 mL 容器中，用 0.2 mL 浓度为 2 M 的 HCl 酸化，以确保 pH 低于 2，防止样品中溶解性气体的生物转化。



引自 MacDonald et al., (2013) (<https://doi.org/10.1007/s10661-012-2813-8>)

### (3) 孔隙水温室气体通量测定与计算

通量测量利用自行设计的“非稳态室”进行测量，其中甲烷通量使用 Picarro G4301 以 1L/min 的速率对空气进行循环测定，并记录甲烷浓度。通过设计采样时间和频率利用气相色谱进行 N<sub>2</sub>O 和 CO<sub>2</sub> 的通量测定。

结合多种数学模型对气体浓度进行计算与换算，从而得出准确的通量数据（具体公式内容及参数与含义详见原文）。

## 3. 结果与讨论

### (1) 水位和沉积物温度

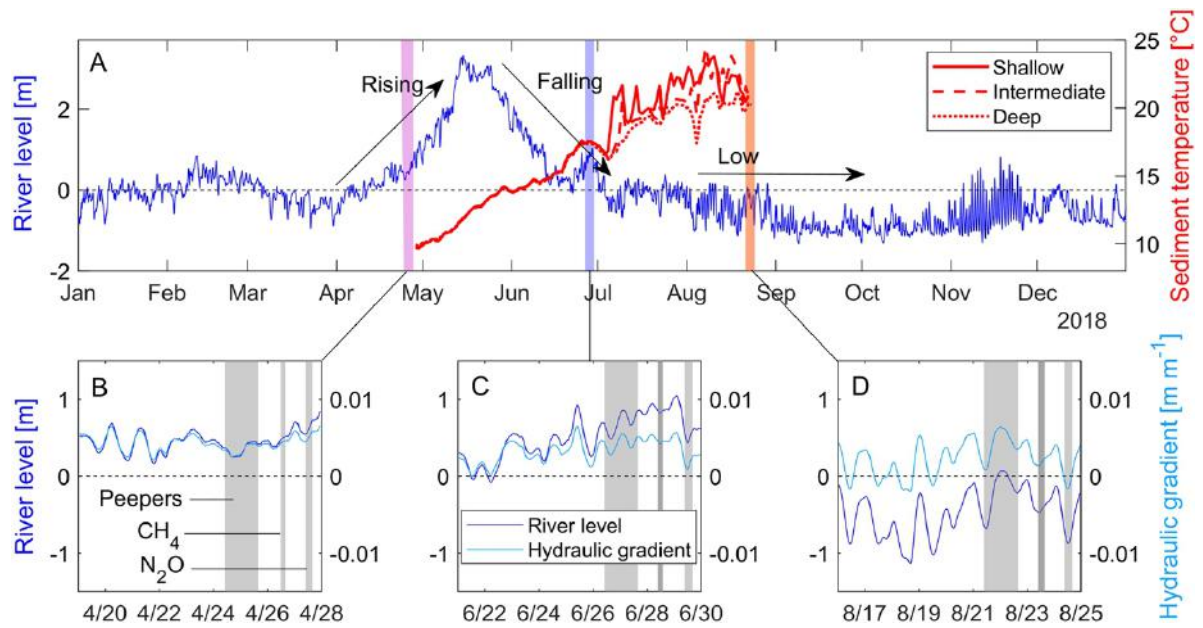


图 2 采样期间的河流水文情况。(A) 蓝线代表河流水位，红线代表沉积物温度，竖线代表采样周期。(B-D) 在每个阶段采样前 5 天的河流水位（深蓝色）和水力梯度（浅蓝色），水平虚线表示参考高程。在每个阶段的采样中，竖直的会先表示利用 Peepers 采集样品的时长（两天）甲烷采集时长（几小时）以及 N<sub>2</sub>O 采集时长（几小时）。

## (2) 孔隙水甲烷浓度及通量对河流水位变化的响应

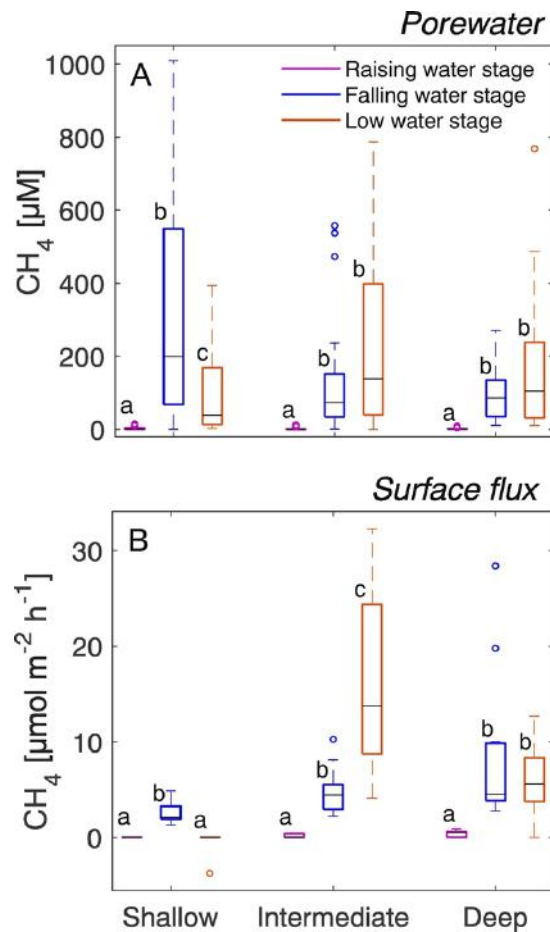


图3 (A) 沉积物孔隙水中的甲烷浓度以及 (B) 不同水位下河流水面的甲烷通量。

(3) 孔隙水中甲烷浓度沿水位梯度的变化

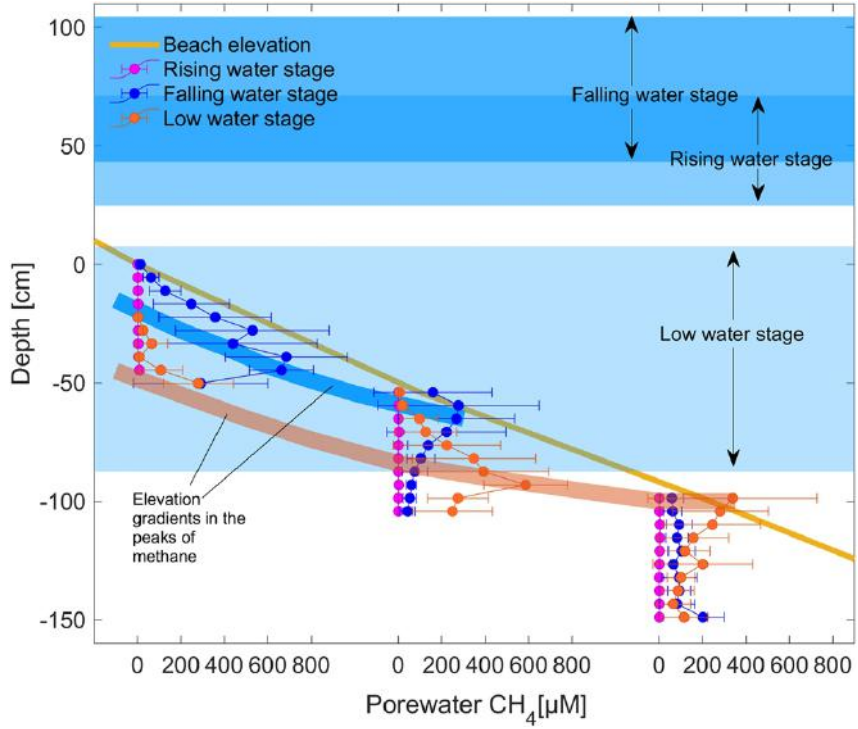


图4 在不同水位下，浅水区（左）、过渡区（中）和深水区（右）沉积物剖面上的孔隙水甲烷浓度。水平的蓝色区域表示不同阶段的水位范围。

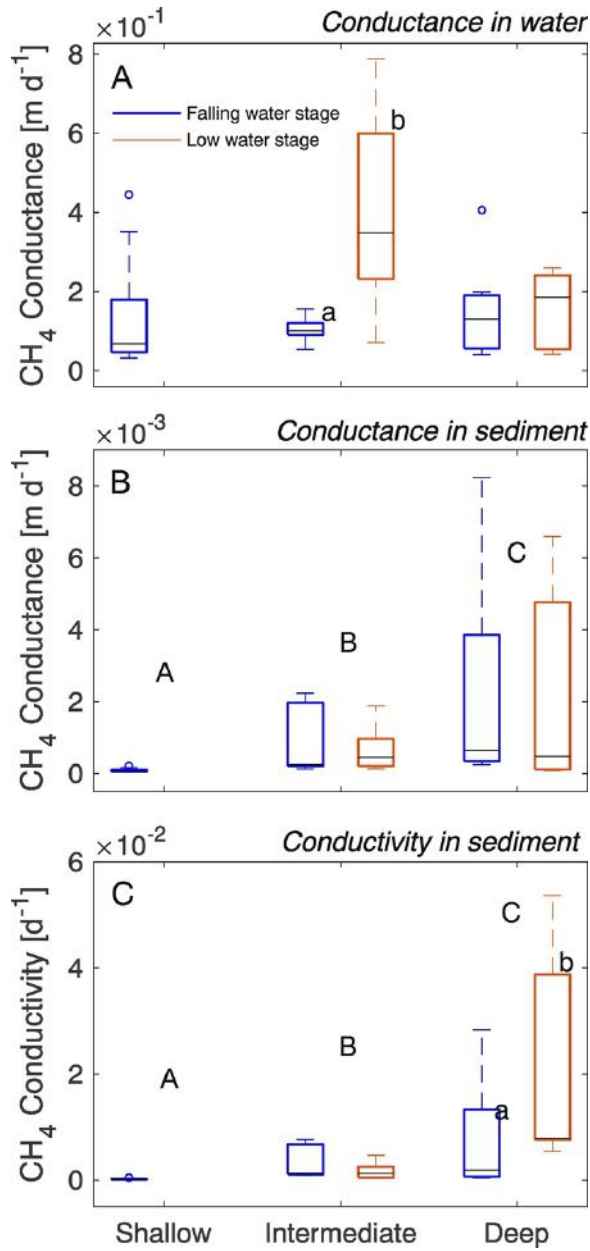


图 5 在不同水位下，浅水区、过渡区和深水区水柱和沉积物中的甲烷电导率。

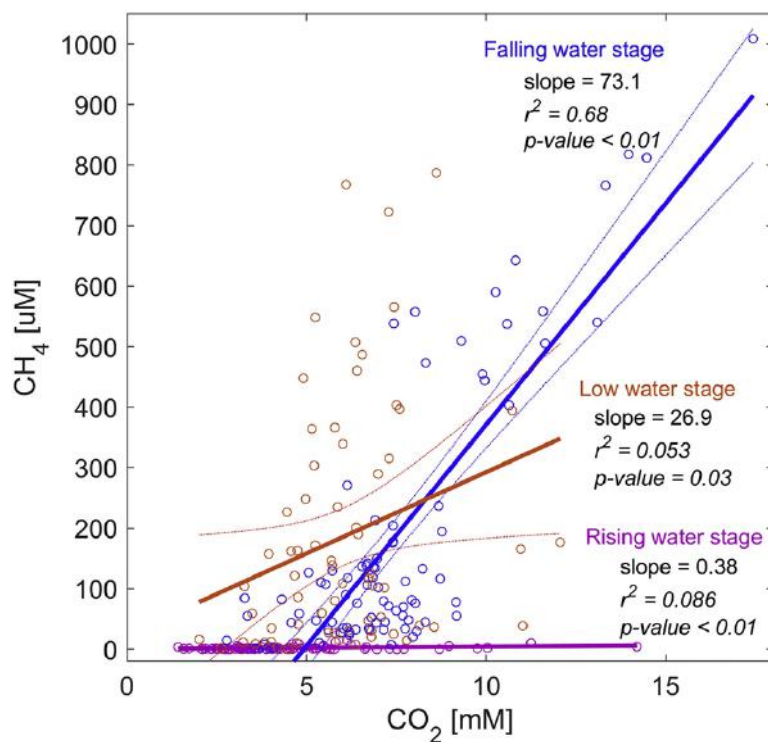


图 6 在三个不同水位下，沉积物剖面上甲烷和 CO<sub>2</sub> 孔隙水浓度的相关性。

(4) 孔隙水 N<sub>2</sub>O 浓度及通量在不同水位下的动态特征

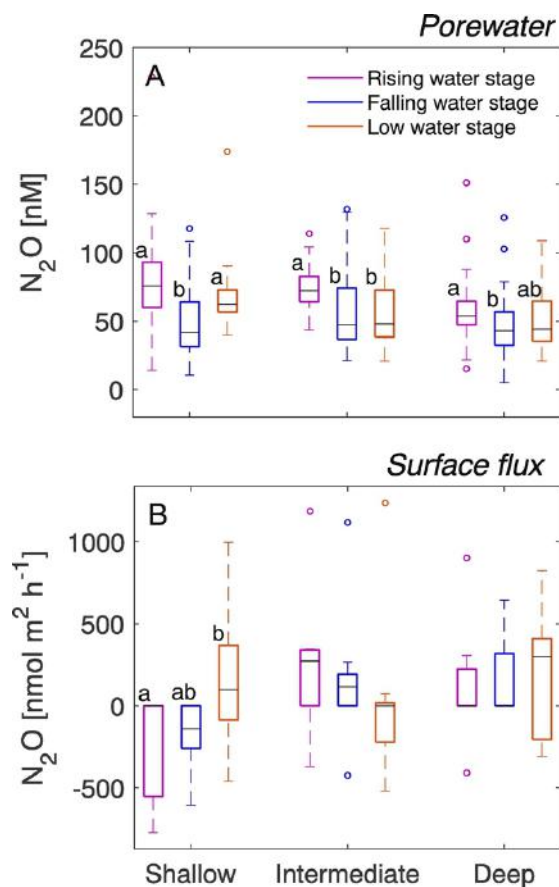


图 7 沉积物孔隙水中的 N<sub>2</sub>O 浓度以及 (B) 不同水位下的 N<sub>2</sub>O 通量。

(5)  $N_2O$  浓度在沉积物/孔隙水界面处达到峰值

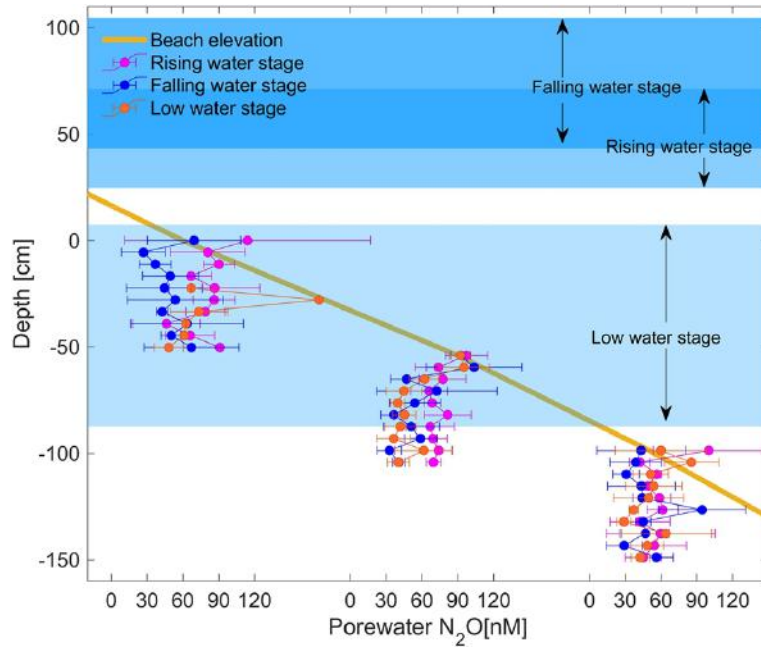


图 8 在不同水位下，浅水区（左）过渡区（中）和深水区（右）沉积物剖面上的孔隙水  $N_2O$  浓度。水平的蓝色区域表示不同阶段的水位范围。

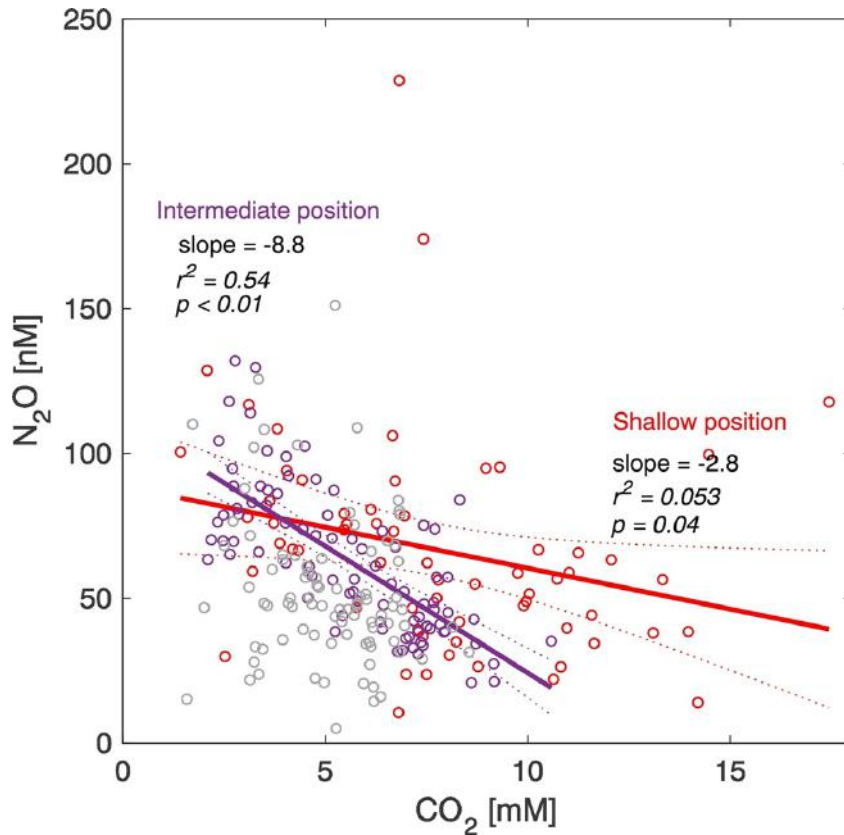


图 9 在三个不同水位下，沉积物剖面上孔隙水中  $N_2O$  和  $CO_2$  浓度的相关性



#### 4. 结论与展望

以上结果表明，河流是甲烷的净源，且水文阶段会显著影响河流孔隙水温室气体浓度以及温室气体通量。此结果对于深入了解水文交换与温室气体排放之间的相互作用、指导未来对温室气体产生机制的研究起到重要推动作用。

河流的水文条件和生物地球化学过程相互作用，支配着温室气体的产生、消耗和流通过程。结合先进的采样技术以及准确的测定技术，是解决河流温室气体测量存在困难的有效途径。本研究中，Picarro G4301 为河流甲烷的测定与通量的计算提供了重要支持。在未来水环境的温室气体动态变化研究中，Picarro 的系列产品将继续发挥重要作用，为减缓全球温室效应提供强有力的技术保障。

原文链接：<https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2020.136920>

本文研究所需的孔隙水温室、气体浓度和通量数据可从以下链接获得：

<https://ess-dive.lbl.gov/>

<https://doi.org/10.15485/1595105>

<https://www.hanford.gov/page.cfm/PHOENIX>