

黄、东海二甲基硫海气交换通量时空分布及影响因子

李亚贤¹, 沈家葳², 赵亮¹, 李菲¹

(1.天津科技大学 海洋与环境学院, 天津 300457; 2.天津大学 海洋科学与技术学院, 天津 300072)

摘要: 二甲基硫 (dimethyl sulfide, DMS) 海气交换对全球气候和环境变化有重要贡献。本文利用已发表的 2005—2017 年文献数据, 结合 ERA-interim (European Centre for Medium-Range Weather Forecasts Interim Re-Analysis) 风速数据, 估算了黄、东海 DMS 海气通量, 并分析了其季节变化和空间差异。结果表明: 南黄海和东海 DMS 年平均海气通量分别为 $(8.63 \pm 4.90) \mu\text{mol}/(\text{m}^2 \cdot \text{d})$ 和 $(12.77 \pm 8.42) \mu\text{mol}/(\text{m}^2 \cdot \text{d})$, 除秋季外, 东海海气通量高于南黄海; DMS 海气通量季节变化显著, 夏季最大, 冬季最小, 南黄海秋季高于春季, 东海春季高于秋季。基于方差分解, 本文讨论了各因子方差对 DMS 海气通量方差的贡献, 在南黄海, 春季表层 DMS 浓度和交换速率均对海气通量有主要影响, 夏季和冬季交换速率对海气通量影响较大; 在东海, 春季海气通量受到交换速率和 DMS 浓度交互作用的影响较大, 夏季海气通量主要由 DMS 浓度控制, 秋季和冬季交换速率对海气通量的影响较大。南黄海和东海占全球海洋面积的 0.30%, 其 DMS 排放量为 0.1461 TgS/a, 占全球海洋 DMS 排放量的 0.52%。

关键词: 二甲基硫; 海气通量; 交换速率; 方差分解; 黄、东海

中图分类号: X142

文献标识码: A

文章编号: 1007-6336(2022)02-0293-10

Spatial and temporal distribution and influencing factors of sea-to-air exchange flux of dimethyl sulfide in the Yellow and East China Seas

LI Ya-xian¹, SHEN Jia-wei², ZHAO Liang¹, LI Fei¹

(1.College of Marine and Environmental Sciences, Tianjin University of Science and Technology, Tianjin 300457, China;

2.School of Marine Science and Technology, Tianjin University, Tianjin 300072, China)

Abstract: Dimethyl sulfide (DMS) sea-to-air exchange has an important contribution to global climate and environmental changes. This paper estimated the DMS fluxes in the Yellow and East China Seas, and analyzed their spatial and temporal distribution based on the published data from 2005 to 2017, combined with ERA-interim (European Centre for Medium-Range Weather Forecasts Interim Re-Analysis) wind speed data. The results show that the average annual sea-to-air fluxes of the South Yellow and the East China seas are $(8.63 \pm 4.90) \mu\text{mol}/(\text{m}^2 \cdot \text{d})$ and $(12.77 \pm 8.42) \mu\text{mol}/(\text{m}^2 \cdot \text{d})$, respectively. Except for autumn, the East China Sea DMS flux is higher than that of the South Yellow Sea. The seasonal variations of sea-to-air flux are significant, with the largest in summer and the smallest in winter. The DMS flux of the South Yellow Sea in autumn is higher than that in spring, and the flux of the East China Sea is higher in spring than that in autumn. Based on the variance decomposition, the contribution of each factor to the sea-to-air flux is further discussed. In the South Yellow Sea, the DMS sea-to-air flux in spring is controlled by both the surface DMS concentration and

收稿日期: 2020-11-11, 修订日期: 2021-04-22

基金项目: 国家自然科学基金项目 (41876018); 国家重点研发计划项目 (2016YFA0601301); 天津市自然科学基金项目 (19JCZDJC40600)

作者简介: 李亚贤 (1995—), 男, 河南南阳人, 硕士, 研究方向为海洋生态学, E-mail: liyaxian@mail.tust.edu.cn

通讯作者: 赵亮 (1975—), 教授, 博士, 主要从事海洋生态系统动力学研究, E-mail: zhaoliang@tust.edu.cn

transfer coefficient. The transfer coefficient has a greater impact on the flux in summer and winter. In the East China Sea, the sea-to-air flux in spring is mainly affected by the interaction between the transfer coefficient and the DMS concentration. Moreover, the flux in summer is controlled by the surface DMS concentration, and the transfer coefficient in autumn and winter has a greater impact on the flux. The South Yellow and the East China seas account for approximately 0.30% of the global ocean area, with DMS emissions of 0.1461 TgS/a, accounting for 0.52% of the global ocean DMS emissions.

Key words: dimethyl sulfide; sea-to-air flux; transfer coefficient; variance decomposition; Yellow and East China seas

二甲基硫(dimethyl sulfide, DMS)的排在硫化物的海气交换通量中占绝对优势^[1]。海洋向大气排放的DMS约占大气中DMS来源的95%^[2],占全球海洋硫释放的一半以上^[3],对全球硫收支平衡有非常重要的贡献。DMS海气交换过程在全球气候变化中扮演重要角色,DMS从海洋释放到大气中会影响太阳辐射收支,进而降低地球表面温度,是一种逆温室气体^[4]。陆架海DMS的排放在全球海洋DMS的排放中占优势地位,占全球海域总面积7.5%的陆架海排放了15.7%的DMS^[5]。黄、东海是我国重要的半封闭陆架海,海域面积较小,生产力相对较高^[6],受人类活动影响较大,这些特点对生源硫排放有很大的影响。因此,认清黄、东海DMS海气通量的时空分布特征及其影响因子对于了解我国东部陆架海气候和环境变化具有重要意义。

国内外学者针对DMS海气交换过程开展了大量的研究工作,包括对DMS海气通量的估算及对其影响因子的探究。Kettle等^[2]利用不同数据集,通过滞膜模型(stagnant-film)^[7]对全球海洋DMS海气通量进行估算,得到其年平均排放量为15~33 TgS。北太平洋DMS海气通量夏季高于冬季^[8]。北海DMS海气通量6月最大,是其他月份的两倍,且呈现出近岸高、远海低的分布特征^[9]。目前,有关我国东部陆架海DMS海气通量的研究,主要是利用实测的表层DMS浓度和风速数据来估算海气通量。春季,黄、东海DMS海气通量的范围为4.34~14.45 $\mu\text{mol}/(\text{m}^2 \cdot \text{d})$ ^[10-11],夏季为9.63~18.13 $\mu\text{mol}/(\text{m}^2 \cdot \text{d})$ ^[12-13],秋季为6.19~35.65 $\mu\text{mol}/(\text{m}^2 \cdot \text{d})$ ^[14-15],冬季为2.16~8.30 $\mu\text{mol}/(\text{m}^2 \cdot \text{d})$ ^[15-16],黄、东海DMS海气通量冬季最小,春、夏、秋3个季节不同航次估算的海气通量结果相差较大,季节分布特征也存在差异。

目前,对DMS海气通量影响因子的研究主要关注太阳辐射、大气中DMS浓度、表层DMS浓度和交换速率等^[12, 17-26]。Bates等^[17]认为,DMS海气通量线性依赖到达海面的太阳辐射。Lee等^[18]认为,大气中DMS浓度与DMS海气通量有较好的线性关系。闫士博等^[12]的研究表明,夏季旺盛的浮游植物会释放大量DMS,进而贡献更高的DMS海气通量。杨桂朋等^[22-23]认为,夏、秋季在风速变化不大的情况下,DMS海气通量与DMS浓度的变化一致,当风速变化较大时,海气通量与风速的变化一致,从而导致海气通量变化剧烈。

国内外学者对我国黄、东海DMS海气通量的研究已经取得许多成果。现有研究利用航次数据,采用不同方法估算的DMS海气通量结果相差较大,这导致海气通量的季节变化和空间分布不确定性较高,对黄、东海整体分布特征及其影响因子的认识不够深入。本文收集历史航次数据,将其网格化,给出黄、东海DMS海气通量气候态的季节变化及空间分布特征,在此基础上,利用方差分解讨论黄、东海DMS海气通量的影响因子。

1 材料与方法

1.1 数据来源

本文使用已发表文献^[10-11, 13-14, 22-23, 25-46]中黄、东海共48个航次的原位观测数据,时间范围为2005—2017年,该数据集集中了物理及生态变量,包含采样日期(年/月/日)、站位经纬度、表层温度、表层盐度、表层叶绿素 a (chlorophyll a , Chl a)浓度及表层DMS浓度。图1展示了各个季节的站位分布,其中,春季(3月—5月)、夏季(6月—8月)、秋季(9月—11月)和冬季(12月—

次年2月)分别有13、15、10和10个航次,分别包含488、512、348和278个数据,南黄海和东海分别有549和1077个数据。各月表层DMS浓度数据统计结果显示,4个季节DMS月平均浓度分别为 $(4.65 \pm 1.83) \text{ nmol/L}$ 、 $(6.08 \pm 0.49) \text{ nmol/L}$ 、 $(2.73 \pm 0.38) \text{ nmol/L}$ 和 $(1.60 \pm 0.05) \text{ nmol/L}$,从各季

节的标准差可以看出,季节内表层DMS浓度变化较为稳定,差异较小,因此,本文在评估DMS海气通量时主要讨论各季节间的差异。除8月数据个数较少外,其余各月数据个数较为平均(表1),因此,DMS海气通量的季节平均值能够反映其气候态季节特征。

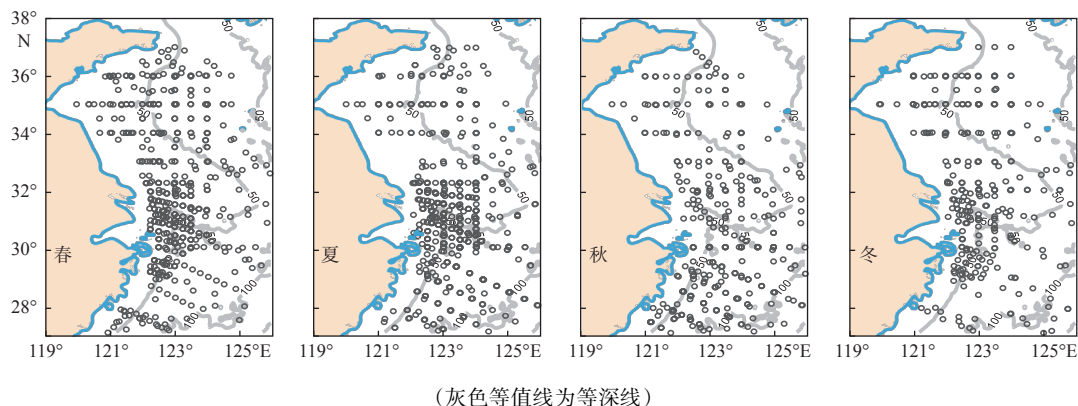


图1 4个季节原始站位分布

Fig. 1 Distribution of in-situ stations for four seasons

表1 各月份数据个数统计

Tab.1 Statistics of the number of data in monthly

季节	月份	数据个数	季节	月份	数据个数
春季	3	209	秋季	9	62
	4	113		10	107
	5	166		11	179
夏季	6	168	冬季	12	129
	7	315		1	48
	8	29		2	101

用于计算DMS海气通量的海表10 m风速数据采用欧洲中期天气预报中心(European Centre for Medium-Range Weather Forecasts, ECMWF)提供的ERA-interim再分析数据,空间分辨率为 $0.125^\circ \times 0.125^\circ$,时间分辨率为6 h(每日6时、12时、18时和24时),数据来源为<https://apps.ecmwf.int/datasets/data/interim-full-daily/levtype=sfc/>。

1.2 数据处理

本文使用滞膜模型^[7]估算DMS海气通量,计算公式如下:

$$F_{\text{DMS}} = K_{\text{DMS}} \cdot (C_w - C_a/H) \quad (1)$$

式中: F_{DMS} 为DMS海气通量; K_{DMS} 为DMS交换速率; C_w 为表层DMS浓度; C_a 为大气中DMS浓度; H 为DMS的亨利系数。DMS在空气中的浓度比在海水中的浓度小3个数量级^[3],在计算时通常忽略大气中的DMS浓度,即 C_a/H 项。

滞膜模型中DMS交换速率的计算主要有LM86^[47]、W92^[48]和N2000^[49]这3种方法,使用LM86估算的交换速率结果较小,W92估算的交换速率结果较大^[2],是LM86估算结果的2.2倍左右^[50],N2000估算的交换速率介于LM86和W92之间,且N2000更加适用于近岸海域^[51]。因此,本文采用N2000经验公式计算黄、东海的DMS交换速率,计算公式如下:

$$K_{\text{DMS}} = (0.222U_{10}^2 + 0.333U_{10}) \cdot (Sc/660)^{-1/2} \quad (2)$$

式中: U_{10} 为海表10 m处的风速,本文根据各站位采样日期和经纬度信息,提取再分析风速数据,包括东分量(U)和北分量(V),根据 U 、 V 计算风速大小,见公式(3),将计算得到的一天4次风速数据的平均值作为原始站位海表10 m处的风速(U_{10}); Sc 为由海表面温度 T 计算得到的施密特数^[52],见公式(4):

$$U_{10} = \sqrt{U^2 + V^2} \quad (3)$$

$$Sc = 2674.0 - 147.12T + 3.726T^2 - 0.038T^3 \quad (4)$$

计算得到各站位 DMS 海气通量后,将原始站位分别进行 1°和 0.5°网格化处理。经过对比评估,两种方案结果大致相同,1°网格的空间覆盖较为完整,海气通量的空间分布较为连续,故本文采用 1°方案进行网格化处理。网格化后,统计 DMS 海气通量在不同海域的季节平均值及年平均,描述南黄海和东海 DMS 海气通量的空间分布和季节变化特征。

由公式(1)计算得到的 DMS 海气通量,受表层 DMS 浓度和交换速率两个因素的影响,为讨论两者对 DMS 海气通量空间分布差异的影响,将网格化的各季节不同海域海气通量的方差进行分解,依次评估 DMS 浓度和交换速率的方差占海气通量方差的权重。DMS 浓度(C_i)和交换速率(k_i)用平均值和扰动项的和来表示,即:

$$k_i = \bar{k} + k'_i \quad (5)$$

$$C_i = \bar{C} + C'_i \quad (6)$$

式中: k'_i 和 C'_i 分别为交换速率和 DMS 浓度的扰动项; $\bar{k} = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N k_i$, $\bar{C} = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N C_i$, 分别为交换速率和 DMS 浓度的平均值; N 为南黄海和东海在各季节的数据个数。

DMS 海气通量(F_i)的计算见公式(7):

$$F_i = C_i k_i = \bar{C} \bar{k} + \bar{C} k'_i + \bar{C} C'_i + C'_i k'_i \quad (7)$$

由于 DMS 浓度与交换速率的扰动项之和均为零,故 DMS 海气通量 F_i 的平均值形式 $\bar{F}$ 可用公式(8)表示:

$$\bar{F} = \bar{C} \bar{k} + \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N C'_i k'_i \quad (8)$$

令 $G_i = C'_i k'_i$, 则有 $\bar{F} = \bar{C} \bar{k} + \bar{G}$ 。定义 DMS 海气通量的方差 σ_F^2 为:

$$\sigma_F^2 = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N (F_i - \bar{F})^2 \quad (9)$$

将公式(7)和公式(8)代入公式(9)中得到 DMS 海气通量的方差,为 6 个分解项之和,见公式(10):

$$\sigma_F^2 = \bar{C}^2 \sigma_k^2 + \bar{k}^2 \sigma_C^2 + 2\bar{C}\bar{k}\sigma_{C \cdot k}^2 + 2\bar{C}\sigma_{k \cdot G}^2 + 2\bar{k}\sigma_{C \cdot G}^2 + \sigma_G^2 \quad (10)$$

式中: $\bar{C}^2 \sigma_k^2$ 为表层 DMS 浓度平均值平方与交换速率方差的乘积项; $\bar{k}^2 \sigma_C^2$ 为交换速率平均值的平方与 DMS 浓度方差的乘积项; $2\bar{C}\bar{k}\sigma_{C \cdot k}^2$ 为 DMS 浓度平均值、交换速率平均值与两者协方差的

乘积项; $2\bar{C}\sigma_{k \cdot G}^2$ 为 DMS 浓度平均值与交换速率和 G_i 的协方差乘积项; $2\bar{k}\sigma_{C \cdot G}^2$ 为交换速率平均值与 DMS 浓度和 G_i 的协方差乘积项; σ_G^2 为 G_i 方差项^[53]。其中, DMS 浓度方差项($\bar{k}^2 \sigma_C^2$)和交换速率方差项($\bar{C}^2 \sigma_k^2$)分别表征了 DMS 浓度和交换速率作为独立变量在空间上的变化程度,3 个协方差项与 G_i 方差项表征 DMS 浓度和交换速率之间的交互作用。本文分析了 DMS 浓度方差项、交换速率方差项及 3 个协方差项与 G_i 方差项之和占海气通量方差的比重,以此讨论各因子对海气通量的影响程度。

2 结果与讨论

2.1 南黄海和东海 DMS 海气通量时空分布特征

南黄海和东海 4 个季节 DMS 海气通量的空间分布如图 2 所示。春季,南黄海 DMS 海气通量整体低于东海。南黄海中部和东海上陆架 DMS 海气通量较高,大于 14 $\mu\text{mol}/(\text{m}^2 \cdot \text{d})$ 。南黄海近岸和长江口及毗邻海域 DMS 海气通量较小。夏季的 DMS 海气通量高于其他季节,南黄海中部、苏北沿岸和长江口及毗邻海域海气通量较高,大于 20 $\mu\text{mol}/(\text{m}^2 \cdot \text{d})$ 。东海海气通量呈现从沿岸到外海先升高后降低的趋势,50 m 和 100 m 等深线之间海域海气通量均大于 25 $\mu\text{mol}/(\text{m}^2 \cdot \text{d})$ 。南黄海北部和东部、舟山群岛附近海域海气通量较低,范围为 2 ~ 12 $\mu\text{mol}/(\text{m}^2 \cdot \text{d})$ 。秋季, DMS 海气通量存在大于 14 $\mu\text{mol}/(\text{m}^2 \cdot \text{d})$ 的高值区,分别位于南黄海西部、东海中部和南部海域。南黄海东部、东海北部和浙闽沿岸 DMS 海气通量较小。冬季, DMS 海气通量整体低于 12 $\mu\text{mol}/(\text{m}^2 \cdot \text{d})$,东海 28°N 以北中陆架 DMS 海气通量高于其他海域。

整个海域 4 个季节 DMS 海气通量分别为 12.84 $\mu\text{mol}/(\text{m}^2 \cdot \text{d})$ 、18.34 $\mu\text{mol}/(\text{m}^2 \cdot \text{d})$ 、9.45 $\mu\text{mol}/(\text{m}^2 \cdot \text{d})$ 和 3.24 $\mu\text{mol}/(\text{m}^2 \cdot \text{d})$, 年平均值($\pm$ 标准差)为 (10.97 $\pm$ 6.32) $\mu\text{mol}/(\text{m}^2 \cdot \text{d})$ 。南黄海 4 个季节 DMS 海气通量分别为 7.12 $\mu\text{mol}/(\text{m}^2 \cdot \text{d})$ 、13.39 $\mu\text{mol}/(\text{m}^2 \cdot \text{d})$ 、11.56 $\mu\text{mol}/(\text{m}^2 \cdot \text{d})$ 和 2.41 $\mu\text{mol}/(\text{m}^2 \cdot \text{d})$, 表现为夏季>秋季>春季>冬季,年平均值($\pm$ 标准差)为 (8.63 $\pm$ 4.90) $\mu\text{mol}/(\text{m}^2 \cdot \text{d})$ 。东海 4 个季节 DMS 海气通量分别为 16.92 $\mu\text{mol}/(\text{m}^2 \cdot \text{d})$ 、22.23 $\mu\text{mol}/(\text{m}^2 \cdot \text{d})$ 、

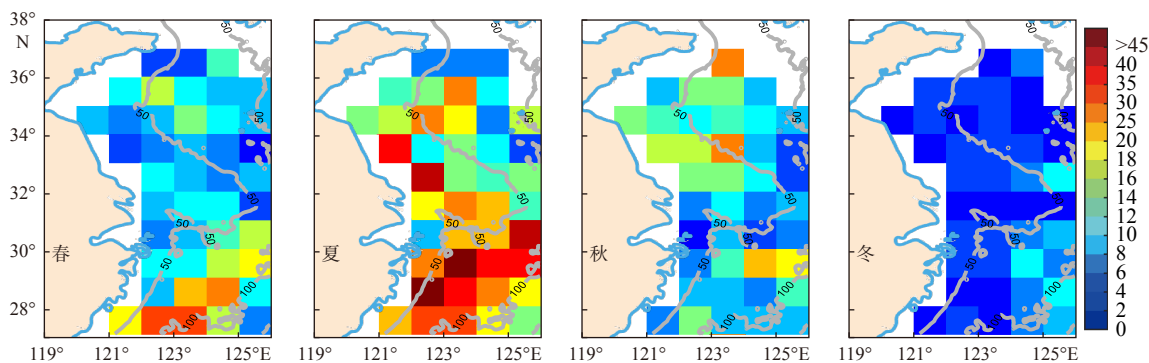


图2 4个季节1°网格化DMS海气交换通量($\mu\text{mol}/\text{m}^2/\text{d}$)空间分布(灰色等值线为等深线)

Fig. 2 Distribution of DMS sea-to-air flux of 1° gridded for four seasons

8.49 $\mu\text{mol}/(\text{m}^2 \cdot \text{d})$ 和 3.42 $\mu\text{mol}/(\text{m}^2 \cdot \text{d})$, 表现为夏季>春季>秋季>冬季, 年平均值($\pm$ 标准差)为(12.49 $\pm$ 8.42) $\mu\text{mol}/(\text{m}^2 \cdot \text{d})$ 。黄、东海DMS海气通量存在显著的($p < 0.01$)季节变化特征, 东海DMS海气通量的季节变化比南黄海更明显。

南黄海和东海DMS海气通量的季节变化特征均表现为夏季最大、冬季最小。夏季和冬季海气通量的差异在除赤道附近以外的全球海域普遍存在^[54], 这种差异程度因海域不同而不同, 整体而言, 夏季DMS海气通量约为冬季的2~6倍^[8-9, 55]。春、秋两季DMS海气通量在不同海域的分布存在差异, 其中, 南黄海秋季海气通量高于春季, 东海春季海气通量高于秋季。从空间特征来看, 除秋季外, 其他季节东海DMS海气通量明显高于南黄海。

2.2 DMS海气通量影响因子分析

研究表明, 我国陆架海域表层DMS浓度与Chl *a* 浓度或初级生产力有较好的正相关关系^[45, 56-58], 海气交换速率是关于海表10 m风速的函数。本文采用方差分解和异常(各网格内原始值与季节平均值的差)的方法, 讨论了南黄海和东海各季节表层DMS浓度和交换速率对DMS海气通量的影响。

春季, 南黄海大部分海域DMS海气通量较低(图2), 受海表风速和温度的限制, 交换速率低于该季节平均值(图3-a)。南黄海中部DMS海气通量出现相对高值, 是因为受Chl *a* 浓度的影响, DMS浓度比该季节平均值高0.95 nmol/L(图4-a)。南黄海交换速率方差项和DMS浓度方差项的贡献大致相同, 分别为74.06%和74.93%

(表2), 这表明春季南黄海交换速率和DMS浓度均对DMS海气通量有主要影响。在东海, 浙闽沿岸和东海南部海域DMS海气通量出现高值, 其中, 受台湾暖流影响^[10, 59], 浙闽沿岸Chl *a* 浓度较高(图4-e), 这导致DMS浓度比季节平均值高3.47 nmol/L, 因此, 海气通量在浙闽沿岸出现高值。台湾以北海域受高风速的影响(图3-e), 交换速率比该季节平均值高4.10 cm/h, 这导致DMS海气通量较高。东海中陆架DMS海气通量出现高值, 是因为DMS浓度受初级生产力影响, 同时, 交换速率受风速影响均高于该季节平均值。东海东部海域海气通量出现低值, 这是因为DMS浓度和交换速率在此海域较低, 两者分别受Chl *a* 浓度和风速的影响, 比季节平均值低2.12 nmol/L和3.11 cm/h。东海协方差项与 G_i 方差项之和的方差贡献为53.24%(表2), 高于DMS浓度方差项和交换速率方差项的贡献, 这表明海气通量的空间差异主要受交换速率和DMS浓度协同作用的影响。

夏季, 交换速率受风速(图3-f)的影响, 南黄海北部和东部DMS海气通量相对较低(图2), 低于该季节平均值。南黄海交换速率方差项贡献为68.45%(表2), 高于DMS浓度方差项贡献, 这表明南黄海DMS海气通量主要受交换速率的影响。受DMS浓度较高的影响(图4-b), 苏北沿岸、长江口及毗邻海域、浙闽沿岸DMS海气通量较高。其中, 苏北沿岸、长江口及毗邻海域Chl *a* 浓度较高(图4-b), 导致DMS浓度比该季节平均值高2.39 nmol/L; 浙闽沿岸Chl *a* 浓度和初级生产力均处于较高水平^[60], 因此, DMS浓度

比该季节平均值高 6.27 nmol/L。东海跨 200 m 等深线处 DMS 海气通量相对较低,这主要是受

DMS 浓度较低的影响。夏季东海 DMS 浓度方差项贡献为 109.57%(表 2), 远高于交换速率方

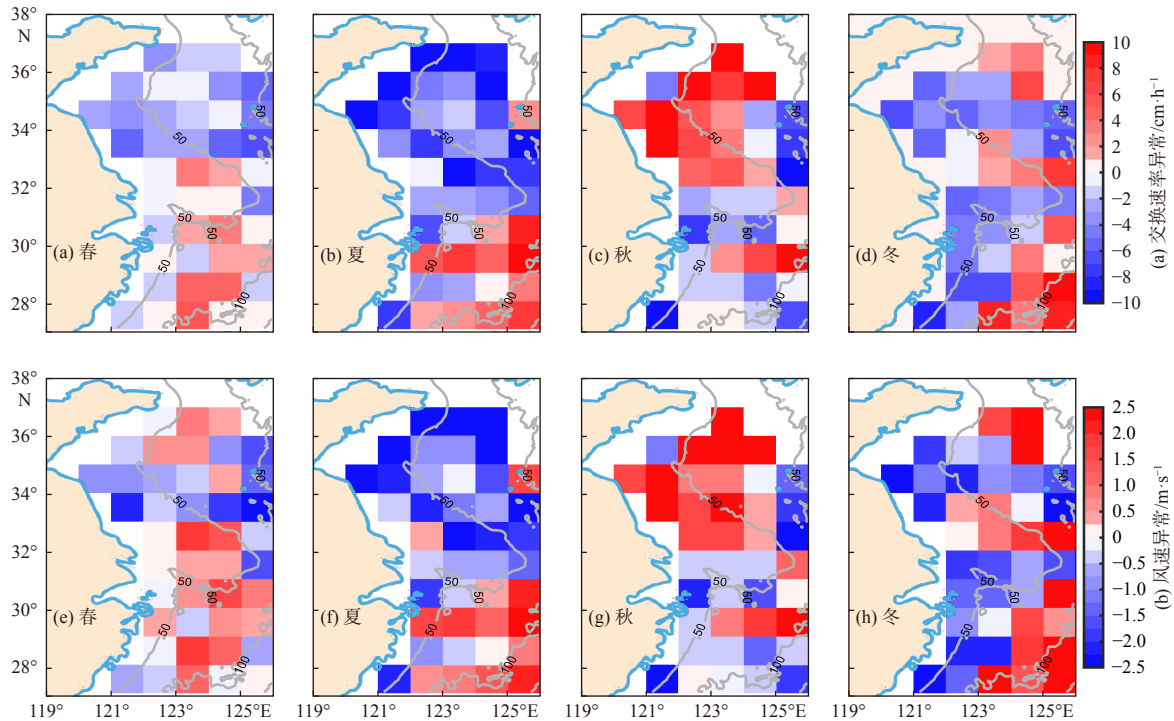


图 3 4 个季节交换速率异常(a-d)和海表风速异常(e-h)的空间分布

Fig. 3 Distribution of transfer coefficient anomaly (a-d) and wind speed anomaly (e-h) above sea surface for four seasons

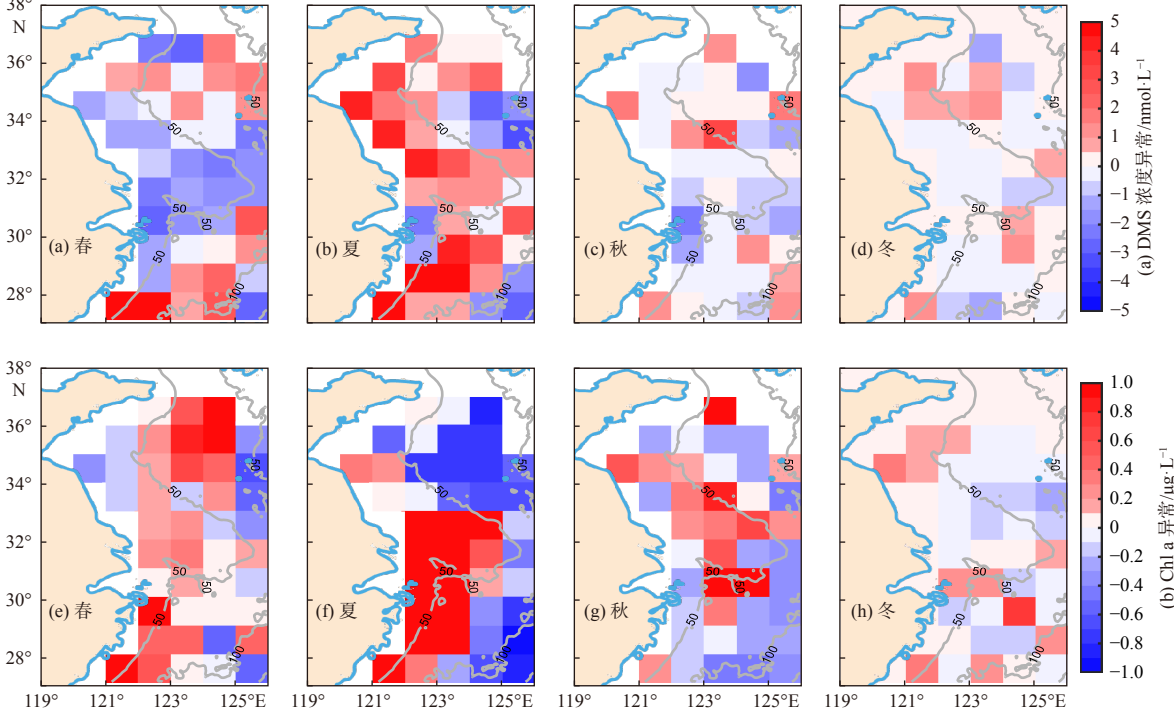


图 4 4 个季节表层 DMS 浓度异常(a-d)和表层 Chl a 浓度异常(e-h)的空间分布

Fig. 4 Distribution of DMS concentration anomaly (a-d) and Chl a concentration anomaly (e-h) in surface layer for four seasons

表 2 南黄海和东海 4 个季节海气通量方差分解后各项占海气通量方差的百分比

Tab.2 Percentage of each item of the sea-to-air flux in the South Yellow and East China seas for four seasons by variance decomposition

季节	海域	DMS浓度方差项贡献/(%)	交换速率项贡献/(%)	三个协方差项与 G_i 方差项贡献之和/(%)
春季	南黄海	74.93	74.06	-49.00
	东海	32.22	14.54	53.24
夏季	南黄海	46.30	68.45	-14.75
	东海	109.57	61.35	-70.92
秋季	南黄海	66.62	51.95	-18.57
	东海	51.57	66.23	-17.80
冬季	南黄海	77.32	109.70	-87.02
	东海	39.26	64.85	-4.11

差项贡献, 这表明夏季东海 DMS 浓度对 DMS 海气通量起主导作用。

秋季, 尽管南黄海西部交换速率比该季节平均值高 10 cm/h(图 3-c), 但受 DMS 浓度的限制, DMS 海气通量仅比该季节平均值高 2 ~ 6 $\mu\text{mol}/(\text{m}^2\cdot\text{d})$ 。秋季南黄海 DMS 浓度方差项贡献为 66.62%(表 2), 高于交换速率方差项贡献, 这表明秋季南黄海表层 DMS 浓度对 DMS 海气通量起主导作用。东海中陆架和东海南部海域 DMS 海气通量较高(图 2), 这是由交换速率和 DMS 浓度共同控制的。其中, 东海中陆架 DMS 浓度较高(图 4-a), 这可能是受初级生产力较高^[61]的影响; 东海南部海域 DMS 浓度较高, 这是受较高 Chl *a* 浓度的影响(图 4-f)。长江口及毗邻海域 DMS 海气通量相对较低, 这是因为在低风速(图 3-g)的影响下, 交换速率比该季节平均值低 3.08 cm/h, 因此, 海气通量受交换速率的影响较大。东海交换速率方差项和 DMS 浓度方差项的贡献分别为 66.23% 和 51.57%(表 2), 交换速率的方差项贡献稍高, 这表明秋季东海交换速率为 DMS 海气通量的主要影响因素, DMS 浓度为次要因素。

冬季, DMS 海气通量和表层 DMS 浓度均为 4 个季节中的最低水平。冬季, 南黄海沿岸出现海冰, 这可能会影响 DMS 浓度^[62]。但本文研究海域与海冰出现的位置没有重叠, 因此不考虑海冰对 DMS 海气通量的影响。东海 28°N 以北中

外陆架 DMS 海气通量处于相对高值(图 2), 这是因为受风速影响, 交换速率比该季节平均值高 7.62 cm/h(图 3-d)。南黄海和东海内陆架 DMS 海气通量处于低值(图 2), 这是因为受风速影响, 交换速率比该季节平均值低 3.03 cm/h。南黄海和东海交换速率方差项对 DMS 海气通量方差的贡献均高于 DMS 浓度方差项的贡献, 分别为 109.7% 和 64.85%(表 2), 方差分解的结果表明, 冬季在 DMS 浓度较为稳定的状态下, 交换速率是海气通量空间分布差异的主要控制因素。

2.3 南黄海和东海 DMS 海气通量的贡献

本文根据南黄海和东海 DMS 海气通量的年平均值计算得到 DMS 的排放量, 以此评估我国陆架海 DMS 排放对全球 DMS 排放的贡献。南黄海 DMS 海气通量的年平均值为 8.63 $\mu\text{mol}/(\text{m}^2\cdot\text{d})$, 其海域面积为 30.90 万 km^2 , 根据南黄海海气通量和海域面积, 估算出南黄海年均 DMS 排放量为 0.0313 TgS。Lana 等^[63]以 N2000 模型作为计算交换速率的方法, 估算全球海洋年均 DMS 排放总量为 28.1 TgS。南黄海海域面积占全球海洋面积的 0.086%, 向大气排放的 DMS 占全球海洋排放总量的 0.11%。东海 DMS 海气通量的年平均值为 12.77 $\mu\text{mol}/(\text{m}^2\cdot\text{d})$, 其海域面积为 77.00 万 km^2 , 根据东海海气通量和海域面积估算出东海年均 DMS 排放量为 0.1148 TgS, 东海海域面积占全球海洋面积的 0.21%, 向大气排放的 DMS 占全球海洋排放总量的 0.41%。根据南黄海和东海 DMS 年排放量计算出整个海域 DMS 排放量为 0.1461 TgS。南黄海和东海海域面积共 107.90 万 km^2 , 占全球海洋面积的 0.30%, 向大气排放的 DMS 占全球海洋排放总量的 0.52%。南黄海和东海 DMS 排放贡献与面积百分比的比值均高于 1, 这表明黄、东海 DMS 排放在全球海洋 DMS 排放中占优势地位。

3 结论

(1) DMS 海气通量的变化范围较大, 表现出显著的季节变化和空间差异。黄、东海 DMS 海气通量的年平均值为 $(10.97\pm 6.32) \mu\text{mol}/(\text{m}^2\cdot\text{d})$, 其中, 南黄海年平均值为 $(8.63\pm 4.90) \mu\text{mol}/(\text{m}^2\cdot\text{d})$, 东海年平均值为 $(12.77\pm 8.42) \mu\text{mol}/(\text{m}^2\cdot\text{d})$, 除秋

季外,其他季节东海的海气通量高于南黄海;整个海域 DMS 海气通量的季节变化表现为夏季>春季>秋季>冬季,夏季海气通量为冬季的 2~6 倍,南黄海和东海 DMS 海气通量季节变化略有差异,南黄海秋季高于春季,东海春季高于秋季。

(2) DMS 海气通量受表层 DMS 浓度和交换速率的影响。方差分解的结果表明,南黄海春季海气通量由 DMS 浓度和交换速率共同控制,在夏季和冬季,交换速率对海气通量的影响较大,而秋季海气通量主要由 DMS 浓度控制;东海春季海气通量受交换速率和 DMS 浓度交互作用的影响较大,夏季海气通量主要由 DMS 浓度控制,秋季和冬季交换速率对海气通量的影响较大。

(3) 南黄海和东海海域面积占全球海洋面积的 0.30%,向大气排放的 DMS 占全球海洋排放总量的 0.52%,这表明黄、东海的 DMS 排放量在全球海洋 DMS 排放中处于较高水平。

参考文献:

- [1] MÖLLER D. On the global natural sulphur emission[J]. *Atmospheric Environment*, 1984, 18(1): 29-39.
- [2] KETTLE A J, ANDREAE M O. Flux of dimethylsulfide from the oceans: a comparison of updated data sets and flux models[J]. *Journal of Geophysical Research*, 2000, 105(D22): 26793-26808.
- [3] ANDREAE M O. Ocean-atmosphere interactions in the global biogeochemical sulfur cycle[J]. *Marine Chemistry*, 1990, 30: 1-29.
- [4] CHARLSON R J, LOVELOCK J E, ANDREAE M O, et al. Oceanic phytoplankton, atmospheric sulphur, cloud albedo and climate[J]. *Nature*, 1987, 326(6114): 655-661.
- [5] GYPENS N, BORGES A V. Increase in dimethylsulfide (DMS) emissions due to eutrophication of coastal waters offsets their reduction due to ocean acidification[J]. *Frontiers in Marine Science*, 2014, 1: 4.
- [6] CHEN C T A. Chemical and physical fronts in the Bohai, Yellow and East China seas[J]. *Journal of Marine Systems*, 2009, 78(3): 394-410.
- [7] LISS P S, SLATER P G. Flux of gases across the air-sea interface[J]. *Nature*, 1974, 247(5438): 181-184.
- [8] ERICKSON III D J, GHAN S J, PENNER J E. Global ocean-to-atmosphere dimethyl sulfide flux[J]. *Journal of Geophysical Research*, 1990, 95(D6): 7543-7552.
- [9] TURNER S M, MALIN G, NIGHTINGALE P D, et al. Seasonal variation of dimethyl sulphide in the North Sea and an assessment of fluxes to the atmosphere[J]. *Marine Chemistry*, 1996, 54(3/4): 245-262.
- [10] YANG G P, ZHUANG G C, ZHANG H H, et al. Distribution of dimethylsulfide and dimethylsulfoniopropionate in the Yellow Sea and the East China Sea during spring: spatio-temporal variability and controlling factors[J]. *Marine Chemistry*, 2012, 138/139: 21-31.
- [11] 景伟文. 海水微表层与次表层中DMS和DMSP的生物地球化学研究[D]. 青岛: 中国海洋大学, 2006: 51-52.
- [12] 闫士博, 靳娜, 张洪海, 等. 黄、渤海二甲基硫化物的浓度分布与迁移转化速率研究[J]. *海洋学报*, 2018, 40(10): 84-95.
- [13] 孙婧, 张洪海, 张升辉, 等. 夏季东海生源硫的分布、通量及其对非海盐硫酸盐的贡献[J]. *中国环境科学*, 2016, 36(11): 3456-3464.
- [14] 贾腾, 张洪海, 张升辉, 等. 秋季东海二甲基有机硫化物的浓度分布与影响因素[J]. *海洋环境科学*, 2017, 36(1): 21-28.
- [15] 杨剑. 中国东部陆架海生源硫的分布、通量及其对气溶胶中非海盐硫酸盐的贡献[D]. 青岛: 中国海洋大学, 2014: 81-120.
- [16] 宋以柱, 张洪海, 杨桂朋. 冬季东海、南黄海中DMS和DMSP浓度分布及影响因素研究[J]. *环境科学*, 2014, 35(6): 2067-2074.
- [17] BATES T S, CHARLSON R J, GAMMON R H. Evidence for the climatic role of marine biogenic sulphur[J]. *Nature*, 1987, 329(6137): 319-321.
- [18] LEE G, PARK J, JANG Y, et al. Vertical variability of seawater DMS in the South Pacific Ocean and its implication for atmospheric and surface seawater DMS[J]. *Chemosphere*, 2010, 78(8): 1063-1070.
- [19] 吴萍, 杨桂朋. 二甲基硫的海-气通量及其对环境的影响[J]. *海洋环境科学*, 2001, 20(1): 64-70.
- [20] SHENOY D M, KUMAR M D. Variability in abundance and fluxes of dimethyl sulphide in the Indian Ocean[J]. *Biogeochemistry*, 2007, 83(1/2/3): 277-292.
- [21] 马奇菊, 胡敏, 田旭东, 等. 青岛近岸海域二甲基硫排放和大气中二甲基硫浓度变化[J]. *环境科学*, 2004, 25(1): 20-24.
- [22] 杨桂朋, 刘龙, 张洪海. 秋季东海二甲基硫和二甲巯基丙酸内盐浓度分布及降解速率研究[J]. *中国海洋大学学报*, 2014, 44(10): 86-91.
- [23] 高旭旭, 张洪海, 杨竣齐, 等. 夏季长江口及其邻近海域生源有机硫化物的分布与影响因素研究[J]. *环境科学学报*, 2019, 39(3): 659-667.
- [24] TAN T T, WU X, LIU C Y, et al. Distributions of dimethylsulfide and its related compounds in the Yangtze (Changjiang) River Estuary and its adjacent waters in early summer[J]. *Continental Shelf Research*, 2017, 146: 89-101.
- [25] YANG G P, SONG Y Z, ZHANG H H, et al. Seasonal

- variation and biogeochemical cycling of dimethylsulfide (DMS) and dimethylsulfoniopropionate (DMSP) in the Yellow Sea and Bohai Sea[J]. *Journal of Geophysical Research*, 2014, 119(12): 8897-8915.
- [26] YANG G P, ZHANG S H, ZHANG H H, et al. Distribution of biogenic sulfur in the Bohai Sea and northern Yellow Sea and its contribution to atmospheric sulfate aerosol in the late fall[J]. *Marine Chemistry*, 2015, 169: 23-32.
- [27] GAO N, YANG G P, ZHANG H H, et al. Temporal and spatial variations of three dimethylated sulfur compounds in the Changjiang Estuary and its adjacent area during summer and winter[J]. *Environmental Chemistry*, 2017, 14(3): 160-177.
- [28] JIAN S, ZHANG H H, JING Z, et al. Spatiotemporal distribution characteristics and environmental control factors of biogenic dimethylated sulfur compounds in the East China Sea during spring and autumn[J]. *Limnology and Oceanography*, 2018, 63(S1): S280-S298.
- [29] JIAN S, ZHANG H H, YANG G P, et al. Variation of biogenic dimethylated sulfur compounds in the Changjiang River Estuary and the coastal East China Sea during spring and summer[J]. *Journal of Marine Systems*, 2019, 199: 103222.
- [30] 李江萍, 张洪海, 杨桂朋. 夏季中国东海生源有机硫化物的分布及其影响因素研究[J]. *环境科学*, 2015, 36(1): 49-55.
- [31] 孙茗歆, 张洪海, 马乾耀, 等. 春季东海挥发性有机硫化物(VSCs)分布的研究[J]. *中国环境科学*, 2018, 38(4): 1490-1498.
- [32] 谭丹丹, 张洪海, 翟星, 等. 冬季黄渤海DMS、DMSP和CH₄的分布及影响因素[J]. *中国环境科学*, 2019, 39(5): 2143-2153.
- [33] WU X, LI P F, ZHANG H H, et al. Acrylic acid and related dimethylated sulfur compounds in the Bohai and Yellow seas during summer and winter[J]. *Biogeosciences*, 2020, 17(7): 1991-2008.
- [34] WU X, LI P F, LIU C Y, et al. Biogeochemistry of dimethylsulfide, dimethylsulfoniopropionate, and acrylic acid in the Changjiang Estuary and the East China Sea[J]. *Journal of Geophysical Research*, 2017, 122(12): 10245-10261.
- [35] XU F, JIN N, MA Z, et al. Distribution, occurrence, and fate of biogenic dimethylated sulfur compounds in the Yellow Sea and Bohai Sea during spring[J]. *Journal of Geophysical Research*, 2019, 124(8): 5787-5800.
- [36] YANG G P, ZHANG H H, SU L P, et al. Biogenic emission of dimethylsulfide (DMS) from the North Yellow Sea, China and its contribution to sulfate in aerosol during summer[J]. *Atmospheric Environment*, 2009, 43(13): 2196-2203.
- [37] YANG G P, ZHANG H H, ZHOU L M, et al. Temporal and spatial variations of dimethylsulfide (DMS) and dimethylsulfoniopropionate (DMSP) in the East China Sea and the Yellow Sea[J]. *Continental Shelf Research*, 2011, 31(13): 1325-1335.
- [38] YANG G P, WANG X, ZHANG H H, et al. Temporal and spatial variations of dimethylsulfoxide in the Bohai Sea and the Yellow Sea[J]. *Journal of Sea Research*, 2014, 90: 33-43.
- [39] YANG G P, JING W W, LI L, et al. Distribution of dimethylsulfide and dimethylsulfoniopropionate in the surface microlayer and subsurface water of the Yellow Sea, China during spring[J]. *Journal of Marine Systems*, 2006, 62(1/2): 22-34.
- [40] YANG J, YANG G P. Distribution of dissolved and particulate dimethylsulfoxide in the East China Sea in winter[J]. *Marine Chemistry*, 2011, 127(1/2/3/4): 199-209.
- [41] YANG J, YANG G P, ZHANG H H, et al. Spatial distribution of dimethylsulfide and dimethylsulfoniopropionate in the Yellow Sea and Bohai Sea during summer[J]. *Chinese Journal of Oceanology and Limnology*, 2015, 33(4): 1020-1038.
- [42] YANG J, YANG G P, ZHANG H H, et al. Temporal variations of dimethylsulfide and dimethylsulfoniopropionate in the southern Yellow Sea in spring and autumn[J]. *Acta Oceanologica Sinica*, 2016, 35(2): 76-87.
- [43] ZHAI X, LI J L, ZHANG H H, et al. Spatial distribution and biogeochemical cycling of dimethylated sulfur compounds and methane in the East China Sea during spring[J]. *Journal of Geophysical Research*, 2019, 124(2): 1074-1090.
- [44] ZHANG H H, YANG G P, ZHU T. Distribution and cycling of dimethylsulfide (DMS) and dimethylsulfoniopropionate (DMSP) in the sea-surface microlayer of the Yellow Sea, China, in spring[J]. *Continental Shelf Research*, 2008, 28(17): 2417-2427.
- [45] ZHANG S H, YANG G P, ZHANG H H, et al. Spatial variation of biogenic sulfur in the south Yellow Sea and the East China Sea during summer and its contribution to atmospheric sulfate aerosol[J]. *Science of the Total Environment*, 2014, 488/489: 157-167.
- [46] ZHANG S H, SUN J, LIU J L, et al. Spatial distributions of dimethyl sulfur compounds, DMSP-lyase activity, and phytoplankton community in the East China Sea during fall[J]. *Biogeochemistry*, 2017, 133(1): 59-72.
- [47] LISS P S, MERLIVAT L. Air-sea gas exchange rates: introduction and synthesis[M]//BUAT-MÉNARD P. *The Role of Air-Sea Exchange in Geochemical Cycling*. Dordrecht: Springer, 1986: 113-127.
- [48] WANNINKHOF R. Relationship between wind speed and gas exchange over the ocean[J]. *Journal of Geophysical Research*, 1992, 97(C5): 7373-7382.

- [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]. *Global Biogeochemical Cycles*, 2000, 14(1): 373-387.
- [50] 张洪海. 中国东海、黄海DMS和DMSP的生物地球化学研究[D]. 青岛: 中国海洋大学, 2009.
- [51] 彭丽英, 孙 军. 海洋二甲基硫观测技术及其海-气通量分析研究进展[J]. *生态学报*, 2020, 40(2): 428-439.
- [52] SALTZMAN E, KING D B, HOLMEN K, et al. Experimental determination of the diffusion coefficient of dimethylsulfide in water[J]. *Journal of Geophysical Research*, 1993, 98(C9): 16481-16486.
- [53] GUO X Y, ZHU X H, WU Q S, et al. The Kuroshio nutrient stream and its temporal variation in the East China Sea[J]. *Journal of Geophysical Research*, 2012, 117(C1): C01026.
- [54] BATES T S, CLINE J D, GAMMON R H, et al. Regional and seasonal variations in the flux of oceanic dimethylsulfide to the atmosphere[J]. *Journal of Geophysical Research*, 1987, 92(C3): 2930-2938.
- [55] NGUYEN B C, MIHALOPOULOS N, BELVISO S. Seasonal variation of atmospheric dimethylsulfide at Amsterdam Island in the southern Indian Ocean[J]. *Journal of Atmospheric Chemistry*, 1990, 11(1/2): 123-141.
- [56] YANG G P, ZHANG J W, LI L, et al. Dimethylsulfide in the surface water of the East China Sea[J]. *Continental Shelf Research*, 2000, 20(1): 69-82.
- [57] 沈家威, 赵 亮, 王思佳, 等. 黄、东海二甲基硫与环境因子的多元分析及建模[J]. *中国环境科学*, 2019, 39(6): 2514-2522.
- [58] YANG G P, LIU X T, LI L, et al. Biogeochemistry of dimethylsulfide in the South China Sea[J]. *Journal of Marine Research*, 1999, 57(1): 189-211.
- [59] 孙 松. 中国区域海洋学: 生物海洋学[M]. 北京: 海洋出版社, 2012: 190-196.
- [60] 文 斐, 孙晓霞, 郑 珊, 等. 2011年春、夏季黄、东海叶绿素a和初级生产力的时空变化特征[J]. *海洋与湖沼*, 2012, 43(3): 438-444.
- [61] 张玉荣, 丁跃平, 李铁军, 等. 东海区叶绿素a和初级生产力季节变化特征[J]. *海洋与湖沼*, 2016, 47(1): 261-268.
- [62] ASHER E C, DACEY J W H, MILLS M M, et al. High concentrations and turnover rates of DMS, DMSP and DMSO in Antarctic sea ice[J]. *Geophysical Research Letters*, 2011, 38(23): L23609.
- [63] LANA A, BELL T G, SIMÓ R, et al. An updated climatology of surface dimethylsulfide concentrations and emission fluxes in the global ocean[J]. *Global Biogeochemical Cycles*, 2011, 25(1): GB1004.

(上接第 292 页)

- [11] 梁 洲, 潘扬航, 张锦辉, 等. 2016年夏季长江口邻近海域海洋参数的数据分析[J]. *厦门大学学报(自然科学版)*, 2020, 59(S1): 69-74.
- [12] JI C X, YANG G P, CHEN Y, et al. Distribution, degradation and bioavailability of dissolved organic matter in the East China Sea[J]. *Biogeochemistry*, 2019, 142(2): 189-207.
- [13] GUO C, HE Q, GUO L C, et al. A study of in-situ sediment flocculation in the turbidity maxima of the Yangtze Estuary[J]. *Estuarine, Coastal and Shelf Science*, 2017, 191: 1-9.
- [14] 翟世奎, 张怀静, 范德江, 等. 长江口及其邻近海域悬浮物浓度和浊度的对应关系[J]. *环境科学学报*, 2005, 25(5): 693-699.
- [15] 李 照, 宋书群, 李才文, 等. 丰、枯水期长江口邻近海域浮游植物群落结构特征及其环境影响初探[J]. *海洋学报*, 2017, 39(10): 124-144.
- [16] CHEN Y, YANG G P, LIU L, et al. Sources, behaviors and degradation of dissolved organic matter in the East China Sea[J]. *Journal of Marine Systems*, 2016, 155: 84-97.
- [17] 王丽玲, 胡建芳, 唐建辉. 中国近海表层沉积物中氨基酸组成特征及生物地球化学意义[J]. *海洋学报*, 2009, 31(6): 161-169.
- [18] COWIE G L, HEDGES J I. Digestion and alteration of the biochemical constituents of a diatom (*Thalassiosira weissflogii*) ingested by an herbivorous zooplankton (*Calanus pacificus*)[J]. *Limnology and Oceanography*, 1996, 41(4): 581-594.
- [19] DAVIS J, KAISER K, BENNER R. Amino acid and amino sugar yields and compositions as indicators of dissolved organic matter diagenesis[J]. *Organic Geochemistry*, 2009, 40(3): 343-352.
- [20] WU Y, LIU Z, HU J, et al. Seasonal dynamics of particulate organic matter in the Changjiang Estuary and adjacent coastal waters illustrated by amino acid enantiomers[J]. *Journal of Marine Systems*, 2016, 154: 57-65.