

学校编码: 10384

密级_____

学号: 22420071150871

厦门大学

硕士学位论文

海洋水体反硝化作用和厌氧氨氧化作用的 ^{15}N 示踪研究

Denitrification and anammox in marine water columns
using ^{15}N technique

郑敏芳

指导教师姓名: 陈敏教授

专业名称: 海洋化学

论文提交日期: 2010年7月

论文答辩日期: 2010年7月

2010年7月

厦门大学学位论文原创性声明

本人呈交的学位论文是本人在导师指导下,独立完成的研究成果。本人在论文写作中参考其他个人或集体已经发表的研究成果,均在文中以适当方式明确标明,并符合法律规范和《厦门大学研究生学术活动规范(试行)》。

另外,该学位论文为(海洋与环境学院同位素海洋化学)课题(组)的研究成果,获得(陈敏教授)课题(组)经费或实验室的资助,在(厦门大学海洋与环境学院同位素海洋化学)实验室完成。(请在以上括号内填写课题或课题组负责人或实验室名称,未有此项声明内容的,可以不作特别声明。)

声明人(签名):

年 月 日

厦门大学学位论文著作权使用声明

本人同意厦门大学根据《中华人民共和国学位条例暂行实施办法》等规定保留和使用此学位论文，并向主管部门或其指定机构送交学位论文（包括纸质版和电子版），允许学位论文进入厦门大学图书馆及其数据库被查阅、借阅。本人同意厦门大学将学位论文加入全国博士、硕士学位论文共建单位数据库进行检索，将学位论文的标题和摘要汇编出版，采用影印、缩印或者其它方式合理复制学位论文。

本学位论文属于：

1. 经厦门大学保密委员会审查核定的保密学位论文，
于 2012 年 12 月 31 日解密，解密后适用上述授权。

2. 不保密，适用上述授权。

（请在以上相应括号内打“√”或填上相应内容。保密学位论文应是已经厦门大学保密委员会审定过的学位论文，未经厦门大学保密委员会审定的学位论文均为公开学位论文。此声明栏不填写的，默认为公开学位论文，均适用上述授权。）

声明人（签名）：

年 月 日

目 录

摘 要.....	1
Abstract.....	3
第一章 绪论	5
1.1 前言	5
1.2 反硝化作用	7
1.2.1 反硝化细菌.....	10
1.2.2 反硝化作用的调控因素.....	11
1.2.2.1 溶解氧	12
1.2.2.2 pH.....	12
1.2.2.3 温度	12
1.2.2.4 盐度	13
1.2.2.5 NO ₃ 浓度	13
1.2.2.6 有机质含量.....	14
1.2.2.7 其他影响因素.....	14
1.2.3 反硝化作用的研究进展.....	15
1.2.3.1 海洋水体反硝化速率测值.....	15
1.2.3.2 反硝化效率.....	15
1.2.3.3 反硝化过程的同位素分馏及其应用.....	17
1.2.3.4 反硝化作用与固氮作用的关系.....	18
1.3 厌氧氨氧化作用 (anammox)	18
1.3.1 厌氧氨氧化细菌.....	19
1.3.2 厌氧氨氧化作用的影响因素.....	21
1.3.2.1 O ₂	22
1.3.2.2 温度	22
1.3.2.3 环境稳定性.....	23

1.3.2.4 NO ₃ ⁻ 和有机碳.....	23
1.3.3 厌氧氨氧化作用与反硝化作用的关系.....	24
1.3.4 厌氧氨氧化作用 NO ₂ ⁻ 和 NH ₄ ⁺ 的半饱和常数.....	25
1.3.5 厌氧氨氧化的速率特征.....	25
1.3.6 厌氧氨氧化对 N 循环的影响.....	27
1.3.7 地球演化过程中厌氧氨氧化的可能作用.....	28
1.4 本研究的内容与目标.....	29
第二章 研究方法.....	30
2.1 海水反硝化速率的测定方法.....	30
2.1.1 间接测定方法.....	30
2.1.1.1 质量平衡法.....	30
2.1.1.2 元素计量法.....	31
2.1.1.3 其他间接测量方法.....	31
2.1.2 直接测定方法.....	32
2.1.2.1 N ₂ 通量法.....	32
2.1.2.2 N ₂ :Ar 比值法.....	32
2.1.2.3 乙炔抑制法.....	33
2.1.2.4 ¹⁵ N 示踪法.....	34
2.2 海水中厌氧氨氧化速率的测定方法.....	35
2.3 反硝化速率与厌氧氨氧化速率测定方法的建立.....	36
2.3.1 同位素比值质谱仪测量 N ₂ 中同位素组成的方法学研究.....	37
2.3.1.1 实验流程概述.....	37
2.3.1.2 质谱仪测量 N ₂ 含量的精度.....	37
2.3.1.3 N ₂ 含量及其同位素组成测定的工作曲线.....	37
2.3.1.4 培养瓶中空气去除时间的确定.....	39
2.3.1.5 水样中溶解 N ₂ 超声驱赶时间的确定.....	39
2.3.2 示踪剂添加量对反硝化速率测值的影响.....	40
2.4 ¹⁵N 示踪法实测反硝化速率和厌氧氨氧化速率于厦门筴筴湖的检验.....	42

2.4.1 样品采集.....	42
2.4.2 实验流程.....	43
2.4.2.1 水样原溶解气体存在情况（未赶气情况）	44
2.4.2.2 水样原溶解气体不存在情况（赶气情况）	44
2.4.2.3 水体物理、化学参数的测定.....	45
2.4.3 反硝化速率与厌氧氨氧化速率的计算.....	45
2.4.4 厦门筲筴湖水体中的反硝化速率与厌氧氨氧化速率	46
2.4.4.1 表层水	46
2.4.4.2 底层水	49
2.5 结论	53
第三章 厦门筲筴湖水体的反硝化作用和厌氧氨氧化作用.....	54
3.1 引言	54
3.2 样品采集与分析	55
3.2.1 样品采集.....	55
3.2.2 样品处理与分析.....	56
3.2.3 反硝化速率与厌氧氨氧化速率的计算.....	57
3.3 筲筴湖水体中 DO、NO₃⁻、NO₂⁻和 NH₄⁺的含量与分布	58
3.3.1 夏季.....	58
3.3.2 秋季.....	60
3.4 筲筴湖水体的反硝化作用与厌氧氨氧化作用.....	62
3.4.1 夏季.....	62
3.4.2 秋季.....	65
3.5 筲筴湖水体的反硝化速率与厌氧氨氧化速率.....	67
3.5.1 夏季.....	67
3.5.2 秋季.....	69
3.6 水体原溶解气体存在与否对反硝化速率和厌氧氨氧化速率测值的影响... 	70
3.6.1 夏季.....	70

3.6.2 秋季.....	73
3.7 反硝化速率的季节变化.....	75
3.8 筲筴湖水体反硝化速率与环境因子的关系.....	78
3.8.1 反硝化速率与溶解氧的关系.....	78
3.8.2 反硝化速率与盐度的关系.....	80
3.8.3 反硝化速率与 NO ₃ 浓度的关系.....	81
3.9 筲筴湖水体厌氧氨氧化速率与环境因子的关系.....	82
3.10 反硝化作用与厌氧氨氧化作用对 N₂ 产生量的贡献.....	84
3.11 结论.....	84
第四章 黄海和东海的反硝化作用和厌氧氨氧化作用.....	86
4.1 引言.....	86
4.2 样品采集与分析.....	87
4.3 结果与讨论.....	88
4.3.1 温度、盐度.....	88
4.3.2 反硝化作用.....	90
4.3.3 厌氧氨氧化作用.....	91
4.3.4 黄、东海水体中反硝化速率和厌氧氨氧化速率的估算.....	94
4.3.5 长江口附近海域反硝化作用和厌氧氨氧化作用的氮迁出通量.....	95
4.4 结论.....	96
第五章 白令海、西北冰洋水体的反硝化作用.....	97
5.1 引言.....	97
5.2 研究方法.....	98
5.2.1 采样站位.....	98
5.2.2 样品采集与分析.....	98
5.2.3 反硝化速率的计算.....	99

5.3 结果与讨论	100
5.3.1 温、盐分析	100
5.3.2 白令海和西北冰洋水体的反硝化速率	105
5.3.3 水体反硝化作用在白令海陆架和西北冰洋氮循环中的作用	109
5.3.4 反硝化速率的分布特征	110
5.3.4.1 白令海	110
5.3.4.2 西北冰洋	111
5.3.5 白令海和西北冰洋陆架区水体反硝化作用迁出的氮通量	112
5.4 结论	113
第六章 结论	114
6.1 海水反硝化速率和厌氧氨氧化速率测定的 ¹⁵ N示踪法	114
6.2 厦门筲筴湖水体的反硝化作用和厌氧氨氧化作用	114
6.3 黄海和东海的反硝化作用和厌氧氨氧化作用	115
6.4 白令海、西北冰洋水体的反硝化作用	116
参考文献	117
附录：在学期间所做的主要工作	139
致 谢	140

Contents

Chinese abstract.....	1
English abstract.....	3
Chapter 1 General introduction	5
1.1 Introduction	5
1.2 Denitrification	7
1.2.1 Denitrifiers	10
1.2.2 Control factors on denitrification	11
1.2.2.1 Dissolved oxygen.....	12
1.2.2.2 pH.....	12
1.2.2.3 Temperature	12
1.2.2.4 Salinity	13
1.2.2.5 NO ₃ ⁻ concentration.....	13
1.2.2.6 Organic matter.....	14
1.2.2.7 Other factors.....	14
1.2.3 Progresses in denitrification research.....	15
1.2.3.1 The reported denitrification rates in global ocean.....	15
1.2.3.2 Denitrification efficiency	15
1.2.3.3 Isotopic fractionation during denitrification and its application	17
1.2.3.4 Relationship between denitrification and fixation	18
1.3 Anammox	18
1.3.1 Anammox bacteria	19
1.3.2 Control factors on anammox	21
1.3.2.1 O ₂	22
1.3.2.2 Temperature	22
1.3.2.3 Stability of environment.....	23

1.3.2.4	NO_3^- and organic carbon	23
1.3.3	Relationship between anammox and denitrification	24
1.3.4	Semi-saturation constants for NO_2^- and NH_4^+ in anammox reaction	25
1.3.5	Characteristics of anammox rates	25
1.3.6	The effect of anammox on N cycle	27
1.3.7	Possible role of anammox in the process of earth evolution	28
1.4	Objectives and contents of this study	29
Chapter 2	Methods	30
2.1	Methods for measuring denitrification rates in sea water	30
2.1.1	Indirect methods	30
2.1.1.1	Mass balance approaches	30
2.1.1.2	Stoichiometric approaches	31
2.1.1.3	Other indirect methods	31
2.1.2	Direct methods	32
2.1.2.1	Direct N_2 quantification	32
2.1.2.2	N_2 :Ar ratio quantification	32
2.1.2.3	Acetylene inhibition method	33
2.1.2.4	^{15}N tracers method	34
2.2	Methods for measuring anammox rates in sea water	35
2.3	Establishment of ^{15}N tracer method for measuring denitrification rates and anammox rates simultaneously	36
2.3.1	Methodology for isotopic ratio mass spectrum (IRMS) measuring N_2 isotopic composition	37
2.3.1.1	Experiment procedure	37
2.3.1.2	Accuracy of N_2 content measured by IRMS	37
2.3.1.3	Working curve for measuring N_2 isotopic composition	37
2.3.1.4	Choose of high purity helium purge time	39
2.3.1.5	Choose of air-blowing time of gases originally dissolved	39

2.3.2	The influence of dosage of tracers on denitrification Estimates	40
2.4	¹⁵N tracer method for measuring denitrification rates and anammox rates was tested in Yundang Lagoon, Xiamen	42
2.4.1	Sampling	42
2.4.2	Experiment procedures.....	43
2.4.2.1	In the presence of gases originally dissolved	44
2.4.2.2	In the absence of gases originally dissolved	44
2.4.2.3	Analysis of physical and chemical parameters	45
2.4.3	Calculation of denitrification rates and anammox rates	45
2.4.4	Denitrification rates and anammox rates in water column of Yundang Lagoon, Xiamen	46
2.4.4.1	Surface water	46
2.4.4.2	Bottom water.....	49
2.5	Conclusion.....	53
Chapter 3	Denitrification and anammox in the water column of Yundang Lagoon, Xiamen.....	54
3.1	Introduction	54
3.2	Sampling and analysis.....	55
3.2.1	Sampling	55
3.2.2	Sample analysis.....	56
3.2.3	Calculation of denitrification rates and anammox rates	57
3.3	Contents and distribution of DO, NO₃⁻, NO₂⁻ and NH₄⁺ in water column of Yundang Lagoon.....	58
3.3.1	Summer	58
3.3.2	Fall	60
3.4	Denitrification and anammox in water column of Yundang Lagoon	62
3.4.1	Summer	62

3.4.2	Fall	65
3.5	Denitrification rates and anammox rates in water column of Yundang Lagoon	67
3.5.1	Summer	67
3.5.2	Fall	69
3.6	Comparison of denitrification rates and anammox rates between the presence and absence of gases originally dissolved	70
3.6.1	Summer	70
3.6.2	Fall	73
3.7	Seasonal variations in denitrification rates.....	75
3.8	Relationship between denitrification rates and environmental factors in Yundang Lagoon.....	78
3.8.1	Relationship between denitrification rate and DO	78
3.8.2	Relationship between denitrification rate and salinity	80
3.8.3	Relationship between denitrification rate and NO ₃ ⁻ concentration	81
3.9	Relationship between anammox rates and environmental factors in Yundang Lagoon.....	82
3.10	The contributions of denitrification and anammox to N₂ production in water column of Yundang Lagoon	84
3.11	Conclusion	84
Chapter 4	Denitrification and anammox in the Yellow Sea and the East China Sea	86
4.1	Introduction	86
4.2	Sampling and analysis.....	87
4.3	Results and discussion.....	88
4.3.1	Temperature and salinity	88

4.3.2	Denitrification	90
4.3.3	Anammox	91
4.3.4	Estimates of denitrification rates and anammox rates in water column of the Yellow Sea and the East China Sea	94
4.3.5	Removal flux of fixed nitrogen by aquatic denitrification and anammox in the Yangtze Rive estuary	95
4.4	Conclusion	96
Chapter 5 Denitrification in water column of the Bering Sea and the western Arctic Ocean		97
5.1	Introduction	97
5.2	Method.....	98
5.2.1	Sampling locations	98
5.2.2	Sampling and analysis	98
5.2.3	Calculation of denitrification rates	99
5.3	Results and discussion.....	100
5.3.1	Temperature and salinity	100
5.3.2	Denitrification rates in water column of the Bering Sea and the western Arctic Ocean	105
5.3.3	The role of aquatic denitrification in N cycle of the Bering Sea and the western Arctic Ocean	109
5.3.4	Spatial distribution of denitrification rates	110
5.3.4.1	The Bering Sea.....	110
5.3.4.2	The western Arctic Ocean	111
5.3.5	Removal flux of fixed nitrogen by denitrification in water column of the Bering Sea and the western Arctic Ocean	112
5.4	Conclusion.....	113
Chapter 6 Summary		114

6.1 ^{15}N tracer method for measuring denitrification rates and anammox rates in seawater.....	114
6.2 Denitrification and anammox in Yundang Lagoon water column.....	114
6.3 Denitrification and anammox in seawater of the Yellow Sea and the East China Sea.....	115
6.4 Denitrification in water column of the Bering Sea and the western Arctic Ocean	116
References	117
Appendixes	139
Acknowledgements	140

摘要

通过系列方法实验建立了海洋水体反硝化速率和厌氧氨氧化速率测定的¹⁵N示踪方法,将该方法运用于厦门筓筓湖、黄海、东海的反硝化作用和厌氧氨氧化作用研究,以及白令海和西北冰洋的反硝化作用研究,获得主要结果如下:

夏季厦门筓筓湖水体的反硝化速率和厌氧氨氧化速率分别为 0~49.45 $\mu\text{molN}_2/\text{L/d}$ 和 0~2.83 $\mu\text{molN}_2/\text{L/d}$ 。秋季水体反硝化速率和厌氧氨氧化速率的变化范围分别为 0.023~0.43 $\mu\text{molN}_2/\text{L/d}$ 和 0~0.33 $\mu\text{molN}_2/\text{L/d}$ 。夏季的反硝化速率和厌氧氨氧化速率比秋季高出 1~2 个数量级,与该季节水体温度较高、缺氧程度较大有关。两个季节反硝化作用和厌氧氨氧化作用对 N_2 总产生量的平均贡献分别占 80%和 20%左右,反硝化作用是筓筓湖水体结合态氮迁出与 N_2 产生的最主要途径,但厌氧氨氧化作用也有不可忽视的贡献。每年通过反硝化作用和厌氧氨氧化作用从干渠迁出的结合态氮通量占污水输入干渠的溶解无机氮通量的 40%左右,反硝化作用和厌氧氨氧化作用对于缓解筓筓湖干渠及下游整个筓筓湖的富营养化程度起到一定作用。

黄、东海近岸水体的反硝化作用强于外海水体,其原因可能与径流输入的大量营养盐和有机质有关,这些物质为反硝化作用的进行提供了良好的环境(低氧条件)和反应物(溶解有机碳)。由于反硝化作用的区域差异,黄、东海近岸水体中厌氧氨氧化作用对 N_2 产生通量的贡献比外海低。所调查的 6 个站位中,有 5 个站位观察到了厌氧氨氧化作用的发生,其对黄、东海结合态氮迁出通量的贡献为 12~63%,厌氧氨氧化作用是黄、东海水体中结合态氮迁出的重要过程之一。对于长江口附近海域,通过反硝化作用和厌氧氨氧化作用迁出的水体结合态氮通量占长江径流输入东海 NO_3^- 通量的比例约为 30%,反硝化作用和厌氧氨氧化作用对于缓解长江口附近海域的富营养化程度起到一定作用。

反硝化作用在白令海和西北冰洋水体中广泛存在。白令海水体反硝化速率的空间分布具有陆坡>陆架>海盆的特征,在白令海盆区,水体反硝化作用不存在或很微弱,在白令海陆架区,从西南部往东北方向,水体的反硝化速率呈降低趋势,这个下降趋势一直延伸到楚科奇陆架。北冰洋水体的反硝化速率具有陆坡>

海盆>陆架的空间分布特征。水体反硝化作用是白令海和西北冰洋陆架区结合态氮迁出的重要途径之一。

关键词：反硝化作用；厌氧氨氧化作用；海洋水体； ^{15}N 示踪

厦门大学博硕士论文摘要库

Degree papers are in the "[Xiamen University Electronic Theses and Dissertations Database](#)". Full texts are available in the following ways:

1. If your library is a CALIS member libraries, please log on <http://etd.calis.edu.cn/> and submit requests online, or consult the interlibrary loan department in your library.
2. For users of non-CALIS member libraries, please mail to etd@xmu.edu.cn for delivery details.

厦门大学博硕士论文摘要库