学校编码: 10384 学号: 22620091151192 密级_____



博士学位论文

基于氮同位素的我国红树林沉积物氮素迁 移转化机制

Nitrogen Transports and Transformations in Mangrove Sediments using Nitrogen Isotope Techniques in China

李 颖

指导教师姓名:曹文志 教授

专业名称:海洋化学

论文提交日期: 2012年 6月

论文答辩时间: 2012年 6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()课题(组) 的研究成果,获得()课题(组)经费或实验室的资助, 在()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 年 月 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

摘要

人类活动对生态系统的影响日益扩大,过量施肥、化石燃料的燃烧等引发的 氦(N)负荷迅速增加。陆地生态系统过剩的 N 通过流域汇集至河口和海岸,威胁着海洋生态系统的健康。目前,全球 N 循环正致力于揭示河口和海岸地区 N 的源汇格局及主导机制。红树林湿地广泛分布于热带、亚热带河口和海岸地区,作为陆源营养盐入海过渡带,在缓解陆源 N 输入方面扮演着重要角色,成为了研究的热点。

本研究利用 N 稳定同位素技术,将现场培养与室内模拟培养相结合,揭示了我国东南沿海典型河口和海湾红树林湿地沉积物总氮沉积、固氮作用、反硝化作用、厌氧铵氧化作用、氧化亚氮气体(N₂O)排放、潮汐水溶解态氮素(DN)交换通量等 N 输入输出过程及其机制,探讨了沉积物硝化作用和硝酸盐铵化(DNRA)等 N 转化机制,对红树林沉积物 N 收支进行了初步估算。主要研究结论如下:

第一,N输入受总氮沉积、固氮作用主导,反硝化和厌氧氨氧化作用为活性 N 转化移除系统的重要过程。反硝化和厌氧氨氧化作用对溶解态无机氮素(DIN) 的移除效率为 3.5-41.2%。九龙江河口光滩和红树林滩反硝化速率分别为 30.44±24.84 μmol N m⁻² h⁻¹ 和 14.60±8.08 μmol N m⁻² h⁻¹, 光滩高于红树林滩; 冬 季沙埕湾分别为 10.12 μmol N m⁻² h⁻¹ 和 33.05 μmol N m⁻² h⁻¹; 两地反硝化作用对 No产生的贡献占65.8%。厌氧氨氧化速率略低于反硝化速率,九龙江河口光滩和 红树林滩分别为 3.87±4.34 μmol N m⁻² h⁻¹和 12.61±12.02 μmol N m⁻² h⁻¹, 红树林 滩高于光滩; 冬季沙埕湾分别为 7.12 μmol N m⁻² h⁻¹ 和 6.62 μmol N m⁻² h⁻¹; 厌氧 氨氧化作用占 N_2 产生量的 34.2%,对 N 素移除的贡献不容忽视。九龙江河口林 外光滩和红树林滩总氮沉积速率差别较大,分别为 $5.40 \text{ mol N m}^{-2}$ a^{-1} 和 0.89 mol $N \text{ m}^{-2} \text{ a}^{-1}$; 固氮速率介于 3.39-481.53 μ mol $N_2 \text{ m}^{-2} \text{ h}^{-1}$ 之间; N_2O 排放速率总体小 于 $0.8 \mu mol N_2O m^{-2} h^{-1}$,对 N 输出贡献较小;而受沉积物-潮汐水界面 DN 浓度 梯度影响,潮汐水 DN 交换通量的季节差异较大,沉积物向潮汐水中输出溶解态 有机氮(DON)。而福鼎沙埕湾红树林滩总氮沉积速率为 8.70 N mol N m⁻² a⁻¹, 甚 至高于九龙江河口光滩;冬季固氮速率仅为 27.21-63.05 μ mol N_2 m⁻² h⁻¹; N_2 O 排 放速率为 $0.100 \, \mu \text{mol N m}^{-2} \, \text{h}^{-1}$; 潮汐水 DN 交换通量值高于同期的九龙江河口, 沉积物为潮汐水 DN 的源。

第二,硝化作用强于反硝化作用,DNRA 过程主导沉积物 NO_3 -N 转化。夏季,九龙江河口红树林滩沉积物硝化速率均值为 $63.20~\mu mol~N~m^{-2}~h^{-1}$,高于反硝化与厌氧氨氧化速率之和;而 DNRA 速率均值达 $204.52~\mu mol~N~m^{-2}~h^{-1}$,高于 NO_3 -N 产生速率,为沉积物中 NO_3 -N 转化的主导机制。

第三,沉积物 N 输入大于输出,为重要的 N 汇。沉积物 N 日收支存在较明显的季节规律,主要表现为夏季高于秋冬季。在年尺度上,综合考虑大气 N 沉降和植物对 N 的吸收,九龙江河口红树林滩沉积物 N 输入输出量分别为 3.63-7.24 mol N m⁻² a⁻¹ 和 2.04-2.41 mol N m⁻² a⁻¹。冬季福鼎沙埕湾红树林滩沉积物 N 输入输出量分别为 9.92 mol N m⁻² a⁻¹和 8.06 mol N m⁻² a⁻¹。红树林滩 N 输出效率为 33-81%,在全球 N 循环中可能为重要的 N 汇。空间分布上,位于海湾的红树林沉积物 N 收支量大于河口,而同一区域林龄较大的红树林滩沉积物高于林龄较小的红树林滩沉积物。

第四,培养方式对反硝化和厌氧氨氧化速率测定结果影响不大。N稳定同位素配对技术(IPT)现场培养测得的反硝化和厌氧氨氧化速率略高于室内培养结果,但两者处于同一数量级。现场培养时间短、不稳定因素多;室内培养时间长,稳定性较好,但测得的结果仅代表反应潜在速率。

第五,潮汐水体反硝化与厌氧氨氧化速率远低于沉积物。九龙江河口和福鼎沙埕湾红树林区潮汐水反硝化速率小于 $0.01~\mu mol~N~L^{-1}~h^{-1}$,厌氧氨氧化速率小于 $0.015~\mu mol~N~L^{-1}~h^{-1}$,对整个红树林系统 N~素去除贡献较小。

第六,不同区域红树林沉积物 N 迁移转化存在较大的空间差异。TN 沉积和固氮作用是红树林沉积物 N 输入的主导机制。受周边水产养殖污染累积影响,东南亚地区红树林沉积物固氮、反硝化和 N_2O 排放速率均高于较贫营养的澳洲和美洲。本研究区反硝化速率低于泰国、马来西亚等亚洲地区,在潮汐水 DN 交换上,与墨西哥湾 Yucatan 地区相似,沉积物总体表现为向潮汐水输出 DON。

第七,气候变暖将加速红树林沉积物的 N 收支。随着气温升高,红树林沉积物 N 迁移转化将加快,更多 N 将被滞留于沉积物中。沉积物 N_2O 排放速率也将增加,在一定程度上加剧了气候变暖。海平面上升使红树林生境减少,N 汇功能削弱,威胁海洋水体富营养化,并对全球 C 循环构成一定影响。

关键词: 氮稳定同位素; 红树林; 沉积物; 反硝化; 厌氧氨氧化

ABSTRACT

Nitrogen (N) loading in ecosystems from human activities has seriously increased along with the development of agriculture and industry all over the world. The excessive N from watersheds might accumulated in estuaries and coastal zones, and pose a threat on the health of the marine ecosystems. Estuaries and coastal zones have been the hotspots for N studies recently. Mangrove forests dominate the world's tropical and subtropical estuaries and coastlines. As an important interface in the exchange of nutrients between land and ocean, it may play a significant role in global N transports and transformations.

In this study, nitrogen stable isotope was used to determine the transports and transformations of N in the mangrove sediments of Jiulong estuary and Shacheng Bay. *In-situ* and *in-lab* incubations were combined to estimate the rates of total N (TN) accumulation, N fixation, denitrification, anammox, nitrous oxide (N₂O) emission, tidal dissolved N (DN) flux, as well as the mechanisms of nitrification and dissimilatory nitrate reduction to ammonium (DNRA). A preliminary N budget was estimated to provide a sound understanding of the mangrove sediments. The major conclusions are as follows:

1. N import was dominated by TN accumulation and N fixation, denitrification and anammox was important mechanism for reactive N reduction. Denitrification and anammox contributed 3.5-41.2% of dissolved inorganic N (DIN) removal. For Jiulong estuary, about 30.44 ±24.84 μmol N m⁻² h⁻¹ of N was denitrified in bare flat, while the value in mangrove swamp was about 14.60 ±8.08 μmol N m⁻² h⁻¹. Anammox rate in bare flat and mangrove swamp was 3.87 ±4.34 μmol N m⁻² h⁻¹ and 12.61 ±12.02 μmol N m⁻² h⁻¹, respectively. N removed by denitrification and anammox in Shacheng Bay in winter was lower than 50 μmol N m⁻² h⁻¹. As a result, anammox accounted for 34.2% of N₂ prodution, which was about half of denitrification contribution. TN accumulation rates showed significant spatial variations in Jiulong Estuary. It was 5.40 mol N m⁻² y⁻¹ and 0.89 mol N m⁻² y⁻¹ in mangrove swamp and bare flat, respectively. N fixation rate ranged from 3.39 μmol N₂ m⁻² h⁻¹ to 481.53 μmol N₂ m⁻²

- h^{-1} . N_2O emission contributed only a little N removal from the sediments. Under the impact of DIN concentration gradient between the sediment and overlying water, mangrove sediments in Jiulong Estuary absorbed dissolved inorganic N (DIN) and exported dissolved organic N (DON) into the tidal water. N transports and transformations pattern in sediment of Shacheng Bay were different. In winter, mangrove swamp could accumulate up to 8.70 mol N m⁻² y⁻¹ of TN, which was much higher than that of bare flat in Jiulong Estuary. Biological N fixation rate was only 27.21-63.05 μ mol N_2 m⁻² h^{-1} , accompanied by little N_2O flux. And the sediments might be DN source for the tidal water.
- 2. Nitrification were higher than denitrification, and DNRA dominated NO_3^--N reduction. Nitrification rate in mangrove swamp of Jiulong Estuary was 63.20 μ mol N m⁻² h⁻¹ in summer, which was higher than the sum of denitrification and anammox. DNRA rate was 204.52 μ mol N m⁻² h⁻¹, might be the dominant mechanism of NO_3^--N reduction.
- 3. N import was higher than export. Daily calculations indicated that larger N budgets presented in summer. Take atmospheric N deposition and plant absorption into account, mangrove swamp sediment of Jiulong estuary could retain 3.63-7.24 mol N m⁻² y⁻¹ of N each year, and the export was only 2.04-2.41 mol N m⁻² y⁻¹. For Shacheng Bay, the import and export was 9.92 mol N m⁻² y⁻¹ and 8.06 mol N m⁻² y⁻¹. Generally, only 33-81% of total N could release from the sediments. It suggested that the sediments might be an important sink for global N cycling. Moreover, the budgets in old mangrove forest might be larger. Compared with estuary, mangrove sediments in bay could cycle quickly.
- 4. The effect of *in-situ* and *in-lab* incubation on the measurements of denitrification and anammox was weak. Rates from *in-situ* incubation and *in-lab* incubation were in the same magnitude, although the former were higher. *In-lab* incubation lasted longer, so it showed more stable than the *in-situ* incubation, and only stood for the potential rates. For the isotope pairing technique (IPT), N fixation had little effect on denitrification and anammox measurements.
 - 5. Denitrification and anammox rates were low in tidal water, comparing to those

in sediments. Denitrification and anammox rate in tidal water of Jiulong Estuary and Shacheng Bay was lower than 0.01 μ mol N L⁻¹ h⁻¹. The N₂O flux was from 0.015-0.037 μ mol N₂O m⁻² h⁻¹. It suggested that tidal water might contribute little of N removal in mangrove ecosystems.

- 6. N transports and transformations showed significant spatial variations. TN accumulation and N fixation was the main mechanism of sediment N import. Surrounding by pools of aquaculture, N fixation, denitrification and N_2O emission rates in Southeast Asia were higher than those in Australia and America. Sediments in our study sites showed low denitrification rates, comparing to those in Thailand and Malaysia, because of the low TOC contents. For tidal water DN flux, our study sediments exported DIN, which was similar to the pattern in Yucatan, the Gulf of Mexico.
- 7. Global warming may accelerate N cycling in mangrove sediments. N cycling might be accelerated by high temperature, and resulted in more N_2O emission. Habitat reduction under sea level rise could weaken the sink of mangrove sediments and affect eutrophication, even C cycling in the ocean.

Key words: Nitrogen stable isotope; mangrove; sediments; denitrification; anammox.

目 录

摘 要	• • • • • • • • • •		i
ABSTR	RACT		iii
表索引			X
图索引	•••••		xii
			xii
			XV
		XXX	
LIST O	OF TA	BLES	xix
LIST O	F FI	GURES	xxii
第1章	绪	f论	1
第2章	国]内外研究综述	3
2.1	红	树林湿地类型及分布范围	3
	2.1.1	概况	3
	2.1.2	我国红树林类型及分布特征	4
2.2	红	树林沉积物氮素特征	5
	2.2.1	氮素类型	5
	2.2.2	氮储库概况	5
2.3	红	树林沉积物氮循环	7
(MA)	2.3.1	氮循环概况	7
17	2.3.2	沉积物氮素输入	9
	2.3.3	沉积物氮素移除	12
	2.3.4	其它机制探讨	19
2.4	红	树林沉积物氮素收支研究现状	21
	2.4.1	概况	21
	2.4.2	我国红树林沉积物研究概况	22
2.5	存	在问题及不足	22

	2.6	本记	仑文选题意义	23
第3	3 章	研	究目标、内容和技术路线	.24
	3.1	研究目标		
	3.2	研究	究内容	24
	3.3	技术	术路线	24
第~	4 章	研究区概况与方法		
	4.1	研究区简介		26
		4.1.1	九龙江口红树林	26
		4.1.2	沙埕湾红树林	28
	4.2	样占	品采集与方法	
		4.2.1	潮汐水	29
		4.2.2	沉积物	30
		4.2.3	总氮沉积速率	31
		4.2.4	沉积物 IPT 培养实验	32
		4.2.5	水体 IPT 室内培养实验	37
		4.2.6	沉积物-大气 N ₂ O 排放通量	38
		4.2.7	潮汐水 N ₂ O 排放通量	39
		4.2.8	沉积物与上覆水界面 DN 素交换	40
		4.2.9	现场氮稳定同位素稀释法培养实验	41
	4.3	实验	脸总体设计	42
	4.4	4.4 沉积物滩氮素收支估算方法		43
		4.4.1	系统界定	43
	7	4.4.2	估算方法	45
第:	5 章	红	树林沉积物氮库	.47
	5.1	沉和	织物氮素概况	47
		5.1.1	物理参数分析	47
		5.1.2	沉积物碳素与氮素含量	48
		5.1.3	孔隙水溶解态氮素	51

		5.1.4	可交换态氮素	54
	5.2	潮	汐水氮素概况	57
	5.3	小丝	结	59
第	6章	红	树林沉积物氮素迁移转化机制	60
	6.1	氮氵	冗积	60
		6.1.1	沉积速率	60
		6.1.2	氮素沉积速率	61
		6.1.3	沉积物有机质来源	
		6.1.4	小结	63
	6.2		识物固氮、反硝化与厌氧氨氧化	
		6.2.1	IPT 实验结果探讨	63
		6.2.2	固氮作用	70
		6.2.3	反硝化作用	
			厌氧铵氧化作用	
	6.3	沉和	积物 N₂O 排放通量	93
		6.3.1	沉积物-大气界面 N ₂ O 通量	93
		6.3.2	潮汐水 N ₂ O 排放通量	99
	6.4	沉和	积物-潮汐水溶解态氮素交换	103
		6.4.1	溶解态氮素浓度时间趋势	103
		6.4.2	溶解态氮素交换速率	104
		6.4.3	影响因素分析	107
		6.4.4	小结	109
	6.5	其	它转化机制	109
		6.5.1	硝化作用与 DNRA 的存在性	109
		6.5.2	沉积物硝化与 DNRA 速率	110
		6.5.3	小结	112
第	7章	沉	积物氮素收支分析	113
	7.1	沉和	积物氮素收支概况	113
		7.1.1	沉积物氮素日输入	113

		7.1.2	沉积物氮素日输出	L		113
		7.1.3	沉积物氮收支	•••••		114
	7.2	不	同地区红树林氮收克	支状况		121
	7.3	红	树林沉积物-大气 N	⁷ 2O 通量		123
	7.4	小	结			123
第8	8章	气	.候变化与红树林	氮素收支		125
第9	9 章	总	.结			127
	9.1	主	要结论			127
	9.2	主	要创新点			128
	9.3	不	足之处	•••••		129
	9.4	研	究展望			129
参考	考文 i	献			V	131
附氢	录	•••••				141
			加课题和学术会议			
	附录	2 研	究生期间发表论文			143
孙	射					144

Degree papers are in the "Xiamen University Electronic Theses and Dissertations Database".

Fulltexts are available in the following ways:

- 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.