

DOI: 10.5846/stxb201301060039

冯志华, 方涛, 李玉, 阎斌伦, 徐加涛. 苏北沿海滩涂养殖湿地磷化氢的释放及其影响因素. 生态学报, 2014, 34(15): 4167-4174.

Feng Z H, Fang T, Li Y, Yan B L, Xu J T. Emission of phosphine in intertidal zone for aquaculture along the northern Jiangsu coast and its influencing factors. Acta Ecologica Sinica, 2014, 34(15): 4167-4174.

## 苏北沿海滩涂养殖湿地磷化氢的释放 及其影响因素

冯志华<sup>1,2,\*</sup>, 方涛<sup>1,2</sup>, 李玉<sup>1,2</sup>, 阎斌伦<sup>1,2</sup>, 徐加涛<sup>1,2</sup>

(1. 淮海工学院海洋学院, 连云港 222005; 2. 淮海工学院江苏省海洋生物技术重点建设实验室, 连云港 222005)

**摘要:** 利用静态暗箱采样方法和气相色谱-氮磷检测器(GC-NPD)分析技术测定了苏北沿海滩涂养殖湿地区域磷化氢的释放通量, 研究了其季节和空间变化特征, 并探讨了其潜在的影响因素。结果表明, 各季节磷化氢释放通量的高低排序为: 8月份>5月份>11月份>2月份, 其变化范围分别为16.5—168.9、8.3—105.9、8.2—64.5和-19.5—49.6 ng m<sup>-2</sup> h<sup>-1</sup>, 平均值分别为65.0、36.5、25.9和16.4 ng m<sup>-2</sup> h<sup>-1</sup>; 空间变化明显, 各季节的平均值, b10站位最高, b3次之, b5和b8站位相对较低。磷化氢释放通量与沉积环境因子的相关性分析显示, 释放通量与TP、IP、OP、OC、TN、SC和T有较好的线性正相关关系(相关系数R分别为0.807、0.579、0.828、0.825、0.467、0.605和0.551, P值<0.01), 与Eh有较好的线性负相关关系(R为-0.774, P值<0.01), 表明在研究调查区域, 较高的磷、碳、氮、硫组分含量, 较高的温度和较低的氧化还原电位更有利于磷化氢的释放过程。

**关键词:** 磷化氢; 释放通量; 滩涂养殖湿地; 苏北沿海

### Emission of phosphine in intertidal zone for aquaculture along the northern Jiangsu coast and its influencing factors

FENG Zhihua<sup>1,2,\*</sup>, FANG Tao<sup>1,2</sup>, LI Yu<sup>1,2</sup>, YAN Binlun<sup>1,2</sup>, XU Jiatao<sup>1,2</sup>

1 School of Marine Science and Technology, Huaihai Institute of Technology, Lianyungang 222005, China

2 Jiangsu Key Laboratory of Marine Biotechnology, Huaihai Institute of Technology, Lianyungang 222005, China

**Abstract:** Emission fluxes of phosphine in intertidal zone for aquaculture along the northern Jiangsu coast were investigated using static chamber method and concentrations of phosphine were analyzed by gas chromatography coupled with a nitrogen-phosphorus detector. Besides, the seasonal and spatial variation characteristics were studied and the environmental factors were measured to explore the influences on phosphine release. The results showed that the emission fluxes were relatively higher in August, followed by May, November and February, with the ranges of 16.5—168.9, 8.3—105.9, 8.2—64.5 and -19.5—49.6 ng m<sup>-2</sup> h<sup>-1</sup>, respectively. Also, obvious spatial difference of phosphine emission fluxes at the study area was observed, which indicated that the highest emission fluxes were monitored at station b10, followed by b3 and the lowest were found at b5 and b8. In addition, it was found that phosphine emission fluxes were significantly positively related to TP, IP, OP, OC, TN, SC, T and negatively related to Eh, with the correlation coefficient of 0.807, 0.579, 0.828, 0.825, 0.467, 0.605, 0.551 and -0.774. It is inferred that high phosphorus, carbon, nitrogen and sulfide contents, high temperature and reductive conditions are favorable for the release of phosphine.

**基金项目:** 国家自然科学基金(40906054); 江苏省高校自然科学研究面上项目(12KJB170003); 江苏省海洋生物技术重点建设实验室基金(2010HS013); 中央财政支持地方高校发展专项资金资助项目(CXTD17); 江苏高校优势学科建设工程资助项目

**收稿日期:** 2013-01-06; **修订日期:** 2014-05-10

\* 通讯作者 Corresponding author. E-mail: fengzhihua1980@hotmail.com

**Key Words:** phosphine; emission fluxes; intertidal zone for aquaculture; the northern Jiangsu coast

生态系统生源气体排放是全球C、N、P、S和Cl循环研究的重要内容,是当前全球变化生态学和生物地球化学循环的研究热点和焦点<sup>[1,2]</sup>。通常,广为关注的生源气体主要是温室气体(二氧化碳、甲烷和一氧化二氮等)、卤代烷烃和还原性硫气体<sup>[3]</sup>,而关于磷生源气体的研究相对较少。作为还原态磷的气态存在形式,磷化氢是一种活泼的还原性气体,可与其它温室气体,如甲烷,竞争消耗羟基自由基,具有间接温室效应,已被确认为自然环境中普遍存在的痕量气体<sup>[4-7]</sup>。因此,开展地球典型生态系统磷化氢的释放研究对查明自然界中磷的地球化学循环具有重要意义<sup>[8]</sup>。目前,关于磷化氢释放通量的研究主要涉及稻田湿地、淡水湖泊湿地、潮间带沼泽、垃圾填埋场,甚至极地地区等<sup>[9-12]</sup>,但相关报道较少。Hou等人<sup>[13]</sup>详细研究了长江口潮间带滩涂磷化氢的释放。

滨海湿地处于海陆交界地带,是地球上重要的生态系统之一,其对全球变化和人类活动的响应也极为敏感。江苏海岸湿地资源丰富,总面积约45.6万hm<sup>2</sup>,是目前亚洲最大的淤泥质海岸湿地。水产养殖是滨海湿地主要的开发利用方式,存在自身污染,能够造成养殖底泥富营养化,对滨海湿地生态系统的自然属性产生剧烈的影响<sup>[14]</sup>。滩涂养殖湿地,作为典型的受人类活动影响的滨海湿地类型,是否存在显著的磷化氢释放?其释放的水平和规律如何?受哪些因素的影响?为探索这些科学问题,本

研究以苏北沿海滩涂养殖湿地为研究对象,调查了磷化氢的释放通量特征,比较了其与其它湿地环境中磷化氢释放的差异,探讨了影响磷化氢释放的主要环境因素,分析了磷化氢产生的潜在机制,以期为进一步深入研究人为活动影响下滨海湿地磷的循环过程提供依据。

## 1 材料与方法

### 1.1 样品采集

本研究沿江苏北部海岸,在滩涂养殖区布设了12个采样站位,分别位于柘汪(b1)、石桥(b2)、海头(b3)、青口(b4)、新浦(b5)、连云港(b6)、高公岛(b7)、板桥(b8)、埒子口(b9)、灌河口(b10)、废黄河口(b11)和扁担港(b12)(图1)。12个站点的养殖方式均为底播养殖,养殖生物,b1和b2为四角蛤蜊,b3和b4为毛蚶,b5、b6和b7为光滑河蓝蛤,b8、b9和b10为杂色蛤,b11和b12为泥螺。于2010年8月(夏季)、11月(秋季)和2011年2月(冬季)、5月(春季)进行现场调查。四个季度的采样,选择同一个养殖场埕地的固定位置,确保采样站位一致,采样时间在8:00—16:00。释放通量的测定采用静态箱法,静态采样箱为顶部密闭的圆柱形箱体,直径31cm,高65cm,材料为有机玻璃,外覆铝箔避光。在退潮后水深10cm以下的养殖滩涂采样点,在开启风扇将箱内空气混匀后,将采样箱缓慢插入沉积物中,以避免对沉积物产生扰动,同时保证水面以上采

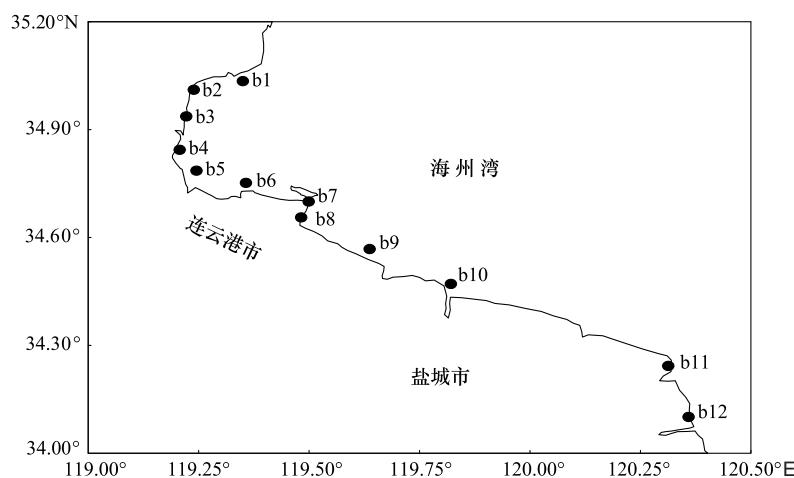


图1 采样点位置示意

Fig.1 Map showing sampling sites

样箱的有效使用高度为 50 cm。用针管在 0, 15, 30, 45 min 时间点从顶部采样口分别抽取 100 mL 气样, 注入外覆铝箔避光的 Tedlar 气袋保存, 并置于低温保温箱内, 及时送实验室分析。在每个采样点均利用两个相同的静态箱进行释放通量的平行测定。同时, 采集表层(0—5 cm)沉积物放入聚乙烯塑料袋中, 然后立即密封、避光并置于-20℃冷冻保存。

### 1.2 磷化氢的分析与释放通量的计算

利用柱前二次冷阱富集和气相色谱-氮磷检测器(GC-NPD)联用技术分析磷化氢气体。色谱条件同文献<sup>[15,16]</sup>, 每个样品重复测定 3 次, 该仪器的检测限约为 0.1 ng/m<sup>3</sup>。释放通量根据箱内磷化氢浓度随时间的变化进行估算, 计算公式如下<sup>[17]</sup>:

$$\begin{aligned} F &= \Delta Q / (S\Delta t) = (\rho V \Delta c) / (S\Delta t) \\ &= H \times 273 / (273 + T) \times (P/P_0) \times \rho \times (\Delta c/\Delta t) \end{aligned}$$

式中,  $F$  为气体的释放通量( $\text{ng m}^{-2} \text{ h}^{-1}$ ),  $Q$  为箱内目标气体质量,  $S$  为箱体有效底面积,  $H$  为气室有效高度,  $T$  为箱内平均气温,  $P$  为采样时大气压力,  $P_0$  为标准状况的大气压力,  $\rho$  为目标气体密度,  $c$  为目标气体浓度,  $t$  为采样时间,  $\Delta c/\Delta t$  为箱内目标气体的浓度变化速率。

### 1.3 沉积物理化因子的分析

沉积物总磷(TP)的测定:称取约 1.0 g 沉积物, 在 550℃高温灼烧 1.5 h, 用 50 mL 1 mol/L 的 HCl 在 25℃室温下振荡提取 16 h, 然后离心 5 min(2000 r/min), 取上清液稀释后用磷钼蓝法测定其含量<sup>[18]</sup>。沉积物无机磷(IP)的测定无需高温灼烧, 其它步骤与总磷测定基本一致。有机磷(OP)的含量为 TP 与 IP 之差。沉积物中有机碳(OC)和总氮(TN)利用 PE2400 II 型 CHNS/O 元素分析仪测定, 参照《海洋调查规范》(GB/T 12763.8—2007)规定方法进行。硫化物(SC)采用碘量法测定, 氧化还原电位(Eh)利用铂丝电极和饱和甘汞电极, 采用电位计法现场测定, 同时现场测定泥温( $T$ ), 均参照《海洋监测规范》(GB 17378.5—2007)。含水率的测定:称取一定量的样品于 105℃烘干至恒重, 利用失重差计算其含水率。所有生源要素组分含量均以单位沉积物干重计。

### 1.4 数据分析

文中数据的方差分析、相关性分析和回归分析等统计分析均利用 SPSS 13.0 进行。

## 2 结果与分析

### 2.1 磷化氢的释放通量

苏北沿海滩涂养殖湿地磷化氢释放通量介于-19.5—168.9  $\text{ng m}^{-2} \text{ h}^{-1}$  之间, 均值为 36.0  $\text{ng m}^{-2} \text{ h}^{-1}$ , 除 2 月 b1, b5, b8 三个站位的释放通量为负值, 表现为滩涂沉积物对磷化氢的弱吸收外, 其它 45 个监测样次均为正值, 监测站位表现出显著的磷化氢释放特征, 最小和最大释放通量分别监测于 2 月的 b5 站位和 8 月的 b10 站位。磷化氢释放通量的时空变化如图 2 所示, 不同站位的磷化氢释放通量存在明显的空间变化特征, 从季节平均值看, b10 站位最高, b3 次之, b5 和 b8 站位相对较低。四个季节之间的单因素方差分析结果显示, 磷化氢的释放通量具有显著的季节性变化(ANOVA,  $N=48$ ,  $F=5.89$ ,  $P=0.002<0.05$ )。并进行了各季节磷化氢释放通量的多重比较, 8 月与 2、5、11 月之间均存在显著的差异( $P$  值分别为 0.000, 0.025 和 0.003, 均  $<0.05$ ), 而 2 月与 5 月、2 月与 11 月、5 月与 11 月之间的差异则不显著( $P$  值分别为 0.108, 0.442 和 0.391, 均  $>0.05$ ), 说明夏季磷化氢释放通量显著高于其它三个季节, 而春、秋、冬季之间的释放通量不存在显著差异。2、5、8、11 月磷化氢释放通量的变化范围分别为-19.5—49.6, 8.3—105.9, 16.5—168.9 和 8.2—64.5  $\text{ng m}^{-2} \text{ h}^{-1}$ , 平均值分别为 16.4, 36.5, 65.0 和 25.9  $\text{ng m}^{-2} \text{ h}^{-1}$ , 各季节磷化氢释放通量的高低排序为:8 月份>5 月份>11 月份>2 月份, 夏季最高, 冬季最低, 春秋两季介于两者之间。

### 2.2 沉积物磷和碳生源要素组分含量

苏北沿海滩涂养殖湿地表层沉积物中 TP、IP、

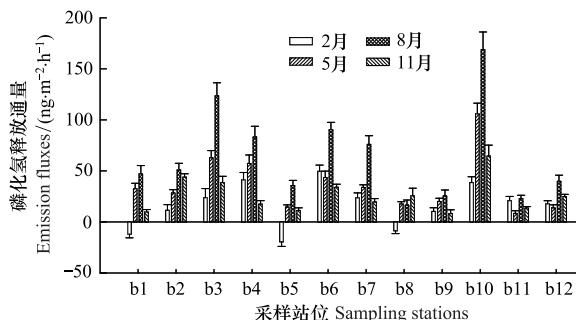


图 2 苏北沿海滩涂养殖湿地磷化氢的释放通量

Fig.2 The emission fluxes of phosphine in intertidal zone for aquaculture along Jiangsu coast

OP 和 OC 的含量分布特征如图 3 所示。TP 的含量介于 547—1331  $\mu\text{g/g}$  之间, 平均值为 908  $\mu\text{g/g}$ , 最高值和最低值分别位于 b10 站位(8月)和 b5 站位(2月); IP 的含量介于 326—788  $\mu\text{g/g}$  之间, 平均值为 582  $\mu\text{g/g}$ , 占 TP 含量的 49.7%—80.8%, 平均值为 TP 含量的 65.0%, 其最高值和最低值分别出现在 b4 站位(8月)和 b7 站位(11月); OP 的含量要低于 IP

的含量, 范围为 122—587  $\mu\text{g/g}$ , 平均值为 327  $\mu\text{g/g}$ , 占 TP 的 19.2%—50.3%, 平均值为 35.0%, 8月份的 b10 站位含量最高, 2月份的 b1 站位含量最低; 沉积物中 OC 含量最高值为 14.16  $\text{mg/g}$ , 出现在 8月份的 b3 站位, 最低值为 1.82  $\text{mg/g}$ , 出现在 2月份的 b9 站位, 平均值为 7.51  $\text{mg/g}$ 。

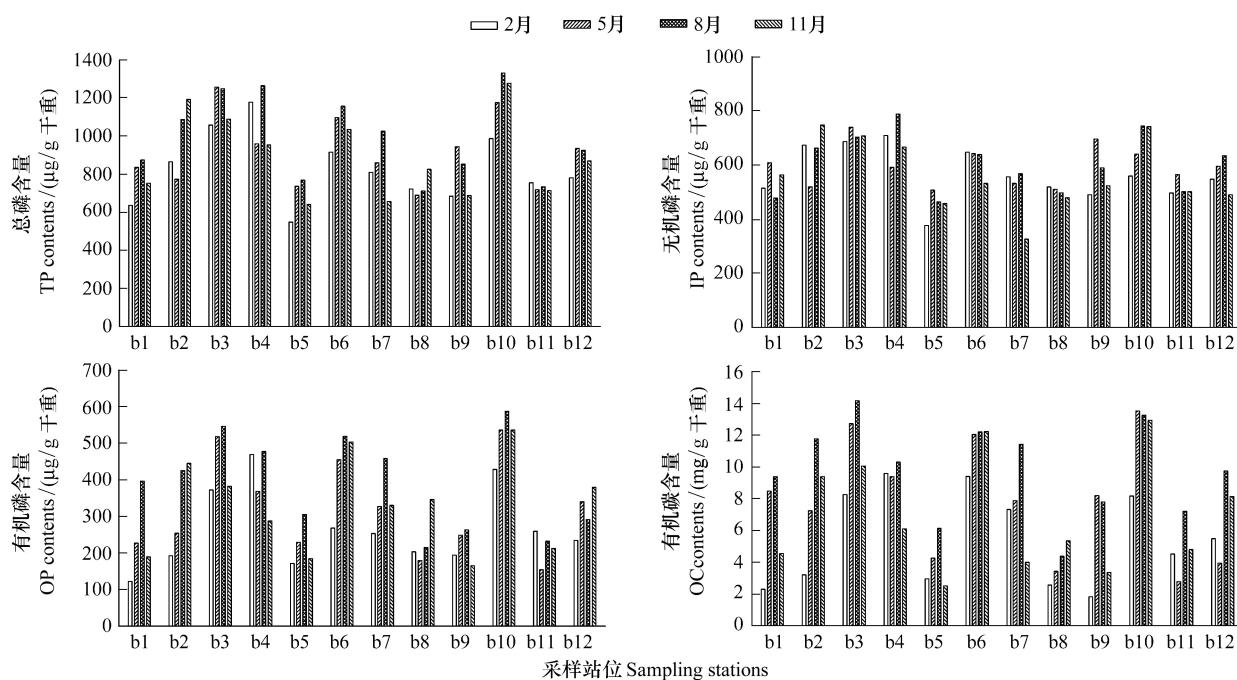


图 3 苏北沿海滩涂养殖湿地表层沉积物 TP、IP、OP、OC 含量分布

Fig.3 TP, IP, OP and OC of surface sediments in intertidal zone for aquaculture along Jiangsu coast

### 2.3 沉积物其它理化特征

沉积物 TN 和 SC 在 4 个季节各站位的含量分布见表 1。沉积物 TN 含量变化范围为 113—1381  $\mu\text{g/g}$ , 平均值为 634  $\mu\text{g/g}$ , 最高值和最低值分别位于 b10 站位(8月)和 b1 站位(11月), 不同季节的含量分布为 8月最高, 2月最低, 5月和 11月差别不大; 沉积物 SC 含量介于 47.3—282.4  $\mu\text{g/g}$  之间, 平均值为 141.5  $\mu\text{g/g}$ , 最高值和最低值分别出现在 b3 站位(8月)和 b9 站位(2月), 不同季节的含量分布为 8月最高, 5月次之, 2月和 11月相对较低。

表 1 也给出了各站位沉积物 Eh 和 T 的分布情况。所有调查站位沉积物 Eh 的变化范围为 -265 mv 到 -48 mv, 平均值为 -134 mv, 沉积物处于显著的还原环境, 最高和最低值分别位于 b11 站位(11月)和 b10 站位(8月); 沉积物 T 的变化范围为 2.8—

31.9°C, 2、5、8、11月份, 各调查站位泥温的平均值分别为 4.1、18.0、29.8°C 和 18.4°C。

### 3 讨论

#### 3.1 不同湿地环境中磷化氢释放通量的比较

本研究首次调查了苏北沿海滩涂养殖湿地磷化氢的释放通量。为确定该调查区域磷化氢释放通量的水平, 并与其它湿地生态系统中的磷化氢释放通量进行比较, 现对相关的研究成果进行汇总, 如表 2 所示。目前, 关于湿地生态系统磷化氢释放通量的研究, 调查数据极为有限。与淡水湖泊湿地生态系统相比, 本研究结果显著高于太湖水体的报道结果; 与水稻田湿地生态系统相比, 本研究结果也显著高于中国北方水稻田和南方水稻田的相关报道。

表1 苏北沿海滩涂养殖湿地表层沉积物 TN、SC、Eh、T 分布特征

Table 1 TN, SC, Eh and T of surface sediments in intertidal zone for aquaculture along Jiangsu coast

站位 Stations	总氮 TN/(μg/g)				硫化物 SC/(μg/g)			
	2月 Feb.	5月 May.	8月 Aug.	11月 Nov.	2月 Feb.	5月 May.	8月 Aug.	11月 Nov.
b1	462	732	577	113	61.6	234.3	184.3	73.1
b2	908	584	851	1035	101.9	76.2	217.7	51.3
b3	653	439	1064	828	130.1	126.2	282.4	155.0
b4	1032	651	433	1090	184.3	184.9	239.1	81.3
b5	614	137	882	432	82.6	85.5	147.5	181.4
b6	469	1140	1022	1021	229.1	136.3	82.6	145.5
b7	912	588	1247	204	88.4	170.4	127.8	75.5
b8	283	219	619	647	167.1	111.7	211.7	203.2
b9	128	910	353	542	47.3	148.8	69.1	112.9
b10	336	423	1381	345	197.2	263.6	243.8	228.7
b11	411	586	504	526	147.3	73.1	110.2	81.4
b12	303	623	798	380	94.0	69.5	136.1	138.4

站位 Stations	氧化还原电位 Eh/mv				泥温 T/℃			
	2月 Feb.	5月 May.	8月 Aug.	11月 Nov.	2月 Feb.	5月 May.	8月 Aug.	11月 Nov.
b1	-51	-124	-138	-50	3.6	16.8	29.4	17.1
b2	-46	-88	-155	-194	4.3	17.4	30.1	19.8
b3	-177	-198	-236	-215	3.9	18.5	31.3	20.4
b4	-191	-181	-167	-158	4.2	19.9	31.9	18.2
b5	-59	-56	-209	-71	4.1	18.1	29.6	16.7
b6	-169	-161	-239	-77	4.7	18.8	30.7	18.5
b7	-122	-89	-226	-98	3.9	20.5	29.9	17.8
b8	-68	-76	-79	-157	3.5	17.3	28.1	19.5
b9	-94	-69	-166	-133	2.8	16.6	27.6	16.7
b10	-147	-207	-265	-184	4.9	17.2	31.5	20.2
b11	-135	-58	-180	-48	5.2	18.9	28.3	17.3
b12	-157	-61	-151	-70	4.1	15.8	28.8	18.6

表2 不同湿地生态系统中磷化氢的释放通量

Table 2 Emission fluxes of phosphine from various wetland ecosystems

释放源 Release sources	释放通量 Emission fluxes/(ng m <sup>-2</sup> h <sup>-1</sup> )		参考文献 References
	平均值 Mean values	范围 Ranges	
路易斯安那州微碱湿地 Louisiana brackish marsh	无	0.42—3.03	[ 11 ]
路易斯安那州含盐湿地 Louisiana salt marsh	无	0.91—6.52	[ 11 ]
长江口潮间带泥沼 Intertidal marsh of the Yangtze Estuary, China	8.04	0.21—36.5	[ 10 ]
盐城滩涂(泥滩) Yancheng marsh (mudflat)	20.1	-49.6—179	[ 10 ]
盐城滩涂(互花米草) Yancheng marsh (Spartina alterniflora)	60.3	-70.4—276	[ 10 ]
盐城滩涂(碱蓬) Yancheng marsh (Suaeda glauca)	-28.3	-225—116	[ 10 ]
盐城滩涂(芦苇) Yancheng marsh (Phragmites communis)	-45.9	-227—38.4	[ 10 ]

续表

释放源 Release sources	释放通量 Emission fluxes/(ng m <sup>-2</sup> h <sup>-1</sup> )		参考文献 References
	平均值 Mean values	范围 Ranges	
苏北养殖滩涂 Intertidal marsh for aquaculture, the Northern Jiangsu Coast, China	36.0	-19.5—168.9	本研究
太湖水体 Lake Taihu	14.4	-69.9—121	[10]
中国北方水稻田 Paddy fields, Northern China	1.78	-4—15	[10]
中国南方水稻田 Paddy fields, Southern China	6.67	-1.49—41.7	[19]

与同类型的滨海湿地相比,本研究中苏北沿海滩涂养殖湿地磷化氢的释放通量要显著高于路易斯安那州湿地和长江口潮间带泥沼,也高于盐城滩涂湿地保护区天然泥滩,说明人为的底播养殖活动可能加剧了磷化氢的释放。而有耐盐植物生长的滩涂,则随植物种类的不同,磷化氢释放通量变化较大,本研究结果低于互花米草滩涂,高于碱蓬和芦苇滩涂。另外,本研究 12 个站位,按 5 种不同底播养殖生物种类进行划分,四角蛤蜊、毛蚶、光滑河蓝蛤、杂色蛤和泥螺养殖区的磷化氢释放通量平均值分别为 26.5、56.0、34.3、41.1 和 20.2 ng m<sup>-2</sup> h<sup>-1</sup>,毛蚶养殖区最高,四角蛤蜊和泥螺养殖区较低。5 种养殖品种从习性上来说是相同的,均为非选择性滤食的贝类,其对磷化氢释放通量的影响,更多来自于放养密度和养殖技术等的不同带来的沉积环境因子的差别。

### 3.2 磷化氢释放的机制与影响因子探讨

沉积物磷化氢的释放,是一个动态平衡过程,受控于沉积物中磷化氢的产生和消耗,并被沉积环境因子影响<sup>[20]</sup>。本文调查区域磷化氢释放的空间和季节变化可能与沉积环境特征密切相关。苏北沿海滩涂养殖湿地磷化氢的释放通量与沉积理化因子的相关性分析结果如表 3 所示。首先进行了一元线性回归分析,结果显示沉积物 TP、IP、OP、OC、TN、SC、Eh 和 T 与磷化氢释放通量相关性分析的 P 值都小于 0.01,均存在显著线性相关关系,表明各沉积环境因子对磷化氢的释放具有显著的影响;其次进行了多元线性逐步回归分析,从 8 个变量中,先后引入 OP、Eh、SC 和 T 建立模型,复相关系数为 0.880,P 值小于 0.01,说明在这些因子中,按贡献率高低,影响磷化氢释放的主要沉积环境因子依次为 OP、Eh、SC 和 T。

磷化氢释放通量与磷组分含量均存在显著的线性正相关关系,与 TP、IP 和 OP 的相关系数分别为 0.807、0.579 和 0.828,释放通量与有机磷的线性相关要强于与无机磷的线性相关关系。释放通量与碳、氮、硫组分含量也都存在显著的线性正相关关系,与 OC、TN、SC 的相关系数分别为 0.825、0.467 和 0.605,与有机碳的相关性最强,硫化物次之。由此揭示了磷化氢的释放与沉积物中磷等生源要素组分密切相关,这与以往的研究结果相类似<sup>[21-23]</sup>。尽管目前有关自然环境中磷化氢的来源及其形成机制仍存在诸多争议,但是很多研究表明磷化氢可能是由无机磷和有机磷等作为前体物在微生物的作用下还原降解和转化产生的<sup>[24-26]</sup>。与无机磷相比,本研究中磷化氢释放通量与有机磷组分的相关性更为显著,并且有研究证实添加易降解的小分子有机物有利于磷化氢的产生<sup>[27]</sup>,由此可推断在富营养化养殖滩涂沉积环境下有机磷作为磷化氢前体物的可能性更大。而碳、氮、硫组分含量与磷化氢释放通量的显著线性正相关关系进一步说明 OC、TN 和 SC 组分在磷化氢的产生过程中可能起重要的作用,支持了微生物降解有机磷产生磷化氢的论断。

磷化氢的释放过程不仅与生源要素组分含量有关,还会受到沉积物其它理化性质的影响,如氧化还原电位、温度等都可能是影响磷化氢释放的重要因子,对磷化氢在沉积环境中的迁移和转化起着一定的作用<sup>[28-29]</sup>。本研究中,相关性分析结果显示,磷化氢释放通量与 Eh 存在显著的线性负相关关系,相关系数为 -0.774,说明在还原环境区域内,磷化氢的释放通量普遍较高。磷化氢易被氧化,还原环境更利于沉积物中磷化氢的产生和存留已被很多研究者证实<sup>[23,30]</sup>,本研究结果进一步验证了较低氧化还原电

位下更可能存在较高的磷化氢释放通量。另外,温度通常也是影响沉积物磷化氢产生和释放过程的重要因素,温度较低时,微生物的活动减弱,生物降解产生磷化氢的速率也随之降低,当水温达到20—30℃时,微生物活动加强,磷化氢生成速率加

快<sup>[31]</sup>。本研究在四个季节分别采集样品,温度变化范围较大,沉积物温度与磷化氢释放通量也存在显著的线性正相关关系( $R=0.551$ , $P=0.00005$ ),证实较高的温度更利于磷化氢的产生和释放。

表3 磷化氢释放通量与沉积环境特征因子的相关性

Table 3 Correlations of phosphine fluxes with environmental factors

线性回归分析方法 Linear regression method	沉积理化因子( $x$ ) Environmental factors	磷化氢释放通量 Emission fluxes/( $y$ , ng m <sup>-2</sup> h <sup>-1</sup> )			
		直线回归方程 Linear regression equation	相关系数 $R$	样本数 $N$	显著性检验 $P$ 值 $P$
一元线性回归分析	TP/(μg/g)	$y=0.136x-87.554$	0.807	48	< 0.00001
Unitary linearity regression	IP/(μg/g)	$y=0.194x-77.060$	0.579	48	0.00002
	OP/(μg/g)	$y=0.224x-37.055$	0.828	48	< 0.00001
	OC/(mg/g)	$y=7.956x-23.773$	0.825	48	< 0.00001
	TN/(μg/g)	$y=0.051x+3.435$	0.467	48	0.00082
	SC/(μg/g)	$y=0.333x-11.099$	0.605	48	0.00001
	Eh/mv	$y=-0.435x-22.464$	-0.774	48	< 0.00001
	$T/^\circ\text{C}$	$y=2.047x+0.015$	0.551	48	0.00005
多元线性逐步回归 Multiple linear stepwise regression	OP( $x_1$ )、 Eh( $x_2$ )、 SC( $x_3$ )、T( $x_4$ )	$y=-52.439+0.116x_1-0.167x_2+0.114x_3+0.681x_4$	0.880	48	< 0.00001

## 4 结论

苏北沿海滩涂养殖湿地磷化氢的释放通量介于-19.5—168.9 ng m<sup>-2</sup> h<sup>-1</sup>之间,均值为36.0 ng m<sup>-2</sup> h<sup>-1</sup>,并且具有明显的季节性变化特征,各季节磷化氢释放通量的高低排序为:8月份>5月份>11月份>2月份,空间变化上,b10站位最高,b3次之,b5和b8站位相对较低。磷化氢释放通量与沉积物TP、IP、OP、OC、TN、SC和 $T$ 存在显著线性正相关关系,与Eh存在显著线性负相关关系。较高的磷、碳、氮、硫生源要素组分含量,较高的温度以及较低的氧化还原电位与磷化氢的产生和释放过程密切相关,富营养化养殖滩涂沉积环境中磷化氢的释放来源可能为有机磷的微生物还原降解。本研究对滩涂养殖湿地磷化氢释放通量的调查结果显著高于相关淡水湖泊、水稻田和滨海湿地天然泥沼的报道。

## References:

- [1] Harper D B. The global chloromethane cycle: biosynthesis, biodegradation, and metabolic role. *Nature Product Reports*, 2000, 17(4): 337-348.
- [2] Xiao X, Prinn R G, Fraser P J, Simmonds P G, Weiss R F, O'Doherty S, Miller B R, Salameh P K, Harth C M, Krummel P B, Porter L W, Mühlle J, Greally B W, Cunnold D, Wang R, Montzka S A, Elkins J W, Dutton G S, Thompson T M, Butler J H, Hall B D, Reimann S, Vollmer M K, Stordal F, Lunder C, Maione M, Arduini J, Yokouchi Y. Optimal estimation of the surface fluxes of methyl chloride using a 3-D global chemical transport model. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2010, 10(12): 5515-5533.
- [3] Wang J S, Zhong C Q, Xing W, Wang J X. Review of reduced sulfur and methane emission from coastal salt marsh. *Transactions of Oceanology and Limnology*, 2009(4): 134-138.
- [4] Dévai I, Felföldy L, Wittner I, Plósz S. Detection of phosphine: new aspects of the phosphorus cycle in the hydrosphere. *Nature*, 1988, 333(6171): 343-345.
- [5] Zhu R B, Glindemann D, Kong D M, Sun L G, Geng J J, Wang X R. Phosphine in the marine atmosphere along a hemispheric course from China to Antarctica. *Atmospheric Environment*, 2007, 41(7): 1567-1573.
- [6] Liu J A, Cao H F, Zhuang Y H, Kuschk P, Eismann F, Glindemann D. Phosphine in the urban air of Beijing and its possible sources. *Water, Air, and Soil Pollution*, 1999, 116(3/4): 597-604.
- [7] Hong Y N, Geng J J, Song Q, Ding L L, Gu X Y, Wang X R, Glindemann D, Ren H Q. Distribution of phosphine in the offshore area of the Southwest Yellow Sea, East Asia. *Marine Chemistry*, 2010, 118(1/2): 67-74.
- [8] Han S H, Zhuang Y H, Liu J A, Glindemann D. Phosphorus cycling through phosphine in paddy fields. *Science of the Total Environment*, 2010, 408(14): 3039-3045.

- Environment, 2000, 258(3) : 195-203.
- [ 9 ] Roels J, Verstrate W. Occurrence and origin of phosphine in landfill gas. *Science of the Total Environment*, 2004, 327(1/3) : 185-196.
- [ 10 ] Han C, Geng J J, Hong Y N, Zhang R, Gu X Y, Wang X R, Gao S X, Glindemann D. Free atmospheric phosphine concentrations and fluxes in different wetland ecosystems, China. *Environmental Pollution*, 2011, 159(2) : 630-635.
- [ 11 ] Devai I, Delaune R D. Evidence for phosphine production and emission from Louisiana and Florida marsh soils. *Organic Geochemistry*, 1995, 23(3) : 277-279.
- [ 12 ] Han C, Geng J J, Zhang J, Wang X R, Gao S X. Phosphine migration at the water-air interface in Lake Taihu, China. *Chemosphere*, 2011, 82(6) : 935-939.
- [ 13 ] Hou L J, Liu M, Zhou J L, Yang Y, Zhao D, Yin G Y, Zheng Y L. Emission of phosphine in intertidal marshes of the Yangtze Estuary. *Applied Geochemistry*, 2011, 26(12) : 2260-2265.
- [ 14 ] Zhang X L, Li P Y, Li P, Xu X Y. Present conditions and prospects of study on coastal wetlands in China. *Advances in Marine Science*, 2005, 23(1) : 87-95.
- [ 15 ] Niu X J, Geng J J, Wang X R, Wang C H, Gu X H, Edwards M, Glindemann D. Temporal and spatial distributions of phosphine in Taihu Lake, China. *Science of the Total Environment*, 2004, 323(1/3) : 169-178.
- [ 16 ] Feng Z H, Song X X, Yu Z M. Distribution characteristics of matrix-bound phosphine along the coast of China and possible environmental controls. *Chemosphere*, 2008, 73(4) : 519-525.
- [ 17 ] Zhang R, Wu M, Wang Q, Geng J J, Yang X D. The determination of atmospheric phosphine in Ny-Alesund. *Chinese Science Bulletin*, 2010, 55(16) : 1662-1666.
- [ 18 ] Aspila K I, Agemian H, Chau A S Y. A semi-automated method for the determination of inorganic, organic and total phosphate in sediments. *Analyst*, 1976, 101(1200) : 187-197.
- [ 19 ] Zhang R, Yang X D, Geng J J, Hong Y N, Gu X Y, Wang X R, Wang R, Zhu J G. Effects of free-air CO<sub>2</sub> enrichment on phosphine emission from rice field. *Environmental Science*, 2009, 30(9) : 2694-2700.
- [ 20 ] Glindemann D, Edwards M, Liu J A, Kuschk P. Phosphine in soils, sludges, biogases and atmospheric implications-a review. *Ecological Engineering*, 2005, 24(5) : 457-463.
- [ 21 ] Hou L J, Liu M, Ding P X, Zhou J L, Yang Y, Zhao D, Zheng Y L. Influences of sediment dessication on phosphorus transformations in an intertidal marsh: formation and release of phosphine. *Chemosphere*, 2011, 83(7) : 917-924.
- [ 22 ] Yu Z M, Song X X. Matrix-bound phosphine: a new form of phosphorus found in sediment of Jiaozhou Bay. *Chinese Science Bulletin*, 2003, 48(1) : 31-35.
- [ 23 ] Zhu R B, Kong D M, Sun L G, Geng J J, Wang X R, Glindemann D. Tropospheric phosphine and its sources in coastal Antarctica. *Environmental Science & Technology*, 2006, 40 (24) : 7656-7661.
- [ 24 ] Geng J J, Niu X J, Jin X C, Wang X R, Gu X H, Edwards M, Glindemann D. Simultaneous monitoring of phosphine and phosphorus species in Taihu Lake sediments and phosphine emission from lake sediments. *Biogeochemistry*, 2005, 76(2) : 283-298.
- [ 25 ] Roels J, Huyghe G, Verstraete W. Microbially mediated phosphine emission. *Science of the Total Environment*, 2005, 338 (3) : 253-265.
- [ 26 ] Liu Z P, Jia S F, Wang B J, Zhang T, Liu S J. Preliminary investigation on the role of microorganisms in the production of phosphine. *Journal of Environmental Sciences*, 2008, 20(7) : 885-890.
- [ 27 ] Cao H F, Liu J A, Zhuang Y H, Glindemann D. Emission sources of atmospheric phosphine and simulation of phosphine formation. *Science in China Series B: Chemistry*, 2000, 43(2) : 162-168.
- [ 28 ] Geng J J, Jin X C, Wang Q, Niu X J, Wang X R, Edwards M, Glindemann D. Matrix bound phosphine formation and depletion in eutrophic lake sediment fermentation-simulation of different environmental factors. *Anaerobe*, 2005, 11(5) : 273-279.
- [ 29 ] Zhu R B, Ma D W, Ding W, Bai B, Liu Y S, Sun J J. Occurrence of matrix-bound phosphine in polar ornithogenic tundra ecosystems: effects of alkaline phosphatase activity and environmental variables. *Science of the Total Environment*, 2011, 409(19) : 3789-3800.
- [ 30 ] Feng Z H, Song X X, Yu Z M. Seasonal and spatial distribution of matrix-bound phosphine and its relationship with the environment in the Changjiang River Estuary, China. *Marine Pollution Bulletin*, 2008, 56(9) : 1630-1636.
- [ 31 ] Geng J J, Wang Q, Niu X J, Wang X R. Effects of environmental factors on the production and release of matrix bound phosphine from lake sediments. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 2005, 25 (5) : 681-685.

#### 参考文献:

- [ 3 ] 王今殊, 仲崇庆, 邢伟, 王进欣. 海岸带盐沼还原性硫气体和甲烷自然释放研究. *海洋湖沼通报*, 2009(4) : 134-138.
- [ 14 ] 张晓龙, 李培英, 李萍, 徐兴永. 中国滨海湿地研究现状与展望. *海洋科学进展*, 2005, 23(1) : 87-95.
- [ 17 ] 张蕤, 吴敏, 王强, 耿金菊, 杨小弟. 北极新奥尔松地区大气中磷化氢浓度与排放通量的监测. *科学通报*, 2010, 55(8) : 713-717.
- [ 19 ] 张蕤, 杨小弟, 耿金菊, 洪宇宁, 顾雪元, 王晓蓉, 王睿, 朱建国. 开放式空气CO<sub>2</sub>增高条件下稻田磷化氢气体的释放研究. *环境科学*, 2009, 30(9) : 2694-2700.
- [ 31 ] 耿金菊, 王强, 牛晓君, 王晓蓉. 环境因子对湖泊沉积物中附态磷化氢生成和释放的影响. *环境科学学报*, 2005, 25 (5) : 681-685.