

倪兆奎, 李跃进, 王圣瑞, 金相灿, 储昭升. 太湖沉积物有机碳与氮的来源. 生态学报, 2011, 31(16): 4661-4670.

Ni Z K, Li Y J, Wang S R, Jin X C, Chu Z S. The sources of organic carbon and nitrogen in sediment of Taihu Lake. Acta Ecologica Sinica 2011, 31(16): 4661-4670.

## 太湖沉积物有机碳与氮的来源

倪兆奎<sup>1,2</sup>, 李跃进<sup>1</sup>, 王圣瑞<sup>2,\*</sup>, 金相灿<sup>2</sup>, 储昭升<sup>2</sup>

(1. 内蒙古农业大学生态环境学院, 呼和浩特 010019;

2. 中国环境科学研究院湖泊创新基地/ 国家环境保护湖泊污染控制重点实验室, 北京 100012)

**摘要:** 选取太湖梅梁湾和湖心柱状沉积物, 研究了其有机碳同位素( $\delta^{13}\text{C}$ )和氮同位素( $\delta^{15}\text{N}$ )、C/N、总有机碳(TOC)、总氮(TN)、总磷(TP)含量, 并结合 $^{210}\text{Pb}$ 和 $^{137}\text{Cs}$ 沉积物年代测定技术, 探究了近百年来太湖沉积物有机质和氮的来源。结果表明: 太湖梅梁湾湖区在近百年来, 其有机质来源总体以自生为主。20世纪50年代以前, 湖区受到人类活动的影响较小, 沉积物有机质主要来自于湖泊自身水生植物的沉积; 50年代到70年代, 湖泊内部环境发生变化, 湖区逐渐出现藻类大量死亡并沉积的现象, 有机质主要来自于水生植物和藻类的共同沉积; 70年代到80年代, 沉积物有机质藻类贡献进一步增大; 90年代后到现在, 则以藻类的沉积为主要来源方式。梅梁湾湖区沉积物氮素的来源在50年代以前主要以流域土壤流失和大型水生植物的死亡为主; 50年代到70年代, 人类活动的加剧导致大量工业废水、生活污水的输入, 藻类开始大面积爆发, 氮主要来自于外源的输入、大型植物和藻类的死亡沉积; 90年代后到现在, 外源氮的输入得到有效地控制, 藻类对沉积物氮的贡献相对显著。湖心区域沉积物有机质和氮的来源主要来自于湖泊内部水生植物的沉积。70年代前, 沉积物有机质和氮的来源主要来自于水生植物的沉积和水土流失作用; 70年代至今, 虽然湖泊受到人类活动外源物质输入影响逐渐增大, 但总体来讲贡献较小, 沉积物有机质和氮的来源仍以湖泊自生为主。

**关键词:** 沉积物; 放射性同位素; 稳定同位素; C/N; 来源; 太湖

## The sources of organic carbon and nitrogen in sediment of Taihu Lake

NI Zhaokui<sup>1,2</sup>, LI Yuejin<sup>1</sup>, WANG Shengrui<sup>2,\*</sup>, JIN Xiangcan<sup>2</sup>, CHU Zhaosheng<sup>2</sup>

1 College of Ecology and Environmental Science, Inner Mongolia Agricultural University, Hohhot 010019, China

2 Research Center of Lake Environment, Chinese Research Academy of Environmental Science, Beijing 100012, China

**Abstract:** Variation in the organic carbon and nitrogen of lake sediment recorded the history of geochemistry due to natural and anthropogenic activities. In recent decades, with increasing human activities, Lake Taihu, the third largest freshwater lake in China, suffers a serious eutrophic situation, which affected the ecological balance of the lake. In this study, combining with  $^{210}\text{Pb}$  and  $^{137}\text{Cs}$  sediment dating techniques, carbon and nitrogen isotopes ( $\delta^{13}\text{C}$  and  $\delta^{15}\text{N}$ ), C/N ratio, total organic carbon (TOC), total nitrogen and phosphorus (TN and TP) content of the lake sediment were analyzed to indicate the historical sedimentation of organic matters in Meiliang Bay and centre area of Lake Taihu. Our results showed that the sources of sediment organic matter were generally autochthonous in the past century of Meiliang Bay. Before 1950s, sediment organic matter was less affected by human activities, mainly from the deposition of aquatic plants. From 1950s to the late 1970s in the last century, the sources of the sediment organic matter were mainly from the aquatic vascular plants and algae. From 1970s to 1980s in the last century, the contribution of algae was obvious. From 1990s in the last century to the present, algae deposition was the main source of sediment organic matter. Nitrogen sources of sediment in Meiliang Bay were mainly derived from soil erosion, fertilizer use and the death of algae before 1950s, and between 1950s and the

基金项目: 国家自然科学基金(40873079); 社会基础性工作资助项目(2006FY110600)

收稿日期: 2010-07-13; 修订日期: 2010-12-14

\* 通讯作者 Corresponding author. E-mail: wangsr@craes.org.cn

late 1970s, sediment sources of nitrogen were mainly from industrial wastewater, domestic sewage input and the death of algae deposition. From 1990s to the present, the contribution of external nitrogen in the sediment decreased with the increased contribution of algae sedimentation. In the center area of Lake Taihu, organic carbon and nitrogen of sediment were mainly derived from autochthonous sources. Before 1970s, the source of lake sediment organic matter and nitrogen were mainly from aquatic plants and deposition of soil erosion. From 1970s in the last century to the present, human activities and the increasing of extraneous material input were increasing, however, organic carbon and nitrogen of sediment were mainly composed of extraneous and internal organic matter. Our results revealed a spatial difference of sedimentation in Lake Taihu and could provide theoretical basis for further analyzing sources of organic matter and evaluating nutrition status of this lake.

**Key Words:** sediment; radioactive isotope; stable isotope; C/N ratio; sources; Lake Taihu

研究湖泊沉积物有机质和氮、磷等营养元素的垂向分布及历史来源有助于深入的分析湖泊系统污染来源特征<sup>[1]</sup>,而碳、氮稳定同位素的技术已被证实是水生环境中鉴别有机质和氮来自于自然界或者人类活动的一种强有力的手段<sup>[2-4]</sup>。早在 20 世纪 70 年代开始,Stuiver 等<sup>[5]</sup>就将碳同位素技术应用于湖泊沉积物的研究,并取得了一系列重大突破。氮同位素的研究起步较晚,目前氮同位素已被作为湖泊营养状态的一项代用指标引起了广泛的关注<sup>[6]</sup>。近 20a,我国学者也开始将碳、氮同位素技术广泛应用于海洋、河流和湖泊等初级生产力变化、营养物质示踪等的研究中,并积累了宝贵的经验<sup>[7-8]</sup>。虽然同位素技术能够较好的示踪有机质和氮素的来源,但在应用中仍需要结合其它技术、理化指标进行分析。Ehleringer<sup>[9]</sup>,Wynn<sup>[10]</sup>等研究认为,细菌分解会影响碳同位素值的变化,Wada<sup>[11]</sup>等认为氮同位素会受到成岩作用影响导致氮同位素值的分馏。

太湖是我国第三大淡水湖,对周边居民的生产、生活起着至关重要的作用。但近几十年来,由于受到人类活动的干扰加剧,使得湖区水体富营养化程度加重,直接影响到当地的生态平衡<sup>[12]</sup>。大量的研究工作者针对其富营养化进行了不同内容的研究,其中林琳、吴敬禄<sup>[13-14]</sup>运用同位素技术,重点探讨了太湖初级生产力和环境的变迁;Amy Mark 等<sup>[15]</sup>研究了不同季节、不同污染物的影响下太湖沉积物硝态氮的同位素组成特征,结果表明夏季降雨和城镇人类活动造成的污染物对其影响作用较大;曾海鳌等<sup>[16]</sup>在研究陆源不同土地利用类型的土壤对太湖河口沉积物有机质贡献的示踪中研究发现陆源的贡献大约占到 70%—80%,且离岸越远贡献越小。本文通过运用碳、氮稳定同位素技术和年代鉴定手段,结合太湖富营养化历史演变过程,深入探讨了太湖梅梁湾和湖心沉积物中不同历史时期有机碳和氮的来源以及不同的来源所对应的湖泊富营养化演变过程,揭示了营养盐在湖泊不同生态类型区域沉积过程中所引起的湖泊内部环境变化,为进一步利用稳定同位素技术分析湖泊沉积物有机质来源和水生生态系统营养状况评价提供理论依据。

## 1 样品选取与分析

### 1.1 研究区域概况

太湖湖区众多,各湖区生态环境差异较大。梅梁湾位于太湖北部,受到人类活动的干扰较为明显,近年来,人类活动导致湖区内部环境发生较大的变化,目前该区域已经属于太湖重富营养化湖区,水华暴发频繁。据调查结果显示,近 20a 来,几乎每年都会有蓝藻水华暴发,严重影响着湖区周边居民的生产、生活水平,以及湖泊的生态环境自我调节能力。湖心相对远离人类生活生产区,但近年来也出现了不同程度的富营养化,甚至局部观察到水华现象<sup>[17]</sup>。

### 1.2 样品的采集与分析

#### 1.2.1 样品的采集

样品的采集于 2007 年 11 月,分别在太湖梅梁湾(120°11'29"E,31°30'46"N)、湖心(120°08'38"E,31°06'59"N) 2 个点位利用自制的柱状采样器采集沉积柱状样品。沉积物样品现场按 1cm 间距分层,共分为 44cm,经过密封、冷冻后,带回实验室进行真空冷冻干燥,一部分研磨,用于测定有机碳、总氮含量和有机碳、氮同位

素组成(由于样品数量问题 0—10cm 按 1cm 分层, 10cm 以下按 2cm 分层), 一部分用于<sup>210</sup>Pb 和<sup>137</sup>Cs 年代的测定(按 2cm 分层)。

### 1.2.2 总有机碳和总氮的测定

将柱状样沉积物样品取适量放入烧杯中, 加入适量浓度为 1mol/L 的稀盐酸反应 24h 除去碳酸盐。然后反复用蒸馏水冲洗样品至 pH 值为中性, 后将样品烘干、研磨、100 目过筛, 取 1g 左右, 用元素分析仪(Vario MACRO 型)测定总有机碳和总氮含量, 并且计算有机碳与总氮的比值(C/N)。

### 1.2.3 $\delta^{13}\text{C}$ 、 $\delta^{15}\text{N}$ 值的测定

有机碳、氮同位素在中国林业科学研究院稳定同位素比率质谱实验室测得, 采用熔封石英高温燃烧法(Buchanon & Corcoran, 1959), 产生的 CO<sub>2</sub> 和 N<sub>2</sub> 通过气体质谱仪 MAT-2252 测定。有机碳、氮同位素分析的<sup>13</sup>C/<sup>12</sup>C 与<sup>15</sup>N/<sup>14</sup>N 分别对应国际标准 PDB 与大气中的 N<sub>2</sub>, 以国际纤维素标样 IAEA-C<sub>3</sub>( $\delta^{13}\text{C} = -24.91\text{‰}$ ), 标准 KNO<sub>3</sub>( $\delta^{15}\text{N} = 1.92\text{‰}$ ) 为参考标准, 分析误差 < 0.10‰。计算公式为:

$$\delta^{13}\text{C} \quad \delta^{15}\text{N} (\text{‰}) = (R_{\text{样品}}/R_{\text{标准}} - 1) \times 1000$$

式中  $R = {}^{13}\text{C}/{}^{12}\text{C}$  或  ${}^{15}\text{N}/{}^{14}\text{N}$

### 1.2.4 年代的测定

<sup>210</sup>Pb、<sup>137</sup>Cs 用  $\gamma$  分析方法对样品进行无损坏的多种核素同时直接测定。分析样品为一定量的研磨、过 100 目孔筛的干沉积物样品。用美国 EG&GOrtec 公司生产的由高纯锗井型探测器(Ortec HPGcE GWL) 与 Ortec 919 型谱控制器和 IBM 微机构成的 16k 道多道分析器所组成的  $\gamma$  谱分析系统进行核素测定。<sup>137</sup>Cs 和 <sup>226</sup>Ra 标准样品由中国原子能研究院提供; <sup>210</sup>Pb 标准样品由英国利物浦大学提供的标准样品做比标准。

## 2 结果

### 2.1 利用<sup>137</sup>Cs、<sup>210</sup>Pb 鉴定太湖沉积物年代特征

利用<sup>137</sup>Cs、<sup>210</sup>Pb 测年技术, 可以比较准确地测定近百年来沉积物的沉积年龄<sup>[18]</sup>。<sup>137</sup>Cs 是核爆炸产生的人工放射性核素, 物理半衰期为 30.174a。<sup>137</sup>Cs 计年是基于该放射性核素在沉积物记录中的层位对比, 因此, 沉积物垂直剖面蓄积峰位置可作为时间标记<sup>[19]</sup>。<sup>210</sup>Pb 是天然放射性铀系元素中的一员, 半衰期为 22.3a。随着时间的推移, 沉积物中过剩的<sup>210</sup>Pb 呈现出有规律的衰变过程, 也可作为计年的标尺<sup>[20]</sup>。

太湖不同湖区沉积物<sup>137</sup>Cs、<sup>210</sup>Pb 垂直剖面分布如图 1 所示。由图结果分析得出, 梅梁湾柱样剖面<sup>137</sup>Cs 的比活度在 7cm 以上开始显现, 并在表层 0—7cm 表现出“表层蓄积”现象, 峰值出现在 7cm 处, 比活度为

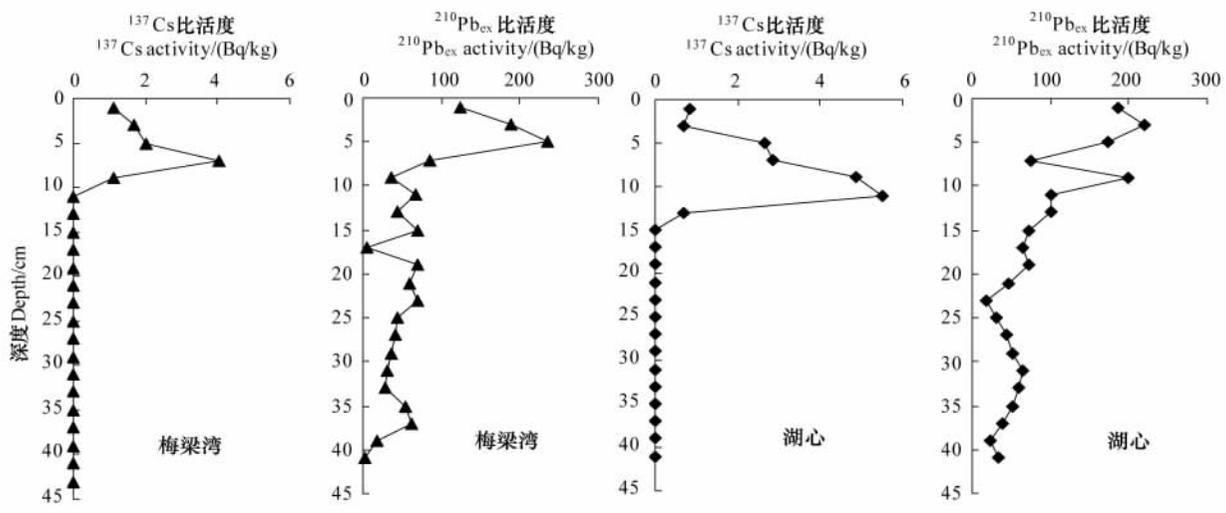


图 1 太湖不同湖区沉积物<sup>137</sup>Cs、<sup>210</sup>Pb 垂直剖面分布

Fig. 1 The vertical profile of <sup>137</sup>Cs, <sup>210</sup>Pb in different area of Taihu Lake

4.0Bq/kg。根据近 50a 来  $^{137}\text{Cs}$  在北半球的蓄积规律可推测,梅梁湾柱样剖面  $^{137}\text{Cs}$  比活度图中出现的峰可能与 1986 年前苏联切尔诺贝利核泄露事件有关,若以 1986 年作为计年时标,可初步判断梅梁湾柱样中深度为 7cm 以上的沉积物沉积速率为 0.32cm/a。而湖心柱样剖面  $^{137}\text{Cs}$  在 11cm 处出现蓄积峰,依据梅梁湾柱样剖面  $^{137}\text{Cs}$  计年的推测方法,同样判断湖心柱样剖面  $^{137}\text{Cs}$  的结果可能标记了 1986 年核泄露,经计算得出 0—11cm 沉积物的平均沉积速率为 0.45cm/a。

太湖梅梁湾柱样沉积物中  $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$  分布波动性较大,进行线性拟合,相关系数为 0.43,相关性较差,故采用 CRS 模式进行计算,可得到每一层沉积物的沉积年代和沉积速率。结果显示,梅梁湾柱样沉积物在深度为 7cm 处代表 1987 年,这与  $^{137}\text{Cs}$  计年结果基本一致。而湖心区因未检测到本底,故采用 CIC 模式,用指数进行拟合,相关系数为 0.62,计算得出湖心柱样沉积物的平均沉积速率为 0.44cm/a,与  $^{137}\text{Cs}$  记年结果接近较一致。其年代鉴定结果见表 1。

表 1 运用  $^{137}\text{Cs}$ 、 $^{210}\text{Pb}$  测得梅梁湾、湖心柱状样年代结果

Table 1 The column sediments' age results in meiliang bay and center area of Taihu Lake using  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{210}\text{Pb}$  technique

深度/cm Depth	梅梁湾 Mei liang bay		湖心 Center arer lake		深度/cm Depth	梅梁湾 Mei liang bay		湖心 Center arer lake	
	$^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 强度	年代	$^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 强度	年代		$^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 强度	年代	$^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 强度	年代
	1	124.65	2004	186.54		2005	21	59.89	1941
3	187.75	1998	220.65	2000	23	70.54	1935	17.66	1955
5	234.48	1991	172.41	1996	25	44.72	1929	30.00	1950
7	84.41	1985	74.28	1991	27	42.63	1923	44.70	1946
9	36.26	1979	198.71	1987	29	37.36	1916	52.18	1941
11	67.75	1973	101.13	1982	31	31.28	1910	65.12	1937
13	43.07	1966	100.94	1977	33	29.06	1904	30.39	1932
15	68.78	1960	73.10	1973	35	55.02	1898	52.19	1927
17	5.35	1954	64.27	1968	37	60.98	1891	39.62	1923
19	70.27	1948	72.73	1964	39	18.75	1885	23.36	1918

## 2.2 太湖不同湖区沉积物碳、氮同位素分布特征

### (1) 梅梁湾湖区沉积物剖面 $\delta^{15}\text{N}$ 、 $\delta^{13}\text{C}$ 、TOC、TN、TP、C/N 垂向分布

图 2 所示结果分析,太湖梅梁湾柱样沉积物中  $\delta^{15}\text{N}$  值在 17cm 以下变化幅度较小,在 3.2‰—3.9‰ 之间; 9—17cm 呈现出逐渐增大趋势,增幅为 46.0%; 0—11cm 上升趋势较缓,最高值达到 6.8‰。梅梁湾柱样沉积

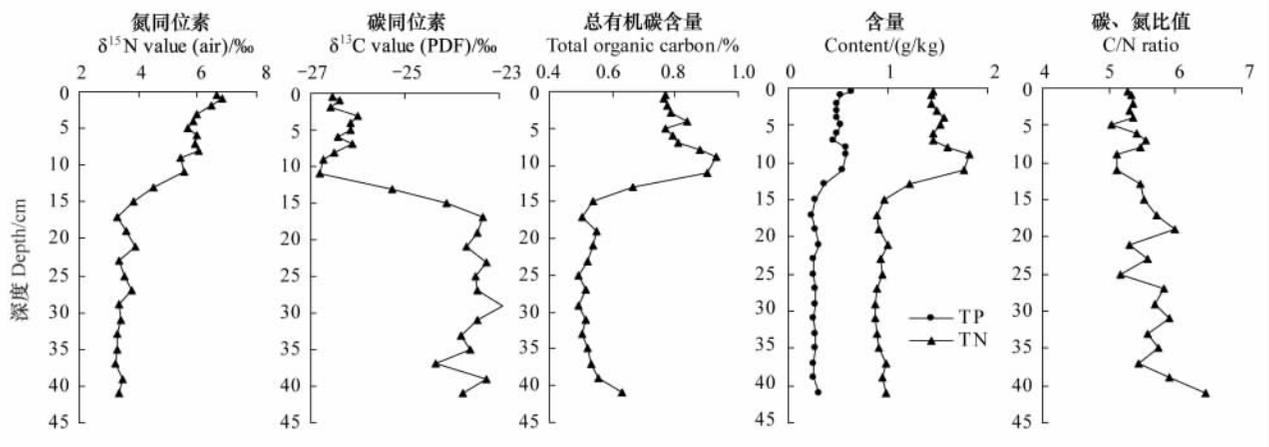


图 2 梅梁湾沉积物剖面  $\delta^{15}\text{N}$ 、 $\delta^{13}\text{C}$ 、TOC、总氮、总磷、C/N 垂向分布

Fig. 2 Vertical distribution of  $\delta^{15}\text{N}$  and  $\delta^{13}\text{C}$  values, TOC, TN and TP contents, C/N ratios of meiliang bay sediments

物  $\delta^{13}\text{C}$  值在 17cm 以下总体变化幅度不大, 29cm 时达到最高值为  $-22.9\text{‰}$ , 11—17cm 上升幅度较大, 在 11cm 和 17cm 时  $\delta^{13}\text{C}$  值分别为  $-26.8\text{‰}$  和  $-23.5\text{‰}$ , 这与  $\delta^{15}\text{N}$  值的变化趋势相反; 0—11cm 时  $\delta^{13}\text{C}$  值总体变化幅度较小, 基本保持在  $-26.6\text{‰}$ — $-26.0\text{‰}$  之间。沉积物 TOC、TN 和 TP 垂向变化趋势一致, 均在 17cm 以下比较平稳; 9—17cm 减小趋势均较为明显, 降幅分别为 45.7%、51.0% 和 60.0%; 7—9cm 之间均有上升趋势, 且在 9cm 时 TOC、TN 和 TP 值均达到最大值, 分别为 0.9%、1.8g/kg 和 0.6g/kg。在 0—7cm 之间, 除在 5cm 时有稍许上升, 总体保持较平稳状态, 这与该点位  $\delta^{13}\text{C}$  值变化趋势相反。C/N 在 9cm 以下呈现不规则变化趋势, 而在 9cm 表现出与 TOC、kgTN 变化相反的趋势。以上分析可得出, 柱样沉积物 11—17cm 是梅梁湾沉积物指标发生变化最快的时期。

## (2) 湖心沉积物剖面 $\delta^{15}\text{N}$ 、 $\delta^{13}\text{C}$ 、TOC、TN、TP、C/N 垂向分布如

图 3 结果表明, 太湖湖心柱样沉积物  $\delta^{15}\text{N}$  值总体变化趋势不太明显, 在 13cm 以下变化幅度不大, 2—13cm 随深度的增加逐渐减小, 而在 0—2cm 有上升趋势。 $\delta^{13}\text{C}$  值在 17cm 以下变化比较平稳, 13cm 以上略有上升, 但上升幅度不大, 保持在  $-24.5\text{‰}$  到  $-23.0\text{‰}$  区间。TOC 和 TN 表现出比较一致的变化趋势, 在 21cm 以下呈阶梯状减少, 11—21cm 变化较缓, 7—11cm 又表现出稍许上升, 在 5cm 时达到最小值, 分别为 0.3% 和 0.5g/kg。在表层 0—7cm 时总体呈下降趋势。C/N 表现出不规律的分布特征, 均保持在 6.4—9.4 之间, 其中在 5cm 时达到最小值, 而在 23cm 时达到最大值。TP 随着深度的增加变化幅度较小, 在表层 0—7cm 时有逐渐增大的趋势, 在 7cm 达到最大值, 7—10cm 减小趋势比较明显, 在 10cm 达到最小值, 而后开始逐渐升高, 21cm 以下 TP 含量基本保持同一水平。在湖心柱样沉积物整个剖面各理化性质的变化趋势与梅梁湾柱样沉积物之间存在明显的差异。

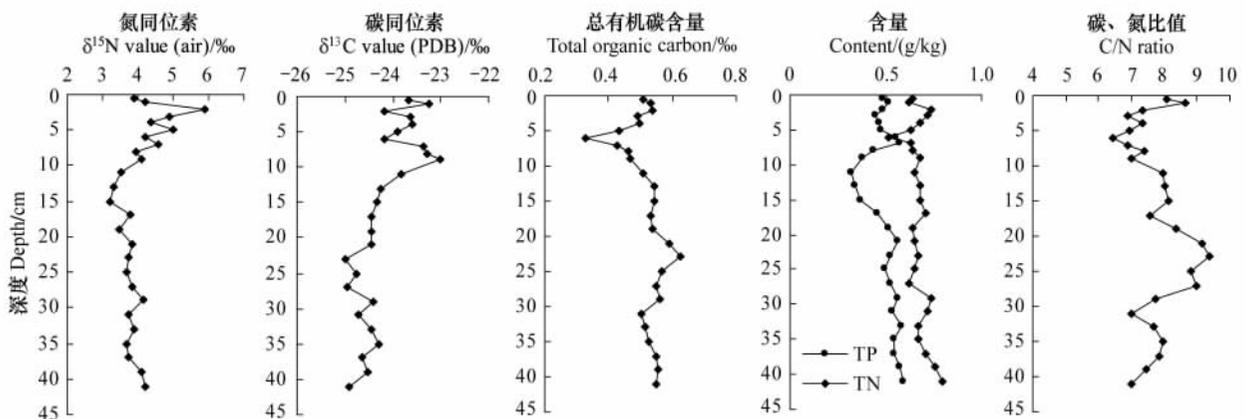


图 3 湖心沉积物剖面  $\delta^{15}\text{N}$ 、 $\delta^{13}\text{C}$ 、TOC、总氮、C/N 垂向分布

Fig. 3 Vertical distribution of  $\delta^{15}\text{N}$  and  $\delta^{13}\text{C}$  values, TOC, TN and TP contents, C/N ratios of Taihu center areas sediments

## 3 讨论

### 3.1 利用碳稳定同位素和 C/N 记录沉积物中有机质来源

利用湖泊沉积物有机碳、氮同位素探讨沉积历史演化时, 应考虑沉积物在沉积过程中的早期成岩作用所导致的  $\delta^{13}\text{C}$ 、 $\delta^{15}\text{N}$  变化。在沉积物中, 碳同位素组成会随浮游植物生物量或物种的变化而变化, 同样, 氮在陆生系统中被生物吸收利用的主要是  $\text{N}_2$  通过氮固定作用的产物, 而水生系统中被生物吸收利用的主要是硝酸盐, 它们在各自的转化过程中存在同位素差异。因此, 许多学者提出氮同位素会受成岩作用的影响<sup>[21]</sup>。梅梁湾和湖心剖面  $\delta^{15}\text{N}$  均随深度的增加而减少, 因而氮同位素受成岩作用的影响不大(图 2, 图 3)。

为更好地分析  $\delta^{13}\text{C}$  在沉积过程中是否受到成岩作用的影响, 绘制了  $\delta^{13}\text{C}$  与 C/N 和 TOC 的关系图(图 4)。由图可以看出, 梅梁湾  $\delta^{13}\text{C}$  与 C/N 和 TOC 相关关系分别为 0.41 和 0.91。虽然  $\delta^{13}\text{C}$  与 TOC 的相关关系为 0.91, 但与 C/N 相关关系仅为 0.3026, 且 17cm 以下波动不大。所以, 梅梁湾柱受成岩作用影响不大, 而湖

心柱  $\delta^{13}\text{C}$  与 C/N 和 TOC 相关关系分别为 0.15 和 0.30 相关性较小, 受到成岩作用影响也较小。因此, 两个剖面  $\delta^{13}\text{C}$ 、C/N 等指标能指示有机质来源。

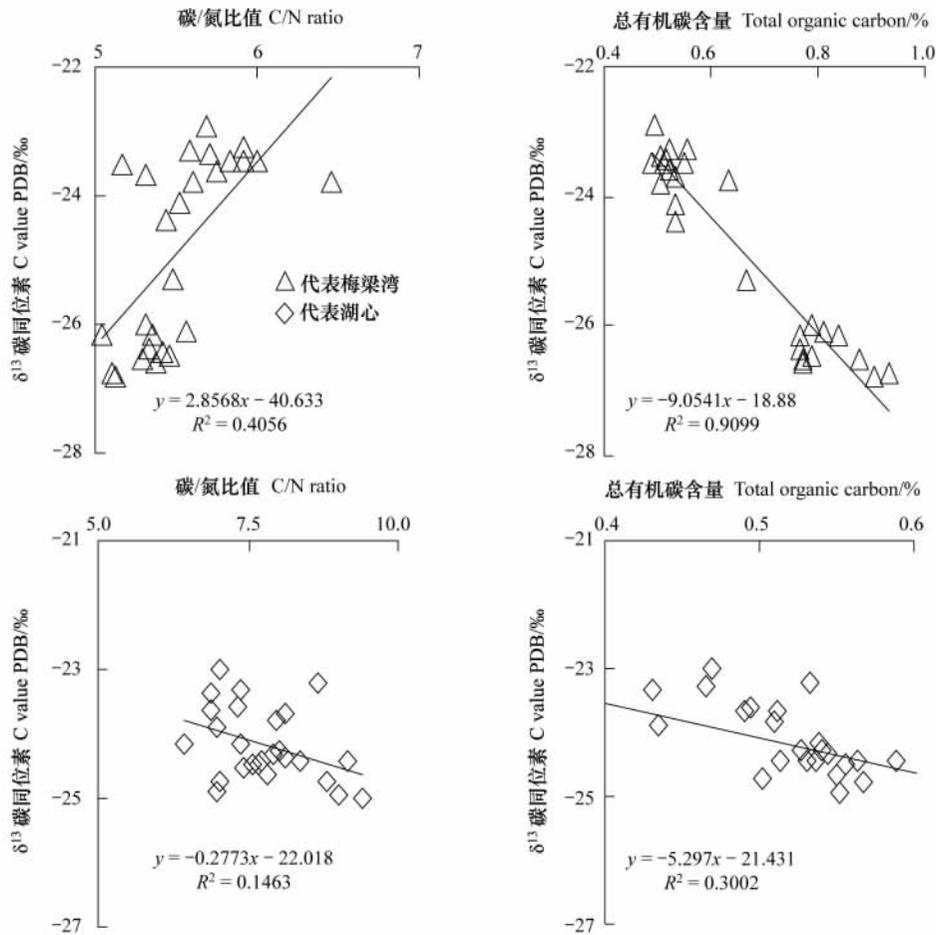


图4 梅梁湾和湖心沉积物剖面  $\delta^{13}\text{C}$  与 C/N 和 TOC 线性关系

Fig. 4 Relationship between  $\delta^{13}\text{C}$ , C/N ration and Total organic carbon contents in meiliang bay and center area sediments

湖泊沉积物中有机质主要来源于陆生植物、湖泊水生植物和藻类, 有机质在底泥中沉积后, 其碳同位素组成变化很小, 基本可以反映其来源物质的碳同位素组成。根据光合作途径的不同, 陆生植物可分为  $\text{C}_3$ 、 $\text{C}_4$  植物两类。湖泊沉积物中有机质  $\delta^{13}\text{C}$  的比值变化主要反映了光合作用、碳同化作用以及碳源的同位素组成, 可以指示水生系统中有机物通量或有机质不同的来源方式,  $\text{C}_3$  类植物  $\delta^{13}\text{C}$  值的范围分布在  $-20\text{‰}$ — $-30\text{‰}$  之间, 而  $\text{C}_4$  类植物  $\delta^{13}\text{C}$  值在  $-19\text{‰}$ — $-9\text{‰}$  之间, CAM 类  $\delta^{13}\text{C}$  值在  $-30\text{‰}$ — $-10\text{‰}$  之间, 内源有机质  $\delta^{13}\text{C}$  在  $-19\text{‰}$ — $-22\text{‰}$  之间, 如果  $\delta^{13}\text{C}$  处于  $-22\text{‰}$ — $-16\text{‰}$  之间, 则被认为是陆源和水生来源混合物<sup>[22]</sup>。对于以自生有机质为主的湖泊, 浮游植物比沉水植物碳同位素值低<sup>[23]</sup>, 因为在进行光和作用时, 浮游植物优先利用空气中富含  $^{12}\text{C}$  的  $\text{CO}_2$ , 导致  $\delta^{13}\text{C}$  变小, 沉水植物则主要通过碳酸盐和溶解态的  $\text{CO}_2$ ,  $\delta^{13}\text{C}$  相对偏正。 $\delta^{15}\text{N}$  也能反映出沉积物有机质来源, 这是基于陆生和水生系统固氮的途径差异判断<sup>[23]</sup>。不同来源的有机质  $\delta^{15}\text{N}$  存在明显的差异性, 一般认为, 陆生  $\delta^{15}\text{N}$  平均值约为  $2\text{‰}$ , 藻类  $\delta^{15}\text{N}$  平均值约为  $8\text{‰}$ , 浮游生物  $\delta^{15}\text{N}$  相对于大型水生植物偏正<sup>[24-25]</sup>。

沉积物有机质 C/N 可以大体判断有机质的来源是湖泊自生还是外源输入。藻类有机质中富含大量的蛋白质, 纤维素的含量较低, 而陆生高等植物富含纤维素, 蛋白质含量低, 因此, 可以根据沉积物中有机质的 C/N 来判定其有机质的来源, 新鲜藻类有机质的 C/N 在 3—8 之间, 而来自于脉管类陆生高等植物有机质的 C/N 约为 20, 甚至更高。沉积物中有机质的 C/N 大于 8, 常常被认为是受到两种物源的影响, 沉积物中陆源有机

质所占的比例越高, C/N 就越大<sup>[26-27]</sup>。

梅梁湾处于城市和农业区下缘, 汇入太湖的有机质来源差异性较大, 既有藻类和其它水生植物, 又有陆源 C<sub>3</sub>、C<sub>4</sub> 植物等, 同位素信号极为复杂。因此, 仅靠碳同位素很难分辨有机质的来源, 应结合地球化学相关手段来提高分辨率。本研究将碳同位素和 C/N 相结合来区分不同来源(如湖泊藻类、水生植物、陆地 C<sub>3</sub> 植物和陆地 C<sub>4</sub> 植物)的有机质。利用 C/N 和  $\delta^{13}\text{C}$  值判别有机质不同来源(图 4) 梅梁湾沉积物 C/N 均小于 7, 有机质分布集中于水生植物区, 表明沉积物中有机质主要受到水生生物源的影响, 以自生有机物源为主。

从梅梁湾沉积物  $\delta^{13}\text{C}$ 、 $\delta^{15}\text{N}$ 、TOC、TN、TP 和 C/N 在剖面中的分布(图 2), 看到沉积环境经历了 4 个不同的变化阶段: (1) 17cm 以下(1950 年之前), 沉积物  $\delta^{13}\text{C}$ 、 $\delta^{15}\text{N}$ 、TOC、TN、TP 和 C/N 分布较为稳定, 表明这段时期梅梁湾受到人类活动较小, 外源输入较小, 湖泊初级生产力较低, 沉积环境稳定,  $\delta^{13}\text{C}$  处于 -23.2‰—23.9‰ 之间, 表明沉积物有机质受到外源和湖泊自生共同作用, C/N 小于 7 则反映了为自生有机质为主。(2) 17—11cm(20 世纪 50 年代至 70 年代), 沉积物  $\delta^{15}\text{N}$ 、TOC、TN 和 TP 迅速增大, 说明外源输入增大, 湖泊初级生产力提高, 湖泊开始富营养化,  $\delta^{13}\text{C}$  出现下降, 说明随着水体营养水平增高, 浮游植物开始生长, 这是因为浮游植物在进行光和作用主要时是利用空气中富含 <sup>12</sup>C 的 CO<sub>2</sub>, 所以导致  $\delta^{13}\text{C}$  下降。而 C/N 的下降, 同样表明沉积物有机质浮游植物贡献比例增大, 大型水生植物比例下降。沉积物各项在这个时期反映出, 沉积物有机质受到大型水生植物和藻类共同的作用。11—5cm(70 年代—90 年代),  $\delta^{13}\text{C}$ 、 $\delta^{15}\text{N}$  逐渐呈现增大趋势。随着湖泊富营养化的进一步加剧, 藻类大量繁殖, 当水体中溶解性 CO<sub>2</sub> 和硝酸盐无法满足藻类需求时, 浮游植物开始富集 <sup>13</sup>C、<sup>15</sup>N, 随着水体中碳酸盐和硝酸盐的减少, 有机质  $\delta^{13}\text{C}$ 、 $\delta^{15}\text{N}$  逐渐偏正。这表明这段时期, 沉积物有机质主要以藻类死亡沉积为主要方式。(4) 3cm—表层, TOC、TN 和 TP 有缓慢降低趋势, 说明自 2000 年后, 梅梁湾外源输入有所控制, 但  $\delta^{13}\text{C}$  和  $\delta^{15}\text{N}$  表现为相反变化趋势, 表明此时, 沉积物有机质仍主要来源于藻类。

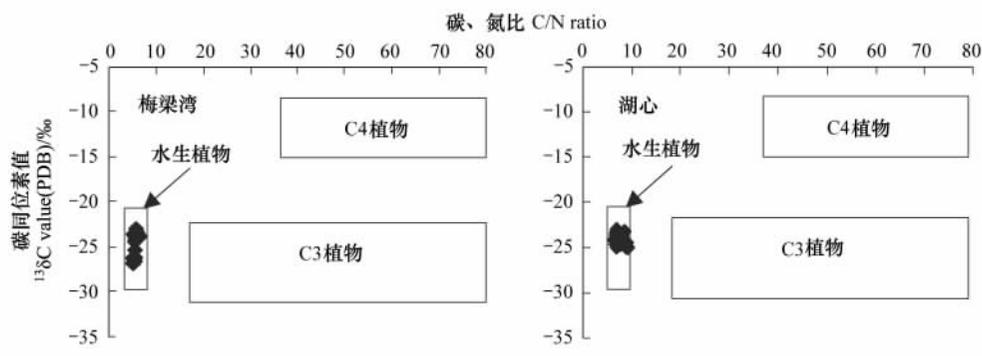


图 5 利用 C/N 和  $\delta^{13}\text{C}$  同位素值判别有机质不同来源方式

Fig. 5 Different sources of OM using C/N ratios and  $\delta^{13}\text{C}$  values

秦伯强<sup>[17]</sup>等在太湖富营养化成因分析时提到, 梅梁湾湖底原有大量水草, 60 年代后期, 梅梁湾当地农民拿水草沤肥, 水草逐渐减少以至于消失。南京地理研究所在 60 年代就发现梅梁湾等湖区出现局域蓝藻水华, 到 80 年代, 梅梁湾湖区 2/5 已经发生水华, 90 年代中期已经发展到全湖。一些学者关于梅梁湾富营养演变过程的阐述与本文研究梅梁湾沉积物碳、氮同位素所反映的湖泊富营养化过程基本一致<sup>[28-29]</sup>。

湖心沉积物剖面中各项指标变化不明显(图 3), 这与湖心受到人类活动影响较小实际情况一致。图 4 结果显示, 太湖湖心沉积物有机质主要来自于湖泊自生, 只有个别时期受到陆源有机质输入的影响。比如, 沉积物剖面 23cm(1955 年)处  $\delta^{13}\text{C}$  出现最小值, C/N 出现最大值, 这与 1954 年期间, 太湖地区洪水暴发, 陆源 C<sub>3</sub> 植物输入到湖心有关。

### 3.2 氮稳定同位素记录沉积物氮的来源

不同来源的含氮物质具有不同的氮同位素信号, 因此, 利用氮同位素可以有效的示踪污染物质的来源。沉积物中  $\delta^{15}\text{N}$  值随着沉积物的累积作用表现出不同的分布特征, 因此可通过  $\delta^{15}\text{N}$  值反映出水生环境中硝酸

盐利用的历史信息<sup>[30]</sup>。土壤氮的  $\delta^{15}\text{N}$  值在 2‰—4‰ 之间变化,人工合成肥料  $\delta^{15}\text{N}$  值在 -4‰—4‰ 之间变化,污水  $\delta^{15}\text{N}$  值在 10‰—20‰ 之间变化,大气沉降  $\text{NO}_3^-$  的  $\delta^{15}\text{N}$  值在 0.2‰—0.8‰ 之间变化<sup>[31]</sup>。

由图 2 所示结果反映出,太湖梅梁湾沉积物  $\delta^{15}\text{N}$  值随着深度的增加呈减小趋势,在 17cm 以下沉积物  $\delta^{15}\text{N}$  变化不明显,其它指标变化亦不明显。 $\delta^{15}\text{N}$  平均值为 3.5‰,表明在 50 年代以前(即柱样 17cm 以下),沉积物氮素主要来源于流域土壤水土流失。在 11—17cm 沉积物  $\delta^{15}\text{N}$  值迅速增大,平均值为 4.2‰,此时 TN、TP 和 TOC 含量也迅速增加,自 50 年代开始,外源影响增大,含氮生活污水和工业废水等对湖泊污染逐年加剧,与此同时,浮游植物通过对外源输入氮的利用,水生生物量的大量增加,导致  $\delta^{15}\text{N}$  值逐渐接近藻类信号(藻类大约 8‰)。在 11—5cm  $\delta^{15}\text{N}$  继续增大,沉积物  $\delta^{15}\text{N}$  值平均值为 6.1‰,最大值达到 6.8‰。 $\delta^{15}\text{N}$  和 TP 表现为负相关,而沉积物 TP 含量的变化在一定程度上指示了流域营养物质的输入。自 70 年代,沉积物氮素的来源主要来源于湖泊藻类,而非外界直接输入。3cm 至表层,沉积物 TN、TP 含量趋于平衡, $\delta^{15}\text{N}$  降低,表明梅梁湾湖区在 2000 年以后,周围人为污染物的输入得到有效的遏制,沉积物氮主要来源于湖泊藻类死亡沉积。

湖心沉积物 11cm 以下  $\delta^{15}\text{N}$  变化幅度较小,平均值为 3.7‰,其它各项指标变化也不明显,11cm 和 13cm 处沉积物各项指标开始增大, $\delta^{15}\text{N}$  最大值达到 5.9‰,但整体低于梅梁湾  $\delta^{15}\text{N}$  水平。沉积物  $\delta^{15}\text{N}$  与 TN、TP 相关性较差,相关系数分别为 0.02 和 0.04,反映出沉积物氮主要受到自身水生生物的影响而不是外源营养物质的输入。总体来看,70 年代以后,湖心生态环境开始逐渐发生变化,但相对于梅梁湾,无论是受到的外源影响还是自生环境发生的变化都较小。这与湖心受到人类影响比梅梁湾小情况一致。表层 2cm,各项指标均出现下降趋势,表明湖泊受到外界污染减少。

硝酸盐的累计输入会引起新形成的氮生物量的  $\delta^{15}\text{N}$  值增加<sup>[32]</sup>。水生生物可能通过反硝化作用更改进入水体的同位素信号,在不考虑其它一些影响因素基础上,对梅梁湾和湖心沉积物剖面水生有机氮和陆源有机氮相对比例进行计算,钱君龙等<sup>[33]</sup>探讨了一种利用 C/N 比值定量估算总有机碳中水生有机碳(Ca)、氮(Na)和陆源有机碳(Ct)、氮(Nt)的方法,假定水生和陆源有机质的 C/N 分别为 5 和 20(作为零级近似),则:

$$N_w = (20\text{TN} - \text{TOC}) / 15$$

$$N_l = (\text{TOC} - 5\text{TN}) / 15$$

式中,  $N_w$  为水生氮源,  $N_l$  为陆生氮源。

运用上述公式分别计算出梅梁湾和湖心自生有机氮占总氮的比重,计算出结果见图 5。分析结果得出,梅梁湾沉积物剖面自生氮含量百分比随着深度的增大呈现出减少趋势。在 60 年代以前,梅梁湾湖区有大量的大型水生植物,自生氮含量百分比在 79.2%—92.1% 之间;70 年代开始藻类渐渐取代大型水生植物,沉积物自生氮比例降低,这正是大型水生植物衰亡,藻类开始生长的过渡期<sup>[34]</sup>,水生生物量相对较少,生物固氮能力较弱,自生氮含量百分比在 77.7%—88.3% 之间;80 年代中期以后,自生氮比例在 86.4%—98.7% 之间,这可能与藻类的强固氮能力有关,当大量的外源氮素进入湖泊后,造成水体氮素的增加,大量的氮素又被藻类吸收(蓝藻具有相当高效的固氮能力),并伴随着藻类的死亡而沉积到底泥中。

湖心沉积物剖面自生氮百分比含量变化趋势不明显,自生有机氮比例总体相对较低,是因为一方面,湖心水生生物量相对较低,对于水体氮素的吸收较少;另一方面,湖心受到外源氮素输入的影响较小。其自生氮含量百分比整体低于梅梁湾沉积物自生氮含量百分比。

通过以上分析得出,梅梁湾接纳外源氮的输入量较大,尤其受到化肥施用、生活污水和工业废水等的污染,使得水体富营养化程度较高,藻类大量繁殖,从而导致该湖区沉积物氮素受到外源和藻类自生来源的共同影响;湖心区氮的来源受到外源的影响小于梅梁湾所受外源影响,其受自生氮的影响也较小。

#### 4 结论

太湖不同湖区沉积物的碳、氮同位素特征提供了沉积物有机质、氮的来源信息。

(1) 梅梁湾湖区在 20 世纪 50 年代以前,处于相对比较自然的状态,受到人类活动的影响较小,有机质主要来自于水生植物的死亡沉积,以湖泊自生有机质为主;而这一时期湖区沉积物氮素主要来源于流域土壤流

失、大型水生植物的死亡。50 年代到 70 年代, 湖泊沉积物环境经历了剧烈的变化, 人类活动的加剧造成大量营养物质的输入, 藻类开始大量生长, 大型植物消亡。有机质来源仍主要以湖泊自生为主, 藻类死亡沉积已不可忽视; 这一时期沉积物氮主要来源于工业废水、生活污水和水生生物的死亡沉积。90 年代后, 外源氮输入的有效控制, 使得藻类对沉积物氮的贡献更加显著; 而有机质来源转变为以藻类死亡沉降为主要方式。在整个年代变化过程中, 外源有机质输入影响小于湖泊自生的有机质; 而氮、磷等营养盐的输入随着人类活动的加剧负荷加重, 在外源物质得到有效控制的情况下, 藻类的沉积成为湖区沉积物营养盐负荷的主要来源。

(2) 湖心区域 20 世纪 70 年代前, 湖心沉积物有机质和氮主要来自于水生植物的沉积和水土流失作用; 70 年代后, 湖泊受到人类活动输入外源物质的影响逐渐增大, 沉积物有机质和氮主要来源于湖泊自生, 但陆源影响不容忽视; 90 年代后, 外源输入逐渐得到有效控制, 湖泊自生水生生物成为有机质和氮来源的主要途径。

湖心沉积物由于其地理位置及环境的特殊性, 在风浪、水流的作用下, 易携带外源营养物质的输移, 使得湖区沉积物的有机质、氮的来源不仅仅来自于湖区自身水生生物等的死亡沉积, 还受到外源物质的影响, 还需要进一步研究。

#### References:

- [ 1 ] Hu J F, Peng P A, Jia G D, Mai B X, Zhang G. Distribution and sources of organic carbon, nitrogen and their isotopes in sediments of the subtropical Pearl River estuary and adjacent shelf, Southern China. *Marine Chemistry*, 2006, 98( 2/4 ): 274-285.
- [ 2 ] Costanzo S D, O'Donohue M J, Dennison W C, Loneragan N R, Thomas M. A new approach for detecting and mapping sewage impacts. *Marine Pollution Bulletin*, 2001, 42( 2 ): 149-156.
- [ 3 ] McClelland J W, Valiela I, Michener R H. Nitrogen-stable isotope signatures in estuarine food-webs: a record of increasing urbanization in coastal watersheds. *Limnology and Oceanography*, 1997, 42( 5 ): 930-937.
- [ 4 ] Vander Zanden M J, Vadeboncoeur Y, Diebel M W, Jeppesen E. Primary consumer stable nitrogen isotopes as indicators of nutrient source. *Environment Science Technology*, 2005, 39( 19 ): 7509-7515.
- [ 5 ] Stuiver M. Climate Versus changes in  $^{13}\text{C}$  Content of the organic component of lake sediments during the late Quaternary. *Quaternary Research*, 1975, 5( 2 ): 251-262.
- [ 6 ] Högborg P. Tansley review No. 95  $^{15}\text{N}$  natural abundance in soil-plant systems. *The New Phytologist*, 1997, 137( 2 ): 179-203.
- [ 7 ] Ge C D, Wang Y, Pedersen T F, Slaymake O. Variability of organic carbon isotope, nitrogen isotope and C/N in the Wanquan River Estuary, Eastern Haninan Island, China and its environment implications. *Quaternary Sciences*, 2007, 27( 5 ): 845-852.
- [ 8 ] Zhou Z H, Li J, Zhu Z Z. Environmental evolution of Longgan Lake sediments recorded by carbon and nitrogen isotopes. *Chinese Journal of Ecology*, 2007, 26( 5 ): 693-699.
- [ 9 ] Ehleringer J R, Buchmann N, Flanagan L B. Carbon isotope ratios in belowground carbon cycle processes. *Ecological Applications*, 2000, 10( 2 ): 412-422.
- [ 10 ] Wynn J G. Carbon isotope fractionation during decomposition of organic matter in soils and paleosols: implications for paleoecological interpretations of paleosols. *Palaeogeography, Palaeoclimatology, Palaeoecology*, 2007, 251( 3/4 ): 437-448.
- [ 11 ] Wada E. Nitrogen isotope fractionation and its significance in biogeochemical progresses occurring in marine environments// Goldberg E D, Horibe Y, Saruhashi K, eds. *Isotope Marine Chemistry*. Tokyo: Uchida Rokakuho Publishing Co Ltd, 1980: 375-398.
- [ 12 ] Huang Z H, Xue B, Peng Y. Change of water environment and its future in taihu lake in relation with ecological development in this lake basin. *Resource and Environment in the Yangtze Basin*, 2006, 15( 5 ): 15-23.
- [ 13 ] Lin L, Wu J L. The eutrophication process in Meiliang Bay of Taihu Lake by isotope geochemistry evidence. *Science in China D: Earth Science*,

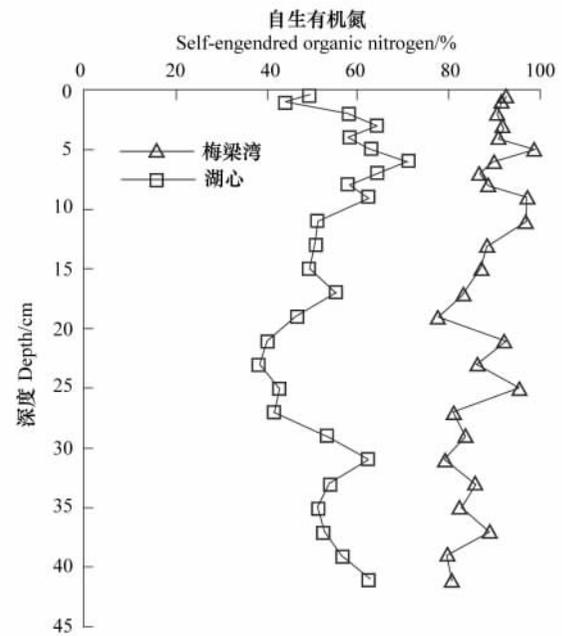


图 6 梅梁湾和湖心自生有机氮所占百分比

Fig. 6 Ratio of self-engendered organic nitrogen in Meiliang bay and center area of Taihu Lake

- 2005, 35(S2): 55-62.
- [14] Wu J L, Lin L, Liu J J, Gao G. Environmental significance and stable isotope signatures from sedimented organic matter in Lake Taihu. *Marine Geology and Quaternary Geology*, 2005, 25(2): 25-29.
- [15] Townsend-Small A, McCarthy M J, Brandes J A, Yang L Y, Zhang L, Gardner W S. Stable isotopic composition of nitrate in Lake Taihu, China, and major inflow rivers. *Hydrobiologia*, 2007, 581(1): 135-140.
- [16] Zeng H A, Wu J L. Isotopic tracing of terrestrial contribution to organic matter of sediments in the estuary of Taihu Lake Basin. *Marine Geology and Quaternary Geology*, 2009, (1): 24-29.
- [17] Qin B Q, Hu W M, Chen W M. *Evolution Process and Mechanism of Water Environment in Taihu Lake*. Beijing: Beijing Science Press, 2004: 19-33.
- [18] Xu S Q, Wan G J. Vertical distribution of  $^{137}\text{Cs}$  and  $^{210}\text{Pb}$  and their dating in modern sediments of Chenghai Lake, Yunnan Province. *Geology-Geochemistry*, 2001, 29(1): 28-31.
- [19] Carter M W, Moghissi A A. Three decades on nuclear testing. *Health Physics*, 1977, 33(1): 55-71.
- [20] Erlinger C, Lettner H, Hubner A, Hofmann W, Steinhäusler F. Determining the Chernobyl impact on sediments of a pre-Alpine lake with a very comprehensive set of data. *Journal of Environmental Radioactivity*, 2008, 99(8): 1294-1301.
- [21] Macko S, Engel H, Parker P. Early diagenesis of organic matter in sediments assessment of mechanisms and preservation by the use of isotopic molecular approaches//Engel M H, Macko S A, eds. *Organic Geochemistry*. New York: Plenum Press, 1993: 211-224.
- [22] Emerson S, Hedges J I. Processes controlling the organic carbon content of open ocean sediments. *Paleoceanography*, 1988, 3(5): 621-634.
- [23] Stuiver M. Climate versus changes in  $^{13}\text{C}$  content of the organic component of lake sediment during the Late Quaternary. *Quaternary Research*, 1975, 5(2): 252-262.
- [24] Lücke A, Schlesera G H, Zolitschka B, Negendank J F W. A Lateglacial and Holocene organic carbon isotope record of lacustrine palaeoproductivity and climatic change derived from varied lake sediments of Lake Holzmaar, Germany. *Quaternary Science Reviews*, 2003, 22(5/7): 569-580.
- [25] Emerson S, Hedges J I. Processes controlling the organic carbon content of open ocean sediments. *Paleoceanography*, 1988, 3(5): 621-634.
- [26] Meyers P A. Preservation of elemental and isotopic source identification of sedimentary organic matter. *Chemical Geology*, 1994, 144(3/4): 289-302.
- [27] Stein R. *Accumulation of Organic Carbon in Marine Sediments*. Heidelberg: Springer-Verlag, 1991: 2-17.
- [28] Chen L Q, Liu Y, Yang Z F. Ecological succession and sustainable development in Taihu Lake. *Journal of East China Normal University: Natural Science*, 2003, 12(4): 99-106.
- [29] Li J, Xiao H Y, Zhu Z Z, Wang S L, Wang M L. Historical eutrophication in Wuli Bay of Taihu Lake, China based on carbon isotope record. *Chinese Journal of Ecology*, 2009, 28(11): 2245-2249.
- [30] Wu J L, Lin L, Gagan M K, Schleser G H, Wang S M. Organic matter stable isotope ( $\delta^{13}\text{C}$ ,  $\delta^{15}\text{N}$ ) response to historical eutrophication of Lake Taihu, China. *Hydrological*, 2006, 563: 19-29.
- [31] Sigman D M, Altabet M A, Francois R, McCorkle D C, Gaillard J F. The isotope composition of diatom-bound nitrogen in Southern Ocean sediments. *Paleoceanography*, 1999, 14(2): 118-134.
- [32] Derse E, Knee K L, Wankel S D, Kendall C, Berg C J Jr, Paytan A. Identifying sources of nitrogen to Hanalei Bay, Kauai, utilizing the nitrogen isotope signature of macroalgae. *Environment Science Technology*, 2007, 41(15): 5217-5223.
- [33] Qian J L, Wang S M, Xue B. A method of Quantitative estimate terrigenous organic carbon in lakes research. *Science Bulletin*, 1997, 42(15): 1655-1657.
- [34] Fan C X. Historical environmental of water ecological setting in taihu lake. *Journal of Lake Science*, 1996, 18(4): 297-304.

#### 参考文献:

- [7] 葛晨东, 王颖, Pedersen T F, Slaymake O. 海南岛万泉河口沉积物有机碳、氮同位素的特征及其意义. *第四纪研究*, 2007, 27(5): 845-852.
- [8] 周志华, 李军, 朱兆洲. 龙感湖沉积物碳、氮同位素记录的环境演化. *生态学杂志*, 2007, 26(5): 693-699.
- [12] 黄智华, 薛滨, 逢勇. 太湖水环境演变与流域经济发展关系及趋势. *长江流域资源与环境*, 2006, 15(5): 15-23.
- [13] 林琳, 吴敬禄. 太湖梅梁湾富营养化过程的同位素地球化学证据. *中国科学 D 辑: 地球科学*, 2005, 35(S2): 55-62.
- [14] 吴敬禄, 林琳, 刘建军, 高光. 太湖沉积物碳氮同位素组成特征与环境意义. *海洋地质与第四纪地质*, 2005, 25(2): 25-29.
- [16] 曾海鳌, 吴敬禄. 外源对太湖河口沉积物有机质贡献的同位素示踪. *海洋地质与第四纪地质*, 2009, (1): 24-29.
- [17] 秦伯强, 胡维平, 陈伟民. 太湖水环境演化过程与机理. 北京: 科学出版社, 2004: 19-33.
- [28] 陈立侨, 刘影, 杨再福. 太湖生态系统演变与可持续发展. *华东师范大学学报: 自然科学版*, 2003, 12(4): 99-106.
- [29] 李军, 肖化云, 朱兆洲, 王仕禄, 王美丽. 太湖五里湖富营养化的碳同位素记录. *生态学杂志*, 2009, 28(11): 2245-2249.
- [33] 钱君龙, 王苏民, 薛滨. 湖泊研究中一种定量估算陆源有机碳的方法. *科学通报*, 1997, 42(15): 1655-1657.
- [34] 范成新. 太湖水体生态环境历史演变. *湖泊科学*, 1996, 18(4): 297-304.