

房吉敦,熊永强,吴丰昌,等.典型水库沉积有机质组成特征及其源解析[J].环境科学与技术,2018,41(2):41-46. Fang Jidun, Xiong Yongqiang, Wu Fengchang, et al. Composition and source identification of organic matter in sediments from typical reservoirs, China[J]. Environmental Science & Technology, 2018, 41(2): 41-46.

典型水库沉积有机质组成特征及其源解析

房吉敦¹, 熊永强^{2*}, 吴丰昌³, 杨红军¹, 谢文军¹, 王书平¹, 谢彦¹

(1. 滨州学院山东省黄河三角洲生态环境重点实验室, 山东 滨州 256600; 2. 中国科学院广州地球化学研究所, 有机地球化学国家重点实验室, 广东 广州 510640; 3. 中国环境科学研究院, 环境基准与风险评估国家重点实验室, 北京 100012)

摘要:为研究中国典型水库沉积有机质的组成特征及来源,分别采集密云水库、双塔水库表层沉积物样品,对样品的总有机碳(TOC, g/kg)、总氮(TN, g/kg)、总有机碳同位素($\delta^{13}\text{C}_{\text{org}}$, ‰)、总氮同位素($\delta^{15}\text{N}_{\text{total}}$, ‰)、脂肪烃、脂肪醇和脂肪酸等进行了分析研究。研究表明,脂肪酸是密云水库和双塔水库表层沉积物中可溶性有机质的主要组分(分别占可溶性有机质的85.8%和81.7%),脂肪烃和脂肪醇含量较少。密云水库沉积物中的脂肪烃主要来自陆源的C₃木本植物,双塔水库沉积物中脂肪烃主要来自水体浮游动物。该研究中的沉积物脂肪酸和脂肪醇均表现为水库内源生物源为主要来源特征,水体好氧菌源脂肪酸是双塔水库沉积物脂肪酸的主要组分,而密云水库沉积物脂肪酸更多地表现为水体藻类和厌氧菌源特征。

关键词:沉积物; 总有机碳; 脂肪烃; 脂肪醇; 脂肪酸; 来源

中图分类号:X142 文献标志码:A doi:10.19672/j.cnki.1003-6504.2018.02.007 文章编号:1003-6504(2018)02-0041-06

Composition and Source Identification of Organic Matter in Sediments from Typical Reservoirs

FANG Jidun¹, XIONG Yongqiang^{2*}, WU Fengchang³, YANG Hongjun¹,
XIE Wenjun¹, WANG Shuping¹, XIE Yan¹

(1. Shandong Key Laboratory of Eco-environmental Science for Yellow River Delta, Binzhou University, Binzhou 256600, China; 2. State Key Laboratory of Organic Geochemistry, Guangzhou Institute of Geochemistry, Chinese Academy of Sciences, Guangzhou 510640, China; 3. State Key Laboratory of Environmental Criteria and Risk Assessment, Chinese Research Academy of Environmental Science, Beijing 100012, China)

Abstract: In order to investigate the composition and sources of organic matter in the surface sediments from typical reservoir, China, sediment samples from Reservoir Miyun and Reservoir Shuangta, were collected, and total organic carbon (TOC, g/kg), total nitrogen (TN, g/kg), total organic carbon isotope ($\delta^{13}\text{C}_{\text{org}}$, ‰), total nitrogen isotope ($\delta^{15}\text{N}_{\text{total}}$, ‰), aliphatic hydrocarbon, fatty alcohol and fatty acid were determined. The results indicated that fatty acid was the main component of soluble organic matter in the sediments from Reservoir Miyun and Reservoir Shuangta, accounting for 85.8% and 81.7% of soluble organic matter; the contents of fatty alcohol and aliphatic hydrocarbon were low. The terrigenous C₃ woody plants were the main sources of aliphatic hydrocarbons in the sediment from Reservoir Miyun, and zooplanktons were the main sources of aliphatic hydrocarbons in the sediment from Reservoir Shuangta. The endogenous biology was the main source of aliphatic hydrocarbon and fatty alcohol in the sediment samples from Reservoir Miyun and Reservoir Shuangta, the fatty acid from aquatic aerobic bacteria was the main component of fatty acid in the sediment from Reservoir Shuangta, while the fatty acid in the sediment from Reservoir Miyun was mainly from aquatic alga and anaerobic bacteria.

Key words: sediment; total organic carbon; aliphatic hydrocarbons; alcohols; fatty acids; sources

《环境科学与技术》编辑部:(网址)http://fjks.chinajournal.net.cn(电话)027-87643502(电子信箱)hjkxyjs@vip.126.com

收稿日期:2017-05-09;修回2017-11-10

基金项目:山东省自然科学基金项目(ZR2014DM002);山东省高校科技计划项目(J14LD03);滨州学院科研启动经费项目(2013Y14)

作者简介:房吉敦(1971-),男,讲师,博士,主要从事湖泊污染机理与过程风险评估等方面的研究,(电话)0543-3195886(电子信箱)fangjidun@126.com; *通讯作者,(电话)020-85290744(电子信箱)xiongyq@gig.ac.cn.

水库作为拦洪蓄水和调节水流的水利工程建筑物,具有灌溉、发电、防洪、养鱼和饮用水源等功能。水库沉积物中的脂类生物标志物主要来自水库内生物源、周围流域和入水库河流携带的陆源生物源^[1]。脂类生物标志物可用于重建水库的古环境,它们含有丰富的有机质来源、水体生产率、人类活动对水库生态系统的影响、水库周围流域的气候变化和有机质成岩过程等多方面信息^[2]。水库古环境重建中,不同的生物标志物可以提供不同的信息,某些生物标志物对成岩变化有较好的抵抗作用,在水库古环境重建中能提供更可靠的数据,而易发生成岩变化的生物标志物则可以作为有机质成岩蚀变的指标^[3]。例如,脂肪烃可作为可靠的沉积物有机质来源的指标,而脂肪酸可用作沉积物有机质发生成岩变化的指标^[4]。尽管如此,记录古环境变化信息的特定生物标志物在不同环境背景下也会有所改变,脂肪烃一般被用作最可靠的水库古沉积环境的生物标志物,但脂肪烃的保存也会受到来自人类活动石油烃的影响^[5]。脂肪酸和脂肪醇对成岩变化具有不同的敏感性,导致它们在不同沉积环境中发生成岩蚀变的程度也不同,研究发现缺氧条件下的脂肪酸成岩蚀变程度小于脂肪醇,而有氧条件下脂肪酸发生成岩蚀变的程度大于脂肪醇^[6]。

脂肪烃广泛存在于水库沉积物中, nC_{17} 脂肪烃是藻类和光合菌源脂肪烃的主要组分^[7], nC_{21} 、 nC_{23} 和 nC_{25} 脂肪烃在挺水和沉水等大型水体植物有较高的含量, nC_{27} 、 nC_{29} 和 nC_{31} 等脂肪烃主要来自陆源高等植物^[8]。沉积物有机质溯源的生物标志物中,脂肪烃具有稳定性好降解速率慢的优点,沉积物中不同碳数脂肪烃的含量能较准确地反映沉积物中脂肪烃的来源^[9]。沉积物中脂肪酸具有广泛的来源,浮游植物是不饱和脂肪酸 $C_{18:1w9}$ 主要的来源,而 $iso-C_{15:0}$ 、 $anteiso-C_{15:0}$ 、 $iso-C_{17:0}$ 、 $anteiso-C_{17:0}$ 和 $C_{18:1w7}$ 等脂肪酸主要来自细菌源^[10],异构 $iso-C_{15:0}$ 和反异构 $anteiso-C_{15:0}$ 等脂肪酸主要来自厌氧甲烷菌^[11]。沉积物中不饱和脂肪酸和支链脂肪酸含量及组成可用于重构水库富营养化的历程^[12]。沉积物中的长链脂肪酸($\geq C_{22}$)是陆源植物有机质的主要组分^[13],最近研究发现沉积物中的长链脂肪酸也有少量来源于水库内源的藻类和细菌^[14]。脂肪醇不像脂肪烃和脂肪酸被广泛用于沉积物有机质的溯源,但脂肪醇也包含大量的有机质来源信息, $C_{22}\sim C_{30}$ 的偶数碳脂肪醇主要来自陆源高等植物^[15],生物体微生物降解产生的脂肪醇常以 C_{22} 为主峰^[16], $C_{16}\sim C_{22}$ 脂肪醇主要来自藻类和细菌源^[17]。

密云水库兴建于1958年9月,总库容43.75亿 m^3 ,水面面积188 km^2 ,最大水深43.5 m,流域面积15 788

km^2 ,为华北地区最大的山谷型水库^[18],密云水库是北京市城市供水的主要水源,每年供水近7亿 m^3 ,占全市地表供水量的50%^[19]。双塔水库位于疏勒河中游,安西县城以东48 km 处的乱山子峡口,是新中国成立后甘肃兴建的第一座以灌溉、防洪等综合利用为目的大型水库,水面面积40 km^2 ,最大水深26.8 m,总库容2.4亿 m^3 。本研究拟通过对比研究密云水库和双塔水库表层沉积物中有机质含量及组成特征,探寻密云水库和双塔水库沉积物中有机质的主要来源,探讨人类活动对密云水库和双塔水库水体环境的影响,揭示密云水库和双塔水库流域植被的构成特点对水库沉积物有机质组成的影响。

1 试验

1.1 样品采集和预处理

2014年9月份,使用重力采样器在密云水库(41°23' N, 116°50' E)和双塔水库(39°50' N, 97°36' E)分别采集70 cm左右沉积物柱状样各4根,各沉积物柱采样点相距约50 m,并对沉积物柱状样按1 cm间隔进行分样,将样品装入100 mL离心管,并用封口膜密封,-4 °C以下保存。实验前,将样品冷冻干燥处理,并于玛瑙研钵中磨细,过100目筛。本研究中分别取等量两待研水库的4根沉积物柱状样的表层样品进行混合,以增加实验样品的代表性。

1.2 样品前处理

分别取5.0 g混合好的样品,进行可溶性有机质抽提。采样索氏抽提技术,用甲醇和二氯甲烷(1:9, $V_{CH_3OH}:V_{CH_2Cl_2}$)混合溶剂100 mL对样品抽提72 h,利用铜片脱硫,浓缩抽提液至恒重,得游离态有机物总量。用100 mL 1 mol/L的KOH/MeOH混合溶液在80 °C条件下,对抽提后的残渣皂化12 h,对皂化所得液体过滤处理,用乙醚和正己烷(1:9, $V_{C_2H_{10}O}/V_{C_6H_{14}}$)混合溶液萃取滤液得结合态中性组分,剩余水相用盐酸酸化至pH=1,再用乙醚和正己烷(1:9, $V_{C_2H_{10}O}/V_{C_6H_{14}}$)萃取混合液体得结合态酸性组分。采用30 cm长(填充2/3)硅胶色谱柱对游离态有机物进行组分分离,分别用60 mL正己烷、乙酸乙酯和正己烷的混合液(1:4, $V_{C_6H_{14}}/V_{C_4H_8O_2}$)、甲醇洗脱游离态有机物中的脂肪烃、中性组分和脂肪酸组分。分别用乙酸酐和甲醇对所得游离态和结合态的中性组分和酸性组分进行酯化处理。氘代正二十烷(n -Eicosane-D42)作为内标,对所得有机质各组分进行定量分析。

1.3 仪器分析

1.3.1 脂肪烃、脂肪醇和脂肪酸的分析

采用Finnigan trace GC气相色谱仪对所得有机质

组分进行分析,色谱柱为DB-1MS硅熔融毛细管(60 m×0.32 mm×0.25 m)。色谱柱升温程序:初温80℃,保持5 min后,以3℃/min速度升至290℃,恒温20 min,载气为高纯氦气,流速为1.0 mL/min。色谱-质谱分析条件为:HP6890 II型气相色谱与Platform II型质谱联用仪,电子轰击源(70 eV)为离子源,色谱柱为DB-5硅熔融毛细管柱(30 m×0.25 mm, i.d.×0.25 μm涂层)。无分流进样1 μm,进样口温度为290℃,升温程序:初始温度80℃,保留2 min,4℃/min升至290℃,290℃恒温保持20 min。采用高纯氦气为载气,流速为1.0 mL/min。

1.3.2 总有机质参数的测定

取混合好的样品2.0 g放入小烧杯,加过量浓度为6 mol/L HCl,充分反应24 h除去样品中碳酸盐,然后用去离子水清洗3次。将清洗好的样品置于烘箱内烘干(60℃),并放于干燥器中冷却至恒重。取少量恒重后样品,用锡舟包裹称重后,用元素分析仪CHNS Vario E1 III和Finnigan Delta Plus XL同位素比值质谱对样品进行TOC、TN和 $\delta^{13}\text{C}_{\text{org}}$ 、 $\delta^{15}\text{N}_{\text{total}}$ 等参数的测定。

2 结果和讨论

表1 密云水库和双塔水库水体及沉积物有机质总参数

Table 1 The total parameters of water and sediment lipid in Reservoir Miyun and Reservoir Shuangta

水库名称	TOC/(g·kg ⁻¹)	TN/(g·kg ⁻¹)	C/N	$\delta^{13}\text{C}_{\text{org}}$ /‰	$\delta^{15}\text{N}_{\text{total}}$ /‰	年平均水温/℃	矿化度/(g·L ⁻¹)	年降雨量/mm	pH
密云水库	15.1	1.7	10.6	-25.2	3.2	10.8	0.3	621.1	8.1
双塔水库	5.2	0.7	8.5	-25.5	2.6	8.2	2.0	58.2	8.5

生物标志物,也叫分子化石,是指来源于某一种或某一类生物的特征性有机分子。沉积物生物标志物在沉积或成岩变化过程中可保持碳架结构基本不变^[10]。生物标志物虽然仅占沉积物有机质的很小一部分,但因其来源的专一性,在水库沉积物有机质来源判断及水库生态系统的演变推断等方面具有强的指示作用^[11],常用的沉积物生物标志物主要包括脂肪烃、脂肪醇、脂肪酸等。

2.2.1 脂肪烃

沉积物有机质研究,人们更关注多环芳烃(PAHs)

2.1 沉积物有机质总参数

水库沉积物TOC含量可以反映水库的生产能力,沉积物TOC含量约为沉积物有机质总含量的50%^[20]。密云水库和双塔水库表层沉积物TOC含量分别为15.1和5.2 g/kg,密云水库表层沉积物中有机质含量明显高于双塔水库表层沉积物中的含量。研究表明,藻类源有机质的C/N值范围为4~10,陆源高等植物有机质的C/N值一般高于12^[21],密云水库和双塔水库中表层沉积物有机质的C/N值分别为10.6和8.5。陆源C₃高等植物源有机质的 $\delta^{13}\text{C}$ 值为-34.0‰~-27.0‰,C₄高等植物源有机质的 $\delta^{13}\text{C}$ 值为-20.0‰~-18.0‰,水库内源生物有机质的 $\delta^{13}\text{C}$ 值为-22.0‰~-19.0‰^[7],密云水库和双塔水库表层沉积物有机质的 $\delta^{13}\text{C}_{\text{org}}$ 值分别为-25.2‰和-25.5‰。藻类源有机质的 $\delta^{15}\text{N}$ 平均值约为8.5‰,而陆源高等植物源有机质的 $\delta^{15}\text{N}$ 平均值约为3.0‰^[8,9],密云水库和双塔水库表层沉积物有机质的 $\delta^{15}\text{N}_{\text{total}}$ 值分别为3.2‰和2.6‰。两水库表层沉积物有机质总参数均表现为陆源、内源混合源有机质来源特征,密云水库表层沉积物中陆源有机质含量明显要高于双塔水库表层沉积物中陆源有机质含量。见表1。

2.2 沉积物生物标志物

研究,对脂肪烃的研究较少。相比其它有机质,脂肪烃降解速率更慢,能更准确地保留沉积物有机质来源信息^[20]。密云水库和双塔水库沉积物脂肪烃的碳数范围均为C₁₅~C₃₁,密云水库沉积物脂肪烃呈单峰分布,以nC₂₉为主峰,而双塔水库沉积物脂肪烃呈双峰分布,以植烷(Phytane, Ph)和nC₃₁为主峰(图1)。脂肪烃的 $\text{TAR}_{\text{HC}}=(nC_{27}+nC_{29}+nC_{31})/(nC_{15}+nC_{17}+nC_{19})$ 和 $\text{CPI}_{25-31}=(nC_{25}+nC_{27}+nC_{29}+nC_{31})/(nC_{26}+2nC_{28}+nC_{30})$ 等指标用于脂肪烃来源研究^[5]。高 TAR_{HC} 比值指示沉积物中陆源脂肪烃含量高,反之则指示水库内源型脂肪烃

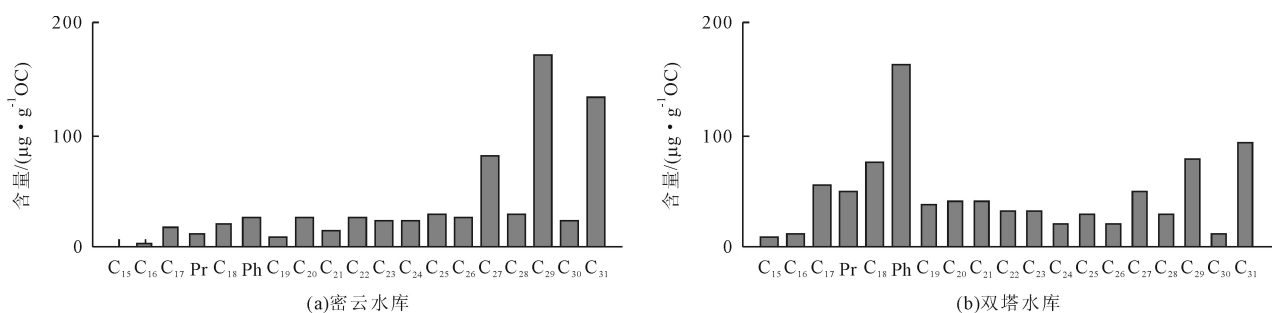


图1 密云水库、双塔水库表层沉积物中脂肪烃分布

Fig.1 Distributions of n-alkanes in surface sediments from Reservoir Miyun and Reservoir Shuangta

含量高;陆源高等植物源的脂肪烃奇偶优势明显($5 < \text{CPI}_{25-31} < 10$)^[12],而水体浮游生物源脂肪烃或石油烃 CPI_{25-31} 值约为 1^[13]。密云水库和双塔水库沉积物脂肪烃的 TAR_{HC} 、 CPI_{25-31} 值分别为 13.1、5.1 和 2.1、3.9,密云水库沉积物脂肪烃中陆源脂肪烃部分含量更高。沉积物中的 $n\text{C}_{27}$ 和 $n\text{C}_{29}$ 含量能代表陆源木本植物脂肪烃的输入量,而 $n\text{C}_{31}$ 指示陆源草本植物脂肪烃的输入量^[20], $(n\text{C}_{27}+n\text{C}_{29})/2n\text{C}_{31}$ 用来指示沉积物中陆源木本植物和草本植物脂肪烃的相对输入比^[14],密云水库和双塔水库沉积物脂肪烃的 $(n\text{C}_{27}+n\text{C}_{29})/2n\text{C}_{31}$ 比值分别为 3.8 和 0.2,密云水库沉积物中含有较高的陆源木本植物脂肪烃,而双塔水库沉积物中陆源草本植物脂肪烃含量较高。水体受到来自人类活动石油烃的污染,相应的沉积物脂肪烃 C_{16} 指标 ($\sum n\text{-Alkanes}/n\text{-C}_{16}$) 一般小于 15,而当该指标值较大 (>50) 时,可推断该对应水体受到人类活动的影响较小^[15]。水体浮游动物能把摄取的植醇转变成 Ph^[16],双塔水库沉积物中明显突出的植烷含量可能预示了双塔水库水体中具有高浓度的浮游动物活动。水体受到来自人类活动石油烃的影响,相应的沉积物有机质的姥鲛烷 (Pristane, Pr) 和植烷的含量会趋于相等, Pr/Ph 比值趋向 1^[17]。密云水库和双塔水库沉积物有机质的 C_{16} 指标、Pr/Ph 比值分别为 210.1、0.5 和 54.3、0.3,表明密云水库和双塔水库受

人类活动石油烃的污染较轻。

2.2.2 脂肪醇

双塔水库沉积物中的脂肪醇含量 ($358.3 \mu\text{g/g OC}$) 明显高于密云水库沉积物中脂肪醇的含量 ($71.9 \mu\text{g/g OC}$),两水库沉积物中游离态脂肪醇和结合态脂肪醇的碳数范围分别为 $\text{C}_{14}\sim\text{C}_{28}$ 和 $\text{C}_{14}\sim\text{C}_{26}$,且游离态和结合态脂肪醇均表现出明显的偶数碳优势, C_{18} 为主峰的单峰分布 (图 2)。沉积物有机质中碳链长度 $< \text{C}_{22}$ 的脂肪醇主要来源于水体藻类和微生物,且藻类源脂肪醇以 C_{16} 和 C_{18} 为主峰碳^[20],水体浮游动物也是 C_{18} 脂肪醇的来源^[20],双塔水库沉积物中游离态脂肪醇 C_{18} 含量明显高于其它碳数的脂肪醇含量,可能主要归因于双塔水库水体中浮游动物含量较高,该特征和双塔水库沉积物中高含量的浮游动物源 Ph 相一致。沉积物有机质中碳链长 $> \text{C}_{22}$ 的脂肪醇主要来源于陆源高等植物的表皮蜡质,且偶数碳优势明显, C_{26} 或 C_{28} 为主峰碳,链长为 C_{22} 和 C_{24} 的脂肪醇主要来自水中大型沉水和漂浮植物,微生物对生物体降解也是 C_{22} 脂肪醇重要来源^[22]。 $\text{TAR}_{\text{AK}} = (\text{C}_{24} + \text{C}_{26} + \text{C}_{28}) / (\text{C}_{14} + \text{C}_{16} + \text{C}_{18})$ 能评估水库沉积物中陆源和内源脂肪醇的相对贡献,密云水库和双塔水库沉积物游离态脂肪醇、化合态脂肪醇的 TAR_{AK} 比率分别是 0.71、0.06 和 0.42、0.11,两水库沉积物中游离态和结合态脂肪醇都主要来自水库内源生物。

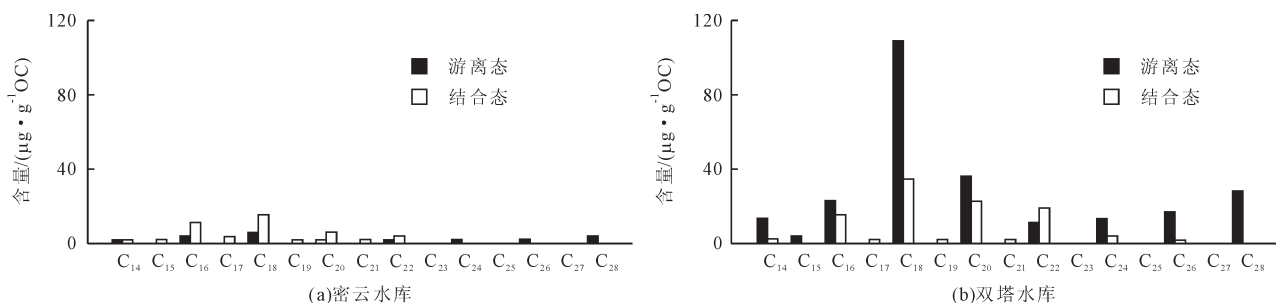


图2 密云水库、双塔水库表层沉积物中脂肪醇分布
Fig.2 The distributions of alkanols in the surface sediments from Reservoir Miyun and Reservoir Shuangta

2.2.3 脂肪酸

脂肪酸是生物源类脂物的重要组成部分,脂肪酸单体一般有其特定的生物源,可用来示踪沉积物脂肪酸的来源及成岩变化过程。密云水库和双塔水库沉积物脂肪酸分别占可溶性有机质总量的 85.8% 和 81.7%,游离态和结合态脂肪酸的碳数范围分别为 $\text{C}_{14}\sim\text{C}_{28}$ 和 $\text{C}_{12}\sim\text{C}_{24}$ (图 3)。沉积物中碳数范围为 $\text{C}_{14}\sim\text{C}_{20}$ 的脂肪酸主要来自水体藻类和浮游生物, $\text{C}_{16:0}$ 脂肪酸为主峰^[23],且支链和不饱和脂肪酸含量较高, $\text{C}_{22:0}\sim\text{C}_{34:0}$ 长链饱和脂肪酸主要来自陆源高等植物^[22]。指标 $\text{TAR}_{\text{FA}} = (\text{C}_{24:0} + \text{C}_{26:0} + \text{C}_{28:0}) / (\text{C}_{14:0} + \text{C}_{16:0} + \text{C}_{18:0})$ 能用来评估沉积物脂肪中陆源和水库内源的相对贡献,高比值反映高的陆源脂肪酸输入,相反则指示高的水库内源脂

肪酸输入^[24]。密云水库和双塔水库沉积物所含游离、结合态脂肪酸的 TAR_{FA} 比率分别为 0.12、0.01 和 0.01、0.01,表明两水库沉积物中的游离态和结合态脂肪酸都主要来自水库内源生物。 $(\text{iso-C}_{15:0} + \text{anteiso-C}_{15:0}) / \text{C}_{15:0}$ 能反映沉积物中细菌的数量及活动情况^[25],密云水库和双塔水库沉积物中游离态脂肪酸、结合态脂肪酸的指标值分别为 2.4、5.1 和 1.6、4.1,密云水库和双塔水库沉积物的结合态脂肪酸表现出更多的细菌源特征。Rajendran 等发现单不饱和脂肪酸 (MUFA) 是好氧菌源有机酸的主要组分 (约占 60.5%),而支链脂肪酸 (BRFA) 是厌氧菌、硫酸盐还原菌和革兰氏阳性菌源脂肪酸的主要组分 (约占 74.0%)^[26]。好氧菌源单不饱和脂肪酸、支链脂肪酸和饱和脂肪酸 (SSFA) 含

量比 MUFA/BRFA、MUFA/SSFA 和 BRFA/SSFA 分别为 9.3、1.8、0.2,而这些比率值在厌氧菌、硫酸盐还原菌和革兰氏阳性细菌中分别为 0.2、1.4 和 6.8^[27]。

本研究检测的沉积物样品中,游离态脂肪酸仅检测到支链脂肪酸和饱和脂肪酸,单不饱和脂肪酸含量均低于检测线,而在结合态脂肪酸检测中,单不饱和脂肪酸、支链脂肪酸和饱和脂肪酸都检测到存在。密云水库和双塔水库沉积物中游离态脂肪酸的 BRFA/SSFA 比率值均是 0.1,而结合态脂肪酸的

MUFA/BRFA、MUFA/SSFA、BRFA/SSFA 比率值分别是 0.3、0.2、0.6 和 3.6、0.7、0.2,研究表明密云水库和双塔水库沉积物中游离态脂肪酸主要来自水体藻类,而双塔水库沉积物中结合态脂肪酸主要表现为好氧菌源,密云水库沉积物中结合态脂肪酸表现为厌氧菌为主要来源特征。

3 结论

通过对比分析密云水库和双塔水库沉积物有机

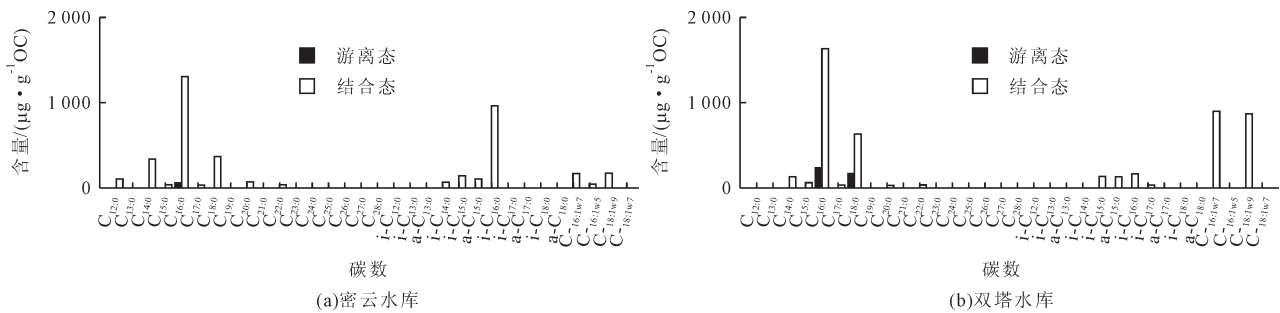


图3 密云水库、双塔水库表层沉积物中脂肪酸分布
Fig.3 The distributions of fatty acids in the surface sediments from Reservoir Miyun and Reservoir Shuangta

质总参数及脂肪烃、脂肪酸和脂肪醇等生物标志物,得到如下主要结论。

(1)密云水库沉积物有机质含量明显高于双塔水库沉积物有机质含量,脂肪酸为有机质的主要组分。密云水库和双塔水库沉积物中脂肪酸和脂肪醇都主要来源于水库内源生物源,两研究水库沉积物中的游离态脂肪酸均表现为藻类源特征,而密云水库沉积物中的结合态脂肪酸主要来自厌氧菌源,双塔水库沉积物中的结合态脂肪酸主要来自好氧菌源。

(2)密云水库和双塔水库沉积物脂肪烃受人类活动石油烃的影响较轻,密云水库沉积物脂肪烃主要来自陆源C₃木本植物源,而双塔水库沉积物脂肪烃主要来自水体浮游动物,沉积物脂肪烃来源特征符合密云水库作为饮用水源地,而双塔水库作为灌溉水源地的功能特征。

(3)密云水库和双塔水库沉积物中的脂肪烃、脂肪醇和脂肪酸等生物标志物表现出不同的来源特征,主要归因于两水库具有不同的周围流域环境、营养盐含量、水温、矿化度、年降雨量和pH值等,导致水体中的微生物数量和群落不同,造成了沉积物有机质降解速率和降解产生的二次有机质数量的不同,改变了沉积物有机质的初始来源特征。

[参考文献]

[1] Meyers P A, Ishiwatari R. Lacustrine organic geochemistry: an overview of indicators of organic-matter sources and dia-

genesis in lake-sediments[J]. *Organic Geochemistry*, 1993, 20:867-900.

- [2] Muri G, Wakeham S G, Pease T K, et al. Evaluation of lipid biomarkers as indicators of changes in organic matter delivery to sediments from Lake Planina, a remote mountain lake in NW Slovenia[J]. *Organic Geochemistry*, 2004, 35:1083-1093.
- [3] Wang Y H, Yang H, Zhang J X, et al. Biomarker and stable carbon isotopic signatures for 100-200 year sediment record in the Chaihe catchment in southwest China[J]. *Science of the Total Environment*, 2015,502:266-275.
- [4] Apostolopoulou M V, Monteyne E, Krikonis K, et al. n-Alkanes and stable C, N isotopic compositions as identifiers of organic matter sources in *Posidonia oceanica* meadows of Alexandroupolis Gulf, NE Greece[J]. *Marine Pollution Bulletin*, 2015, 99:346-355.
- [5] Pond K L, Huang Y S, Wang Y, et al. Hydrogen isotopic composition of individual n-alkanes as an intrinsic tracer for bioremediation and source identification of petroleum contamination[J]. *Environmental Science & Technology*, 2002, 36:724-728.
- [6] Hoefs M J L, Rijpstra W I C, Damsté J S S. The influence of oxic degradation on the sedimentary biomarker record I: evidence from Madeira Abyssal Plain turbidities[J]. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 2002, 66:2719-2735.
- [7] Fontugne M R, Jouanneau J M. Modulation of the particulate organic carbon flux to the ocean by a macrotidal estuary: evidence from measurements of carbon isotopes in organic matter from the Gironde system[J]. *Estuarine, Coastal*

- and Shelf Science, 1987, 24(3):377-387.
- [8] Chen F X, Fang N F, Wang Y X, et al. Biomarkers in sedimentary sequences: indicators to track sediment sources over decadal time scales[J]. *Geomorphology*, 2017, 278: 1-11.
- [9] Chen F X, Fang N F, Shi Z H. Using biomarkers as fingerprint properties to identify sediment sources in a small catchment[J]. *Science of the Total Environment*, 2016, 557/558: 123-133.
- [10] Peters K E, Walters C C, Moldowan J M. *The Biomarker Guide*[M]. 2nd ed. Cambridge: Cambridge University Press, 2005:1-1155.
- [11] Supriyo K D, Routh J, Roychoudhury A N. Biomarker evidence of macrophyte and plankton community changes in Zeekoevlei, a shallow lake in South Africa[J]. *Journal of Paleolimnology*, 2009, 41:507-521.
- [12] Rieley G, Collier R J, Jones D M, et al. Sources of sedimentary lipids deduced from stable carbon-isotope analyses of individual compounds[J]. *Nature*, 1991, 352:425-427.
- [13] Kennicutt M C II, Barker C, Brooks J M, et al. Selected organic matter source indicators in the Orinoco, Nile and Changjiang deltas[J]. *Organic Geochemistry*, 1987, 11: 41-51.
- [14] Xiong Y Q, Wu F C, Fang J D, et al. Organic geochemical record of environmental changes in Lake Dianchi, China[J]. *Journal of Paleolimnology*, 2010, 44:217-231.
- [15] Colombo J C, Pelletier E, Brochu C, et al. Determination of hydrocarbon sources using n-alkanes and polyaromatic hydrocarbon distribution indices- case study: Rio de La Plata Estuary, Argentina[J]. *Environmental Science & Technology*, 1989, 23:888-894.
- [16] Zhang S Y, Li S L, Dong H P, et al. An analysis of organic matter sources for surface sediments in the central South Yellow Sea, China: evidence based on macroelements and n-alkanes[J]. *Marine Pollution Bulletin*, 2014, 88:389-397.
- [17] Hockun K, Mollenhauer G, Ho S L, et al. Using distributions and stable isotopes of n-alkanes to disentangle organic matter contributions to sediments of Laguna Potrok Aike, Argentina[J]. *Organic Geochemistry*, 2016, 102:110-119.
- [18] 杜桂森, 刘晓端, 刘霞, 等. 密云水库水体营养状态分析[J]. *水生生物学报*, 2004, 28 (2):192-196.
- Du Guisen, Liu Xiaoduan, Liu Xia, et al. Analysis on trophic state of water body in Miyun Reservoir[J]. *Acta Hydrobiologica Sinica*, 2004, 28 (2):192-196.
- [19] 刘晓端, 葛晓立, 杜桂森, 等. 密云水库内湖富营养化现状分析[J]. *湖泊科学*, 2002, 14 (4):331-335.
- Liu Xiaoduan, Ge Xiaoli, Du Guisen, et al. Analysis on eutrophication status of inner lake in Miyun Reservoir[J]. *Journal of Lake Science*, 2002, 14 (4):331-335.
- [20] Meyers P A. Applications of organic geochemistry to paleolimnological reconstructions: a summary of examples from the Laurentian Great Lakes[J]. *Organic Geochemistry*, 2003, 34 (2):261-289.
- [21] Meyers P A. Preservation of source identification of sedimentary organic matter during and after deposition[J]. *Chemical Geology*, 1994, 144:289-302.
- [22] Heras X D L, Grimalt J O, Albaigés J, et al. Origin and diagenesis of the organic matter in Miocene freshwater lacustrine phosphates (Cerdanya Basin, Eastern Pyrenees)[J]. *Organic Geochemistry*, 1989, 14(6):667-677.
- [23] Liu H, Liu W G. n-alkane distributions and concentrations in algae, submerged plants and terrestrial plants from the Qinghai-Tibetan Plateau[J]. *Organic Geochemistry*, 2016, 99:10-22.
- [24] Ho E S, Meyers P A. Variability of early diagenesis in lake sediments: evidence from the sedimentary geolipid record in an isolated tarn[J]. *Chemical Geology*, 1994, 112:309-324.
- [25] Wakeham S G, Beier J A. Fatty acid and sterol biomarkers as indicators of particulate matter source and alteration processes in the Black Sea[J]. *Deep-Sea Research*, 1991, 38: S943-S968.
- [26] Rajendran N, Matsuda O, Rajendran R, et al. Comparative description of microbial community structure in surface sediments of eutrophic bays[J]. *Marine Pollution Bulletin*, 1997, 34:26-33.
- [27] Ishiwatari R, Yamamoto S, Shinovama S. Lignin and fatty acid records in Lake Baikal sediments over the last 130 kyr: a comparison with pollen records[J]. *Organic Geochemistry*, 2006, 37:1787-1802.