维普资讯 http://www.cqvip.com

第10卷 第4期
1998年12月

湖 泊 科 学
JOURNAL OF LAKE SCIENCES

Vol. 10, No. 4
Dec., 1998

太湖梅梁湾沉积物—水界面氮迁移特征初步研究*

杨龙元 蔡启铭 秦伯强 郑循华

(1:中国科学院南京地理与湖泊研究所,南京 210008;2:中国科学院大气物理研究所,北京 100029)

提 要 用乙炔为抑制剂,气相色谱法测定了1997年夏季太湖梅梁湾口沉积物—水界面的反硝化率和N_2O的自然排放率. 太湖梅梁湾沉积物的反硝化率为1.4—5.6μmol N_2/(m^2·h), N_2O的自排放率为0.08—0.66μmol N_2/(m^2·h). 探讨了沉积物—水界面NO_3^-的交换动态. 指出沉积物内硝化—反硝化作用是太湖湖泊生态系统氮循环过程中一个重要的环节. 在湖泊水土界面氮交换中,沉积物具有吸收水体中NO_3^-的性能.

关键词 水土界面 氮迁移 太湖梅梁湾 沉积物

分类号 P342

C_2H_2能够抑制N_2O还原为N_2的反应. SΦrensen[1]等利用此原理提出了一个简单灵敏的测定沉积物反硝化作用大小的方法,称之为乙炔抑制技术(Acetylene inhibition technique). 在沉积物岩芯样品中注入溶解的C_2H_2气体,用配备电子捕获监测器(ECD)的气相色谱仪测定水土气三相相互作用微环境中积累的N_2O气体,便可计算出沉积物的反硝化率. 本法具有快速、灵敏、价格低廉等优点,能够同时测定系统中NO_3^-的还原率,在尽量保持沉积环境的原位状态下研究水土界面NO_3^-的分布廓线,使物理扰动减至最小水平,获得比较真实的结果. 因此,乙炔抑制法在湖泊、海洋生态系统水土界面氮迁移动态研究中得到了广泛的应用[2-3].

本文采用"微环境"(Microcosm)实验室模拟技术,用C_2H_2为抑制剂,气相色谱仪测定N_2O浓度,对1997年夏季6、7、8三个月太湖梅梁湾沉积物样品进行分析测定,计算了太湖梅梁湾湾口沉积物—水界面沉积物的反硝化率和温室气体N_2O的自然排放率. 初步探讨了沉积物—水界面氮迁移交换动态. 为太湖水体生态系统氮循环研究提供了实测资料.

1 方法

1.1 采样

1997年6月5日、7月21日和8月27日,用彼得森采泥器在太湖梅梁湾口分别采集沉积物表层样品5—10 kg. 采样点位置见图1. 同时采集湖水样品约5 L. 记录采样点水深、水温和透明度等环境参数. 沉积物和湖水样品在中国科学院南京地理与湖泊研究所太湖水体生态系统研究站(简称"太湖站")进行现场处理后,立即送中国科学院大气物理研究所设置在苏州市吴县农业科学研究所(简称"吴县农科所")的微量气体观测站[4]进行"微环境"培养,测定培养

* 中国科学院"九五"重点项目(KZ952—J1—212)和(KZ951—B1—205—02)联合资助项目.
收稿日期:1998—08—15. 杨龙元,男,1945年生,副研究员.

维普资讯 http://www.cqvip.com

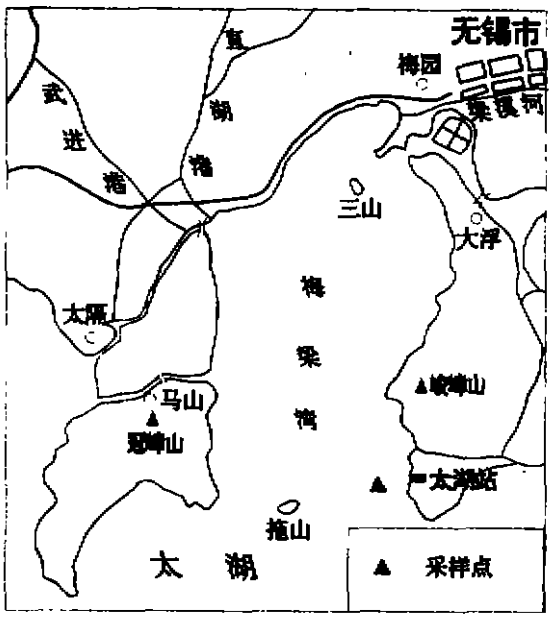

图1 采样点的位置

Fig. 1 The location of sampling site

瓶气室中 N_2O 的浓度. 实验中使用的 N_2O 自动观测系统主机为美国 Varain 3400 气相色谱仪，工作参数为：柱温，70 ℃；检测器温度，370 ℃；载气，高纯 N_2；载气流速，20 cm^3/min.

1.2 培养和测定

在太湖站实验室内，用滤纸过滤除去湖水样品中的大颗粒悬移质，放入冰箱中备用；混匀沉积物样品，除去贝壳，石块，枯枝等异物后，随机分取 3 份，每份约 0.5 kg，分别移入内径为 Φ80 mm，体积为 750 mL 自制玻璃培养瓶内. 加入除去悬移质的湖水，用小气泵向沉积物上复水层中导入空气，8 — 12h 后，当水土界面出现 1—2 mm 棕黄色薄层时，培养瓶内基本恢复湖泊水土界面环境状态. 立即送吴县农科所进行 N_2O 浓度的测定. 处理后的样品从太湖站运至吴县农科所约需 3h. 培养瓶的结构见文献[5]，本研究中进行了适当简化. 培养瓶由市售直桶型蜂蜜瓶构成，瓶盖中央钻孔，安装一个色谱垫密封的气体采样口. 使用前需经过 N_2O 标准气体进行的气密性检验.

样品运抵吴县农科所实验室后，向培养瓶上覆水层中通入空气 1h，减小运输途中扰动的影响. 随机向二只培养瓶上覆水层中通入钢瓶 C_2H_2 气体 10 min；另一瓶不加 C_2H_2 气体，作为 C_2H_2 抑制效果的对照处理，并用来测定 N_2O 自然排放率. 用医用注射器从三个培养瓶中各吸出 200 mL 上覆水，盖紧培养瓶盖，置暗处静态培养 8 — 10 h. 培养温度为 28℃. 抽取气室中气体样品 1 mL，注入气袋（大连光明化工厂产品），用高纯 N_2 稀释至 60 mL. 抽取 5 mL 稀释后的气体样品注入气相色谱仪（定量进样管体积为 1 mL），按峰面积法测定 N_2O 气体浓度. 气体样品分析结束后，取上覆水样品 20 mL，冷冻，运回太湖站用荷兰 Sunplus System 连续流动分析仪测定 NO_3^- 和 NH_4^+ 等离子浓度.

更换培养瓶内上覆水，通入空气约 1h，恢复沉积物—水界面环境条件. 重复上述操作，进行下一次测定. 连续测定 4—5 次后，结束实验.

1.3 计算

根据通量定义和理想气体方程式，N_2O 通量可用下式计算：

$$F = \left(\frac{u}{V_0} \cdot \frac{T_0}{T}\right)\frac{V}{A} \cdot \frac{C_2 - C_1}{t_2 - t_1} \tag{1}$$

式中，F 为 N_2O 通量（μmol $N_2O/(m^2 \cdot h)$），u 为 N_2O 克分子量，V_0 为标准状态克分子体积，T_0 为绝对温度（K），T 为培养温度（K），V 为气室体积（L），A 为培养瓶内沉积物横截面积（m^2），C_1 为 N_2O 在大气层中的本底浓度（μg/g），C_2 为培养结束时气室中 N_2O 浓度（μg/g），t_1、t_2 为培养开始和结束时间（h）.

气室体积为 0.2 L，培养温度为 28.0 ℃，培养瓶内径为 Φ80 mm，N_2O 在大气层中的本

维普资讯 http://www.cqvip.com

底浓度为 0.31 μg/g[6]时，(1)式可简化为：

$$F = 1.61(C_2 - 0.31)/(t_2 - t_1)$$

2 结果和讨论

2.1 沉积物反硝化率

氮在湖泊沉积物－水界面间的迁移和交换是一个十分复杂的生物化学过程. 硝化和反硝化作用是沉积物－水界面氮迁移和交换的主要形式. 在富氧条件下，沉积物库中的有机氮化合物经矿化作用，生成 NO_3^-、NH_4^+ 等无机离子扩散进入上覆水体中，提高水体 N 的营养水平；另一方面，上复水体中的 NO_3^- 也能反向扩散进入沉积物的厌氧层中，在反硝化细菌的作用下，还原产生 N_2O 及 N_2 等气体物质，散逸进入大气库中，退出水体生态系统氮循环，降低水体 N 的污染负荷. Seitzinger[7]等认为，通过沉积物厌氧层内的反硝化作用，以 N_2O、N_2 等无机气体等形态去除的内源性 N 负荷，可达湖泊外源性氮输入总量的一半以上. 因此，沉积物反硝化率的测定对研究湖泊生态系统氮循环有着重要意义. 1997 年夏季，太湖梅梁湾湾口沉积物反硝化率为 1.4－5.6μmol $N_2/(m^2 \cdot h)$之间(表 1)，与美国 Okeechobee 湖泊的测定值相接近. 但比密西根、休伦等湖泊沉积物反硝化率约小一个数量级(表 2).

表 1　1997 年夏季太湖梅梁湾沉积物反硝化率

Tab. 1　The denitrification rates of Meiliang Bay, Taihu Lake, in the summer of 1997

日　期	培养时间 Δt (h)	A 瓶		B 瓶		总平均值
		N_2O 浓度(μg/g)	F[μmol/(m²·h)]	N_2O 浓度(μg/g)	F[μmol/(m²·h)]	
6 月 7 日	8.0	22.93	4.55	23.63	4.69	
6 月 8 日	8.0	17.81	3.52	20.42	4.05	
6 月 8 日	8.0	19.66	3.89	20.87	4.14	
6 月 9 日	11.7	19.88	2.69	24.87	3.38	
6 月 9 日	11.3	21.45	3.01	19.61	2.75	
平均值			3.53		3.80	3.67±0.23
7 月 29 日	8.0	22.76	4.52	12.76	2.51	
7 月 29 日	8.3	28.71	5.51	19.41	3.7	
7 月 30 日	10.3	53.03	8.24	52.28	8.12	
7 月 30 日	8.0	61.13	12.24	35.65	7.11	
7 月 30 日	14.3	17.29	1.91	17.92	1.98	
平均值			6.48		4.68	5.58±1.06
8 月 29 日	6.2	7.24	1.8	6.99	1.73	
8 月 30 日	8.0	4.89	0.92	6.82	1.31	
8 月 30 日	9.8	4.94	0.76	5.17	0.8	
8 月 31 日	10.0	12.49	1.96	8.55	1.33	
8 月 31 日	10.5	12.6	1.88	12.21	1.82	
平均值			1.46		1.40	1.43±0.15

太湖梅梁湾沉积物反硝化率数值较小可能与实验室模拟环境条件与湖泊沉积物环境因子间的差异有关. 如受实验条件的限制，“微环境”恒温培养只能在静态条件下进行，使沉积物反硝化率的测定值偏低. 另一方面，太湖面积为 2388 km²，平均深度 1.98 m，是我国典型的大型

维普资讯 http://www.cqvip.com

淡水湖泊. 湖底沉积物受风浪的侵蚀强烈,水体中溶解氧丰足,沉积物有机碳含量不高,平均在4－6 mg/g 之间[12]. 沉积物相对较低的有机碳含量使水土界面反硝化作用的强度变小,反硝化率数值降低. 这也许是由太湖自然地理环境特征所决定的.

1997 年夏季,太湖梅梁湾沉积物反硝化率的月变化呈不对称峰型. 最高值出现在 7 月,为 5.58μmol/(m²·h);最低值出现在 8 月,为 1.43μmol/(m²·h). 而 6 月份测定的反硝化率数值居于两者之间. 太湖梅梁湾沉积物反硝化率月变化差异的原因有待于作进一步研究.

表 2 湖泊沉积物反硝化率和 N_2O 自然排放率比较

Tab. 2 The comparison between lake sediment denitrification and N_2O natural emission rates

名 称	深度(m)	F_{N_2O}(μmol/(m²·h))	测定方法	参考文献
反硝化率				
太湖梅梁湾	2.0	1.4 － 5.6	C_2H_2 抑制法	本文
Lake Okeechobee, USA	2.7	2.0 － 5.3	C_2H_2 抑制法	文献[2]
Nartagansett Bay		50	N_2 生成法	文献 [8]
密西根湖	45－100	14 － 25.5	N_2 生成法	文献 [4]
伊利湖 OGW 湾		40 － 428	N_2 生成法	文献 [9]
休伦湖 Saginaw 湾	3.5－5.7	16 － 40	N_2 生成法	文献 [10]
N_2O 自然排放率				
太湖梅梁湾	2.0	0.08 － 0.56	C_2H_2 抑制法	本文
Lake Baldegg	66	0.17 － 1.0	孔隙水剖线法	文献 [11]
Nartagansett Bay		0.2	N_2 生成法	文献 [8]

2.2 氮汇

与磷循环不同,氮在水体生态系统内的循环是开放循环. 由各种外污染源进入湖泊水体内的氮负荷,能够藉助发生在沉积物－水界面的硝化和反硝化作用,还原为 N_2O、N_2,退出水体生态系统. 湖泊水土界面氮汇的强度可由沉积物反硝化率大小进行判断. 太湖是大型浅水湖泊,绝大部分湖底复盖的现代沉积物(俗称"软底")厚度只有 20－30 cm[12]. 由于水土界面发生的硝化和反硝化反应是垂向分层进行的,硝化和反硝化反应只在沉积物顶部厚度仅几厘米的薄层内发生[10]. 因此,湖泊沉积物层厚度的不均匀性对反硝化率的影响不大,反硝化反应强度主要与水土界面微环境条件有关. 如果忽略太湖沉积物反硝化率的空间分布差异,可将本文的测定结果简单地推广至整个太湖,估算太湖水土界面氮汇强度的大致数量级. 当太湖面积按 2388 km² 计算时,则每年由水土界面排放进入大气层的 N 可达 0.84×10^9－3.27×10^9 g,约合 840－3270 t 氮. 孙顺才等[13]曾统计计算了进、出太湖的营养元素产生量,得出每年输入太湖的外源性 N 产生量的平均值为 41311.7 t,N 的净入湖量为 3105 t. 据此可计算求出水土界面反硝化作用清除的氮约占太湖外源性输入氮的 2.03%－7.92%;是年平均净入湖氮总量的 27.0%－105.3%. 数据表明,发生在沉积物－水界面的反硝化作用是太湖水体生态系统的一个重要的环节,对研究营养元素氮的动力学有重要意义.

美国 Okeechobee[2]湖和瑞士的 Baldegg[11]湖由反硝化作用清除的氮比值分别为 9%－23%和 0.2 %,太湖由水土界面的硝化、反硝化作用清除的 N 负荷比率略低于美国 Okeechobee 湖,但比瑞士的 Baldegg 湖要高得多. 太湖和 Okeechobee 湖同属于大型浅水湖泊,氮的清除率相似是与大型浅水湖泊的环境特征相吻合的.

维普资讯 http://www.cqvip.com

2.3 N_2O 自然排放率

N_2O 是一种温室气体，在全球变化研究中受到广泛关注. 在自然条件下，水—土界面的硝化和反硝化作用均能产生 N_2O 气体. 但文献中有关湖泊 N_2O 排放强度的报道不多. 用乙炔抑制技术测定沉积物岩芯样品的反硝化率时，由于对照培养瓶内无 C_2H_2 存在，不能抑制 N_2O 还原为 N_2 的过程，因此，培养瓶气室中积累的 N_2O 气体是由水土界面的自然排放所致. 计算测定的 N_2O 通量即为 N_2O 的自然排放率. 太湖梅梁湾 N_2O 的自然排放率见表 3. 由表 3 可知，1997 年夏季，太湖梅梁湾 N_2O 的自然排放率波动在 0.08—0.66 μmol/(m² · h) 之间，约占沉积物反硝化率的 13%. 本文的测定结果与 Baldegg 湖和 Narragansett 湾的 N_2O 自然排放率数值在同一数量级范围内(表 2). 实验表明，湖泊水—土界面是温室气体 N_2O 的一个自然排放源，在全球变化研究中的生态效应应该受到足够重视.

表 3　1997 年夏季太湖梅梁湾 N_2O 自然排放率

Tab. 3　The N_2O natural emission rates of Meiliang Bay, Taihu Lake, in the summer of 1997

日　期	培养时间 Δt(h)	N_2O 浓度(μg/g)	N_2O 自然排放率(μmol/(m² · h))
6 月 7 日	8.0	5.34	1.01
6 月 8 日	8.0	4.91	0.93
6 月 8 日	8.0	5.97	1.14
6 月 9 日	11.7	1.10	0.15
6 月 9 日	11.3	0.95	0.09
平均值			0.66±0.22
7 月 28 日	6.2	1.04	0.19
7 月 29 日	8.0	1.25	0.19
7 月 29 日	10.3	0.66	0.05
7 月 30 日	8.0	0.54	0.05
平均值			0.12±0.04
8 月 28 日	4.7	0.39	0.03
8 月 29 日	6.2	0.99	0.18
8 月 30 日	8.0	0.45	0.03
平均值			0.08±0.05

2.4 NO_3^- 的交换动态

范成新等[14]在研究日本霞浦湖水土界面营养元素交换动态时发现，沉积物对水体中的 NO_3^- 呈现"负释放"性能. 作者在实验中也观测到类似的现象. 在"微环境"模拟测定过程中，随测定次数的增加和反应时间的延长，上覆水体中 NO_3^- 离子浓度不断下降(图 2). 由图 2 可见，NO_3^- 浓度相对比值均有明显的随测定次数的增加而降低的趋势. 这一现象是由于硝化—反硝化耦合反应不断消耗沉积物层内的 NO_3^- 离子和有机氮化合物，使水土界面 NO_3^- 的迁移能力改变所造成. 在培养测定的开始阶段，"微环境"模拟系统中 DO 充足，硝化作用占主导地位，培养瓶上覆水层 NO_3^- 的浓度较高；随测定次数的增加和反应时间的延长，沉积物厌氧层内 NO_3^- 离子被消耗的数量增多，加大了上覆水与沉积物之间的 NO_3^- 浓度梯度，使较多的 NO_3^- 离子能从上覆水体扩散进入沉积物厌氧层中，NO_3^- 呈现"负释放"，宏观表现为上覆水体中 NO_3^- 浓度随测定次数的增加而不断降低，NO_3^- 从水体中被"吸入"沉积物内.

维普资讯 http://www.cqvip.com

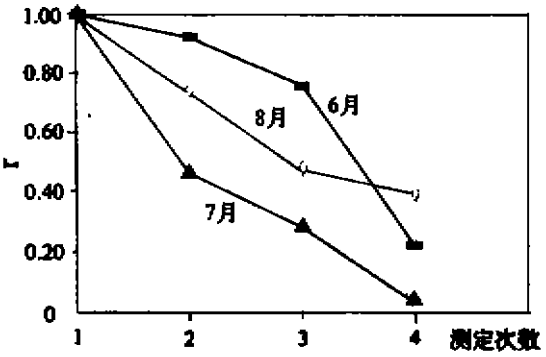

图 2 上覆水 NO_3^- 浓度比值随测定次数的变化关系，$r = C_n\Delta t_1/(C_1\Delta t_n)$

Fig. 2 The relationship between the concentration of NO_3^- in overlaying water and measurement times

在特定条件下，沉积物能吸收上覆水体中 NO_3^- 离子的性能对维持水体生态系统营养水平有一定的调节意义. 当水体中 NO_3^- 浓度增加时，沉积物厌氧层内的反硝化作用加剧，使得有较多的 NO_3^- 离子被"吸入"沉积物层的厌氧层中，水体 NO_3^- 浓度下降，以维持原先的 NO_3^- 浓度水平；反之，当上复水体中 NO_3^- 浓度变低时，沉积物厌氧层内的反硝化作用减缓，上覆水中 NO_3^- 离子扩散进入沉积物中的数量减少，使 NO_3^- 离子在上复水体内有较多的积累，以维持 NO_3^- 浓度在较高的数值上. 湖泊沉积物水土界面 NO_3^- 离子的这一迁移特性，使沉积物－上复水系统 NO_3^- 浓度具有一定的抵御外界因素改变的能力.

3 结论

(1) 用乙炔抑制法测定了 1997 年夏季太湖梅梁湾湾口沉积物反硝化率和温室气体 N_2O 的自然排放率. 沉积物反硝化率为 1.4－5.6μmol/(m²·h). N_2O 的自然排放率为 0.08－0.66μmol N_2O/(m²·h).

(2) 太湖沉积物－水界面系统是一个氮汇. 每年可去除水土界面 837－3270 t 氮，约占太湖年入湖氮产生量的 2%－8%.

(3) 在沉积物－上覆水"微环境"恒温培养过程中，沉积物具有能够吸收上覆水体中的 NO_3^- 离子的性能.

致谢 中国科学院太湖湖泊生态系统研究站和江苏省吴县农业科学研究所为本研究提供了实验场地和仪器设备条件；中国科学院大气物理研究所沈壬兴先生、苏州市吴县农业科学研究所金继生、李老土等先生给以了热情指导和帮助，在此一并致谢.

参 考 文 献

1 SØrensen J. Denitrification rates in a marine sediment as measured by the acetylene inhibition technique. *Appl Environ Microbiol*, 1978, **36**: 139－143

2 Messer J, P I Brezonik. Comparison of denitrification rate estimation techniques in a large, shallow lake. *Water Res*, 1983, **17**(6): 631－640

3 Kaspar H F. Denitrification in marine sediment: Measurement of capacity and estimate of in situ rate. *Appl Environ Microbiol*, 1982, **43**: 522－527

4 王耀思，郑循华等. 北京大气中 N_2O 浓度观测. 资源生态环境网络研究动态, 1994, **5**: 30－34

5 Gadner W S, *et al*. Nitrogen mineralization and denitrification in Lake Michigan sediments. *Limnol Oceanogr*, 1987, **32**: 1226－1238

6 IPCC (Intergovernmental Panel on Climate Change). Climate Change. Cambridge, 1990

维普资讯 http://www.cqvip.com

7 Seitzinger S P. Denitrification in freshwater and coastal marine ecological and geochamical significance. *Limnol Oceanogr*, 1988, **33**: 702—724

8 Seitzinger S, *et al*. Denitrification and N_2O production in near—shore marine sediments. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 1980, **44**: 1853—1860

9 Tomaszek J A, *et al*. Denitrification in sediments of a Lake Erie coastal wetland (Old Woman Creek, Huron, Ohio, USA). *J Great Lakes Res*, 1996, **23**(4): 403—415

10 杨龙元,Gardner W S. 休伦湖 Saginaw 湾沉积物反硝化率的测定及其时空特征. 湖泊科学, 1998,**10**(3):32—38

11 Mengis M, *et al*. Nitrous oxide emissions to the atmosphere from an artificially oxygenated lake. *Limnol Oceanogr*, 1996,**41**(3): 548—553

12 William Y B Chang 等. 从沉积物特征谈太湖的演变. 湖泊科学,1994, **6**(3): 217—226

13 孙顺才等主编. 太湖. 北京: 海洋出版社,1993. 260

14 范成新,相崎守弘. 好氧和厌氧条件对蠡湖沉积物—水界面氮磷交换的影响. 湖泊科学,1997, **9**(4): 337—342

Characteristics of Nitrogen Removing Between Sediment-Water Interface in Meiliang Bay, Taihu Lake

Yang Longyuan[1]　Cai Qiming[1]　Qin Boqiang[1]　Zheng Xunhua[2]

(1: *Nanjing Institute of Geography and Limnology, Chinese Academy of Sciences, Nanjing* 210008;
2: *Institute of Atmospheric Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing* 100083)

Abstract

It has been measured that the sediment denitrification rate and the N_2O natural emission rate at the mouth of Meiliang Bay, Taihu Lake, in the summer of 1997. The measure was performed by Acetylene inhibition technique. The sediment denitrification rate is 1.4—5.6μmol/(m^2 · h) at the sediment-water interface of Meiliang Bay, Taihu Lake, and the N_2O natural emission rate is 0.08—0.66μmol N_2/(m^2 · h). The exchange trend of NO_3^- between sediment-water interface was discussed as well. It has been pointed out that the sediment denitrification is an important sink in the nitrogen cycling of the Taihu Lake ecosystem. The sediments have a function that absorbs NO_3^- ions from the water column into sediment in the nitrogen exchange process between the sediment-water interface.

Key words　Sediment-water interface, nitrogen removing, Taihu Lake, sediment