

<https://doi.org/10.3799/dqkx.2022.104>



# 长江中下游湖泊 GDGTs 分布及其环境意义

李婧婧<sup>1</sup>, 郑峰峰<sup>2</sup>, 徐敏<sup>1</sup>, 杨欢<sup>3</sup>

1. 中国科学院南京地理与湖泊研究所湖泊与环境国家重点实验室, 江苏南京 210008
2. 南方科技大学海洋科学与工程系深圳海洋地球古菌组学重点实验室, 广州深圳 518055
3. 中国地质大学生物地质与环境地质国家重点实验室, 湖北武汉 430078

**摘要:** 本研究以长江中下游 28 个湖泊为研究对象, 分析不同类型 GDGTs 化合物的分布特征, 包括相对含量以及 GDGTs 各相关指标. 并通过对比中国境内土壤 GDGTs 的分布情况, 以探讨湖泊 GDGTs 的来源问题, 研究结果表明: 可能受产甲烷古菌的影响, 这些浅水湖泊中古菌来源 isoGDGTs 与土壤存在较大差异, 然而细菌来源的 brGDGTs 与土壤差异并不显著, 据此推测很有可能来源于湖泊周边土壤的贡献. 此外, 这些受不同程度富营养化影响的湖泊表层沉积物 GDGTs 与水体化学参数的相关性分析结果显示, 环境参数似乎并不能影响 GDGTs 的分布, 然而水深与 crenarchaeol 之间存在显著正相关, 表明在这些湖泊中, 水深会影响古菌特别是奇古菌的分布.

**关键词:** 长江中下游湖泊; GDGTs; 浅水湖泊; 来源; 水文地质; 环境地质.

中图分类号: P593; P66; P942

文章编号: 1000-2383(2023)11-4335-14

收稿日期: 2022-03-23

## Distribution and Environmental Implication of GDGTs in Lake Surface Sediments from Middle and Lower Reaches of Yangtze River

Li Jingjing<sup>1</sup>, Zheng Fengfeng<sup>2</sup>, Xu Min<sup>1</sup>, Yang Huan<sup>3</sup>

1. State Key Laboratory of Lake Science and Environment, Nanjing Institute of Geography and Limnology, Chinese Academy of Sciences, Nanjing 210008, China
2. Shenzhen Key Laboratory of Marine Archaea Geo-Omics, Department of Ocean Science & Engineering, Southern University of Science and Technology, Shenzhen 518055, China
3. State Key Laboratory of Biogeology and Environmental Geology, China University of Geosciences, Wuhan 430078, China

**Abstract:** In this study, it aims to examine the fractional abundance of GDGTs and GDGT-based proxies in 28 lakes in the middle and lower reaches of Yangtze River. It compares the GDGT distributions of these lakes with the published Chinese soil data to determine the lacustrine GDGT sources. The results indicate that there are different distributions of isoGDGTs between lake sediments and soils, however, the brGDGT distributions show no significant difference between lake sediments and soils, indicating that brGDGTs from lacustrine sediments may come from soils surrounding the lakes. It further measured the relationship between chemical parameters and GDGT distributions of these lakes affected by varying degrees of eutrophication. Our results show that only the water depth displays significant correlation with crenarchaeol, which implies that water depth may influence the

**基金项目:** 国家自然科学基金项目 (No. 41977384); 江苏省基础研究计划 (自然科学基金) 面上项目 (No. BK20181508); 中国地质大学 (武汉) 流域关键带湖北省重点实验室开放基金项目 (No. 2021F06).

**作者简介:** 李婧婧 (1984—), 女, 助理研究员, 主要从事湖泊分子地球化学研究. ORCID: 0000-0003-4357-8665. E-mail: jjli@niglas.ac.cn

**引用格式:** 李婧婧, 郑峰峰, 徐敏, 杨欢, 2023. 长江中下游湖泊 GDGTs 分布及其环境意义. 地球科学, 48(11): 4335-4348.

**Citation:** Li Jingjing, Zheng Fengfeng, Xu Min, Yang Huan, 2023. Distribution and Environmental Implication of GDGTs in Lake Surface Sediments from Middle and Lower Reaches of Yangtze River. *Earth Science*, 48(11): 4335-4348.

production of Thaumarchaeota in these lake environments.

**Key words:** lakes in middle and lower reaches of Yangtze River; GDGTs; shallow water; sources; hydrogeology; environmental geology.

## 0 引言

由微生物膜脂合成的甘油二烷基甘油四醚化合物 (glycerol dialkyl glycerol tetraethers, 简称 GDGTs) 敏感响应环境信息特别是温度以及 pH 等的变化, 是近年来陆地和海洋古环境定量重建研究的热点之一 (Castañeda and Schouten, 2011; Schouten *et al.*, 2013). 根据生物来源、碳链结构以及立体构型的差异, GDGTs 化合物主要分为两种类型. 一类是由古菌合成的类异戊二烯结构 GDGTs (isoprenoid GDGTs, 简称 isoGDGTs), 其碳骨架以类异戊二烯 ( $C_5H_{12}$ ) 为单元, 并携带不同个数的五元环和六元环, 甘油构型为 2,3-二-O-酰基-*sn*-甘油结构. 通常化合物后的阿拉伯数字代表碳链上的五元环个数, 例如 GDGT-0 表示该化合物的碳链上不携带任何五元环或者六元环的结构, 这是一类生物来源非常丰富的化合物, 包括产甲烷古菌、甲烷氧化菌以及氨氧化奇古菌等均可以合成 (Schouten *et al.*, 2013). 而泉古菌醇 (crenarchaeol) 则被认为是奇古菌 Thaumarchaeota 所特有的化合物, 其碳链同时携带五元环以及六元环的结构, 此类化合物还存在结构异构体, 即 crenarchaeol' (Damsté *et al.*, 2002). 另一类是由细菌合成的支链 GDGTs (branched GDGTs, 简称 brGDGTs), 其碳链由携带不同数目甲基 ( $-CH_3$ ) 和五元环的  $C_{28}$  烷基链组成, 并携带 0~2 个五元环, 其甘油构型为 1,2-二-O-酰基-*sn*-甘油结构 (Weijers *et al.*, 2006). 通常根据 brGDGTs 碳链上携带的甲基个数, 将其分为 3 种类型, 分别是携带 6 个甲基的 III 类 (IIIa、IIIb、IIIc), 携带 5 个甲基的 II 类 (IIa、IIb、IIc), 以及携带 4 个甲基的 I 类 (Ia、Ib、Ic) brGDGTs.

GDGTs 化合物具有非常广泛的分布范围, 除泥炭、海洋、湖泊、土壤以及石笋等不同沉积载体以外, 还可以分布在某些极端环境, 如高盐环境以及热泉等 (Schouten *et al.*, 2007; Bechtel *et al.*, 2010; Li *et al.*, 2016). 除此之外, GDGTs 能够被广泛应用于古环境定量重建研究的另一个重要原因在于 GDGTs 对环境的敏感响应, 与环境参数之间的定量关系已逐步量化并体现在 GDGTs 各指标上. 首先是基于海洋奇古菌环化指数所建立的

TEX<sub>86</sub> 指标, 在对全球海域的调查中发现, 海洋表层沉积物 isoGDGTs 的环化程度与海水表层温度之间存在显著正相关, 即海水表层温度越高, isoGDGTs 的环化程度升高 (Schouten *et al.*, 2002). 另一类则是基于土壤细菌 brGDGTs 分布而构建的 MBT/CBT 指标, 对全球土壤的研究发现 brGDGTs 的甲基化 (MBT) 和环化 (CBT) 指数有效指示大气年均气温以及土壤 pH 值的变化 (Weijers *et al.*, 2007; 郑峰峰等, 2018). 事实上, 将上述基于海洋和土壤环境构建的 GDGTs 指标应用到湖泊环境, 则面临着挑战和不确定性, 因为湖泊在物理 (大小、深浅、流域形态) 和化学 (温度、盐度、pH 值、氧浓度以及营养盐浓度) 等性质上存在多样性的特点, 如果将 TEX<sub>86</sub> 和 MBT/CBT 指标生搬硬套于湖泊环境, 则必然会造成所恢复的温度或者 pH 值与实测值之间的误差. 据此不同学者根据湖泊环境 GDGTs 的分布特征以建立适用于湖泊环境的 TEX<sub>86</sub> 以及 MBT/CBT 指标 (Powers *et al.*, 2004; Sun *et al.*, 2011), 抑或通过选取对温度响应最敏感的 brGDGTs 组分来构建与温度的逐步回归方程 (Pearson *et al.*, 2011), 以进一步优化 GDGTs 在湖泊环境定量重建的准确性. 然而越来越多的研究结果显示, 除温度以及 pH 值以外, 其他环境因素包括降水、水深以及水体中溶解氧的浓度等因素也会影响湖泊 GDGTs 分布 (van Bree *et al.*, 2020; Chen *et al.*, 2021), 因此需全面评估湖泊环境 GDGTs 分布特征及其影响因素.

近年来, 我国境内湖泊陆续开展 GDGTs 现代过程以及古环境定量重建的研究, 研究区域主要包括青藏高原、内蒙古以及云贵高原等地区 (Li *et al.*, 2019; Yao *et al.*, 2019; Wang *et al.*, 2020), 相较之下, 东部平原区特别是长江中下游地区湖泊的 GDGTs 研究略显不足 (谢树成等, 2015; Zhu *et al.*, 2022). 然而作为中国五大湖区的重要组成部分, 长江中下游地区地势平坦、湖泊密集, 是我国淡水湖泊数量最多的地区, 其中面积在 1.0 km<sup>2</sup> 以上的湖泊有 651 个, 平均湖泊率为 9.6%, 约占全国湖泊面积的 27.5% (朱广伟等, 2019). 作为世界上同纬度最大的湖群, 长江中下游湖群中 99% 的湖泊为浅水湖泊, 平均深度在 1~6 m, 具有高浊度、低透明度

以及水动力扰动频繁等特点.这些浅水湖泊大多处于温带地区,温度和光照十分适合浮游生物的生长和繁殖,因此也最容易发生富营养化,此外该地区作为我国经济发展的重点区域,大量氮、磷等营养物质随着生活污水、工业以及农业废水排入,导致很多湖泊出现水体富营养化,蓝藻水华频发的现象(Ma *et al.*, 2011).而究竟这些受不同富营养化程度影响的湖泊 GDGTs 分布特征以及来源如何,是否受富营养化影响,目前还不得而知.基于此,本文以长江中下游地区的浅水湖泊为研究对象,首先查明这些湖泊表层沉积物中不同类型 GDGTs 的分布特征,并通过对比中国土壤的分布情况,探讨这些湖泊 GDGTs 的来源问题.最后,通过这些湖泊 GDGTs 分布与不同环境因子之间的相关性分析,进一步解析富营养化是否会影响 GDGTs 的分布.

## 1 材料与方 法

### 1.1 研究区域和样品采集

本研究于 2019 年 4 月期间,对长江中下游地区 28 个湖泊(28°~35°N, 115°~121°E)的水质情况以及表层沉积物进行调查,研究区域跨越鄱阳-华阳湖群以及太湖-长江三角洲湖群(图 1),分别采集江西、安徽以及江苏 3 个省境内的湖泊.其中包括江西省的 8 个湖泊(七里湖,青岚湖,沙湖,鄱阳湖,太泊湖,青山湖,瑶湖,牛鸭湖),安徽省的 8 个湖泊(沱湖,升金湖,破罡湖,白荡湖,枫沙湖,黄陂湖,花园湖,沂湖)以及江苏省的 12 个湖泊(洪泽湖,骆马湖,白马湖,石臼湖,南湖,高邮湖,邵伯湖,团风,东次,漕湖,鹅真荡,昆承湖)(图 1).这些湖泊均为浅水湖泊,其中湖水最浅的是黄陂湖(1.2 m),最深的是洪泽湖(3.9 m),湖水大多呈弱碱性,pH 变化范围为 7.6~8.3(表 1).

在野外采样过程中,尽可能远离污染源,选择湖心或者开阔湖区采集湖泊表层沉积物样品,用 Kajak 重力采样器采取最上部约 0.5 cm 厚的表层沉积物用作分析,将沉积物样品装入 Nasco 无菌样品袋,放置在野外携带的冰箱中冷藏保存,运回实验室后冷冻保存.在野外现场测量水深、pH 值、湖水电导率(Conductivity)、透明度(SD)和溶解氧(DO)等参数,此外将湖水装入无菌离心管中用于物理化学参数的测定.

### 1.2 GDGTs 化合物的提取与分离

在实验室用冷冻干燥机将湖泊沉积物冻干去

水后,用研钵将样品磨成粉末状,并过筛处理,将样品充分混合.取~3 g 磨好的样品装入聚四氟乙烯的离心管中,加入 15 mL 二氯甲烷:甲醇(9:1, v/v)的混合有机溶剂,用超声波萃取仪水浴超声 15 min 后再离心 10 min,将上清液转移至玻璃试管中,置于氮吹仪下轻柔吹干.随后在聚四氟乙烯离心管中再次加入 15 mL 混合有机试剂,用旋涡混匀器将样品与有机试剂充分混合均匀,再次放入超声波萃取仪中水浴超声 15 min 后再离心,收集上清液富集于玻璃试管中.将上述操作重复 4 次,直至上清液无色,最后将玻璃试管中的萃取液用氮气轻柔吹干,即获得总类脂提取物(Total Lipids Extract,简称 TLE).配制浓度为 1 N 的 KOH/MeOH 溶液,用玻璃滴管吸取 5 mL 配制溶液加入上述装有 TLE 的玻璃试管中,用 parafilm 封口膜密封后,放置于 70 °C 加热板加热 2 h,冷却后取出.随后在玻璃试管中加入 1~2 mL 超纯水,用正己烷萃取 4 次以得到包括醇类以及 GDGTs 的中性组分,并用氮气吹干转移至小细胞瓶中备用.用少许正己烷溶解上述经皂化的中性组分,并用玻璃滴管加入装有活化硅胶的柱层析中,分别用正己烷和甲醇做流动相洗脱硅胶柱,获取非极性和极性组分.其中含有 GDGTs 的极性组分吹干浓缩至 1~2 mL,用二氯甲烷将该组分经过 0.45 μm 的 PTFE 滤膜过膜处理,以除去可能颗粒物,并转移至 2 mL 自动进样瓶中,利用高效液相色谱-质谱联用仪(High Performance Liquid Chromatography-Mass Spectrometry,简称 HPLC-MS/MS)测试.

### 1.3 GDGTs 化合物的检测与分析

将含有 GDGTs 的待测样品溶解在 300 μL 正己烷:异丙醇(99:1, v/v)的混合溶剂中,加入 10 μL 的 C<sub>46</sub>GTGT 作为标样,进样量为 10~30 μL.其中液相色谱-质谱的型号为 Agilent 1200 HPLC, 6460A 三重四极杆质谱仪,配备有大气压化学电离源(APCI)离子源、Agilent 液质工作站、自动进样器、二元高压泵、脱气机以及恒温箱.采用 Alltech Prevail 氰基柱色谱柱(150 mm × 2.1 mm, 3 μm)分离,洗脱程序为:正己烷和异丙醇作为流动相, A 流动相为正己烷, B 流动相为正己烷:异丙醇(9:1, v/v).洗脱梯度为 0~5 min, 90% A: 10% B; 5~45 min, 正己烷(A)比例从 90% 线性减至 82%,之后冲洗色谱柱并回到 100% B,流速保持 0.2 mL/min,柱温箱恒温 40 °C.化合物离子化在 APCI 源中进行, APCI/MS 条件为雾化器压力 60 psi,雾化温度 400 °C,干燥气(N<sub>2</sub>)流



图 1 采样示意

Fig.1 Study area and sampling sites

表 1 本研究中 28 个湖泊主要环境参数变化范围

Table 1 The main environmental parameters of 28 lakes in this study

环境指标名称	取值范围
水深(m)	1.2~3.9
pH	7.6~8.3
总磷(mg/L)	0.01~0.39
总氮(mg/L)	0.32~3.32
电导率( $\mu\text{s}/\text{cm}$ )	83.0~700.5
化学需氧量(mg/L)	3.8~7.9
叶绿素( $\text{mg}/\text{m}^3$ )	1.2~38.5

速 6 L/min, 温度 200 °C, 毛细管电压 3 500 V, 电晕电流 5  $\mu\text{A}$  ( $\sim 3\ 200\ \text{V}$ ). 为提高检测信噪比以及重现性, 采用单离子扫描模式(SIM)对离子进行

扫描, 扫描质核比( $m/z$ )为 1 302、1 300、1 298、1 296、1 292、1 050、1 048、1 046、1 036、1 034、1 032、1 022、1 020、1 018 和 744( $\text{C}_{46}$ 标样), 每一个样品都重复测定以检验数据在仪器上的重现性, 仪器状态良好, 误差范围在  $\pm 0.02$ . 每个化合物在提取离子色谱(EIC)中相应的峰进行积分, 提取 GDGTs 质子化后的离子质核比, 含量上采用合成的  $\text{C}_{46}$ GTGT 化合物作为内标进行半定量计算 (Huguet *et al.*, 2006), 并假设化合物与内标之间的响应因子为 1:1, 含量最后统一化于样品干重.

#### 1.4 GDGTs 各指标计算

古菌 isoGDGTs 的四醚指数  $\text{TEX}_{86}$  根据 Schouten *et al.* (2002)建立的以下公式计算:

$$\text{TEX}_{86} = \frac{([\text{GDGT}-2] + [\text{GDGT}-3] + [\text{crenarchaeol}'])}{([\text{GDGT}-1] + [\text{GDGT}-2] + [\text{GDGT}-3] + [\text{crenarchaeol}'])} \quad (1)$$

细菌 brGDGTs 的甲基化指数 MBT 和环化指数 CBT 则据 Weijers *et al.* (2007) 建立的以下公式分别计算:

$$\text{MBT} = \frac{([\text{GDGT}-1a] + [\text{GDGT}-1b] + [\text{GDGT}-1c])}{\sum[\text{所有支链GDGTs}]}, \quad (2)$$

$$\text{CBT} = -\log([\text{GDGT}-1b] + [\text{GDGT}-1c]) / ([\text{GDGT}-1a] + [\text{GDGT}-1b] + [\text{GDGT}-1c]) \quad (3)$$

陆源输入指标 BIT (Branched Isoprenoid Tetraether), 被用以衡量湖泊、海洋环境中陆源有机质的相对贡献率, 根据 Hopmans *et al.* (2004) 建立的公式计算:

$$\text{BIT} = \frac{([\text{GDGT}-1a] + [\text{GDGT}-1b] + [\text{GDGT}-1c])}{([\text{Crenarchaeol}] + [\text{GDGT}-1a] + [\text{GDGT}-1b] + [\text{GDGT}-1c])} \quad (4)$$

干旱化指数  $R_{i/b}$  根据 Xie *et al.* (2012) 建立的以下公式计算:

$$R_{i/b} = \frac{\sum[\text{所有类异戊二烯GDGTs}]}{\sum[\text{所有支链GDGTs}]}, \quad (5)$$

古菌 isoGDGTs 的甲烷指数 MI (Methane Index) 根据 Zhang *et al.* (2011) 建立的以下公式计算:

$$\text{MI} = \frac{([\text{GDGT}-1] + [\text{GDGT}-2] + [\text{GDGT}-3])}{([\text{GDGT}-1] + [\text{GDGT}-2] + [\text{GDGT}-3] + [\text{crenarchaeol}] + [\text{crenarchaeol}'])} \quad (6)$$

古菌 isoGDGTs 的环化指数 RI (Ring Index) 根据 Zhang *et al.* (2016) 建立的以下公式计算:

$$\text{RI} = \frac{([\text{GDGT}-2] + [\text{GDGT}-3] + [\text{crenarchaeol}'])}{([\text{GDGT}-1] + [\text{GDGT}-2] + [\text{GDGT}-3] + [\text{crenarchaeol}'])} \quad (7)$$

古菌 GDGT-0 与 crenarchaeol 的相对比例 (% GDGT-0) 指标根据 Inglis *et al.* (2015) 建立的以下公式计算:

$$\% \text{GDGT}-0 = \frac{([\text{GDGT}-0])}{([\text{GDGT}-0] + [\text{crenarchaeol}])} \quad (8)$$

### 1.5 环境参数测定

将在野外采集的 10 mL 水样采用 0.22  $\mu\text{m}$  滤膜过滤沉淀和杂质, 每份样品设置平行样, 取均值, 测定的阴阳离子包括  $\text{Ca}^{2+}$ 、 $\text{Mg}^{2+}$ 、 $\text{K}^{+}$ 、 $\text{Na}^{+}$  以及  $\text{HCO}_3^{-}$ 、 $\text{CO}_3^{2-}$ 、 $\text{Cl}^{-}$ 、 $\text{SO}_4^{2-}$ . 实验室营养指标测定主要包括总磷 (TP)、总氮 (TN)、叶绿素-a (Chlorophyll-a, 简称 Chl-a)、总铁 (TFe)、硝态氮 ( $\text{NO}_3^{-}$ )、亚硝态氮 ( $\text{NO}_2^{-}$ )、铵态氮 ( $\text{NH}_3^{+}$ )、化学需氧量 (COD)

以及二氧化硅 ( $\text{SiO}_2$ ) 等. 所有营养盐的测试均按照国家环境保护总局制定的标准方法处理.

### 1.6 数据统计分析

利用 ArcGIS 10.2 软件根据野外采集湖泊的 GPS 点位来绘制湖泊的具体位置, 不同湖泊 GDGTs 的分布特征 (相对含量) 以及理化性质数据的处理和图形的绘制采用 Origin 和 R 共同完成, 不同化合物的相对含量以及各指标与理化参数之间的相关性分布通过 SPSS 软件处理, 用 Pearson 相关分析和一元线性回归分析其相关性及对数据变异的解释量.

## 2 结果与分析

### 2.1 长江中下游湖泊环境参数

28 个湖泊的主要环境参数范围见表 1. 其中所有湖泊的总磷变化范围在 0.01~0.39 mg/L, 根据 OECD 单营养总磷指标的评判标准, 除白荡湖、黄陂湖、骆马湖以及石臼湖这 4 个湖泊属于中营养总磷范围 (0.01~0.035 mg/L) 以外, 其余湖泊均属于富营养 (0.035~0.1 mg/L) 以及极富营养 ( $\geq 0.1$  mg/L) 湖泊范围, 表明本研究所调查的湖泊营养态普遍偏高, 贫营养和贫-中营养湖泊缺乏.

湖水阴、阳离子分析结果显示, 这些湖泊  $\text{HCO}_3^{-}$  的含量相对较高, 在所有阴离子中占据明显优势, 其次则为  $\text{SO}_4^{2-}$  和  $\text{Cl}^{-}$ , 而  $\text{Na}^{+}$  的含量则在阳离子中最高, 其次为  $\text{Ca}^{2+}$ 、 $\text{Mg}^{2+}$  和  $\text{K}^{+}$ .

### 2.2 长江中下游湖泊表层沉积物 GDGTs 分布特征

**2.2.1 isoGDGTs 含量以及相对丰度** 长江中下游湖泊表层沉积物中由古菌合成的 isoGDGTs 总含量在 0.006~0.950  $\mu\text{g g}^{-1}\text{dw}$  之间. 其中不携带任何五元环以及六元环结构的 GDGT-0 含量最高, 在 0.004~0.920  $\mu\text{g g}^{-1}\text{dw}$  之间, 随后则是 crenarchaeol, 其含量最高值为 0.040  $\mu\text{g g}^{-1}\text{dw}$ , 除这两类化合物以外的其他 isoGDGTs 化合物的含量均较低. 需要指出的是, 虽然本研究并未分析这些湖泊表层沉积物的 TOC 含量, 故无法将 isoGDGTs 含量均一化 TOC 来计算, 然而 isoGDGTs 含量均一化沉积物干重的结果与前人发表的湖泊数据之间有着较好的可比性 (Castaneda and Schouten, 2011).

高效液相色谱质谱的分析结果显示, 这些长江中下游湖泊的表层沉积物中均检测出不同类型 isoGDGTs 化合物的分布, 只是不同湖泊的 GDGT-

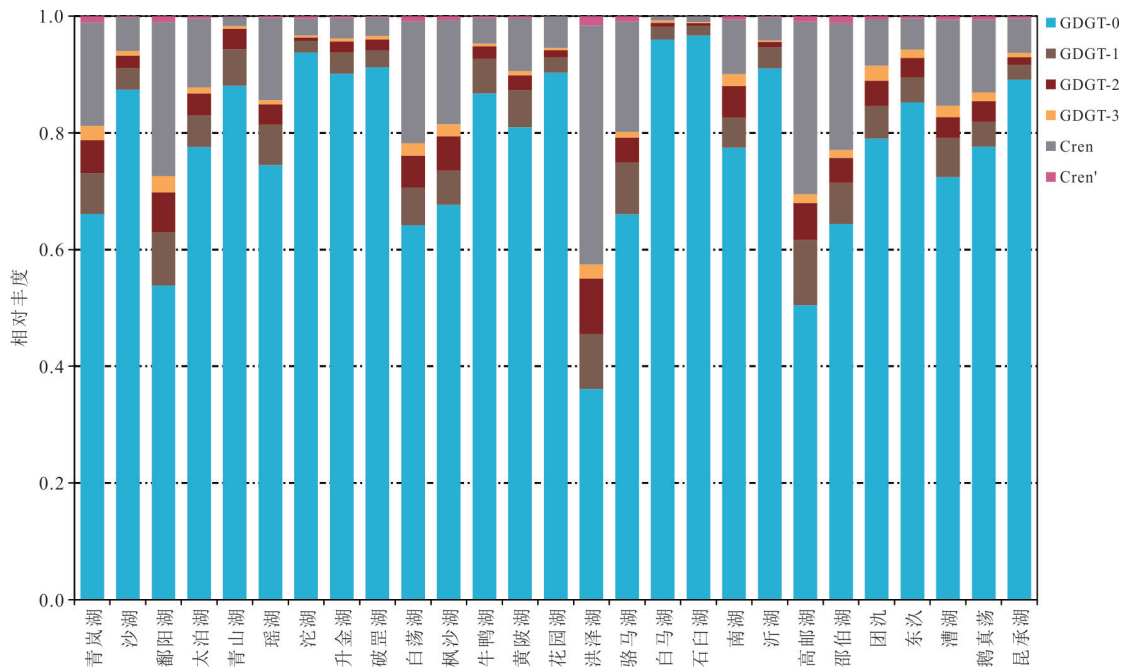


图 2 28个长江中下游湖泊表层沉积物 isoGDGTs 分布特征

Fig.2 Distribution pattern of isoGDGTs from 28 lake surface sediments in the middle and lower reaches of Yangtze River

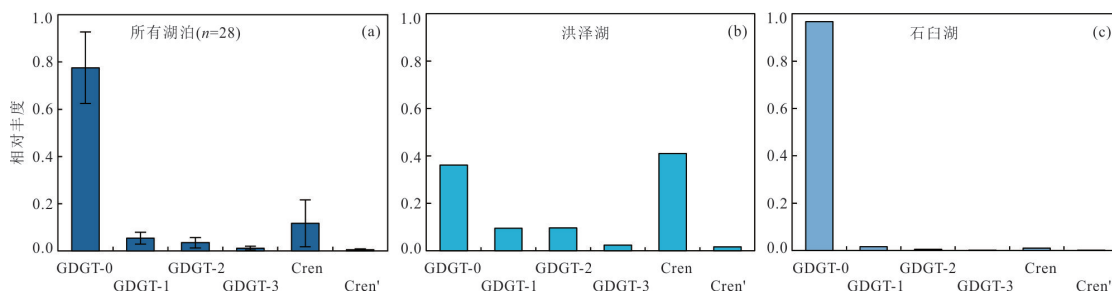


图 3 28个长江中下游湖泊表层沉积物 isoGDGTs 平均相对丰度(a);洪泽湖表层沉积物中 isoGDGTs 的相对丰度(b);石臼湖表层沉积物 isoGDGTs 的相对丰度(c)

Fig.3 The average fractional abundance of isoGDGTs from 28 lake surface sediments in the middle and lower reaches of Yangtze River (a); fractional abundances of isoGDGTs in surface sediments from Hongze Lake (b) and Shijiu Lake (c)

0, -1, -2, -3 以及 crenarchaeol 和 crenarchaeol' 的相对含量上存在较大差异(图 2). 几乎所有湖泊表层沉积物中的 isoGDGTs 均以高含量的 GDGT-0 占比为主, 平均相对丰度为 77%(图 3a), 远超过其他类型的 isoGDGTs 化合物, 随后则是 crenarchaeol, 其平均相对丰度为 12%(图 3a). 然而并不是所有湖泊的 GDGT-0 含量均高于 crenarchaeol, 例如洪泽湖的表明沉积物中 crenarchaeol 的相对含量也可高达 40% 以上, 高于 GDGT-0(图 3b). 此外, 除 GDGT-0 以及 crenarchaeol 以外的其他 isoGDGTs 化合物的平均相对丰度均低于 10%(图 3a), 在部分湖泊的含量甚至低于检测限.

值得注意的是, 洪泽湖和石臼湖虽然同属于

长江中下游地区的湖泊, 但这两个湖泊表层沉积物中 isoGDGTs 的相对含量存在较大差异. 例如在大多数长江中下游湖泊中占据显著优势的 GDGT-0(图 3a), 在洪泽湖表层沉积物中的相对含量仅占 35% 左右, 而 crenarchaeol 的相对含量则高于 GDGT-0, 占到 40% 以上(图 3b). 此外, 石臼湖表层沉积物中这两类化合物的相对含量之间也存在较大的差别, 其中 GDGT-0 的相对含量高达 97%, 而 crenarchaeol 的相对含量仅占 1%(图 3c).

**2.2.2 brGDGTs 含量以及相对丰度** 长江中下游湖泊表层沉积物由细菌合成的 brGDGTs 总含量在  $0.02\sim 3.5 \mu\text{g g}^{-1}\text{dw}$  之间, 要显著高于古菌合成的 isoGDGTs 含量, 这与人发表的湖泊 GDGTs 含量

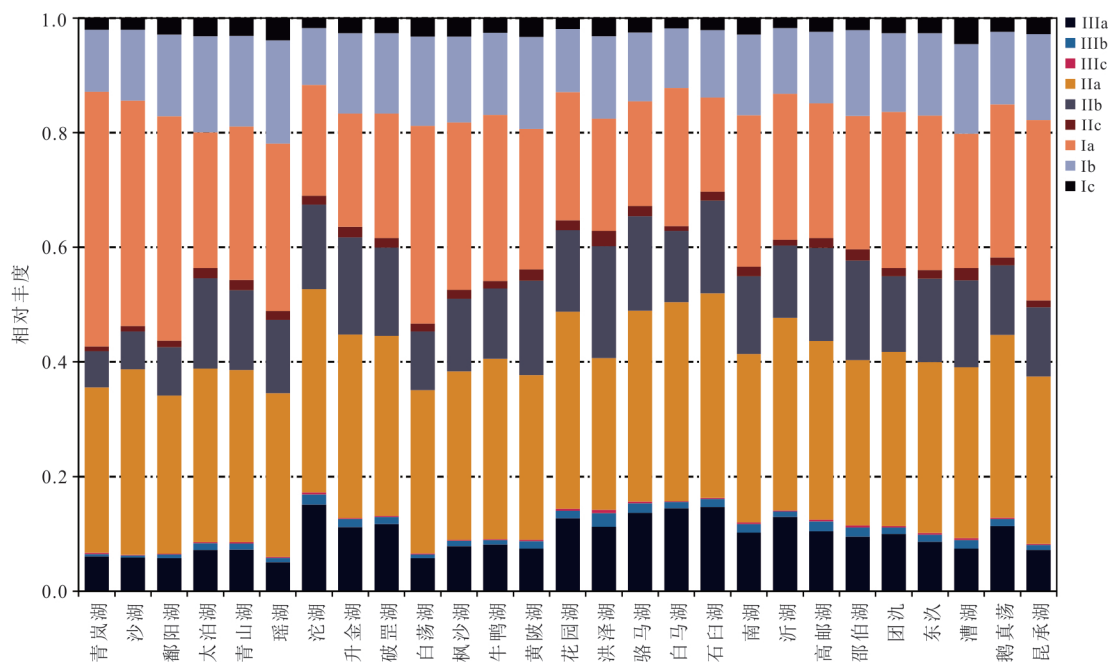


图 4 28 个长江中下游湖泊表层沉积物 brGDGTs 分布特征

Fig.4 Distribution pattern of brGDGTs from 28 lakes in the middle and lower reaches of Yangtze River

结果类似(Blaga *et al.*, 2009; Pearson *et al.*, 2011). 其中 brGDGTs III 类化合物含量的取值范围在  $0.001\sim 0.5 \mu\text{g g}^{-1}\text{dw}$  之间, II 类和 I 类化合物含量的取值范围则分别在  $0.007\sim 1.8 \mu\text{g g}^{-1}\text{dw}$  以及  $0.01\sim 1.1 \mu\text{g g}^{-1}\text{dw}$  之间. 而在相对含量上, II 类化合物占优势, 平均丰度在  $36\%\sim 53\%$  之间, I 类化合物的相对含量在  $30\%\sim 57\%$  之间, III 类化合物的相对含量则偏低, 在  $6\%\sim 17\%$  之间(图 4). 具体到单个 brGDGTs 化合物上, 其中碳链上携带 5 个甲基且不携带任何五元环的 IIa 化合物, 其相对含量最高, 平均值为  $30\%$ , 其次则是携带 4 个甲基且不携带任何五元环的 Ia 化合物, 其平均相对含量为  $25\%$ , 随后则是 Ib 和 IIb, 这两类化合物的碳链上均携带一个五元环, 平均相对含量为  $14\%$ , 而除这些化合物以外的其他 brGDGTs 化合物的相对含量均低于  $10\%$ (图 4).

### 2.3 长江中下游湖泊表层沉积物 GDGTs 各指标

isoGDGTs 以及 brGDGTs 各相关指标的计算方式详见 1.4 部分, 各指标取值见表 2. 长江中下游湖泊表层沉积物  $\text{TEX}_{86}$  指标的取值范围在  $0.26\sim 0.61$  之间(表 2), 差值可达  $0.45$ , 如果利用全球湖泊的  $\text{TEX}_{86}$  校对方程(Powers *et al.*, 2010)来恢复这些湖泊的温度, 可以发现长江中下游地区不同湖泊重建温度的范围为  $3\sim 21^\circ\text{C}$ , 温度差值可达  $18^\circ\text{C}$ , 显然与这些湖泊的实际平均大气温度( $14\sim 18^\circ\text{C}$ )之间存在明显差异. 同样这些湖泊 MBT 以及 CBT 指标

的取值范围分别在  $0.3\sim 0.57$  以及  $0.13\sim 0.63$  之间(表 2), 根据 Sun *et al.* (2011) 建立的中国境内湖泊 MBT/CBT 校对方程所恢复的温度差值为  $8.5^\circ\text{C}$ . 然而本研究中的长江中下游湖泊因所处地理位置类似, 所以不同湖泊之间的年均温度差异并不显著, 据此可以推测基于  $\text{TEX}_{86}$  以及 MBT/CBT 指标所恢复的温度并不适用于该地区.

长江中下游湖泊表层沉积物 BIT 指标的取值范围在  $0.58\sim 0.99$  之间(表 2), 其中洪泽湖的 BIT 值最小, 而石臼湖的 BIT 值最高. 需要注意的是, 虽然 BIT 被认为是衡量陆源输入的指标, BIT 值越高说明陆源输入越显著(Hopmans *et al.*, 2004), 然而这些长江中下游湖泊均属于浅水湖泊, 湖泊周边的陆源输入贡献较多. 事实上, 某些湖泊具有较低的 BIT 值, 并不意味着这些湖泊的陆源输入不显著, 而是由于较高的 crenarchaeol 含量, 减少 brGDGTs 的权重, 从而引起 BIT 值的降低. 例如洪泽湖表层沉积物中 crenarchaeol 的相对含量占到  $40\%$  以上, 而 BIT 值仅为  $0.58$ , 这与前人的研究结果一致, 即在使用 BIT 指标指示陆源输入的时候需要首先衡量 crenarchaeol 的含量, 以防影响该指标的准确使用(Fietz *et al.*, 2012).

长江中下游湖泊表层沉积物  $R_{10}$  指标的取值范围在  $0.1\sim 0.58$  之间(表 2), 平均值为  $0.27$ , 仅在两个湖泊中(青山湖、沂湖)发现  $R_{10}$  指标高于  $0.5$ . 另有 8

表 2 28 个湖泊的 GDGTs 相关指标

Table 2 The GDGT-based proxies of 28 lake surface sediments

编号	名称	经纬度	水深 (m)	pH	TEX <sub>86</sub>	MBT	CBT	BIT	$R_{i/b}$	MI	RI	%GDGT-0(%)	Cren/ Cren'
1	七里湖	29°42'N, 115°56'E	3.2	7.90	0.51	0.34	0.20	0.75	0.30	0.41	1.17	74	12
2	青岚湖	28°23'N, 116°15'E	2.6	7.83	0.57	0.57	0.63	0.82	0.31	0.45	1.01	79	15
3	沙湖	28°49'N, 116°22'E	2.3	8.01	0.46	0.54	0.58	0.93	0.13	0.53	0.34	94	27
4	鄱阳湖	28°52'N, 116°26'E	3.8	7.59	0.54	0.56	0.47	0.73	0.38	0.41	1.41	67	27
5	太泊湖	29°55'N, 116°39'E	2.4	7.96	0.49	0.44	0.22	0.84	0.15	0.45	0.65	87	30
6	青山湖	28°40'N, 116°57'E	1.3	7.63	0.40	0.46	0.28	0.98	0.58	0.86	0.21	98	16
7	瑶湖	28°40'N, 116°01'E	1.5	7.77	0.40	0.51	0.27	0.82	0.12	0.44	0.74	84	48
8	沱湖	30°02'N, 117°03'E	2.4	7.72	0.39	0.31	0.35	0.96	0.24	0.46	0.17	97	7
9	升金湖	30°28'N, 117°05'E	1.8	7.84	0.42	0.36	0.22	0.95	0.34	0.61	0.24	96	12
10	破罡湖	30°38'N, 117°10'E	1.5	7.89	0.48	0.38	0.25	0.95	0.35	0.62	0.22	97	20
11	白荡湖	30°48'N, 117°23'E	1.7	8.28	0.57	0.53	0.39	0.77	0.15	0.39	1.11	75	24
12	枫沙湖	30°55'N, 117°38'E	1.3	8.13	0.60	0.47	0.33	0.79	0.26	0.43	0.98	79	26
13	牛鸭湖	29°12'N, 117°40'E	1.9	7.92	0.33	0.46	0.36	0.94	0.27	0.64	0.30	95	17
14	黄陂湖	30°56'N, 117°48'E	1.2	7.93	0.36	0.44	0.21	0.87	0.10	0.50	0.51	90	26
15	花园湖	32°58'N, 117°49'E	2.3	7.80	0.39	0.35	0.35	0.93	0.30	0.44	0.28	94	193
16	洪泽湖	34°11'N, 117°51'E	3.9	8.17	0.59	0.37	0.13	0.58	0.33	0.33	2.06	47	26
17	骆马湖	34°13'N, 118°08'E	3.8	8.00	0.41	0.33	0.26	0.78	0.21	0.42	1.00	78	20
18	白马湖	32°10'N, 118°37'E	1.3	8.10	0.35	0.36	0.41	0.99	0.38	0.81	0.08	99	9
19	石臼湖	31°28'N, 118°55'E	2.1	8.12	0.29	0.30	0.27	0.99	0.27	0.69	0.07	99	21
20	南湖	31°08'N, 118°56'E	2.9	7.59	0.61	0.43	0.30	0.88	0.18	0.56	0.62	89	15
21	沂湖	32°48'N, 119°03'E	2.6	7.87	0.26	0.39	0.39	0.95	0.57	0.54	0.23	96	32
22	高邮湖	32°51'N, 119°20'E	3.2	8.08	0.44	0.38	0.28	0.69	0.21	0.39	1.50	63	32
23	邵伯湖	32°36'N, 119°27'E	2.6	7.94	0.49	0.40	0.21	0.74	0.17	0.36	1.11	75	19
24	团沔	32°21'N, 119°48'E	1.2	7.67	0.58	0.44	0.33	0.90	0.21	0.60	0.56	91	15
25	东次	32°21'N, 119°51'E	1.4	7.68	0.55	0.44	0.29	0.92	0.22	0.61	0.38	94	15
26	漕湖	31°28'N, 120°34'E	3.4	7.76	0.48	0.44	0.24	0.80	0.19	0.44	0.81	83	25
27	鹅真荡	31°30'N, 120°35'E	3.0	7.67	0.57	0.42	0.37	0.85	0.35	0.42	0.68	86	21
28	昆承湖	31°34'N, 120°44'E	2.2	7.55	0.50	0.49	0.35	0.92	0.32	0.42	0.33	94	16

个湖泊的  $R_{i/b}$  指标低于 0.2, 表明大部分长江中下游湖泊中细菌来源的 brGDGTs 占优势, 其含量显著高于古菌合成的 isoGDGTs. 此外, 这些湖泊 MI 指标的取值范围在 0.33~0.86 之间, 平均值为 0.51, 而 RI 指标的取值范围在 0.07~2.06 之间, 平均值为 0.51, %GDGT-0 指标的取值范围则在 47%~99% 之间, 平均值为 86% (表 2). 这三类指标在一定程度上均是反映古菌 isoGDGTs 的来源问题, 当 MI 大于 0.3、%GDGT-0 大于 67% 的情况下, 可以指示产甲烷古菌的贡献 (Zhang *et al.*, 2011; Inglis *et al.*, 2015). 需要注意的是, 虽然目前还没有建立 crenarchaeol 与 crenarchaeol' 之间的衡量指标, 但本研究中不同湖泊 crenarchaeol 与 crenarchaeol' 的比值也存在较大的差异, 大部分

样品中这两个化合物的比值均小于 35, 但在花园湖中这两个化合物的比值高达 190 以上.

### 3 讨论

#### 3.1 长江中下游湖泊与中国土壤 GDGTs 分布对比

前人的研究结果显示, 通过对比分析湖泊沉积物以及湖泊周边土壤 GDGTs 的分布情况, 可以解译湖泊表层沉积物中 GDGTs 的内外源输入问题 (Tierney and Russell, 2009; Naeher *et al.*, 2014; Li *et al.*, 2017). 然而本研究仅采集湖泊表层沉积物, 并未开展湖泊周边土壤的 GDGTs 研究, 为便于系统分析对比, 本研究结合已发表的中国土壤 GDGTs 数据 (Yang *et al.*, 2014; Wang *et al.*,

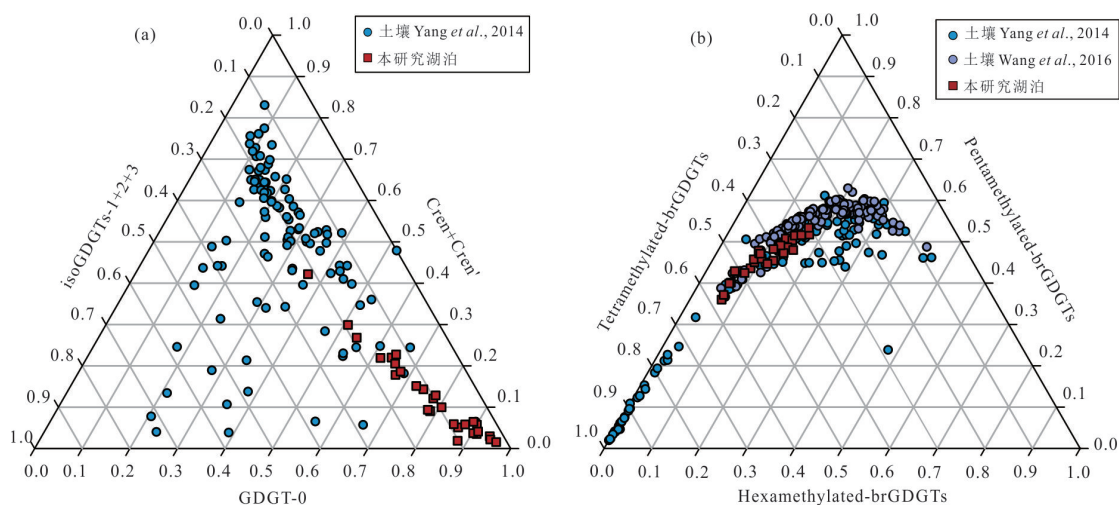


图5 本研究中湖泊表层沉积物与中国土壤 isoGDGTs 和 brGDGTs 分布的三角示意图

Fig.5 Ternary diagrams revealing distribution of isoGDGTs and brGDGTs in this study and Chinese soils

a. 基于 isoGDGTs 的 GDGT-0, crenarchaeol 和 crenarchaeol' 以及 GDGT-1, -2, -3 之和的三角图, 中国土壤数据来源于 Yang *et al.* (2014); b. 基于 brGDGTs 三种不同类型化合物, 即 III, II 以及 I 的三角图, 中国土壤数据来源于 Yang *et al.* (2014) 以及 Wang *et al.* (2016)

2016) 来解析长江中下游湖泊表层沉积物中 GDGTs 的来源问题 (图 5)。

将隶属于 isoGDGTs 的六种化合物, 包括 GDGT-0, crenarchaeol 和 crenarchaeol' 以及除此以外其他 isoGDGTs (GDGT-1, GDGT-2, GDGT-3) 的相对含量作为三个端元来评估湖泊沉积物以及土壤 isoGDGTs 分布的异同 (图 5a)。isoGDGTs 各分组的三角图结果显示, 湖泊表层沉积物相较于土壤合成更多的 GDGT-0, 而土壤则合成较多的 crenarchaeol 以及 crenarchaeol'。虽然除这两类化合物以外的其他 isoGDGTs 化合物在沉积物和土壤中的差异不如 GDGT-0 以及 crenarchaeol 显著, 但土壤中这些 isoGDGTs 化合物的相对含量要高于湖泊表层沉积物 (图 5a)。在这些长江中下游湖泊表层沉积物中, GDGT-0 的相对含量要普遍高于土壤, 而 GDGT-0 是一类有着广泛生物来源的化合物, 包括热原体目 Thermoplasmatales、热球菌目 Thermococcales 等不同类型广古菌, 以及硫球菌目 Desulfurococcales、热变形菌目 Thermoproteales 等不同类型的泉古菌 (Auguet *et al.*, 2010; Schouten *et al.*, 2013)。然而考虑到长江中下游地区的温度、湖泊水体的酸碱度以及含氧量等环境信息, 推测这些湖泊高含量 GDGT-0 主要来源于一类在湖泊环境广泛分布的产甲烷古菌。结合湖泊表层沉积物中较高的 %GDGT-0 (表 2), 指示这些湖泊环境普遍受产甲烷古菌的影响 (Blaga *et al.*, 2009; Inglis *et al.*, 2015)。需要注意的是, 并不是所有湖泊的古

菌均由产甲烷古菌占主导, 例如洪泽湖高含量的 crenarchaeol 则主要来源于奇古菌的贡献, 而非产甲烷古菌 (图 3b)。此外, 土壤相对高含量的 crenarchaeol 主要来源于奇古菌的贡献, 并且奇古菌可以合成 GDGT-1, -2 以及 -3, 因此在土壤中这些化合物的含量要高于湖泊沉积物。

来源于奇古菌 Thaumarchaea 的泉古菌醇 crenarchaeol 以及 crenarchaeol' 是指示氨氧化古菌 (ammonia-oxidizing archaea, 简称 AOA) 的标志性化合物, 主要分为两种类型, 一类是在海洋水柱中占主导的氨氧化奇古菌 Group I.1a, 另一类则是在土壤环境中占主导的奇古菌 Group I.1b。在复杂的湖泊环境, 奇古菌 Group I.1a 和 Group I.1b 均有分布, 并且在淡水湖泊不同深度的水柱中占据不同的优势。然而这两类古菌合成的 crenarchaeol 与 crenarchaeol' 相对含量之间存在着差异, 其中 Group I.1b 比 Group I.1a 合成相对高含量的 crenarchaeol' (Li *et al.*, 2016), 因此通过两者的比值 (Cren/Cren') 可以判定氨氧化古菌的类型。本研究中的 Cren/Cren' 指标变化范围为 8~193, 结合前人已发表的结果, 推测这些长江中下游湖泊中的奇古菌的类型大多为 Group I.1b 型, 然而在某些具有较高 Cren/Cren' 值的湖泊, 并不能排除奇古菌类型为 Group I.1a 型, 表明这些浅水湖泊受湖泊自生以及外源土壤输入的共同影响。

长江中下游湖泊表层沉积物与中国土壤 brGDGTs (Yang *et al.*, 2014; Wang *et al.*, 2016) 的三

角图结果显示(图 5b), brGDGTs 在两者之间的分布差异并不显著, 表层沉积物以及土壤中, brGDGTs I 和 II 类化合物的含量均相对较高, 而 III 类化合物的含量相对较低. 这一结果明显有别于上述差异显著的 isoGDGTs 分布情况, 表明这些湖泊表层沉积物中的 brGDGTs 可能来源于湖泊周边土壤的贡献, 从而导致表层沉积物和土壤中的 brGDGTs 分布差异并不显著. 事实上, 这些湖泊均为浅水型湖泊, 且部分湖泊处于洪泛区(朱广伟等, 2019), 相对来说, 更容易受周边陆源输入的贡献, 而陆源输入也是湖泊有机质的主要来源之一. 此外不容忽视的是, 湖泊水体普遍贡献 GDGTs, 且分布复杂, 包括不同湖泊水体合成的 GDGTs 含量以及分布特征存在差异(李婧婧等, 2021), 虽然本研究中的长江中下游湖泊普遍水深较浅, 但不能排除湖泊水体自生贡献 GDGTs, 其分布如何以及对沉积物的贡献率如何还需进一步研究.

### 3.2 湖泊表层沉积物 GDGTs 分布与环境参数研究

这些受不同程度富营养化作用的长江中下游湖泊是否因为富营养化而影响 GDGTs 的分布情况, 据此本部分开展表层沉积物 GDGTs 与湖泊水体常规物理化学参数之间的相关性分析研究. 湖泊表层沉积物中 isoGDGTs 化合物与环境参数的相关关系热图结果显示, 这些与富营养化相关的环境参数并不是影响长江中下游湖泊 isoGDGTs 分布的主要因素(图 6a). 虽然相较于其他环境参数如总氮(TN)、总磷(TP)、总铁(TFe)、叶绿素(Chl *a*)以及化学需氧量(COD)等参数与 isoGDGTs 化合物之间存在着并不显著的相关性, 但并不意味着 isoGDGTs 的分布受控于这些参数的影响. 此外本研究中的湖泊位于长江中下游地区, 地理区域跨度有限, 无法有效呈现较大的温度梯度差异, 因此温度似乎并不是影响这些湖泊 isoGDGTs 差异性分布的主控因子. 这一结果与内蒙古地区十几个不同盐度湖泊的研究结果类似, 即这些常规物理化学参数并不能有效影响湖泊表层沉积物 isoGDGTs 的分布(Li *et al.*, 2019). 然而, 需要指出的是, 湖泊水深似乎与 isoGDGTs 化合物之间存在一定的相关性, 特别是奇古菌标志物 crenarchaeol, 与水深之间有着显著的正相关( $r = 0.64, P < 0.05$ )(图 6a). 虽然前人在深水湖泊中发现水深与 crenarchaeol 之间有着较好的正相关(Wang *et al.*, 2014), 然而对浅水湖泊

中两者关系的研究还尚未报道. 长江中下游浅水湖泊中水深与部分 isoGDGTs 化合物, 特别是 crenarchaeol 之间的显著正相关, 在一定程度上表明湖泊水深影响合成 isoGDGTs 的古菌, 特别是奇古菌的分布, 即随着水深, 奇古菌的含量逐渐升高.

同样, 湖泊表层沉积物中 brGDGTs 与环境参数之间的相关关系热图显示, 两者之间的相关性并不显著(图 6b), 表明这些物理化学参数也不是影响 brGDGTs 分布的主控环境因子. 然而, 这些参数中的  $\text{HCO}_3^-$  以及阳离子中的  $\text{Ca}^{2+}$ 、 $\text{Mg}^{2+}$  与 brGDGTs 化合物之间有着一定的相关性, 特别是与 IIIb 类化合物的关系最明显, 是否这几类阴离子参数影响 IIIb 生物来源的分布还不得而知.

综上对比研究显示, 长江中下游湖泊表层沉积物中古菌 isoGDGTs 和细菌 brGDGTs 的分布与湖泊水体化学参数之间的相关性并不显著, 表明这些化合物的分布似乎并不受富营养作用的影响, 而不同湖泊之间 GDGTs 的差异性分布很有可能是反映这些化合物生物来源的变化.

### 3.3 长江中下游湖泊 GDGTs 研究意义

GDGTs 在湖泊古环境定量重建研究中发挥重要作用, 有效恢复全球不同区域的温度变化情况, 已取得一系列研究成果. 然而, 不同湖泊 GDGTs 重建工作所选取的现代湖泊校正方程往往不尽相同, 主要原因在于不同湖泊的 GDGTs 分布存在差异, 并且他们对环境响应也有着差别, 从而导致所适用的校正方程存在差异性. 因此, 只有在全面了解不同类型湖泊 GDGTs 分布特征的基础上, 才能准确开展湖泊 GDGTs 定量重建研究. 本研究中的长江中下游地区湖泊主要是围绕受不同程度富营养化作用湖泊所开展的 GDGTs 研究, 这也是以往湖泊环境 GDGTs 研究工作鲜有报道的内容. 通过对这些湖泊的调查研究发现, 除水深以外, 湖泊表层沉积物中的 GDGTs 分布似乎并不受常规化学参数的影响, 这也意味着在这些湖泊, 富营养化并不影响 GDGTs 的分布, 而生物来源的差异在很大程度上造成不同湖泊 GDGTs 的差异性分布. 因此, 开展长江中下游地区湖泊 GDGTs 研究具有重要意义, 研究结果显示富营养化可能并不是影响这些湖泊 GDGTs 差异性分布的重要原因, 此外, 输入来源差异导致不同湖泊 GDGTs 的差异性分布, 则表明评估湖泊内外源输入的重要性, 为后续开展湖泊古环境定量重建研究提高准确性.

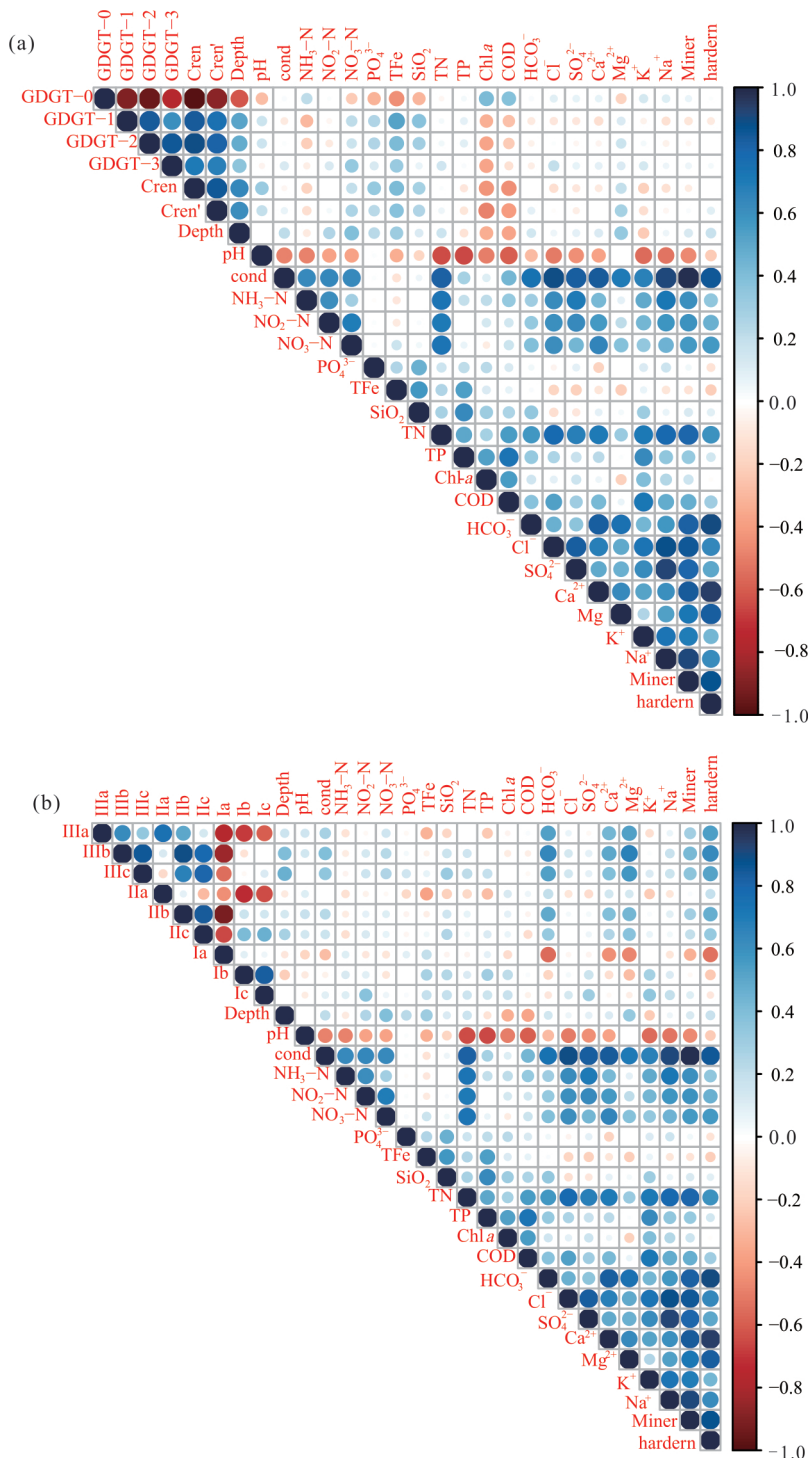


图 6 湖泊表层沉积物中 GDGTs 相对含量与化学参数之间的关系

Fig.6 The correlation heatmap between the fractional abundance of GDGTs and chemical parameters of 28 lake surface sediments

### 4 结论与展望

本研究主要分析长江中下游地区受不同程度富营养化作用的浅水湖泊中 GDGTs 的分布情况,并通过对比土壤 GDGTs 的分布特征以解析湖泊 GDGTs 的来源问题,并进一步

分析环境参数是否会影响湖泊表层沉积物 GDGTs 的分布,取得以下结论:

(1)长江中下游湖泊 isoGDGTs 分布主要以不含环的 GDGT-0 为主,此类由产甲烷古菌合成的化合物,其相对含量占 isoGDGTs 的 75% 以上;由奇古菌合成的 crenarchaeol,其相

对含量要低于 GDGT-0, 最高可达 40%。由细菌合成的 brGDGTs 则主要由 II 类以及 I 类化合物含量占优势, III 类化合物的含量最低。

(2) 长江中下游湖泊与中国土壤 GDGTs 的对比结果显示, 表层沉积物 isoGDGTs 的分布明显有别于土壤, 主要原因在于湖泊表层沉积物普遍受产甲烷古菌的影响, 合成相对较高含量的 GDGT-0, 而土壤则受奇古菌的贡献, 因此 crenarchaeol 的含量较高。brGDGTs 在两者之间的差异并不显著, 据此推测这些湖泊的 brGDGTs 很有可能来源于陆源土壤的贡献。

(3) 除水深在一定程度上影响 isoGDGTs 的变化以外, 其他环境参数对湖泊 GDGTs 分布的影响并不显著, 仅发现  $\text{HCO}_3^-$ 、 $\text{Ca}^{2+}$  以及  $\text{Mg}^{2+}$  与 brGDGTs 之间存在一定的相关性, 表明这些湖泊虽然遭受不同程度富营养化的作用, 但环境参数并不是影响 GDGTs 的主控因子。

由于本研究并未采集湖泊水体, 所以在探讨湖泊 GDGTs 来源的可能性问题上, 也无法排除湖泊水体自生的贡献。此外, 与富营养相关的环境参数似乎并不能显著影响湖泊 GDGTs 的分布, 而温度以及生物来源可能是影响这些湖泊 GDGTs 分布的主要因素, 据此可以结合中国境内其他气候区湖泊的数据, 为校正中国境内湖泊 GDGTs 校正方程提供素材。

致谢: 感谢中国地质大学(武汉)秦养民副教授提供样品, 感谢丁伟华博士在样品测试中的帮助。衷心感谢两位审稿专家给出的宝贵意见和建议, 感谢编辑部老师对稿件的审阅并提出宝贵建议!

## References

- Auguet, J. C., Barberan, A., Casamayor, E. O., 2010. Global Ecological Patterns in Uncultured Archaea. *The ISME Journal*, 4(2): 182–190. <https://doi.org/10.1038/ismej.2009.109>
- Bechtel, A., Smittenberg, R. H., Bernasconi, S. M., et al., 2010. Distribution of Branched and Isoprenoid Tetraether Lipids in an Oligotrophic and a Eutrophic Swiss Lake: Insights into Sources and GDGT-Based Proxies. *Organic Geochemistry*, 41(8): 822–832. <https://doi.org/10.1016/j.orggeochem.2010.04.022>
- Blaga, C. I., Reichart, G. J., Heiri, O., et al., 2009. Tetraether Membrane Lipid Distributions in Water-Column Particulate Matter and Sediments: A Study of 47 European Lakes along a North-South Transect. *Journal of Paleolimnology*, 41(3): 523–540. <https://doi.org/10.1007/s10933-008-9242-2>
- Castañeda, I. S., Schouten, S., 2011. A Review of Molecular Organic Proxies for Examining Modern and Ancient Lacustrine Environments. *Quaternary Science Reviews*, 30(21/22): 2851–2891. <https://doi.org/10.1016/j.quascirev.2011.07.009>
- Chen, L., Huang, Z. D., Niu, L. L., et al., 2021. GDGTs-Based Quantitative Reconstruction of Water Level Changes and Precipitation at Daye Lake, Qinling Mountains (Central-East China), over the Past 2 000 Years. *Quaternary Science Reviews*, 267: 107099. <https://doi.org/10.1016/j.quascirev.2021.107099>
- Damsté, J. S., Schouten, S., Hopmans, E. C., et al., 2002. Crenarchaeol: The Characteristic Core Glycerol Dibiphytanyl Glycerol Tetraether Membrane Lipid of Cosmopolitan Pelagic Crenarchaeota. *Journal of Lipid Research*, 43(10): 1641–1651. <https://doi.org/10.1194/jlr.m200148-jlr200>
- Fietz, S., Huguet, C., Bendle, J., et al., 2012. Covariation of Crenarchaeol and Branched GDGTs in Globally-Distributed Marine and Freshwater Sedimentary Archives. *Global and Planetary Change*, 92/93: 275–285. <https://doi.org/10.1016/j.gloplacha.2012.05.020>
- Hopmans, E. C., Weijers, J. W. H., Schefuß, E., et al., 2004. A Novel Proxy for Terrestrial Organic Matter in Sediments Based on Branched and Isoprenoid Tetraether Lipids. *Earth and Planetary Science Letters*, 224(1/2): 107–116. <https://doi.org/10.1016/j.epsl.2004.05.012>
- Huguet, C., Hopmans, E. C., Febo-Ayala, W., et al., 2006. An Improved Method to Determine the Absolute Abundance of Glycerol Dibiphytanyl Glycerol Tetraether Lipids. *Organic Geochemistry*, 37(9): 1036–1041. <https://doi.org/10.1016/j.orggeochem.2006.05.008>
- Inglis, G. N., Farnsworth, A., Lunt, D., et al., 2015. Descent toward the Icehouse: Eocene Sea Surface Cooling Inferred from GDGT Distributions. *Paleoceanography*, 30(7): 1000–1020. <https://doi.org/10.1002/2014pa002723>
- Li, J. J., Naafs, B. D. A., Pancost, R. D., et al., 2017. Distribution of Branched Tetraether Lipids in Ponds from Inner Mongolia, NE China: Insight into the Source of BRGDGTs. *Organic Geochemistry*, 112: 127–136. <https://doi.org/10.1016/j.orggeochem.2017.07.005>
- Li, J. J., Pancost, R. D., Naafs, B. D. A., et al., 2016. Distribution of Glycerol Dialkyl Glycerol Tetraether (GDGT) Lipids in a Hypersaline Lake System. *Organic*

- Geochemistry*, 99: 113–124. <https://doi.org/10.1016/j.orggeochem.2016.06.007>
- Li, J. J., Pancost, R. D., Naafs, B. D. A., et al., 2019. Multiple Environmental and Ecological Controls on Archaeal Ether Lipid Distributions in Saline Ponds. *Chemical Geology*, 529: 119293. <https://doi.org/10.1016/j.chemgeo.2019.119293>
- Li, J. J., Yang, H., Zheng, F. F., et al., 2021. Occurrence and Distribution of Glycerol Dialkyl Glycerol Tetraethers in Lake Water Column: A Review. *Journal of Lake Sciences*, 33(5): 1334–1349 (in Chinese with English abstract).
- Ma, R. H., Yang, G. S., Duan, H. T., et al., 2011. China's Lakes at Present: Number, Area and Spatial Distribution. *Science China Earth Sciences*, 54(2): 283–289. <https://doi.org/10.1007/s11430-010-4052-6>
- Naeher, S., Peterse, F., Smittenberg, R. H., et al., 2014. Sources of Glycerol Dialkyl Glycerol Tetraethers (GDGTs) in Catchment Soils, Water Column and Sediments of Lake Rotsee (Switzerland) — Implications for the Application of GDGT-Based Proxies for Lakes. *Organic Geochemistry*, 66: 164–173. <https://doi.org/10.1016/j.orggeochem.2013.10.017>
- Pearson, E. J., Juggins, S., Talbot, H. M., et al., 2011. A Lacustrine GDGT - Temperature Calibration from the Scandinavian Arctic to Antarctic: Renewed Potential for the Application of GDGT-Paleothermometry in Lakes. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 75(20): 6225–6238. <https://doi.org/10.1016/j.gca.2011.07.042>
- Powers, L., Werne, J. P., Vanderwoude, A. J., et al., 2010. Applicability and Calibration of the TEX<sub>86</sub> Paleothermometer in Lakes. *Organic Geochemistry*, 41(4): 404–413. <https://doi.org/10.1016/j.orggeochem.2009.11.009>
- Powers, L. A., Werne, J. P., Johnson, T. C., et al., 2004. Crenarchaeotal Membrane Lipids in Lake Sediments: A New Paleotemperature Proxy for Continental Paleoclimate Reconstruction?. *Geology*, 32(7): 613–616. <https://doi.org/10.1130/g20434.1>
- Schouten, S., Hopmans, E. C., Schefuß, E., et al., 2002. Distributional Variations in Marine Crenarchaeotal Membrane Lipids: A New Tool for Reconstructing Ancient Sea Water Temperatures?. *Earth and Planetary Science Letters*, 204(1–2): 265–274. [https://doi.org/10.1016/S0012-821X\(02\)00979-2](https://doi.org/10.1016/S0012-821X(02)00979-2)
- Schouten, S., Hopmans, E. C., Sinninghe Damsté, J. S., 2013. The Organic Geochemistry of Glycerol Dialkyl Glycerol Tetraether Lipids: A Review. *Organic Geochemistry*, 54: 19–61. <https://doi.org/10.1016/j.orggeochem.2012.09.006>
- Schouten, S., van der Meer, M. T. J., Hopmans, E. C., et al., 2007. Archaeal and Bacterial Glycerol Dialkyl Glycerol Tetraether Lipids in Hot Springs of Yellowstone National Park. *Applied and Environmental Microbiology*, 73(19): 6181–6191. <https://doi.org/10.1128/AEM.00630-07>
- Sinninghe Damsté, J. S., Rijpstra, W. I., Hopmans, E. C., et al., 2014. Ether- and Ester-Bound Iso-Diabolic Acid and other Lipids in Members of Acidobacteria Subdivision 4. *Applied and Environmental Microbiology*, 80(17): 5207–5218. <https://doi.org/10.1128/AEM.01066-14>
- Sun, Q., Chu, G. Q., Liu, M. M., et al., 2011. Distributions and Temperature Dependence of Branched Glycerol Dialkyl Glycerol Tetraethers in Recent Lacustrine Sediments from China and Nepal. *Journal of Geophysical Research*, 116(G1): G01008. <https://doi.org/10.1029/2010jg001365>
- Tierney, J. E., Russell, J. M., 2009. Distributions of Branched GDGTs in a Tropical Lake System: Implications for Lacustrine Application of the MBT/CBT Paleoproxy. *Organic Geochemistry*, 40(9): 1032–1036. <https://doi.org/10.1016/j.orggeochem.2009.04.014>
- van Bree, L. G. J., Peterse, F., Baxter, A. J., et al., 2020. Seasonal Variability and Sources of In Situ BRGDGT Production in a Permanently Stratified African Crater Lake. *Biogeosciences*, 17(21): 5443–5463. <https://doi.org/10.5194/bg-17-5443-2020>
- Wang, H. Y., Dong, H. L., Zhang, C. L., et al., 2014. Water Depth Affecting Thaumarchaeol Production in Lake Qinghai, Northeastern Qinghai-Tibetan Plateau: Implications for Paleo Lake Levels and Paleoclimate. *Chemical Geology*, 368: 76–84. <https://doi.org/10.1016/j.chemgeo.2014.01.009>
- Wang, H. Y., Liu, W. G., Lu, H. X., 2016. Appraisal of Branched Glycerol Dialkyl Glycerol Tetraether-Based Indices for North China. *Organic Geochemistry*, 98: 118–130. <https://doi.org/10.1016/j.orggeochem.2016.05.013>
- Wang, M. D., Tian, Q., Li, X. M., et al., 2020. TEX<sub>86</sub> as a Potential Proxy of Lake Water pH in the Tibetan Plateau. *Palaeogeography, Palaeoclimatology, Palaeoecology*, 538: 109381. <https://doi.org/10.1016/j.palaeo.2019.109381>
- Weijers, J. W. H., Schouten, S., Hopmans, E. C., et al., 2006. Membrane Lipids of Mesophilic Anaerobic Bacteria Thriving in Peats have Typical Archaeal Traits. *Envi-*

- ronmental Microbiology*, 8(4): 648–657. <https://doi.org/10.1111/j.1462-2920.2005.00941.x>
- Weijers, J. W. H., Schouten, S., van den Donker, J. C., et al., 2007. Environmental Controls on Bacterial Tetraether Membrane Lipid Distribution in Soils. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 71(3): 703–713. <https://doi.org/10.1016/j.gca.2006.10.003>
- Xie, S., Pancost, R. D., Chen, L., et al., 2012. Microbial Lipid Records of Highly Alkaline Deposits and Enhanced Aridity Associated with Significant Uplift of the Tibetan Plateau in the Late Miocene. *Geology*, 40(4): 291–294. <https://doi.org/10.1130/g32570.1>
- Xie, S.C., Hu, C.Y., Gu, Y.S., et al., 2015. Paleohydrological Variation since 13 ka BP in Middle Yangtze Region. *Earth Science*, 40(2): 198–205 (in Chinese with English abstract).
- Yang, H., Pancost, R. D., Dang, X. Y., et al., 2014. Correlations between Microbial Tetraether Lipids and Environmental Variables in Chinese Soils: Optimizing the Paleo-Reconstructions in Semi-Arid and Arid Regions. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 126: 49–69. <https://doi.org/10.1016/j.gca.2013.10.041>
- Yao, Y., Zhao, J. J., Bauersachs, T., et al., 2019. Effect of Water Depth on the TEX<sub>86</sub> Proxy in Volcanic Lakes of Northeastern China. *Organic Geochemistry*, 129: 88–98. <https://doi.org/10.1016/j.orggeochem.2019.01.014>
- Zhang, Y. G., Pagani, M., Wang, Z. R., 2016. Ring Index: A New Strategy to Evaluate the Integrity of TEX<sub>86</sub> Paleothermometry. *Paleoceanography*, 31(2): 220–232. <https://doi.org/10.1002/2015pa002848>
- Zhang, Y. G., Zhang, C. L., Liu, X. L., et al., 2011. Methane Index: A Tetraether Archaeal Lipid Biomarker Indicator for Detecting the Instability of Marine Gas Hydrates. *Earth and Planetary Science Letters*, 307(3/4): 525–534. <https://doi.org/10.1016/j.epsl.2011.05.031>
- Zheng, F.F., Chen, Y.F., Wang, Y.L., et al., 2018. Influence of Seasonal Temperature Variation and pH Disparity on BGDGTS Thermometers in Soils. *Earth Science*, 43(S1): 71–83 (in Chinese with English abstract).
- Zhu, G.W., Xu, H., Zhu, M.Y., et al., 2019. Changing Characteristics and Driving Factors of Trophic State of Lakes in the Middle and Lower Reaches of Yangtze River in the Past 30 Years. *Journal of Lake Sciences*, 31(6): 1510–1524 (in Chinese with English abstract).
- Zhu, X.C., Wang, Y.B., Dang, X.Y., et al., 2022. Spatiotemporal Distribution of Microbial Tetraether Lipids in a Lake and Its Inflowing River: Implications for the Identification of Flooding Events. *Journal of Earth Science*, 33(6): 1601–1613. <https://doi.org/10.1007/s12583-021-1552-6>

#### 附中文参考文献

- 李婧婧, 杨欢, 郑峰峰, 等, 2021. 湖泊水体微生物四醚膜脂化合物研究进展. *湖泊科学*, 33(5): 1334–1349.
- 谢树成, 胡超涌, 顾延生, 等, 2015. 最近 13 ka 以来长江中游古水文变化. *地球科学*, 40(2): 198–205.
- 郑峰峰, 陈雨霏, 王永莉, 等, 2018. 季节温度变化及土壤 pH 差异对土壤 bGDGTs 温度指标的影响. *地球科学*, 43(S1): 71–83.
- 朱广伟, 许海, 朱梦圆, 等, 2019. 三十年来长江中下游湖泊富营养化状况变迁及其影响因素. *湖泊科学*, 31(6): 1510–1524.