

• 专题 10: 地球关键带物质循环与全球变化 •

岩性-气候协同调控流域碳循环

钟君^{1*}, 李思亮¹, 徐胜¹, 刘丛强¹

1. 天津大学 地球系统科学学院, 天津 300072

流域碳循环是全球碳循环的关键组成部分,对气候变化具有重要调控作用。河流中的溶解无机碳(DIC)约占河流输出碳的 50%,但其来源和循环机制仍不明确。本研究基于大河流域 DIC 浓度与流量的时间序列数据,构建了溶质生成模型,揭示了水文条件对 DIC 运输的影响。结合全球数据,我们进一步确认岩性在控制河流 DIC 动态及输出通量中的关键作用。这与传统观点中“DIC 源自岩石风化”相一致,但研究发现 DIC 的同位素组成($\delta^{13}\text{C}_{\text{DIC}}$ 和 $\Delta^{14}\text{C}_{\text{DIC}}$)与岩性并无显著相关性,挑战了传统理论。我们进一步分析了长江上游地区的主要离子浓度、硫酸盐硫同位素、 $\delta^{13}\text{C}_{\text{DIC}}$ 和 $\Delta^{14}\text{C}_{\text{DIC}}$,探讨了地理因素对流域碳循环时空变化的影响。构建了 DIC 输出的

水文-地球化学模型,结果显示该模型能够较好地反映测量数据中的时间变化,并支持 DIC 在大江大河中的保守混合行为。长江上游的 DIC 通量为 0.5~1.5 Mmol/(km²·a),主要由碳酸盐岩风化贡献。通过 $\Delta^{14}\text{C}_{\text{DIC}}$ 估算开放度参数(ψ , 范围从 0 到 1),结果表明 ψ 与流域平均海拔密切相关,说明海拔变化引起的气候差异(如降水和温度)在碳交换过程中起着重要控制作用。研究表明,碳酸盐岩的同位素示踪方法可能存在一定误差,而土壤 CO₂ 才是河流 DIC 的主要来源。岩性决定了 DIC 的横向迁移,而气候条件则主导了土壤呼吸及 DIC 的纵向交换。

关键词: 流域碳循环; 同位素; 岩性; 气候

• 专题 10: 地球关键带物质循环与全球变化 •

农田土壤中铊富集特征的研究进展

蒋顺龙¹, 刘娟^{1*}, 石雨¹

1. 广州大学 环境科学与工程学院, 广州 510006

铊 (Thallium, Tl) 是一种高毒性稀有金属, 其化合物具有强蓄积性和神经毒性。铊可通过消化道、呼吸道及皮肤接触等多种途径进入人体, 并在体内蓄积, 引发视神经损伤、肌肉萎缩等典型中毒症状, 严重时可导致多器官功能衰竭甚至死亡。由于其剧毒性, 铊被全球大多数国家列入优先控制污染物之一。我国也将列入铊“十四五”新增重点防控重金属之一。国际上虽严格控制铊的使用, 但每年仍有超 5000 吨 Tl 通过多种工业活动进入环境。含铊矿石的开采、冶炼及加工导致大量铊通过尾矿

淋滤、工业废水排放及大气沉降等途径进入土壤环境。进入土壤中的铊迁移性强且难以降解, 可经作物吸收进入食物链, 最终可严重威胁人体健康。本课题组扎根于环境中铊环境行为及其污染控制研究近二十年。本文系统梳理了全球土壤铊污染现状、主要来源及当前的修复治理技术, 以为典型区域农田土壤铊污染修复与控制提供科学的理论依据与重要参考。

关键词: 铊; 土壤; 富集; 生态风险; 农作物

• 专题 10: 地球关键带物质循环与全球变化 •

河流水体溶解性有机质来源及转化过程的同位素示踪研究

张东¹, 张俊文², 吴娜², 贺美丽², 韩伽骏¹, 孙瀚林¹,
杨小溪¹, 于婧淼¹, 赵志琦^{2*}

1. 上海海洋大学 海洋科学与生态环境学院, 上海 201306;

2. 长安大学 地球科学与资源学院, 西安 710054

溶解性有机碳 (Dissolved organic carbon, DOC) 是水体环境重要的有机碳库, 为微生物和水生植物提供碳源。DOC 浓度与组成反映环境中有机污染物输入与转化, 影响重金属在水中的迁移、沉淀和生物可利用性, 还能反映降水和土地利用变化对水体生态系统的影响。汉江是南水北调中线重要水源地, 水质情况与丹江口水库出水质量密切相关, 但目前对于汉江流域水体 DOC 来源及转化过程仍不清楚。通过丰水期采集汉江干流、支流及沿岸地下水水体样品, 借助 DOC 浓度以及碳同位素 ($\delta^{13}\text{C}_{\text{DOC}}$) 组成, 结合水化学指标, 辨析自然因素与人为活动对碳循环的影响。结果表明: (1) 丰水期汉江干流水体 DOC 浓度范围 1.54~3.38 mg/L, 均值为 2.34 mg/L ($n=28$), 支流河水 DOC 浓度范围 0.97~4.52 mg/L, 均值为 2.59 mg/L ($n=30$), 地下水 DOC 浓度范围 0.44~5.16 mg/L, 均

值为 1.56 mg/L ($n=17$); (2) 丰水期汉江干流水体 $\delta^{13}\text{C}_{\text{DOC}}$ 值范围 -30.1‰ ~ -27.1‰ , 均值为 -28.3‰ ($n=28$), 支流河水 $\delta^{13}\text{C}_{\text{DOC}}$ 值范围 -30.9‰ ~ -27.3‰ , 均值为 -28.9‰ ($n=30$), 地下水 $\delta^{13}\text{C}_{\text{DOC}}$ 值范围 -30.1‰ ~ -20.8‰ , 均值为 -25.6‰ ($n=17$); (3) 汉江流域水体中自然来源 DOC 具有浓度低且 $\delta^{13}\text{C}_{\text{DOC}}$ 值偏负的特征, 人为输入来源 DOC 具有浓度高且 $\delta^{13}\text{C}_{\text{DOC}}$ 值偏正的特征。单一 DOC 降解过程中同位素分馏机制不能很好地解释汉江流域 DOC 浓度以及 $\delta^{13}\text{C}_{\text{DOC}}$ 值变化, 自然过程和人为输入叠加, 同时 DOC 降解机制, 共同控制了汉江流域河水 DOC 的空间变化。研究结果为汉江流域水资源管理提供科学依据。

关键词: 汉江流域; 溶解性有机碳; 碳同位素; 来源; 转化过程

基金项目: 陕西省自然科学基金基础研究计划重点项目 (2022JZ-19); 国家自然科学基金项目 (42073009); 上海市自然科学基金面上项目 (24ZR1428900)。

第一作者简介: 张东 (1978-), 教授, 研究方向: 环境地球化学. Email: d-zhang@shou.edu.cn

*通讯作者简介: 赵志琦 (1970-), 教授, 研究方向: 稳定同位素地球化学. Email: zhaozhiqi@chd.edu.cn

• 专题 10: 地球关键带物质循环与全球变化 •

还原态含铁黏土矿物向铁（氢）氧化物传递 电子的机制与环境效应

钱傲^{1,2}, 郑云松², 张鹏^{2,3}, 袁松虎^{2,3*}

1. 江汉大学 环境与健康学院, 武汉 430056;

2. 中国地质大学(武汉)生物地质与环境地质国家重点实验室, 武汉 430074;

3. 中国地质大学(武汉)环境学院, 武汉 430074

电子传递(ET)是元素循环和污染物衰减等众多生物地球化学过程的核心,但不同矿物间ET机制与引起的环境效应尚不清楚。本研究首先使用表面结合态Fe(II)变化指示矿物间ET程度,研究了还原态绿脱石(rNAu-2)与铁(氢)氧化物之间ET。研究表明,rNAu-2可以向水铁矿(Ferrihydrite)传递电子,但不能向针铁矿(Goethite)传递电子,ET程度由矿物间反应位点及电势差决定。ET主要通过矿物-矿物界面进行,Fhy插入rNAu-2层间,在此rNAu-2中结构态Fe(II)通过基面向Fhy传递电子。进一步研究发现矿物间电子传递会影响重金属Cr(VI)的迁移转化。构建反应动力学模型定量评

估矿物间电子传递对重金属Cr(VI)还原的影响,结果表明,矿物间电子传递对Cr(VI)的介导还原作用随水铁矿浓度增加而增加,随pH降低而增加。不同pH条件下矿物间电子传递介导Cr(VI)还原的相对百分比分别为25%~86.5%(pH 5.5)、22.4%~76.4%(pH 7.0)和1.9%~10.3%(pH 9.0)。矿物是土壤/沉积物的重要组成部分,其中不同还原电位的矿物经常共存,因此矿物-矿物界面ET可能在地下环境生物地球化学过程中扮演着重要作用。

关键词: 还原态含铁黏土矿物; 铁(氢)氧化物; 电子传递; 氧化还原; Cr(VI)还原

基金项目: 国家自然科学基金项目(42102040, 42025703)

第一作者简介: 钱傲(1989-), 讲师, 研究方向: 矿物界面化学与环境效应。Email: qianao.cug@outlook.com

*通信作者简介: 袁松虎(1979-), 教授, 研究方向: 地下水动态变化环境水文地球化学过程、水/岩界面氧化还原过程和地下水修复。Email: yuansonghu622@cug.edu.cn

• 专题 10: 地球关键带物质循环与全球变化 •

土壤草酸盐的细菌降解及其环境效应

连宾^{1*}

1. 南京师范大学 海洋科学与工程学院, 南京 210023

草酸盐是以阴离子 ($C_2O_4^{2-}$) 与金属或有机阳离子结合的一类化合物 (如草酸钙和草酸镁等), 广泛存在于生物体和环境中。草酸盐在土壤中尤为常见, 这与植物以及一些土壤生物需要获取土壤矿质元素有密切关联。植物生长所需的矿质元素 (如磷、钾、钙、镁、铁和锌等) 在土壤中常以矿物形态存在, 难以被吸收利用, 而植物和微生物在长期的进化中已获得在不同环境中有效利用矿质养分的“技能”, 如: 它们能分泌小分子有机酸和铁载体等风化介质促进矿物风化, 其中广泛分布于植物、动物和真菌中的草酸 (化学式为 $H_2C_2O_4$) 就是促进土壤矿物风化的一个重要介质。草酸能解离出氢离子驱动一些难溶性矿物质的溶解, 草酸根离子还可通过其较强的络合能力促进矿物风化, 但草酸根阴离子容易与许多金属阳离子形成难溶性草酸盐络合物, 覆盖在矿物、菌丝和植物根系的表面, 阻碍生物体对矿质营养的吸收及其对矿物的持续风化, 所以草酸又被认为是矿质营养吸收的拮抗物。草酸是植物常有的成分, 植物体内的草酸合成之后多以钾盐或钙盐的形式存在, 并发挥特定的生理功能, 如植物体内的草酸钙就具有维持钙离子平衡、妨碍昆虫取食和解毒作用等。植物草酸盐还会随植物残体、枯枝落叶再返回土壤并逐渐积累, 从而增加土壤草酸盐的含量。过量积累的草酸盐能妨碍多种土壤生物的取食

活动及植物根系的养分吸收, 进而影响土壤的生态功能, 故而避免草酸盐在土壤中的积累对维护健康的土壤生态环境非常必要。草酸盐降解菌是一类能有效降解草酸盐物质的细菌, 它们能将植物和真菌产生的草酸和草酸盐转化成碳酸盐, 这不仅使草酸盐中的有机碳被细菌有效利用, 减轻草酸盐的负面影响, 而且部分有机碳还能被转变为存留时间更长的矿物态碳, 故具有增加土壤无机碳汇的潜能。不仅如此, 在草酸盐和碳酸盐的转化过程中, 被草酸盐固定的金属离子会被活化, 提高了金属离子的生物有效性。另外, 土壤草酸盐降解后也有利于植物及其它土壤生物的生命活动及对矿物的持续风化, 从而促进土壤生态环境的改善。由于土壤组成的复杂性和多重环境因素的影响, 有关土壤草酸盐的细菌降解研究仍有很多值得探究的科学问题, 如: 草酸盐细菌降解的调控过程与影响因素, 草酸盐细菌降解与碳酸盐合成的耦联作用, 草酸盐降解转化的环境效应等, 对这些问题的研究将有助于全面理解土壤矿物生物风化所引起的元素迁移、转化及固定的生物地球化学机制, 为维护土壤生态系统功能和进一步研究地球关键带物质循环与全球变化关系提供新思路。

关键词: 草酸盐; 草酸盐降解菌; 生物降解; 环境效应; 土壤

• 专题 10: 地球关键带物质循环与全球变化 •

含水层介质中含铁活性矿物的氧化还原活性 及其对污染物非生物自然衰减的指示意义

杨珊珊^{1*}

1. 中国地质大学(北京)水资源与环境学院, 北京 100083

含水层介质中的铁以不同的状态赋存,各自代表着不同的地球化学状态和反应性。不同形态铁是含水层介质中电子交换容量的主要贡献者之一,电子供体是地下水系统发生非生物自然衰减的关键因素。本研究收集实际含水层沉积物并以硝基苯为代表性污染物,分析含水层介质中铁形态分布、电子交换容量和非生物衰减速率。结果表明在含水层介质中铁是含水层介质中 EEC 的主要来源。 Fe_{Si} 同时含有 Fe(II) 和 Fe(III), 导致 Fe_{Si} 对含水层介质 EEC 的贡献较为复杂, 并影响以其余形态赋存的铁与 EEC 之间的关系。当 Fe_{Si} 含量较低时, Fe_{carb} 与供给电子容量之间存在

良好的线性相关关系。 Fe_{Si} 的热力学氧化往往受到矿物结构的约束, 因此不能参与到污染物的还原降解。那么 EDC 不能代表含水层介质中能够参与非生物衰减的电子供体总量。而 Fe_{carb} 含量与非生物衰减速率呈良好线性关系。另收集样品对此关系进行验证, 结果证明 Fe_{carb} 对非生物衰减速率具有预测作用。我们的研究结果揭示了铁形态对含水层介质 EEC 和 ANA 速率的重要指示意义。

关键词: 地下水系统; 氧化还原活性; 铁赋存状态; 介导电化学

基金项目: 国家自然科学基金项目(42277050)

第一作者/*通信作者简介: 杨珊珊(1991-), 副教授, 研究方向: 矿物与有机质的相互作用、地下水污染修复研究. Email: shanshany1202@cugb.edu.cn

• 专题 10: 地球关键带物质循环与全球变化 •

气候驱动下页岩关键带土壤碳迁移转化与 风化作用机制研究

王诗琳¹, 文航^{1*}

1. 天津大学 地球系统科学学院, 天津 300072

土壤和基岩作为最大的陆地碳库,其在复杂地形和气候梯度下碳迁移转化及其对化学风化作用机制仍不明确。本研究基于美国宾夕法尼亚州 Shale Hills 流域的土壤和溪流水化学、水文和地形数据集,构建流域尺度反应输运模型,揭示了水文-气候-地形协同调控下的碳通量耦合机制。研究表明,土壤呼吸产生的年碳通量中约 1.0%通过横向迁移进入河流系统,其余垂直迁移至大气中。气候变化驱动显著季节性差异:受强降水影响,冷湿季节每日横向碳迁移比例可骤增至 39.2%;年均硅酸盐风化速率呈现约 20%的季节性波动,其主导控制因素从冷湿季节的土壤二氧化碳(CO₂)浓度转变为干热季节的水分有效性。在常年湿润的谷底区域,硅酸盐风化对温度调控的土壤

CO₂浓度更敏感,而中坡和山脊顶部对土壤水分有效性变化的响应更为显著。而基岩深部的碳酸盐风化由黄铁矿氧化作用驱动且对气候变化无显著响应。在冷湿条件下,呼吸与风化产生的碳通量均随径流增加显著上升,并且呼吸敏感性的增加能够显著增加年尺度上横向碳迁移的比例、页岩风化速率以及溶质输出。本研究深入探讨了气候和地形对页岩关键带风化和碳通量的调控机制,进一步加深了对关键带碳循环的理解,为精准评估气候变化背景下关键带碳封存潜力及地表碳平衡演变提供了科学支撑。

关键词: 土壤呼吸; 化学风化作用; 气候变化; 页岩流域

基金项目: 国家自然科学基金项目(41925002)

作者简介: 王诗琳(2000-),女,硕士研究生,研究方向:流域生物地球化学循环模拟, E-mail: wangshilin910@163.com

*通信作者: 文航(1987-),男,博士,副教授,研究方向:地球关键带和生物地球化学, E-mail: wenhang@tju.edu.cn

• 专题 10: 地球关键带物质循环与全球变化 •

硅 (Si) 同位素地球化学与硅质岩成因机理的研究进展

郑凯航¹, 朱光有^{1*}

1. 长江大学 (武汉校区), 武汉 430000

准确判识硅质岩 (SiO_2) 的成因机理一直是地质学研究中的难点问题。作为硅质岩的直接示踪同位素, 硅 (Si) 同位素在揭示硅质岩成因机理方面潜力巨大。近年来, 随着高精度 Si 同位素测试分析技术的快速发展, 运用 Si 同位素示踪不同硅质岩的硅质来源、迁移过程、沉积-成岩演化背景等方面取得了重大进展。为进一步推动 Si 同位素在约束硅质岩成因机理中更广泛的应用, 本文回顾了硅质岩成因类型, Si 同位素的分析测试方法、分馏机理、以及其在硅质岩成因研究中的应用, 取得如下认识: 硅质岩按成因类型可分为热水成因、火山成因、生物成因和交代成因。多接收电感耦合等离子质谱法和二次离子质谱法在 Si 同位素测试中都具有较高的精度, 分别可达优于 $\pm 0.10\%$ 和 $\pm 0.10\% \sim \pm 0.22\%$ 。Si 同位素分馏机理涉及多个方面, 扩散作用会造成 Si 同位素的选择性迁移并且影响同位素分馏的程度。温度、压力和化学成分等因素在凝结过程中共同作用, 决定了 Si 同位素的分馏程度。蒸发作用通过改变熔体的化

学成分和物理性质, 影响 Si 同位素的分馏。在低温地质作用中, Si 同位素分馏比高温地质过程更为显著, 例如化学风化、生物-非生物沉淀、生物吸收、吸附等过程。生物在吸收硅的过程中会引起同位素分馏, 从而导致生物地球化学过程中硅同位素相对丰度发生变化。不同生物在吸收过程中对 Si 同位素分馏存在差异。Si 同位素在硅质岩成因研究中的应用展现了其独特优势, 如揭示热液硅质岩的热液活动特征、火山硅质岩的岩浆起源和演化、生物硅质岩的形成机制以及交代硅质岩的硅质来源。为更准确判识硅质岩成因机理, 未来的研究需要在提高 Si 同位素分析测试精度、积累大样本数据、明确分馏机理和构建成因理论模型等深入探索。本文展示了 Si 同位素在硅质岩成因研究中的独特优势和重要意义, 为未来的研究方向和应用领域提供了有益的参考。

关键词: Si 同位素; 分馏机理; 硅质岩; 成因机理; 硅质来源

基金项目: 本文为中国国家自然科学基金委员会资助项目 (编号: 42073068) 的成果。

第一作者简介: 郑凯航 (2002-), 硕士研究生, 地质学专业, 主要从事石油与天然气地质学研究; Email: geozhengkaihang@126.com。

*通讯作者简介: 朱光有 (1973-), 博士, 主要从事石油与天然气地质学, 地球化学研究; Email: zhuguangyou@yangtzeu.edu.cn。

• 专题 10: 地球关键带物质循环与全球变化 •

碳酸盐岩石风化增强全球河流氮同化过程

祁虹凯¹, 刘易^{1,2*}, 王浩然¹, 匡星星³, Aditya Nugraha Putra⁴,
焦赳赳⁵, 甘剑平^{2,6}

1. 香港科技大学(广州)地球与海洋大气科学学域, 广州 510000;

2. 港澳海洋研究中心, 香港 999077;

3. 南方科技大学 环境科学与工程学院, 广东 深圳 518000;

4. University Brawijaya, Department of Soil Science, Faculty of Agriculture,

Veteran Steer Malang, Indonesia 065145;

5. 香港大学 地球科学系, 香港 999077;

6. 香港科技大学 海洋科学系, 香港 999077

碳酸盐岩石风化为河流贡献大量溶解无机碳, 进而参与并影响河流的碳循环。然而, 地质背景对于河流氮循环的影响却往往被忽视。本研究通过珠江流域全流域的野外调查发现, 在雨季碳酸盐岩地区(溶解无机碳较高)溶解有机氮的分布与溶解无机氮及光照强度相一致, 但这一现象并未在非碳酸盐岩地区(溶解无机碳较低)出现。原位培养对比实验证实, 高溶解无机碳相较于低溶解无机碳存在对于氮同化(有机氮生成)过程的促进作用。这一促进作用及有机氮的差异分布由于受到温度和光照的限制, 在旱季并不明

显。这一发现并非仅存于珠江流域, 我们在印度尼西亚玛琅地区的不同地质背景的河流中观测到相同的有机氮分布差异现象。基于全球已发表的观测数据分析, 我们发现这一现象普遍存在于全球河流中。我们通过米氏方程纳入溶解无机碳限制因子更好的拟合了全球有机氮沿纬度的分布, 从而进一步证实了 DIC 影响氮同化作用这一长期被忽视的全球性现象。

关键词: 碳酸盐岩风化; 河流; 溶解无机碳; 氮同化

基金项目: 本研究受到香港研究资助局卓越学科领域计划(项目编号: AoE/P-601/23-N), 广州市校联合资助专题(香港科技大学(广州))基础与应用基础研究项目(项目编号: 2023A03J0640), 广东省土壤与地下水污染控制重点实验室(项目编号: 2023B1212060002), 及港澳海洋中心资助。

第一作者简介: 祁虹凯(1996-), 博士研究生, 研究方向: 流域水文地质及氮循环。Email: chrisgardnerqihk@hotmail.com

*通信作者简介: 刘易(1987-), 助理教授, 研究方向: 水文地质学。Email: yiliuyi@hkust-gz.edu.cn

• 专题 10: 地球关键带物质循环与全球变化 •

镁同位素示踪青藏高原湖泊反风化作用及通量

胡忠亚^{1*}, 杨守业¹, 苏妮¹, 韩中²

1. 同济大学, 上海 200092;
2. 成都理工大学, 成都 610059

青藏高原周缘河流的镁同位素指标被广泛用于示踪流域大陆风化过程及二氧化碳消耗通量。为了进一步了解青藏高原腹地地区的风化碳循环, 我们采集了高原腹地的河流和湖泊水样以及古湖泊沉积物, 系统分析了元素和镁同位素组成变化, 并与世界其它大型河流开展了对比研究。结果显示高原腹地地区的河水的 $\delta^{26}\text{Mg}$ 值在 -2.00% ~ -0.60% 之间, 平均值约为 $-1.12\% \pm 0.60\%$ 。河水中镁元素主要来源于白云岩和硅酸盐风化, 热泉以及雨水的贡献很少。与入湖河水相比, 封闭湖泊内的水体具有相对较低的 Ca/Na 、 Mg/Na 、 Al/Na 和 Si/Na 比值。但是水体整体相对富集 ^{26}Mg , 平均 $\delta^{26}\text{Mg}$ 值为 $-0.61\% \pm 0.65\%$ 。依据元素相对亏损情况以及镁同位素变化, 开展了元素和同位素数值模拟分析, 结果表明湖泊内的含镁自生矿物沉积作用大约消耗了入湖河流带

来的近 90% 的镁离子, 其中矿物与水之间的镁同位素分馏程度 ($\Delta^{26}\text{Mg}_{\text{矿物-水}}$) 大约在 -0.09% ~ 0.06% 之间。古湖泊沉积物的扫描电镜观测结果显示, 湖泊自生含镁矿物由富镁碳酸盐矿物以及自生粘土矿物两部分组成。因此, 该分馏系数反映了富镁碳酸盐矿物与自生粘土矿物 (反风化) 共沉淀作用对湖水镁同位素的分馏影响。基于此, 我们进一步开展了镁同位素质量平衡计算, 结果表明, 在湖泊镁循环过程中, 反风化作用消耗的镁元素占封闭湖泊内总镁输出量的 80%。这些研究表明青藏高原封闭湖泊内反风化作用强烈, 反风化所释放的 CO_2 可以在很大程度上抵消流域内的风化石消耗。

关键词: 青藏高原; 反风化; 镁同位素; 风化; 碳循环

国家自然科学基金项目 (42230410, 42373005)

作者简介:

胡忠亚, 同济大学, 副教授, 研究方向: 主量元素循环及气候效应. Email: zhongyahu@tongji.edu.cn

杨守业, 同济大学, 教授, 研究方向: 边缘海“源-汇”过程及关键元素循环. Email: syyang@tongji.edu.cn

苏妮, 同济大学, 副教授, 研究方向: 流域风化. Email: nsu@tongji.edu.cn

韩中, 成都理工大学, 副研究员, 研究方向: 古海洋古气候古生物. Email: hanzhong19@cdut.edu.cn

• 专题 10: 地球关键带物质循环与全球变化 •

黑色页岩的风化控制环境中有机结合态硒的赋存和转化

刘权¹, 皮坤福^{1*}, 王焰新¹

1. 中国地质大学(武汉)环境学院, 武汉 430074

不合理的硒摄入是一个全球性的健康问题,与作物中的硒含量密切相关,而作物中的硒含量则直接受土壤中生物有效性硒的控制。尽管已有研究证明,土壤硒来源于富含有机质的母岩,并且硒在岩石中的形态及其释放机制决定了其在土壤中的生物有效性,但硒在整个成土作用中其赋存形式及转化机制仍不清楚。黑色页岩是全球众多富硒土壤的主要母质。长期以来,人们普遍认为黑色页岩的风化会将硒释放到地表环境中。与地壳平均硒丰度(约 0.05~0.09 mg/kg)相比,黑色页岩作为一种富含有机质的沉积岩,通常富集了更多对氧化还原敏感的硒。硒在黑色页岩中既与有机质结合,也与硫化物矿物具有亲和性。因此研究黑色页岩风化过程中硒的地球化学行为有利于深化我们对硒来源以及富集成因的理解。以深入揭示地表硒的形态分布及其转化机制为目的,本研究选择了中国恩施地区富硒黑色页岩风化壳剖面作为研究对象,以探讨硒的地球化学行为。为了查明黑色页岩在风化过程中的有机质变化,实验采用了 X 射线光电子能谱(XPS)和固体核磁共振(SSNMR)等有机质表征技术对不同风化层单元进行分析。成土作用过程中硒的分馏是研究其地球化学行为的基础。随后,

采用连续化学提取法研究风化层剖面中硒的分布、赋存形态及其转化过程,在一定程度上揭示了风化过程中不同形态硒之间的相互作用。由于自然环境中硒的含量极低,传统方法难以直接观测其与其他元素的相互作用。因此,我们选择了不同风化壳单元中的黑色页岩,并采用纳米级二次离子质谱(NanoSIMS)等原位微区表征技术直接分析黄铁矿与铁氧化物矿物界面处硒与有机质的分布特征。研究结果表明,与硒结合的有机质主要以胺的形式存在。在黑色页岩风化过程中,硒的形态转化可分为两个主要阶段:(i)首先,从母岩向弱风化层的转化过程中,黄铁矿结合态硒主要会转化为有机结合态硒;(ii)在上以阶段完成后,有机结合态硒和铁氧化物结合态硒迅速分解,并转化为具有更高生物利用性和迁移性的硒形态,如水溶性硒和吸附态硒;(iii)在近表层的全风化层,土壤又会接受外源硒(以有机结合态硒为主)的补充。这一新发现为区域土壤硒富集提供了更精细、更深入的证据,对理解不同时期硒的地球化学循环具有重要意义。

关键词: 有机结合态硒; 黑色页岩; 风化作用; 赋存转化

基金项目: 国家自然科学基金项目(U2244218)

第一作者简介: 刘权(2001-), 硕士研究生, 研究方向: 硒在风化壳上的地球化学行为。Email: 20191001182@cug.edu.cn

*通讯作者简介: 皮坤福(1988-), 教授, 研究方向: 生源微量元素水文生物地球化学循环和水土污染与防治, 重点关注生源微量元素(如砷、硒、碘、氟)的来源、迁移转化、环境归趋和生态环境效应, 以及与公共健康的内在联系。Email: pikunfu@cug.edu.cn

作者简介: 王焰新(1963-), 教授, 研究方向: 主要从事水文地球化学、水污染控制、地下水污染及防治等领域的研究。Email: yx.wang@cug.edu.cn

• 专题 10: 地球关键带物质循环与全球变化 •

河岸带地质电池的结构特征与关键组分识别

张鹏^{1*}

1. 中国地质大学(武汉), 武汉 430078

通常氧化还原反应过程伴随着氧化剂或者还原剂的消耗, 而地质电池在氧化还原反应过程中自身结构和性质几乎不发生变化, 因此后者可以循环地参与氧化还原反应。目前研究证实磁铁矿、含铁黏土矿物和腐殖质可以充当地质电池材料, 然而关于实际沉积物能否充当地质电池尚不清楚。河岸带沉积物中富含大量的磁铁矿、含铁黏土矿物和腐殖质, 并且河岸带发生着频繁的河水-地下水交互作用, 因此有可能触发沉积物作为地质电池。为了验证上述假设, 本研究首先从汉江河岸带采集了 3 种不同岩性的沉积物开展模拟实验。3 轮氧化还原循环实验证实不同岩性

沉积物均可以循环地储存和释放电子, 并且反应后沉积物内部铁组分含量和结构几乎不发生变化, 因此可以推断河岸带沉积物可以作为地质电池。进一步本研究调查了河岸带场地地质电池的分布特征, 发现在河岸边以及临近的地下水水位波动带地质电池的电子交互容量比较高, 而远离河岸的区域的“地质电池”的电子交互容量较低, 其原因可能归结为河岸边以及地下水波动带氧化还原波动频繁, 从而激活了地质电池。

关键词: 河岸带; 地质电池; 氧化还原; 非均质

基金项目: 国家自然科学基金项目(42377056)

通讯作者简介: 张鹏(1989-), 副研究员, 研究方向: 河岸带水文地球化学. Email: zhangpeng@cug.edu.cn

• 专题 10: 地球关键带物质循环与全球变化 •

有机质进入黏土矿物层间的微生物驱动机制

刘冬^{1,2*}, 余荣达^{1,2}, 沈宇果^{1,2}, 刘浩^{1,2}, 王旭^{1,2}, 霍广铖^{1,2}

1. 中国科学院广州地球化学研究所 先进环境装备与污染防治技术全国重点实验室, 广州 510640;

2. 中国科学院大学, 北京 100049

黏土矿物层间可有效保护有机质, 是土壤固碳和土壤矿物泵作用的重要机制之一。土壤中的部分 2:1 型黏土矿物, 如蒙脱石、蛭石、伊蒙混层矿物和 1.4 nm 过渡矿物(羟基间层矿物)等层间长赋存有机质。这些层间有机质, 可有效避免环境物理、化学及生物等对其的破坏, 形成稳定固碳效应。然而, 这些有机质进入黏土矿物层间的驱动力和相关机制如何仍尚不清楚。这不仅制约了我们对黏土矿物-有机质复合体形成机制的认识, 还影响到对土壤固碳效应的明确。本研究以土壤中典型天然黏土矿物为研究对象, 开展了有无微生物条件下的土壤天然有机质插层试验实验研究。结果表明, 仅存在土

壤有机质的条件下, 有机质无法进入黏土矿物层间; 同样, 仅存在微生物时, 黏土矿物层间也未能发现有机质。然而, 同时存在有机质和微生物时, 蒙脱石、蛭石等矿物层间出现了有机碳的信号, 这表明部分有机分子进入了其层间。因此, 很有可能的是, 在微生物的作用下, 部分有机质大分子被分解为小分子, 通过阳离子交换作用进入黏土矿物层间。由此可见, 黏土矿物层间有机碳的形成, 受到了土壤微生物的驱动作用。

关键词: 黏土矿物; 层间有机质; 微生物作用; 固碳

• 专题 10: 地球关键带物质循环与全球变化 •

滨海湿地硫酸盐还原途径季节变化及其对甲烷排放影响

韩晓昆¹, 乔曼容¹, 刺伟², 丁虎¹, 郭庆军³, 李思亮¹, 郎赞超^{1*}

1. 天津大学 地球系统科学学院, 天津 300072;

2. 山西大学 环境与资源学院, 太原 030031;

3. 中国科学院地理科学与资源研究所, 北京 100101

硫酸盐还原型甲烷厌氧氧化过程 (S-AOM) 是调控滨海湿地甲烷排放的关键机制。然而, 滨海湿地沉积物中硫的循环过程及其对甲烷排放的影响尚不清楚。本研究通过采集夏季和冬季不同盐度滨海湿地沉积柱, 分析沉积物中甲烷、有机碳、不同形态铁和不同形态硫含量及其硫同位素组成, 探究沉积物中 S-AOM 和有机质硫酸盐还原过程 (OSR) 的季节变化特征及其对甲烷排放的影响。研究结果显示, 沉积物中酸可挥发性硫 (AVS) 和单质硫 (S^0) 的硫同位素组成以及硫酸盐和硫化物之间的硫同位素分馏系数呈现显著季节性垂向变化特征, 并且该变化与硫酸盐-甲烷转换带 (SMTZ) 季节性垂向变化一致, 证实滨海湿地沉积物中 S-AOM 和 OSR 的相对贡献比例

存在季节性垂向动态变化。研究表明, 夏季沉积物中 S-AOM 的反应速率较冬季高, 进而消耗更多硫酸盐和甲烷, 导致 SMTZ 垂向上移约 10~20 cm。此外, 研究显示滨海湿地水体高硫酸盐浓度促进沉积物中 S-AOM 对甲烷的消耗。本研究基于硫同位素示踪技术, 揭示了硫酸盐还原途径对 SMTZ 的动态响应规律, 完善了我们对滨海湿地沉积物碳-硫耦合过程的理解, 强调了硫酸盐还原过程演变对滨海湿地甲烷通量具有显著调控作用, 为制定缓解气候变化的生态调控策略奠定了科学基础。

关键词: 硫同位素; 硫酸盐还原途径; 甲烷厌氧氧化作用; 沉积物; 滨海湿地

基金项目: 国家自然科学基金 (42103052) 和国家科技基础资源调查专项 (2021FY101001)

第一作者简介: 韩晓昆, 副研究员, 研究方向: 硫同位素环境地球化学. E-mail: xiaokun_han@tju.edu.cn

*通信作者简介: 郎赞超, 教授, 研究方向: 地表物质水文地球化学循环及其同位素示踪. E-mail: yunchao.lang@tju.edu.cn

• 专题 10: 地球关键带物质循环与全球变化 •

有机质的激发效应及其对滨海地区碳汇的影响

戚羽霖^{1*}

1. 天津大学 地球系统科学学院, 天津 300072

有机质是分布在地球各个圈层的重要化学物质, 是物质和能量传输的主要媒介, 与生态系统和碳库的源汇效应紧密相关。所以研究有机质是评估其生态环境效应的基础, 也是地学领域一直以来的研究热点和难点。滨海地区是陆地和海洋的交错过渡地带, 有机质的分解速率低, 单位面积碳储量在各类陆地生态系统中最高。从陆地系统到河口-湿地-陆架区这一陆海交错区域的碳循环以及有机质迁移、转化、埋藏的过程可能远比我们现有的认知更为复杂。滨海地区人口密度高、土地利用复杂、水盐梯度大, 是有机质分解、转化、沉积的重要场所, 也是揭示海洋中陆源有机碳

“失汇”的关键地带。本研究围绕激发效应 (priming effect, PE) 导致的有机质组成、结构和源汇变化机制, 通过室内模拟实验, 对环渤海地区海陆界面和特殊事件影响下激发效应对有机质的作用和强度进行研究, 并筛选可以指征激发效应的分子标志物, 进一步量化相关的驱动因素。模拟实验表明激发效应广泛存在于陆水界面的环境中, 尤其是在环境梯度大、人来活动剧烈的河口地区, 筑坝和人为活动对河口地区的碳汇功能影响深远。

关键词: 有机质; 激发效应; 滨海地区; 碳循环

• 专题 10: 地球关键带物质循环与全球变化 •

超级 El Niño (2015—2016 年) 广州降水氢 (三) 氧同位素特征

谢露华^{1*}

1. 中国科学院广州地球化学研究所 深地过程与战略矿产资源全国重点实验室, 广州市 510640

2015—2016 年被认为是“史上最强”超级 El Niño 事件, 对我国南方带来异常降水, 比如广州 2016 年的降雨量高达 2638 mm, 是广州市自 1961 年来最多降雨量的一年。Ruan et al. (2019) 研究了 2015—2016 年 El Niño 事件对广州和香港降水氧同位素组成的影响。然而该研究只分析了降水的传统氧同位素 ($\delta^{18}\text{O}$), 广州降水只采集到 2015 年 12 月, 香港的 $\delta^{18}\text{O}$ 数据是月平均值。降水的 d-excess ($=\delta\text{D}-8\delta^{18}\text{O}$) 和三氧同位素 (^{17}O -excess 或 $\Delta^{17}\text{O}=\delta^{17}\text{O}-0.528\delta^{18}\text{O}$) 能较好地反映水汽源及水汽源的相对湿度 (Uechi and Uemura, 2019; Xia et al., 2023; Xie et al., 2011), 结合后向轨迹模型来研究水汽源的改变及各个水汽源的相对湿度情况。为此作者采集了 2015 年 1 月至 2016 年 12 月广州每场降水, 在 2018 年采用激光光谱仪 (LGR 公司) 测试了其中 2015 年 9 月至 2016 年 8 月一整年样品的氢氧同位素 (δD 、 $\delta^{18}\text{O}$ 和 $\delta^{17}\text{O}$), 进而得到 d-excess 和 ^{17}O -excess 参数。采用 WICO2016 其中 5 个标样 (Wassenaar et al., 2018) 及 LGR 公司提供的 3 个工作标样对样品进行了多次测量, 得到样品的 δD 和 $\delta^{18}\text{O}$, 但是至今尚未有 WICO2016 标样准确 $\delta^{17}\text{O}$ (即 ^{17}O -

excess) 的报道, 暂时认为所有以上标样的 $\Delta^{17}\text{O}$ 都为 0, 从而计算到标样的 $\delta^{17}\text{O}$ 值用来校正广州降水样品的 $\delta^{17}\text{O}$ 结果, 这与正确结果存在一些差异。结果显示广州 2016 年 1 月至 8 月降水场次频繁 (65 场), 1 月份和 3 月份具有异常高的降雨量; 大气降水 $\delta^{18}\text{O}$ 在 -12.1‰ ~ 1.4‰ 之间, $\delta^{17}\text{O}$ 在 -6.3‰ ~ 0.7‰ 之间; δD 在 -91.8‰ ~ 28.5‰ 之间; $\delta^{18}\text{O}$ 最低值比往年 (2007—2009 年, Xie et al., 2011) 的要高 2‰~3‰; 广州大气降水线为: $\delta\text{D}=7.93\delta^{18}\text{O}+8.36$ ($R^2=0.96$, $n=73$), 存在干湿季及季节性差异, 其斜率低于作者之前的研究 (Xie et al., 2011); 三氧同位素的关系为: $\delta^{17}\text{O}=0.520\delta^{18}\text{O}-0.031$ 或 $\delta^{17}\text{O}=0.522\delta^{18}\text{O}-0.029$ ($R^2=0.998$, $n=73$), 两者没有显著的差异。本文报道的广州降水氧同位素更好地记录了 2015—2016 年超级 El Niño 事件从“强盛”到“结束”过程, 发现超级 El Niño 事件华南季风区 (广州, 香港) 的降水 $\delta^{18}\text{O}$ 值反而更高, 认同近距离来的海洋水汽的贡献更显著。

关键词: El Niño; 广州; 降水; 三氧同位素; 水汽源

• 专题 10: 地球关键带物质循环与全球变化 •

喀斯特地球关键带的钾同位素循环特征

韩贵琳^{1*}, 屈睿¹, 张倩²

1. 中国地质大学(北京), 北京 100083;

2. 中国科学院地理科学与资源研究所, 北京 100101

作为地球关键带物质循环的关键组分, 钾(K)的生物地球化学循环过程对维系生态系统稳定性和响应全球变化具有重要指示意义。近年来发展的钾同位素($\delta^{41}\text{K}$)作为示踪钾生物地球化学循环过程的新型指标, 其有效应用依赖于不同物质储库中钾同位素分馏机制及其特征参数, 因此当前亟需研究关键带中不同物质的钾同位素组分, 揭示关键带物质迁移过程中钾同位素分馏的主控因素, 以深化对钾循环与全球变化耦合关系的定量解析。本研究聚焦西南喀斯特生态脆弱区, 首次报道了化肥、植物以及不同土地利用下土壤中的钾同位素组成, 探究了影响钾同位素分馏的因素并拓展了相关应用。首先基于不同国家与种类的化肥中钾同位素值, 确立了化肥的钾同位素端元特征, 为量化农业输入提供了数据基础。针对生物地球化学过程, 首次揭示 C3 与 C4 植物叶片 $\delta^{41}\text{K}$ 存在显著分异, 可能与植物抗旱机制及酶活性差异导致的同

位素分馏有关, 并在一定程度上反映了植物营养元素平衡状态。此外, 本研究探究了自然林地、弃耕地、耕地三种不同土地利用类型的土壤钾同位素, 并发现土壤钾同位素受人为扰动特征明显, 且不同耕地的表层土壤均比深层土壤钾同位素更轻, 同时钾同位素分馏与土壤可蚀性因子呈显著负相关, 表明耕作扰动通过加剧土壤侵蚀导致轻钾同位素优先流失。本研究构建了农业活动-土壤侵蚀-钾同位素循环的响应框架, 提出 $\delta^{41}\text{K}$ 可作为量化人类干扰强度与生态恢复潜力的新型示踪剂。未来需进一步融合多界面同位素示踪与过程模型, 揭示关键带钾循环对全球变化的阈值响应, 为喀斯特区生态修复与可持续农业管理提供科学依据。

关键词: 钾同位素; 地球关键带; 化肥; 土壤侵蚀; 生物地球化学循环

• 专题 10: 地球关键带物质循环与全球变化 •

新元古—早古生代大陆风化革命

李高军^{1*}, 欧阳盛辉¹

1. 南京大学, 江苏南京 210023

我们在这个汇报中提出一个观点: 新元古—早古生代大气氧化之前可能只存在很少的大陆风化。大数据显示泥岩的 K/Al 记录在新元古代早期以来持续降低, 我们认为这是沉积泥岩储库中增加的大陆风化 Al 输入稀释了热液 K 输入导致的。为了解释大陆风化和大气氧气之间的耦合关系, 自然界需要一个能够响应可能与构造活动相关外部盈力的正反馈机制。这个正反馈机制囊括了两部分: 大陆风化 P 输入控制机碳埋藏以及大气氧气含量, 氧气通过限定氧化风化前锋带深度进而控制大陆风化效率。其他地质记录能够支持这个假说。由于较低的 Fe 含量, 长英质风化壳相对铁镁质风化壳在同等氧气变化时, 能够发育更深的风化前锋带。为了维持 CO₂ 消耗以平衡碳循环, 低氧条件下相对低的大陆风化通量也意味着相对高的海洋风化通量 (包括玄武质洋壳蚀变和沉积物风化)。因此风化岩性必定存在巨大变化, 从而导致细

颗粒陆源沉积物可能无法代表同期暴露的地壳。大气氧气的风化岩性效应可能一定程度引起了新元古-早古生代海水 Sr 同位素上升和沉积物 ϵ Nd 下降。由于长英质岩石相对玄武质岩石具有更高的 Al/(Ca+Mg), 当风化岩性变化时, 为了维持相同 CO₂ 消耗, 会形成更多粘土, 这可能是粘土工厂出现, 冲积泥岩频率升高和晚寒武纪海水 Li 同位素升高的原因。新元古—早古生代大陆风化革命可能已经对地球系统演化产生了深远影响。陆源粘土增加后, 沉积物润滑俯冲和含水粘土俯冲可能会影响固体地球动力学。粘土形成能促进土壤形成和陆地水的保持, 有利于陆生植物登陆。大气氧化引起大陆风化吸收 CO₂ 效率升高甚至可能引发了新元古代雪球地球事件。

关键词: 大陆风化; 泥岩 K/Al; 大气氧化; 风化岩性; 粘土工厂

基金项目: 国家自然科学基金项目 (42325302)

第一作者简介: 李高军 (1983-), 教授, 研究方向: 大陆风化地球化学. Email: ligaojun@nju.edu.cn

*通信作者简介: 李高军 (1983-), 教授, 研究方向: 大陆风化地球化学. Email: ligaojun@nju.edu.cn

• 专题 10: 地球关键带物质循环与全球变化 •

光致配体-金属电荷转移驱动下水铁矿的转化行为研究

王成^{1,2}, 周水晶^{1,2}, 万彪^{1,2}, 王小明^{1,2}, 殷辉^{1,2}, 谭文峰^{1,2}, 冯雄汉^{1,2*}

1. 华中农业大学 资源与环境学院, 武汉 430070;

2. 国家环境保护土壤健康诊断与绿色修复重点实验室, 武汉 430070

水铁矿是一种普遍存在于土壤和沉积物中的弱晶质氧化铁矿物, 常与溶解性有机质紧密结合。尽管配体-金属电荷转移 (LMCT) 诱导的水铁矿光还原溶解已有广泛报道, 而该过程能否驱动矿相转化以及改变赋存元素的环境归趋仍不清楚。因此, 本研究系统探究了模拟太阳光照和草酸为代表性溶解性有机质条件下, 一些环境因素如 pH、氧分压以及共存砷形态和含量对水铁矿转化的影响。结果表明, 草酸介导的 LMCT 过程使 Fe (II) 大量释放和质子消耗, 并且后者大大促进了新生 Fe (II) 与水铁矿之间的电子转移和原子交换 (IET-AE) 过程。pH 为 5.0~8.0 时, 水铁矿向针铁矿转化, 这主要是由于 LMCT 过程提供了足量的 Fe (II) (约 80~2700 $\mu\text{mol/L}$) 以及质子的消耗有利于 Fe (II) 在水铁矿上的吸附; 而

pH 为 3.0~5.0 时, 水铁矿仅还原溶解; pH 超过 8.0 时, 则不转化。提高氧分压和砷含量均会抑制水铁矿转化。氧分压上升不利于 Fe (II) 的生成和留存, 而砷的存在改变了水铁矿的表面性质从而抑制 IET-AE 过程。As (III/V) 存在时水铁矿还会转化为纤铁矿, 并且 As (V) 含量较高时转化产物以纤铁矿为主。此外, 溶液化学提取和 As K 边 EXAFS 光谱结果表明, 反应过程中砷以 As (V) 的形式进入针铁矿和纤铁矿结构中而被固定。综上所述, 这些发现为我们对自然环境中光驱动下弱晶质氧化铁转化和元素迁移提供了一些新的见解。

关键词: 水铁矿转化; 光照; LMCT; IET-AE; As 形态

基金项目: 国家自然科学基金项目 (Nos. 42030709 & 42377303)

第一作者简介: 王成 (1995-), 博士研究生, 研究方向: 环境矿物学. Email: 2848269815@qq.com

*通信作者简介: 冯雄汉 (1973-), 教授, 研究方向: 土壤矿物与环境. Email: fxx73@mail.hazu.edu.cn

• 专题 10: 地球关键带物质循环与全球变化 •

基于青藏高原冻土区石笋和热融湖记录的冰消期 温室气体上升的源与驱动机制研究

刘建宝^{1*}

1. 北京大学 城市与环境学院, 北京 100871

冰期-间冰期旋回的一个显著气候变化特征就是大气温室气体 (CO₂ 和 CH₄) 浓度的快速上升, 该时期没有人为排放的干扰, 是研究自然源温室气体排放对气候变化响应的绝佳时间窗口。了解冰消期温室气体上升的源与驱动机制对厘清温室气体、气候变化和生物地球化学循环之间的关系非常重要, 能够提高对当前和未来温室气体-气候反馈的理解。此外, 冰消期全球变暖在某种程度上是当前人为暖期的历史相似形, 可为预测未来全球气候环境变化提供重要参考和启示, 对驱动过去温室气体变化的源与驱动机制的

研究可以减少围绕这些气候反馈的不确定性。本研究利用湖泊沉积物和石笋记录, 通过生物标志物、单体碳同位素分析、碳十四测试、铀系年代学及数值模拟等方法, 得到以下发现 1) 湖泊甲烷释放响应于增温速率而不是绝对温度, 是冰消期大气 CH₄ 上升的重要北方源。2) 冰消期 AMOC 停滞导致低纬青藏高原冻土比北极冻土更早退化, 对冰消期大气 CO₂ 上升有正反馈作用。

关键词: 碳循环; 冰消期; 温室气体

• 专题 10: 地球关键带物质循环与全球变化 •

Enhancement of the Formation and Stability of Iron-Bound Organic Carbon through Saline-alkali Soil Improvement and Its Potential Mechanisms

王书翰^{1*}

1. 中国农业大学 资源与环境学院, 北京 100193

The protection of soil organic carbon(SOC)by iron oxides has been established as an important mechanism for the long-term stability of SOC. Given the extensive global area of saline-alkali soils, its improvement holds significant implications for food security and soil carbon storage. However, the effects of saline-alkali soil improvement on iron-bound organic carbon (Fe-OC) remain poorly understood. Therefore, this study revealed the impact of gypsum and bio-based material amendments on Fe-OC in saline soils from Northeast China and the underlying mechanisms. The results demonstrated that these amendments significantly increased SOC, total nitrogen, total phosphorus, and microbial richness while decreasing soil pH. Notably, Fe-OC content showed a marked increase, although its proportion relative to total organic carbon remained unchanged. The association mode of Fe-OC shifted from adsorption to predominantly co-precipitation. Thus, our results indicated that the improvement enhanced the formation and stability of Fe-OC, thereby

promoting soil carbon sequestration. Additionally, bio-based material amendments promoted the transformation of crystalline iron into poorly-crystalline forms. The enhancement in soil nutrients and microorganisms following the improvement served as the primary positive drivers for the formation and stabilization of Fe-OC, as well as mineral transformations. Conversely, the decrease in pH acted as the main negative driver. The improvement also reduced the preferential binding of iron minerals with microbially-derived carbon. Moreover, this study showed that aromatic-C was preferentially adsorbed by iron oxides. This study offered valuable insights into the effects of saline-alkali remediation on Fe-OC and underscored the significance of saline-alkali improvement for soil carbon sequestration.

Key words: saline-alkali soil improvement; iron-bound organic carbon; mineral transformation; soil carbon sequestration; carbon sources

基金项目: National Key Technology R & D Program of the Ministry of Science and Technology of China(2023YFD150050305)and “Double First-Class” project of the Ministry of Education of China (2024AC008) .

第一作者简介: 王书翰 (1997-), 博士研究生, 研究方向: 环境地球化学与土壤地球化学. Email: 284972521@qq.com

通信作者简介: 胡树文 (1969-), 教授, 研究方向: 环境化学与环境材料. Email: shuwenhu@cau.edu.cn

• 专题 10: 地球关键带物质循环与全球变化 •

表生过程中的阳离子交换反应对镁同位素循环的影响

蔡迪^{1*}, 杨守业¹

1. 同济大学 海洋与地球科学学院, 上海 200092

表生过程中关于水-沉积物相互作用的研究往往聚焦于矿物溶解-沉淀过程。尽管矿物表面或层间可交换阳离子的存在早已被认识,但这一活性阳离子储库与地表水耦合的化学演化过程仍有待深入研究。本研究通过实验证实镁同位素($\delta^{26}\text{Mg}$)可作为示踪阳离子交换过程的有效示踪指标,并系统阐述了表生过程中阳离子交换反应对镁同位素循环的影响。首先,我们开展了一系列模拟试验,结果显示,溶解态镁在与黏土矿物(高岭石、蒙脱石)、阳离子交换树脂,以及天然风化沉积物的交换过程中,镁同位素分馏并不显著($<0.2\%$)。野外观测进一步证实了实验室的模拟实验结果:河岸带、河流及海洋环境中溶解态镁与可交换镁的同位素组成几乎一致。因此,镁同位素交换可以视作一个简单的混合过程,可交换镁改变水体 $\delta^{26}\text{Mg}$ 的潜力(或反之)取决于两相中镁的质量比。研究进一步探究了从风化壳到河流最终至河口的

地表沉积物产生-搬运过程,并量化对比了不同阶段沉积物可交换态镁与对应水体的镁含量差异,以及各个阶段阳离子交换反应对镁同位素循环的影响。结果表明,风化剖面中的可交换阳离子总量一般远高于雨水或孔隙水。风化壳中庞大的可交换镁储库可有效缓冲渗流水的镁浓度及同位素组成。在全球河流中,河流悬浮物的可交换镁仅占溶解态镁总量的 $6\% \pm 1.5\%$ 。但在强烈侵蚀流域,侵蚀沉积物携带的可交换镁可能与溶解态相当甚至更高,可能通过快速交换反应影响河水镁同位素组成。当河流沉积物入海时,与海水建立的新交换平衡可改变某些溶解阳离子(如Ba, 重金属元素等)向海洋的输出通量。但由于入海溶解镁通量远超沉积物携带的可交换镁,镁及其同位素受此过程影响较小。

关键词: 镁同位素; 阳离子交换; 风化; 河流

基金项目: 国家自然科学基金项目(422304104)

第一作者/通讯作者简介: 蔡迪(1993-), 博士后, 研究方向: 同位素地球化学. Email: dcgai@tongji.edu.cn

• 专题 10: 地球关键带物质循环与全球变化 •

典型城市化小流域河水溶质来源与水文过程解析： 基于多元统计分析和反演模型的方法

阳昆桦^{1*}

1. 浙江工业大学 前沿交叉科学研究院, 杭州 310014

摘要: 理解岩性背景和人为干扰对河流水化学的复杂影响对水资源管理至关重要, 特别是在城市化地区。本研究在中国东部太湖流域的城市河流东苕溪采集了丰水期的河水样品, 分析了 23 种水文地球化学参数 (包括理化参数、主微量离子、稳定同位素) 的空间变化特征, 通过多元统计分析和反演混合模型的综合方法揭示了显著的人为干扰。根据 Spearman 秩相关和聚类分析的结果, 选取 K^+ 、 Na^+ 、 Ca^{2+} 、 NO_3^- 、 δ^2H 、pH 等 6 种关键水文地球化学参数进行因子分析。其中, 因子 FAC1 (51.39%) 主要反映水岩相互作用和水文过程的影响, 因子 FAC2 (36.38%) 主要反映城市和农业污水的输入。反演混合模型的结果表明, 河水阳离子的来源贡献比例依次为: 碳酸盐岩

(40.57%)、硅酸盐 (27.63%)、城市输入 (20.86%)、农业输入 (9.52%) 和大气降水 (1.42%)。这些方法共同证实了岩石风化作用是东苕溪河水的主要溶质来源, 其次是显著的人为输入和太湖回水的影响。同时, 子流域尺度上溶质来源的空间累积效应显著 ($r = 0.886$, $p = 0.019$)。不透水表面、碳酸盐岩和硅酸盐岩石的百分比分别控制了城市输入、碳酸盐风化和硅酸盐风化对河水阳离子的贡献。研究结果强调了城市输入和岩石风化对河流溶质源的累积效应, 为城市化地区水资源的可持续管理提供了科学依据。

关键词: 水化学; 水文过程; 河流溶质; 源解析; 城市河流

• 专题 10: 地球关键带物质循环与全球变化 •

台湾山溪性河流沉积物铁化学相态组成特征及控制机制

焦裕杰¹, 苏妮^{1*}, 杨守业¹

1. 同济大学 海洋地质全国重点实验室, 上海 200092

台湾岛小型山地河流 (SMRs) 因具有全球极高的剥蚀速率, 向海洋输送了大量的溶解态和颗粒态物质。本研究以台湾活跃造山带的最长河流浊水溪为研究对象, 聚焦于反应活性组分的铁氧化物态组分研究, 采用六步提取法获取了台湾浊水溪河流沉积物、悬浮物和基岩样品的总铁 (Fe_T)、高活性铁 (Fe_{HR})、弱活性铁 (Fe_{PR}) 和不活性铁 (Fe_U) 组分, 其中, 高活性铁组分包括碳酸盐结合态铁 (Fe_{carb})、易还原态铁氧化物 (Fe_{ox1})、可还原态铁氧化物 (Fe_{ox2})、磁铁矿 (Fe_{mag})。对上述样品开展主微量元素和 Sr-Nd 同位素分析, 并结合 Al 元素含量、粒度、总有机碳 (TOC) 含量、化学蚀变指数 (CIA) 以及物理剥蚀速率 ($^{10}Be/^{9}Be$), 探讨沉积物铁化学相态组成特征及控制机制。研究发现台湾浊水溪河流沉积物与悬浮物样品 Fe 相态含量大小关系均为 $Fe_{PR} > Fe_{HR} > Fe_U$, 且 Fe_T 含量从上游到下游总体呈降低趋势。进一步分析表明, Fe_{HR} 含量与 Al 含量、粒度、TOC 含量、CIA

无明显相关性, 而 Fe_{PR} 含量与这些指标均表现出显著正相关性, 这一趋势与全球河流以及典型大河流域 (如长江流域) 的相关研究结果有显著差异。此外, Fe_{HR}/Fe_T 比值与物理剥蚀速率具有显著负相关性, 表明在物理剥蚀速率较高的上游板岩地区, 化学风化作用受到抑制, 反映出台湾岛是典型的风化限制型地区 (Weathering-limited regime)。台湾岛基岩多为沉积岩和变质沉积岩, 具有多次沉积旋回的风化信息, 已有研究指出台湾河流沉积物的地球化学组成主要受流域岩性控制。基于 Fe_{HR}/Fe_T 、 Fe_{PR}/Fe_T 与 Fe/Al 比值的相关性分析, 揭示出浊水溪河流沉积物 Fe_{HR} 和 Fe_{PR} 的分布特征也主要受流域岩性控制。这些发现为深入理解入海颗粒态 Fe 的源汇过程、地球化学循环及其环境效应具有重要参考价值。

关键词: 铁化学相态; 山地河流; 风化; 物源; 台湾岛

基金项目: 国家自然科学基金 (批准号: 42173008); 国家重点研发计划项目 (批准号: 2022YFF0800501)

第一作者简介: 焦裕杰 (2002-), 硕士研究生, 研究方向: 沉积地球化学. Email: 2433404@tongji.edu.cn

*通信作者简介: 苏妮 (1983-), 副教授, 研究方向: 大陆边缘沉积学. Email: nsu@tongji.edu.cn

• 专题 10: 地球关键带物质循环与全球变化 •

非传统稳定同位素 (Sr-K-Mg-Li-Os) 示踪 地球大陆风化的进展与挑战

张杰志^{1*}

1. 长江大学 地球科学学院, 武汉 430100

传统稳定同位素在灵敏度、分辨能力和抗干扰性等方面相较于非传统稳定同位素存在明显不足, 这制约了其在大陆风化研究中的广泛应用。尽管已有大量研究聚焦于单一的非传统稳定同位素示踪风化的研究, 但单一同位素在信息量、分辨能力、解耦多因素影响等方面存在局限性, 缺失在非传统稳定同位素耦合方面的系统研究。为了推动该领域的进一步发展, 本文从实验测试方法与进展、储库特征、分馏机制以及示踪大陆风化的应用等方面进行了综述。近年来, 随着高精度同位素检测技术的不断进步, 非传统稳定同位素 (Sr、K、Mg、Li、Os) 在示踪地球深时大陆风化研究中取得重要进展。在实验测试方面, 溶液法作为一种广泛应用的化学分析技术, 凭借其高灵敏度和广泛的样品适用性, 通过样品的采集与处理、化学分离与纯化等多流程, 结合多接收电感耦合等离子体质谱法 (MC-ICP-MS) 等质谱技术, 实现了对同位素的高精度测量。

由于不同元素的纯化方法具有高度特异性, 且常用测试技术各具优劣, 实际应用中需根据样品性质和研究目标进行综合选择。非传统稳定同位素在不同储库 (地幔、大陆地壳、水圈、生物组成) 中表现出独特的特征, 反映了物质来源、地球化学过程、环境条件等差异。其分馏机制较为复杂, 受到风化强度、温度、水岩相互作用以及气候条件等多种因素的综合影响。在示踪大陆风化应用中, 非传统稳定同位素能够探究风化与气候变化直接的关系、揭示风化强度与化学反应的规律、追踪大陆风化过程中的物质来源与迁移, 以及研究风化对水文地球化学循环的影响。通过多同位素耦合分析, 能够整合多种同位素体系的信息, 从而为深入理解风化作用的复杂性及其与古环境条件的相互作用提供了更为有力的手段。

关键词: 非传统稳定同位素; 耦合; 储库; 分馏; 大陆风化

第一作者简介: 张杰志 (2000), 硕士研究生, 研究方向: 地质学. Email: 19895253401@163.com

*通信作者简介: 朱光有 (1973-), 教授, 研究方向: 地质学. Email: zhuguangyou@yangtzeu.edu.cn

• 专题 10: 地球关键带物质循环与全球变化 •

源-汇沉积过程的碳汇作用

杨江海^{1*}

1. 中国地质大学(武汉), 武汉 430074

硅酸盐风化是地质时期气候系统演化的重要驱动机制, 它通过消耗大气 CO_2 及随后的碳酸盐矿物沉淀将大气 CO_2 重新运移到岩石储库中。在源-汇沉积体系中, 硅酸盐风化可以发生于剥蚀区, 也可以发生于广袤的洪泛平原区, 在碎屑颗粒物入海后还可与海水发生化学蚀变, 并且火山或弱风化碎屑物质在海底沉积物中, 伴随甲烷的硫酸盐厌氧氧化可进一步发生化学风化。其中, 剥蚀区-洪泛平原区的地表和海底沉积物中的海洋硅酸盐风化, 特别是玄武岩质火山岩的风化作用, 具有重要的碳汇效应。此外, 地表风化和海底硅酸盐蚀变会产生大量的 P 等营养元素, 可促进海洋初级生产力的繁盛, 将大气 CO_2 转变为有机碳而实现碳埋藏。剥蚀区的快速侵蚀产生弱风化的碎屑沉积物, 随河流或风运移至暖湿的低地平原区后可发生再风化, 现代亚马逊平原和恒河平原的河流沉积物研究表明, 剥蚀区来源的碎屑沉积物在洪泛平原

区的再风化作用对流域风化碳汇具有重要贡献。陆源或火山碎屑最终堆积于大陆边缘, 这里也是有机质快速埋藏的重要场所, 同时也拥有最高的生物甲烷产率, 有利于硫酸盐还原-甲烷厌氧氧化作用(AOM)作用的发生, 因此通常具有较浅的硫酸盐-甲烷转换带。在 SMTZ 之下的海底沉积物产甲烷带, 微生物作用产生甲烷并向上扩散, 也形成 CO_2 造成孔隙水 pH 值的降低和碳酸盐的溶解, 使得埋藏的碳又返回到大气-海洋系统; 如果海底沉积物中含有碎屑长石或火山玻璃等活性硅酸盐物质, 则可以减缓孔隙水 pH 的降低而避免碳酸盐的溶解, 而且也通过再风化作用释放 Ca、Mg 等阳离子与 HCO_3^- 结合形成自生碳酸盐矿物。

关键词: 源-汇沉积体系; 侵蚀源区硅酸盐风化; 碳汇作用; 冲积平原再风化; 海底硅酸盐风化

基金项目: 国家自然科学基金项目(42122015)

第一作者简介: 杨江海(1984-), 教授, 研究方向: 沉积地质学. Email: yangjh@cug.edu.cn

• 专题 10: 地球关键带物质循环与全球变化 •

边缘海铁循环的源贡献：来自长江口沉积物铁同位素组成的证据

王姣^{1,2}, 孙子威², 袁华茂^{3,4}, 宋金明^{3,4}, 李宁⁵, 李琛⁵, 肖媛媛^{1,2,6*}

1. 山东科技大学 地球科学与工程学院, 山东 青岛 266590;

2. 中国科学院海洋研究所 海洋地质与环境重点实验室海洋观测与预报重点实验室, 山东 青岛 266071;

3. 中国科学院海洋研究所 海洋生态与环境重点实验室, 山东 青岛 266071;

4. 青岛海洋科技中心 海洋生态与环境科学实验室, 山东 青岛 266237;

5. 中国科学院海洋研究所 公共技术中心, 山东 青岛 266071;

6. 青岛海洋科技中心 海洋地质实验室, 山东 青岛 266237

长江口边缘海沉积物作为中国东部沿海重要的河流和陆源物质输入区, 其铁收支对了解边缘海生态系统的铁循环具有重要意义。近年来, 铁同位素组成已被用作了解地球铁循环和生物地球化学过程的重要指标。本文报道了长江口 3100-1 和 DH5 两个沉积物岩心的铁同位素变化。3100-1 岩心样品 $\delta^{56}\text{Fe}$ 值变化范围为 0.02‰~0.08‰, 平均值为 $0.05\text{‰} \pm 0.03\text{‰}$; DH5 岩心样品 $\delta^{56}\text{Fe}$ 值变化范围为 0.02‰~0.10‰, 平均值为 $0.07\text{‰} \pm 0.05\text{‰}$ 。两个岩心沉积物的 $\delta^{56}\text{Fe}$ 值与有机碳含量、化学风化、粒度、氧化还原条件等

参数的相关性不显著。主成分分析揭示了几个共同的影响因素, 特别是源物质输入, 显著影响了两个岩心的铁同位素组成。同时, DH5 岩心铁同位素组成可以反映长江流域人类活动的变化。研究结果为理解自然和人为影响下的边缘海铁循环提供了关键的铁同位素证据, 为全球边缘海生态系统研究提供了重要的视角。

关键词: 长江口; 中国边缘海沉积物; 铁同位素; 主成分分析; 源物质

• 专题 10: 地球关键带物质循环与全球变化 •

氧化还原波动下有机质-水铁矿复合体产羟基自由基及其环境意义

曾强^{1*}

1. 中国地质大学(北京)地球科学与资源学院, 北京 100083

氧化还原波动条件下矿物源自由基的产生深刻影响了表生环境中的元素循环过程, 尤其是碳的周转。但是目前对于矿物-有机质复合体在此类生境中的地球化学行为仍存在较大的研究空白。实验选取了 3 种表生环境中的代表性有机质: 柠檬酸(代表小分子有机质)、多糖(代表微生物源有机质)、木质素(代表植物源有机质), 与水铁矿进行共沉淀, 合成有机质-水铁矿复合体, 并通过多个铁氧化还原循环, 探究该过程中羟基自由基($\cdot\text{OH}$)的产生及有机质的转化行为。

实验发现在氧化条件下, 不同的还原态有机质-水铁矿复合体均能够产生 $\cdot\text{OH}$ 。有机质的存在影响了 $\cdot\text{OH}$ 的产生速率及效率(即单位 Fe(II)氧化产生 $\cdot\text{OH}$ 的量)。 $\cdot\text{OH}$ 的产生效率在氧化初期和氧化后期阶段存在明显的差异。在氧化的初始阶段, 由于体系内相对高浓度的 Fe(II)即作为 $\cdot\text{OH}$ 产生的“源”

又是捕获 $\cdot\text{OH}$ 的“汇”, 导致整体 $\cdot\text{OH}$ 的产生效率较低。共沉淀有机质同样作为 $\cdot\text{OH}$ 的“汇”, 会进一步降低 $\cdot\text{OH}$ 的产生效率。在氧化的后期阶段, 由于体系内 Fe(II)浓度的降低, $\cdot\text{OH}$ 的产生效率显著增加, 同时有机质的存在会进一步钝化 Fe(II)对 $\cdot\text{OH}$ 的捕获效果。另外有机质还能改变反应过程中的电子传递路径, 促进均相体系中 $\cdot\text{OH}$ 的产量, 从而进一步增加 $\cdot\text{OH}$ 的产生效率。不同的有机质类型也对 $\cdot\text{OH}$ 产生效率也有不同的影响。木质素由于其本身具有氧化还原活性的官能团, 对 $\cdot\text{OH}$ 产量促进更加明显。另外, $\cdot\text{OH}$ 的产生还显著改变了木质素类复杂有机质的化学性质, 增加了其含氧官能团比例, 可能深刻影响了该类有机质在厌氧环境中的生物可利用性。

关键词: 铁氧化物; 有机质; 氧化还原; 羟基自由基

基金项目: 国家自然科学基金项目(42002038, 42192503)

第一作者简介: 曾强(1990-), 副教授, 研究方向: 环境矿物学, 地质微生物. Email: zengq@cugb.edu.cn

*通信作者简介: 曾强(1990-), 副教授, 研究方向: 环境矿物学, 地质微生物. Email: zengq@cugb.edu.cn

• 专题 10: 地球关键带物质循环与全球变化 •

关键微生物类群驱动内陆水体甲烷和惰性溶解有机质同步产生

史新杰¹, 李婉珠¹, 王宝利^{1,2*}, 杨美玲¹, 刘丛强^{1,2}

1. 天津大学 地球系统科学学院, 天津 300072;

2. 天津环渤海滨海地球关键带国家野外科学观测研究站, 天津 300072

内陆水体是温室气体甲烷 (CH₄) 的重要来源, 内陆水体甲烷产生受到水体溶解有机质 (DOM)、氧化还原条件和微生物群落组成等多种因素的影响, 具有明显的时空异质性。惰性溶解有机质 (RDOM) 能够抵抗微生物的快速降解, 从而在水生环境中滞留长达数百至数千年, 对评估水生生态系统的自然固碳潜力有重要意义。作为内陆水体碳循环的重要组成部分, 甲烷和 RDOM 的产生都依赖于微生物群落对有机碳的连续处理过程, 但目前尚不清楚这两个过程之间的联系以及潜在的微生物调控机制。为探究上述问题, 对我国不同类型的内陆水体进行了大环境梯度调查, 利用色谱、光谱、质谱和高通量测序等手段, 测定了水体甲烷浓度、DOM 化学组成、微生物群落组成、碳循环功能基因和相关环境参数。研究发现, 全国范围内水体甲烷和 RDOM 表现出相似的空间分布模式。在湖泊、河流、湿地和水库等多种类型的内陆

水体中, 普遍存在关键微生物类群 (i.e., *Fluviicola* 和 *Polynucleobacter*) 驱动甲烷和 RDOM 同步产生的过程。关键微生物类群通过促进微生物群落之间的合作, 既驱动了活性溶解有机质转化为 RDOM 的过程, 同时有利于产甲烷微生物的生存, 进而促进水体甲烷的产生。这一过程还受到总氮和溶解氧浓度等环境因素的影响。未来需要结合更多的实地调查和实验室控制实验, 来充分理解这些复杂过程。本研究加深了对于内陆水体碳周转微生物驱动机制的认识, 并强调了关键微生物类群的重要作用, 为实验室开展相关的控制实验提供了有用参考。考虑到甲烷和 RDOM 产生与内陆水体碳源汇关系密切相关, 本研究为准确评估内陆水生生态系统碳收支提供了科学依据。

关键词: 甲烷; 惰性溶解有机质; 关键微生物类群; 微生物相互作用

基金项目: 国家自然科学基金 (42293264 和 42293262), 中国博士后科学基金 (GZC20241196)

第一作者简介: 史新杰 (1996-), 博士研究生, 研究方向: 湿地水体温室气体。Email: xinjie_shi@tju.edu.cn

通信作者简介: 王宝利 (1976-), 教授, 研究方向: 水体微生物生态和物质循环。Email: baoli.wang@tju.edu.cn

• 专题 10: 地球关键带物质循环与全球变化 •

土壤结构影响 N₂O 产生与排放的机理研究

晏智锋^{1*}, 常保璇¹

1. 天津大学 地球系统科学学院, 天津 300072

土壤结构主要通过影响底物有效性和气体扩散来调节土壤氧化亚氮 (N₂O) 的产生和排放。然而, 土壤结构对二者的影响及其对水分变化的响应仍然难以捉摸。本研究在不同水分 (40%、60%、80%和 100%WFPS) 条件下, 对填充 (扰动) 和原状 (未扰动) 土柱进行了为期 21 天的室内培养实验。在整个培养期内连续监测土壤 CO₂ 和 N₂O 排放通量, 同时培养结束时测量土壤相对气体扩散系数和垂直剖面 O₂ 浓度。结果表明, 填充土柱的 CO₂ 和 N₂O 通量分

别是原状土柱的 3~9 倍和 2~25 倍, 且原状土柱排放通量更接近野外观测结果。但两者的相对土壤气体扩散系数差异并不明显, 尤其是在高水分条件下。此外, 同一水分条件下, N₂O 通量与 CO₂ 通量间存在显著的指数相关性。因此, 填充土柱对土壤 N₂O 排放的高估可能更多归因于土壤结构的破坏导致的底物有效性增加, 而不是气体扩散能力的变化。

关键词: 土壤结构; 氧化亚氮

• 专题 10: 地球关键带物质循环与全球变化 •

生物质源热成有机质形成特征与环境效应

宋凡浩^{1*}

1. 中国环境科学研究院 环境基准标准与风险管控全国重点实验室, 北京 100012

生物质热解过程可以产生大量的热成有机质 (Pyrogenic Organic Matter, PyOM), 包含挥发性有机物、生物炭和生物油等, 既有产物回收利用价值, 也存在潜在的环境污染风险。本文综述了生物质中半纤维素、纤维素和木质素组分的热降解特征, 聚焦生物质源挥发性 PyOM 和生物炭的核心产物, 重点剖析了 PyOM 形成过程及关键环境效应。生物质源 PyOM 涉及气-固-液三相体系, 表现出协同形成的关联机制。挥发性 PyOM 动态形成过程与半纤维素、纤维素和木质素组分的热稳定性差异密切相关, 涉及键断裂、解聚、缩合和转化等反应, 对大气环境质量和人体健康构成潜在风

险。随着热成温度的升高, 生物炭结构的芳香性、稳定性、比表面积和孔隙度增加, 而不稳定官能团丰度减少。生物炭微观结构的多样性及异质性可以改善土壤理化性质, 影响环境中污染物的迁移和转化。未来工作需要重点关注生物质热解过程中 PyOM 的在线监测与污染防控, 以及生物质源 PyOM 进入环境后的迁移、转化与生物毒性等行为, 为深入评估 PyOM 的环境地球化学过程及风险提供重要的科学依据。

关键词: 生物质; 热解特征; 热成有机质; 形成过程; 环境效应

• 专题 10: 地球关键带物质循环与全球变化 •

渤海、黄海和东海沉积有机碳的分布、埋藏及碳汇效应

乔淑卿^{1*}, 石学法^{1,2}, 吴斌^{1,2}, 姚政权^{1,2}, 胡利民^{1,2,3},
盛洁¹, 刘焱光^{1,2}, 刘升发^{1,2}, 王昆山^{1,2}, 邹建军^{1,2}

1. 自然资源部第一海洋研究所 海洋地质与成矿作用重点实验室, 山东 青岛 266061;
2. 青岛海洋科技中心 海洋地质过程与环境功能实验室, 山东 青岛 266237;
3. 中国海洋大学 海底科学与探测技术教育部重点实验室, 山东 青岛 266100

海洋是地球上最大的活性碳库。有机碳作为海洋固碳的主要形态,其沉积和埋藏在全球碳循环中扮演着重要的角色。我们利用采自渤海、黄海和东海海域的 5796 站沉积有机碳含量及相关地球化学和沉积学参数,编制了系列图件,总结阐述了中国东部近海沉积有机碳分布和埋藏规律;系统估算了渤海、黄海和东海有机碳埋藏通量;综合评估了中国东部近海沉积碳汇效应强度,基本摸清了渤海、黄海和东海沉积有机碳“家底”。研究表明,渤海、黄海和东海沉积有机碳含量介于 0.00%~2.12%之间,平均含量为 $0.47\% \pm 0.26\%$ 。有机碳含量主要受细粒沉积物组分控制,泥质区有机碳含量

平均值比非泥质区高 39%。渤海、黄海和东海现代沉积有机碳主要埋藏在 7 大泥质区,其沉积有机碳埋藏通量合计约为 8.20 Mt C/a,生源有机碳埋藏通量为 6.92 Mt/a。中国东部近海沉积物中每年固定的有机碳相当于 25.37 Mt 大气 CO₂,具有非常可观的碳汇效应。渤海、黄海和东海陆源有机碳的分布和埋藏主要受大河输入和海区复杂水动力环境的影响,但筑坝等人类活动已显著改变了近海泥质区有机碳的埋藏。

关键词: 沉积有机碳;埋藏通量;碳汇效应;碳循环;中国东部近海

• 专题 10: 地球关键带物质循环与全球变化 •

气候变化与植被恢复对典型西南喀斯特关键带 溶解性无机碳的影响分析

王冰琴¹, 文航^{1*}

1. 天津大学 地球系统科学学院, 天津 300072

河流溶解无机碳 (DIC) 作为连接地球关键带各圈层 (包括岩土圈、水圈、生物圈和大气圈) 碳交换的重要纽带, 其通量动态不仅是揭示陆地碳循环机制的核心指标, 更反映着地球关键带物质能量传递过程中碳足迹的时空演变特征。然而, 在气候变暖和人类活动的共同影响下, DIC 的动态正在发生显著变化。由于长期观测数据的匮乏以及驱动因素之间复杂的相互作用, 量化这些变化对 DIC 通量的影响仍面临巨大挑战。本研究聚焦于以下科学问题: 气候和土地利用变化如何以及在多大程度上影响 DIC 生成与输出的长期季节性和年度性趋势? 本研究依托中国西南贵州普定喀斯特生态系统国家野外科学观测研究站展开, 选择了经历了显著气候变暖、干旱和森林恢复过程的后寨喀斯特流域为研究区域, 构建了一个基于过程的生物地球化学耦合模型 (BioRT-Flux-PIHM)。研究结果显示, 从 1980s 至 2010s, 研究区域的年降水量从 1261 mm 下降至 1005 mm, 年径流量从 700 mm 减少至 552 mm, 而蒸散量未呈现显著变化。同期, DIC 生成速率和输出速率分别从 1.35×10^8 和

1.29×10^8 mol C/a 下降至 1.27×10^8 和 1.15×10^8 mol C/a, 年均降幅分别为 2.3×10^5 和 5.4×10^5 mol C/a²。气候干旱与径流减少不仅抑制了碳酸盐岩风化作用, 还导致更多由土壤呼吸和风化作用产生的 DIC 在流域内滞留, 从而使 DIC 输出量的降幅达到生成量降幅的两倍。此外, 森林恢复通过降低土壤温度和湿度, 抵消了气候变暖对土壤呼吸速率的正向影响, 进一步减缓了 DIC 的生成与输出。情景分析表明, 森林恢复对 DIC 生成下降的贡献率为 91%, 而气候变化对 DIC 输出减少的贡献率为 78%。季节性分析进一步表明, 土壤呼吸作用在湿热季节下降最为显著, 而碳酸盐岩风化在寒冷干燥的冬季减少更为明显。这些发现揭示了气候和土地利用变化对 DIC 过程及碳循环的不同调控机制, 为深入理解变化环境条件下的碳动态和碳收支提供了重要的科学依据。

关键词: 气候变化; 植被覆盖变化; 全球碳循环; 喀斯特; 反应传输模型

基金项目: 国家自然科学基金 (42230509, 42477240); 国家重点研发计划 (2023YFF0806000)

第一作者简介: 王冰琴 (2000-), 硕士生, 流域生物地球化学循环模拟. E-mail: wangbq0320@tju.edu.cn

*通信作者简介:

文航 (1986-), 男, 博士, 副教授, 研究方向: 陆地关键带水文-生物地球化学过程与模拟. E-mail: wenhang@tju.edu.cn

李思亮 (1978-), 男, 博士, 教授, 研究方向: 地球关键带和生物地球化学. E-mail: siliang.li@tju.edu.cn.

• 专题 10: 地球关键带物质循环与全球变化 •

地下环境从还原区到氧化区的长距离 电子转移过程及其环境启示

袁松虎^{1*}, 张妍婷¹, 童曼¹

1. 中国地质大学(武汉)地质微生物与环境全国重点实验室, 武汉 430078

地下环境在自然和人为扰动下通常会出现不同强度的长距离氧化还原梯度, 那么这种氧化还原梯度能否驱动长距离电子转移过程并引发环境效应呢? 本研究将介绍作者团队近期在地下环境长距离电子转移方面的一些初步进展。我们通过实验观测, 发现地下环境还原区与氧化区之间会发生长距离的定向电子传递, 是一种隐藏的电子流动过程; 进而根

据地下环境含水介质的渗透性和地球化学差异, 提出了地下环境电子流的 3 种模式; 最后展望了地下环境电子流对于元素循环和环境污染修复的重要启示意义。

关键词: 电子转移; 长距离; 地下环境; 氧化还原梯度; 环境效应

· 专题 10: 地球关键带物质循环与全球变化 ·

Effect of Weathering on the Dissolution Behavior of Phosphate Ore: An Analysis Based on Mineral Composition and Geochemistry Characterization

刘冰¹, 张彩香^{1*}

1. 中国地质大学(武汉)生环国重, 武汉 430000

Dissolved release of phosphate ore plays an important role in the global phosphorus (P) cycle. In this study, the dissolution behavior and geochemical characteristics of phosphate ores with different weathering degrees were investigated using mixed-flow reactor and column leaching experiments. From $3 < \text{pH} < 7$, the rate of dissolved release of all phosphate ore decreased with increasing pH. Kinetic equations were used to fit pH and the dissolution rate, and the results showed a significant increase in the reaction orders with a higher weathering degree. Weathering has resulted in phosphorite being more sensitive to changes in hydrogen ion concentrations. Under the same pH conditions, fluorapatite and calcium phosphate phases in weathered phosphorites have lower free energies

relative to primary phosphorites, suggesting that they are more susceptible to dissolution. The acid neutralization capacity of weathered phosphate ores is reduced due to the significant loss of carbonate minerals, which results in a lower pH of its eluent compared to primary phosphate ores, and higher ion solubility in weathered phosphate eluent. In addition, under acidic leaching conditions, Detrital P (De-P) in phosphorite is gradually converted to the more soluble Exchangeable/loosely bound P (Ex-P), Iron-bound P (Fe-P), Calcium -bound P (Ca-P). At the same time, secondary precipitated minerals such as FePO_4 and CaF_2 will be gradually enriched during weathering.

Key words: weathering; phosphate ore; dissolution

第一作者简介: 刘冰 (1997-), 博士研究生, 研究方向: 环境矿物学。Email: liubing199707@163.com

*通讯作者简介: 张彩香 (1970-), 教授, 研究方向: 地球化学与磷循环。Email: cxzhang@cug.edu.cn

• 专题 10: 地球关键带物质循环与全球变化 •

从颗粒到流域尺度的绿泥石风化： 地下氧化反应的作用和分布

廖茹雪^{1,2*}, Xin Gu^{2,3}, Susan L. Brantley²

1. 兰州大学 土木工程与力学学院, 兰州 730000;

2. Pennsylvania State University Department of Geosciences, State College, PA 016802;

3. Oak Ridge National Laboratory, Oak Ridge, TN 037831

粘土矿物作为占沉积岩和风化壳总体积近一半的层状硅酸盐矿物,其风化作用强烈影响地球关键带土壤的理化性质,缓冲大气和生物圈中的酸,为植物生长提供营养,影响全球碳循环。绿泥石是一种重要的成岩粘土矿物,但其在自然环境中的风化反应机制仍有争论。本研究选取了美国阿巴拉契亚山脉中部萨斯奎哈纳页岩山关键带观测站(SSHCZO)中一处以页岩为基底的小型流域,研究了富铁绿泥石从深部原岩到残积岩再到土壤的风化过程。结果发现,绿泥石中Fe(II)的氧化反应总是先于矿物间层的溶解反应。流域山脊下黄铁矿和绿泥石的起始氧化深度相近,且都接近于区域地下水位;而河谷下黄铁矿氧化深度大于绿泥石,且氧化带要比山脊下更宽。我们推测,这些模式可以通过山脊和山谷之间水文地球化学条件的差异来解释:山脊下富含溶解氧的水流大部分沿一

维方向垂直下渗,产生了与此方向垂直的窄而尖锐的绿泥石和黄铁矿氧化锋;而河谷下水流中的溶解氧被消耗,且水流沿三维方向(向上,向下,侧向)流出,因而产生较宽的氧化带。地球化学和矿物学分析表明,Shale Hills 流域富铁绿泥石的转化是由Fe(II)的氧化所引发的。接着,绿泥石层间片层溶解分别形成羟基层间蛭石和蛭石。伴随此转化过程的是镁和铁被释放到溶液中,而铁则在孔隙空间中重新沉淀为针铁矿。本研究认为大气降水的渗入为深部地下输送氧气,从而控制了Shale Hills 绿泥石的初始风化。研究结果强调许多富含Fe(II)的矿物的风化可能由地下氧气输送速率所介导的氧化反应所引发。

关键词: 绿泥石风化; 黄铁矿氧化; 蛭石化; 水流路径

• 专题 10: 地球关键带物质循环与全球变化 •

极端风化条件下花岗岩风化剖面锂同位素分馏机制研究

杨承帆^{1*}, 赵云², 徐娟¹, 朱冠虹³, 韦刚健³, 马金龙³,
苏妮¹, 陈金牛¹, 杨守业¹

1. 同济大学, 上海 200092;

2. 上海交通大学, 上海 200030;

3. 中国科学院广州地球化学研究所, 广州 510640

化学风化在地球关键带物质循环以及气候调节方面发挥着重要作用, 锂同位素被认为是示踪风化过程最有效的指标之一, 近年来已广泛应用于现代流域和钻孔记录研究, 但我们对自然背景下锂同位素分馏机制认识仍有待深化, 特别是缺乏极端风化条件下相关研究案例。本研究以福建木兰溪花岗岩风化剖面为研究对象, 提取石英、黏土粒级 (<2 μm) 和铁锰氧化物组分, 开展了元素、矿物和锂同位素组成分析。研究表明仙游风化剖面已接近完全风化, 全岩样品化学蚀变质数 CIA 值大多高于 90, 易迁移元素 tau 值接近于-1; 矿物组成上以石英、高岭石和伊利石为主, 其中石英含量约为 50%, 高岭石含量约为 40%; 全岩样品锂含量大多小于 12 $\mu\text{g/g}$, 黏土粒级 (主要为高岭石) 锂含量大多小于 6 $\mu\text{g/g}$ 。由于源岩中为花岗岩, 因此无法通过石英含量的变化确定风尘输入的影响,

但黏土粒级组分、铁锰氧化物组分以及石英锂含量均表现出向下减小的趋势, 可能表明剖面受后期改造影响更大。全岩样品锂同位素变化主要受到石英含量及粘土矿物的影响, 同时研究表明, 在极端强风化条件下, 石英也会受到风化过程影响, 其锂同位素及元素含量表现出两端元混合的趋势。此外, 本研究还观察到伊利石溶解和埃洛石形成, 伊利石溶解消耗 H^+ , 为埃洛石的形成提供了碱性环境以及原材料, 埃洛石形成过程中吸附了雨水来源的锂, 导致该层位黏土粒级组分锂同位素值偏高。本研究揭示了极端强风化条件下可能影响锂同位素分馏和同位素组成的多重因素, 为今后地质历史时期风化过程研究提供了借鉴。

关键词: 锂同位素; 风化剖面; 化学风化; 木兰溪

· 专题 10: 地球关键带物质循环与全球变化 ·

青藏高原典型湖泊水体氢氧同位素及其水循环指示意义

李世杰¹, 李伟霄^{2,3}, 张志才²

1. 中国科学院南京地理与湖泊研究所;

2. 河海大学水文水资源学院;

3. 南京大学保卫处

青藏高原分布着世界上海拔最高、数量最多、面积最大的高原湖泊群, 湖泊类型多样, 成因复杂, 在维系区域生态系统和保持生物多样性以及区域气候变化和水分循环过程中扮演着重要角色, 同时, 青藏高原以高耸的海拔和地处地球中、低纬度的特殊条件, 使得气候变化及其影响有其区域复杂性, 随着气候从上世纪以来的持续变暖, 青藏高原的湖泊环境发生了重大而急剧的变化, 对湖泊水分循环与水文过程产生了重要影响。本文选择了青藏高原黄河源区开放性淡水湖泊扎陵湖和高原腹地封闭型咸水湖泊兹格塘错进行采样, 分析湖泊水体水化学和氢氧同位素特征来揭示青藏高原不同区域不同类型湖泊水体演化和水文水循环过程。根据分析结果获得以下新的认识:

1、扎陵湖和兹格塘错都是大型的深水湖泊和碱性湖泊, pH 值在 9~10 之间; 都存在着温度跃变层。扎陵湖的温度跃变层出现深度在 9~24 m 之间; 而兹格塘错温度跃变层深度出现在 15~25 m 之间, 温度跃变层的下界具有相似性, 这与湖泊的面积、深度、性质以及风浪强度等因素有关。

2、扎陵湖和兹格塘错是两个完全不同性质的湖泊, 扎陵湖是开放型淡水湖, 盐度为 0.3 g/L; 而兹格塘错是封闭型咸水湖泊, 盐度在 21 g/L。在湖泊水体主要阴、阳离子含量上也存在很大不同: 夏季扎陵湖主要阳离子含量最高的是 Ca^{2+} , 阴离子含量最高的为 HCO_3^- , 水化学类型为 $\text{HCO}_3\text{-Ca}$ 型水。而兹格塘错

主要阳离子含量最高的是 Na^+ , Ca^{2+} 含量最低; 阴离子含量最高的为 CO_3^{2-} , Cl^- 含量最低, 水化学类型为 $\text{Na-CO}_3\text{-SO}_4$ 型水。在离子浓度随湖泊深度上的变化上, 两个湖泊都表现出底层水体离子浓度增加的共同趋势。

3、两个湖泊水体氧同位素变化表现出明显不同。兹格塘错湖泊水体 $\delta^{18}\text{O}$ 值在 -7‰~-6‰ 之间, 而扎陵湖湖泊水体 $\delta^{18}\text{O}$ 值在 -5‰~-4‰ 之间。纬度偏南主要靠西南季风降水补给的兹格塘错水体 $\delta^{18}\text{O}$ 值明显比纬度偏北的黄河源扎陵湖水体 $\delta^{18}\text{O}$ 值要偏负, 这与局地水循环过程以及不同水汽来源有关。在随深度变化上也表现不同, 扎陵湖的 $\delta^{18}\text{O}$ 值随水体深度增加逐渐偏正, 而兹格塘错的 $\delta^{18}\text{O}$ 值随水体深度增加逐渐偏负, 这与湖泊的水文水化学特征的演化有直接关系。

4、青藏高原湖泊水体演化受到多方面因素影响, 水汽来源和水循环过程起着重要作用, 西风系统和印度洋季风是青藏高原上主要的不同水汽来源, 但高原上陆面和水面再蒸发的水汽再降水也是湖泊水体演化的不可忽视的重要因素。因此在高原上存在着两种水循环过程: 一种为水分大循环, 即外部水汽输入-外部水分输出; 另一种为水分局地循环, 即高原上陆面和水面蒸发-凝结-再降水的过程。

关键词: 青藏高原; 湖泊水体演化; 氢氧同位素特征; 水循环过程