

# 末次冰期以来南海东北部陆源有机碳埋藏 通量演变：海平面和季风驱动\*

秦琳<sup>1,3</sup> 万世明<sup>1,2</sup>

(1. 中国科学院海洋研究所 中国科学院海洋地质与环境重点实验室 青岛 266071; 2. 青岛海洋科学与技术试点国家实验室海洋地质过程与环境功能实验室 青岛 266237; 3. 中国科学院大学 北京 100049)

**摘要** 大陆边缘盆地是大陆风化剥蚀产物的主要沉积汇，其中有机碳的埋藏通量及其控制机制的研究对于理解全球碳循环具有重要科学意义。本研究基于南海东北部台西南盆地 TWS-1 岩芯的 AMS<sup>14</sup>C 测年、总有机碳、总氮含量和稳定碳同位素组成的分析，探讨了末次盛冰期 23ka BP 以来南海东北部陆源有机碳的来源、历史和影响机制。与潜在物源端元对比表明，台湾是研究站位沉积物陆源有机碳的主要物源，相对海源其贡献比例约为 58%，陆源物质可能主要通过海底峡谷水道和低海平面时期陆架河流输入。重建的陆源有机碳通量在末次冰消期早期(19—13ka BP)和中全新世(7—4ka BP)期间有两个峰值，分别约 0.16g/(cm<sup>2</sup>·ka)和 0.09g/(cm<sup>2</sup>·ka)。综合分析表明，二者分别受控于冰期低海平面时期增强的陆架风化剥蚀和全新世季风强盛期降水驱动的古台湾岛剥蚀。我们的工作表明冰期-间冰期循环中海平面和季风分别驱动的大陆边缘有机碳埋藏可能对全球碳循环和大气 CO<sub>2</sub> 浓度演变有重要影响。

**关键词** 南海; 末次冰期以来; 海平面变化; 东亚季风; 陆源有机碳; 碳循环

**中图分类号** P736 doi: 10.11693/hyh20200300068

边缘海作为连接海洋和陆地之间的桥梁和纽带，是海陆交互作用最为强烈的地区，其古海洋演化受到区域古环境和全球气候变化的共同影响(汪品先等, 1986)。作为贡献了全球陆源沉积通量约 66%的亚洲大陆边缘(Milliman *et al.*, 2011)，其沉积物源-汇过程及其在碳循环中的作用对于我们理解气候变化的响应和反馈具有重要意义(Yang *et al.*, 2003; Liu *et al.*, 2016b; Wan *et al.*, 2017)。南海是西太平洋低纬区最大的边缘海，是低纬亚洲大陆风化剥蚀产物的主要堆积地，且含有丰富的可用于定年的海相化石，为重建地质历史时期高分辨率古海洋、古环境演变提供了极佳材料(Wang *et al.*, 1999; 黄维等, 2006)。海洋中有超过 90%有机碳沉积发生在陆架边缘海区域，使得陆架边缘海，比如南海成为研究陆源有机碳埋藏过程、历史和机制的天然实验室(Meade, 1996; McKee *et al.*,

2004; Bianchi *et al.*, 2009)。海洋沉积物中的有机碳埋藏是地球碳循环的关键组成部分，它不仅为底栖生态系统提供了主要能量，而且在调节地质时间尺度大气中氧气和二氧化碳浓度演变中起到了重要作用(Berner *et al.*, 1989; Bjerrum *et al.*, 2004)。

利用有机地球化学方法可以从海洋沉积有机质中提取出多种用于重建海陆古环境和古气候的代用指标，如有机碳含量及碳同位素组成常被用于指示有机质来源及演变(Shao *et al.*, 2001; Castañeda *et al.*, 2011; Chen *et al.*, 2019; Xu *et al.*, 2020)。海洋沉积物中的有机碳按成因分为海源有机碳和陆源有机碳，可通过 C/N 和  $\delta^{13}\text{C}$  大致确定其组成(Emerson *et al.*, 1988; Prahl *et al.*, 1994; Meyers, 1997; Müller *et al.*, 1999; Burdige, 2007)。海洋沉积物中有机碳的含量在一定程度上反映了初级生产力(Schoepfer *et al.*, 2015)，并已

\* 国家自然科学基金优秀青年基金, 41622603 号。秦琳, 硕士研究生, E-mail: qinlin@qdio.ac.cn

通信作者: 万世明, 博士生导师, 研究员, E-mail: wanshiming@qdio.ac.cn

收稿日期: 2020-03-10, 收修改稿日期: 2020-04-23

成为古海洋生产力的代用指标。但是通过总有机碳含量所反映的古海洋生产力可能不够准确,这主要是由于总有机碳中陆源有机碳的定量评估经常被忽略(Jia *et al.*, 2002)。有学者提出海底有机碳埋藏通量很大程度上取决于表层海水中生物过程释放的碳及其在深海沉降过程中引起的再矿化作用(Chen *et al.*, 2019),而这同样忽略了陆源有机碳输入所带来的影响。并且,目前大多数关于海水表层古生产力和底部有机碳的埋藏及其对全球碳循环潜在影响的研究主要集中在远离陆地和岛屿的开阔大洋区,这些海区中温跃层上涌带来营养盐对有机碳的影响比陆源输入要显著得多,因此对于拥有巨量陆源物质供应的大陆边缘地区而言,陆源输入有机碳对全球碳循环的贡献可能被严重低估(Murray *et al.*, 2012; Costa *et al.*, 2016; Winckler *et al.*, 2016; Luo *et al.*, 2018; Chen *et al.*, 2019)。除此之外,多项研究表明海洋沉积物中的有机碳埋藏表现出明显的冰期-间冰期循环,在冰期期间有机碳埋藏通量最高,得益于冰期营养物质输入增强和更好的有机质保存(Pedersen, 1983; Bradtmiller *et al.*, 2010; Cartapanis *et al.*, 2016)。然而遗憾的是,对南海北部末次盛冰期到全新世期间海洋沉积物中陆源有机碳埋藏通量的综合研究却很少(Yang *et al.*, 2011),以致无法准确评价南海地质时期有机碳循环在全球碳循环及气候变化中的作用。

本研究以南海东北部台西南盆地 TWS-1 岩芯为研究对象,分析了沉积总有机碳含量(total organic carbon, TOC)、总氮含量(total nitrogen, TN)和稳定碳同位素( $\delta^{13}\text{C}_{\text{org}}$ ),并结合沉积物干容重(dry bulk density, DBD)、线性沉积速率(linear sedimentation rate, LSR)(单位: cm/ka)和总陆源物质通量等数据,综合研究了末次盛冰期以来 TWS-1 岩芯沉积物中有机碳的来源、沉积与埋藏过程。主要科学目标包括: 1)确定南海东北部陆源有机碳的主要来源; 2)重建末次盛冰期以来 TWS-1 岩芯总陆源物质通量、陆源有机碳含量和陆源有机碳通量的演化趋势; 3)探讨海平面升降和季风强弱变化等驱动因素对南海东北部海区陆源有机碳埋藏的影响。

## 1 材料与方法

### 1.1 样品采集

本次研究所用的样品来自 2016 年“科学号”科考船用可视化长柱取样器在南海东北部台西南盆地陆架坡折带附近获取的 TWS-1 岩芯(22°6'N,

119°17'E)(图 1), 站位水深 1186m, 岩芯总长度为 629cm。岩芯岩性整体较均一, 为青灰色含有孔虫粉砂质黏土, 未见明显浊流砂层。室内对岩心以 1cm 间隔进行分样, 置于样品库低温保存。本文对部分样品进行了干容重、陆源含量、有机碳-氮含量和有机碳同位素的测试分析, 并选取 8 个层位进行了 AMS<sup>14</sup>C 年代测定(表 1)。

### 1.2 AMS<sup>14</sup>C 测年

选取了 8 个层位沉积物样品, 挑取其中 >150 $\mu\text{m}$  的浮游有孔虫混合种(*Globigerinoides sacculifer*、*Globigerinoides ruber* 和 *Neogloboquadrina dutertrei*)进行 <sup>14</sup>C 加速器质谱(Accelerator Mass Spectrometry, AMS<sup>14</sup>C)测年, 测年由美国 Beta 实验室完成。基于海洋校正数据库 Marine13(Reimer *et al.*, 2013)和区域 <sup>14</sup>C 储库年龄( $R=18\pm 37$ )(Southon *et al.*, 2002), 利用 CALIB7.0.4 软件对原始 <sup>14</sup>C 年龄数据进行校正。测年结果见表 1。

### 1.3 陆源物质堆积速率(陆源通量)

用直径 2.36cm、高 0.98cm 的容重环对 TWS-1 岩芯自上而下约 14cm 间距共取了 47 个容重样品, 将样品烘干称重, 所得干样重除以容重环的体积, 计算得到 DBD(单位: g/cm<sup>3</sup>)。沉积物陆源组分的含量为用化学试剂除去有机质和碳酸盐后剩下的组分(硅酸盐矿物为主)占全样的百分含量, 其中有机质和碳酸盐分别用 30mL 15% 的双氧水和 30mL 0.5mol/L 盐酸在 60°C 水浴条件下溶解去除。总物质堆积速率(Mass accumulation rate, MAR)的计算公式为  $\text{MAR}=\text{DBD}\times\text{LSR}$ (Janecek *et al.*, 1983)。LSR 可以根据年代框架计算获得。因为考虑了压实校正, 物质堆积速率相对于线性沉积速率更为可靠。最终, 陆源物质堆积速率(陆源 MAR)=陆源物质百分含量 $\times$ MAR。

### 1.4 有机碳-氮含量和有机碳同位素分析

取 1.5—2g 的沉积物样品在 -44°C 下冷冻干燥 48h。样品干燥好之后, 用玛瑙研钵研磨至 200 目以下。将研磨好的样品分为两部分, 一部分样品约 100mg 直接上机测试总氮含量; 剩余样品用来进行有机碳含量和  $\delta^{13}\text{C}$  的前处理实验, 称取其质量  $m_0$ ; 将质量为  $m_0$  的研磨样转移到 50mL 离心瓶中, 加入 15mL 2mol/L 盐酸, 充分震荡, 共反应 12h, 在此期间超声震荡两次。之后, 补充 15mL 2mol/L 盐酸, 充分震荡, 继续反应 12h, 在此期间超声震荡两次, 确保无机碳酸盐组分完全除去, 随后离心清洗干净在 45°C 下烘干。烘干后, 用玛瑙研钵研磨至 200 目以下, 称重后记录其质

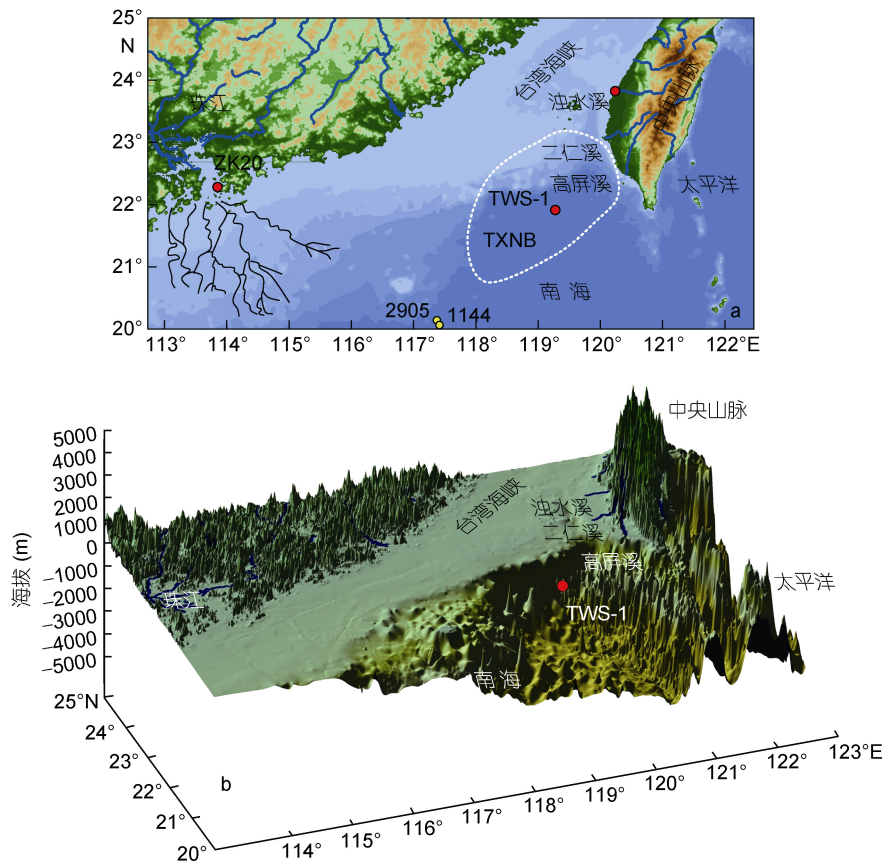


图 1 南海东北部海区平面(a)和三维地形图(b)

Fig. 1 Topographic map of the northern SCS (a) and the smaller 3D map of the study area (b)

注: 蓝色曲线: 现代河流; 黑色曲线: 冰期陆架古河道; 红色圆点: 研究站位 TWS-1; 黄色圆点: 文中提及的站位 ODP1144 和 MD05-2905; 白色点线围成范围: 台西南盆地(Taixinan Basin, TXNB)

表 1 TWS-1 孔 AMS<sup>14</sup>C 年龄数据  
Tab.1 AMS<sup>14</sup>C dating of Core TWS-1

深度(cm)	测试材料	<sup>14</sup> C 年龄(a BP)	校正年龄(a BP)
10—11	混合种有孔虫	1340±30	823
79—80	混合种有孔虫	3640±30	3476
145—146	混合种有孔虫	4760±30	4949
218—219	混合种有孔虫	6480±30	6904
236—237	混合种有孔虫	8500±30	9053
308—309	混合种有孔虫	11120±40	12593
546—547	混合种有孔虫	15720±60	18521
615—616	混合种有孔虫	18710±80	22111

量为  $m_1$ , 并用称量纸封装好, 准备上机测试。

上机测试在青岛海洋科学与技术试点国家实验室进行, 总氮含量通过 Flash IRMS 元素分析仪测试完成; 沉积物样品总氮含量测试完毕后, 利用 Flash IRMS 元素分析仪进行了有机碳含量测试; 最后, 有机碳同位素( $\delta^{13}\text{C}_{\text{org}}$ )用 Thermo Fisher MAT 253 plus 稳定同位素质谱仪测试完成。测试有机碳同位素时使

用的标样是 USGS-62、IAEA-600 和 IAEA-CH-3, 其  $\delta^{13}\text{C}$  分别为  $-27.77\text{‰}$ 、 $-14.79\text{‰}$ 和  $-24.72\text{‰}$ ; 通过对标样进行重复测试, 得知  $\delta^{13}\text{C}_{\text{org}}$  的测量值与真实值之间的误差  $\pm 0.2\text{‰}$ 。测试有机碳-氮含量时所用的标样是乙酰苯胺, 碳含量为 71.09%, 氮含量为 10.36%, 重复测试显示有机碳和总氮含量的相对误差分别为  $\pm 2\%$ 和  $\pm 2\%$ 以内。沉积物的总有机碳含量需要基于

Flash IRMS 元素分析仪测试得到的相对有机碳含量进行校正, 校正公式为  $TOC = TOC_{\text{测试}} \times (m_1/m_0)$ 。

## 2 结果

### 2.1 AMS<sup>14</sup>C 测年

AMS<sup>14</sup>C 测年结果如表 1 和图 2 所示, 一共有 8 个年龄控制点, 岩芯底部 615cm 处年龄为 22.1ka BP, 属于末次盛冰期(Last Glacial Maximum, LGM)期间, 距离岩芯顶部 10cm 处样品的年龄为 0.82ka BP, 按照线性内插法获得了岩芯样品的年代框架。岩芯总体上包含了自末次盛冰期约 23ka BP 以来至全新世的连续沉积, 平均沉积速率约为 28cm/ka。

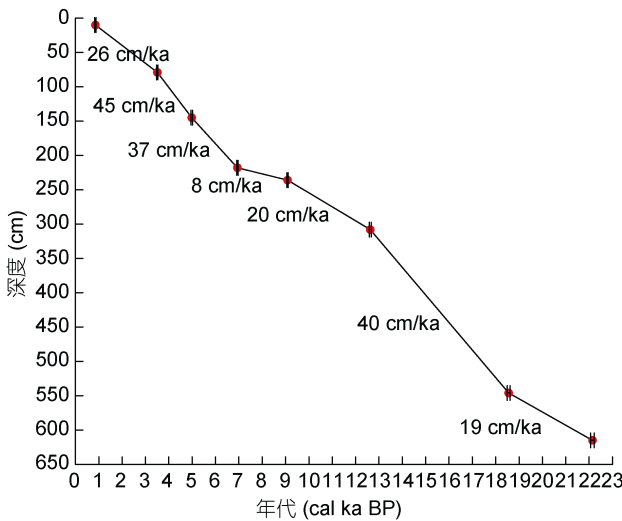


图 2 TWS-1 年龄-深度模式

Fig. 2 The calendar age-depth model of Core TWS-1

注: 红色圆点: 控制点; 黑色双短线: 误差棒; 线条旁边的数字: 相邻两个控制年龄之间的平均沉积速率

### 2.2 陆源物质堆积速率

如图 3 所示, TWS-1 岩芯 DBD 的变化范围在  $0.96\text{--}1.42\text{g}/\text{cm}^3$ , 平均值为  $1.22\text{g}/\text{cm}^3$ , 岩芯 350cm 以下的底部 DBD 值较高(约  $1.32\text{g}/\text{cm}^3$ )。根据测年结果, 计算得到各时间段的线性沉积速率(LSR)的变化范围在  $8.4\text{--}44.8\text{cm}/\text{ka}$  之间, 平均为  $27.8\text{cm}/\text{ka}$ , 其中约 19—13ka BP 和 7—4ka BP 期间沉积速率较高(约  $35\text{cm}/\text{ka}$ )。总体, 该站位远高于整个南海 LGM 以来的平均沉积速率( $7.5\text{cm}/\text{ka}$ )(Wang, 1999), 但略低于南海北部高速堆积体附近的国际大洋钻探计划(Ocean Drilling Program, ODP)1144 站(约  $46\text{cm}/\text{ka}$ )(Wan *et al.*, 2010)。MAR 的变化范围为  $9.7\text{--}57.3\text{g}/(\text{cm}^2\cdot\text{ka})$ , 平均值为  $38.7\text{g}/(\text{cm}^2\cdot\text{ka})$ , 变化趋势与 LSR 基本一致。陆

源组分含量的变化范围为  $90.5\%\text{--}94.9\%$ , 平均值为  $93.1\%$ , 表明岩芯沉积物中的陆源组分占据绝对优势, 海洋自生组分很少, 这和岩芯岩性观察及测年揭示的高沉积速率均很好吻合。22.5—10.2ka BP 期间, 陆源组分含量较高, 10.2ka BP 以来相对略低。陆源通量 MAR 的变化范围为  $8.9\text{--}53.8\text{g}/(\text{cm}^2\cdot\text{ka})$ , 平均值为  $36.0\text{g}/(\text{cm}^2\cdot\text{ka})$ , 变化趋势与 LSR 和 MAR 基本一致, 在 19—13ka BP 和 7—4ka BP 期间陆源通量(约  $50\text{g}/(\text{cm}^2\cdot\text{ka})$ )是其他阶段的近 2 倍。

### 2.3 有机碳-氮含量和碳同位素

如图 4, 自 23ka BP 以来, TOC 的变化范围在  $0.33\%\text{--}0.59\%$  之间, 平均值为  $0.42\%$ 。23—13ka BP 期间, TOC 含量有所下降; 13—8ka BP 期间, TOC 含量较高且波动较大; 8—1ka BP 以来, TOC 含量基本保持稳定; 1ka BP 以来, TOC 含量略有增加。TN 的变化范围在  $0.03\%\text{--}0.07\%$  之间, 平均值为  $0.05\%$ ; 其中, 23—13ka BP 期间, TN 偏低, 13ka BP 以来, TN 偏高。C/N 的变化范围在  $5.8\text{--}13.6$  之间, 平均值为  $9.3$ ; C/N 比值在 23—13ka BP 以来较高且变化幅度较大, 13ka BP 以来 C/N 偏低。 $\delta^{13}\text{C}_{\text{org}}$  的变化范围在  $-24.09\%\text{--}$  和  $-22.19\%$  之间, 平均值为  $-23.17\%$ ;  $\delta^{13}\text{C}_{\text{org}}$  的变化趋势基本上与 C/N 相反, 23—13ka BP 期间,  $\delta^{13}\text{C}_{\text{org}}$  的值偏负, 13ka BP 以来,  $\delta^{13}\text{C}_{\text{org}}$  值快速升高并逐渐降低。

## 3 讨论

### 3.1 陆源有机碳来源

研究沉积物来源首先要考虑各个潜在物源端元的沉积物通量。南海北部的主要物源包括珠江、台湾和吕宋岛弧, 三者每年输送到南海北部的悬浮河流沉积物共计近  $260\text{Mt}$ (表 2)。其中, 珠江每年输送约  $69\text{Mt}$  沉积物到南海, 受广东沿岸流和地转偏向力的共同作用, 珠江来源物质主要沿岸向西南方向输送(Liu *et al.*, 2012)。吕宋岛河流每年向南海输送近  $13\text{Mt}$  沉积物, 但更多沉积在邻近菲律宾的南海东部地区, 可能有部分物质被表层洋流搬运至深海和南海北部(Liu *et al.*, 2016b)。相比而言, 现代台湾对南海北部沉积物贡献量巨大(约  $70\%$ )。因地势陡峭、构造活跃、台风频繁、降水丰富, 台湾有着全球最高的大陆侵蚀速率( $3\text{--}6\text{mm}/\text{a}$ )(Dadson *et al.*, 2003)。台湾西部的曾文溪、浊水溪等河流每年输送了约  $176\text{Mt}$  沉积物到台湾海峡和南海北部陆架及深海, 而台湾西南部以高屏溪为主的 5 条河流每年有近  $70\text{Mt}$  沉积物可通过海底峡谷直接输运至台西南盆地(Liu *et al.*, 2008a, 2016b;

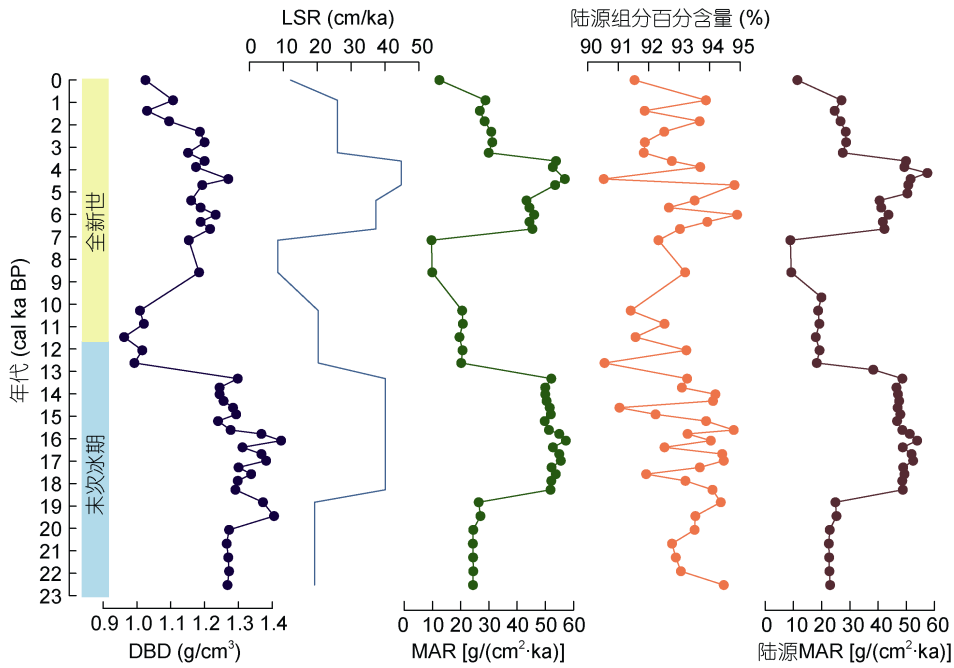


图 3 23 ka BP 以来 TWS-1 岩芯干容重(DBD)、沉积速率(LSR)、总物质堆积速率(MAR)和陆源演变  
 Fig.3 Variations of dry bulk density, sedimentation rate and terrigenous MAR at Core TWS-1 since 23 ka BP

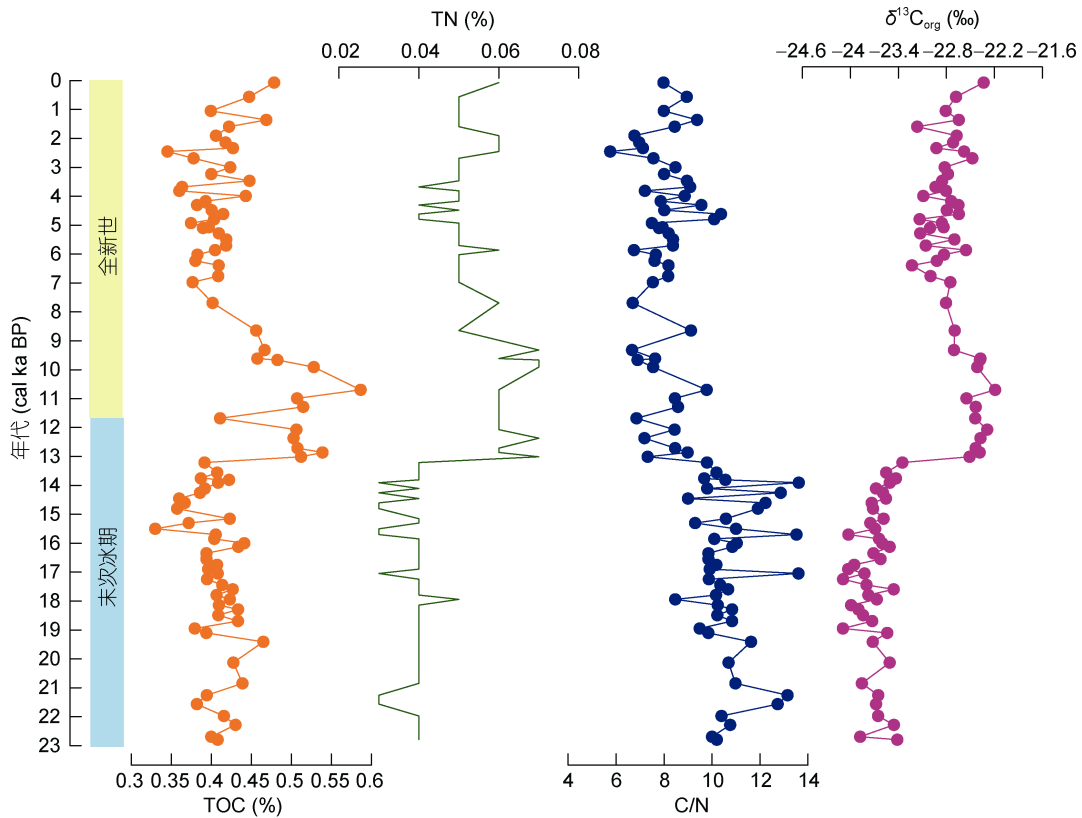


图 4 23ka BP 以来 TWS-1 岩芯有机地化参数的演变  
 Fig.4 Variations of organic geochemistry parameters of Core TWS-1 since 23ka BP  
 注: TOC: 总有机碳含量(Total organic carbon); TN: 总氮含量(Total nitrogen)

表 2 直接输运到南海东北部的主要河流的流域面积、径流量和悬浮沉积物输送量  
Tab.2 Drainage area, runoff, and observed suspended sediment discharge of major flowing directly into the South China Sea

河流名称	流域面积 ( $\times 10^3 \text{km}^2$ )	径流量 ( $\text{m}^3/\text{a}$ )	悬浮沉积物输入量 ( $\text{Mt}/\text{a}$ )	数据来源	
大安溪(台湾)	0.633	1.6	7.1	(Dadson <i>et al</i> , 2003)	
乌溪(台湾)	1.981	1.9	9.8		
浊水溪(台湾)	2.989	1.2	54.1		
北港溪(台湾)	0.597	1.3	2.2		
巴掌溪(台湾)	0.441	1.5	6.3		
曾文溪(台湾)	1.157	1.1	25.1		
二仁溪(台湾)	0.175	1.8	30.2		
高屏溪(台湾)	3.067	2.5	49		
东港溪(台湾)	0.175	2.9	0.4		
林边溪(台湾)	0.310	2.5	3.3		
台湾西部和西南部河流总计			187.5		
邦板牙河(吕宋)	8.625	8.8	3.5		(Liu <i>et al</i> , 2016b)
阿格诺河(吕宋)	6.340	10.5	4.7		
安格特(吕宋)	0.570	N/A	4.6		
维甘河(吕宋)	5.208	21	N/A		
卡加延河(吕宋)	30.416	15.4	N/A		
吕宋河流总计			12.8		
珠江	440.000	6.9	69	(Milliman <i>et al</i> , 1992)	

Yu *et al*, 2009)。因此, 从沉积物通量来看, 台湾西部及西南部河流是南海东北部最主要的沉积物来源。

在沉积物埋藏较浅、早期成岩作用对有机质组成影响极小的前提下, 有机质来源可以基于元素和同位素组成加以区分(Meyers, 1994; Middelburg *et al*, 1998)。海洋沉积物中的有机质主要分为陆源和海源两种, 通常陆源脉管植物中的有机质相对于海水表层中通过光合作用合成的有机物更加亏损  $^{13}\text{C}$ , 因此其碳同位素比值更偏负(Emerson *et al*, 1988; Hedges *et al*, 1997; Burdige, 2007)。考虑到从沉积物中完全分离有机氮非常困难, 因此常用总氮含量代表有机氮含量。然而, 由于沉积物成岩过程中黏土矿物具有吸附效应, 细粒沉积物中含有较多的黏土矿物和表面负电荷, 容易吸附  $\text{NH}_4^+$ , 可能会使使得 C/N 有所下降(Meyers, 1997)。如果无机氮仅占总氮的很小部分, 那么通常不会影响有机质来源的识别(Ganeshram *et al*, 2000; Shigemitsu *et al*, 2008)。就 TWS-1 站位而言, 如图 4 和图 5b 所示, TOC 和 TN 总体变化趋势较为接近, 且有较好的线性相关(相关系数  $R=0.57$ )。依据线性回归的截距和总氮平均含量(Hu *et al*, 2006)可大致估计沉积物无机氮含量约为 20%, 说明黏土矿物吸附的

无机氮较少, 可通过 C/N 粗略判断有机质来源。此外, TWS-1 岩芯 TOC 含量与沉积物平均粒径之间相关性极低( $R=-0.066$ )(图 5c), 说明 TOC 含量变化受粒度效应影响很小。沉积物有机质中  $\delta^{13}\text{C}_{\text{org}}$  值主要反映了光合作用、碳同化作用和碳源的同位素组成(Hayes, 1993), 受粒度影响不大(Meyers, 1997)。考虑到微生物活动会影响沉积物中有机氮的含量(Thornton *et al*, 1994), 沉积后生作用也会使有机质 C/N 发生改变(Bordovskiy, 1965; Prahl *et al*, 1980; Roman, 1980), 仅通过有机质 C/N 不能严格反映有机质的来源信息。因此, 通常通过有机质 C/N 与  $\delta^{13}\text{C}_{\text{org}}$  值的协变图来判断有机质的来源。

如图 5a 所示, 珠江悬浮体及其表层土壤的 C/N 平均值均为 12.9,  $\delta^{13}\text{C}_{\text{org}}$  平均值分别为  $-23.3\%$  和  $-24.2\%$ (Lin *et al*, 2019)。台湾西南河流悬浮体 C/N 平均值为 7.3,  $\delta^{13}\text{C}_{\text{org}}$  平均值为  $-23.9\%$ ; 台湾沉积岩和变质岩的 C/N 平均值分别为 7 和 8.5,  $\delta^{13}\text{C}_{\text{org}}$  平均值分别为  $-24.7\%$  和  $-22.2\%$ (Kao *et al*, 2000; Hilton *et al*, 2010; Lin *et al*, 2020)。总体上, 台湾端元和珠江端元有机质  $\delta^{13}\text{C}_{\text{org}}$  值较为接近, 分布在  $-24.7\%$ — $-22.2\%$  左右, 而 C/N 则差异较大, 其中珠江值偏高。由于如上

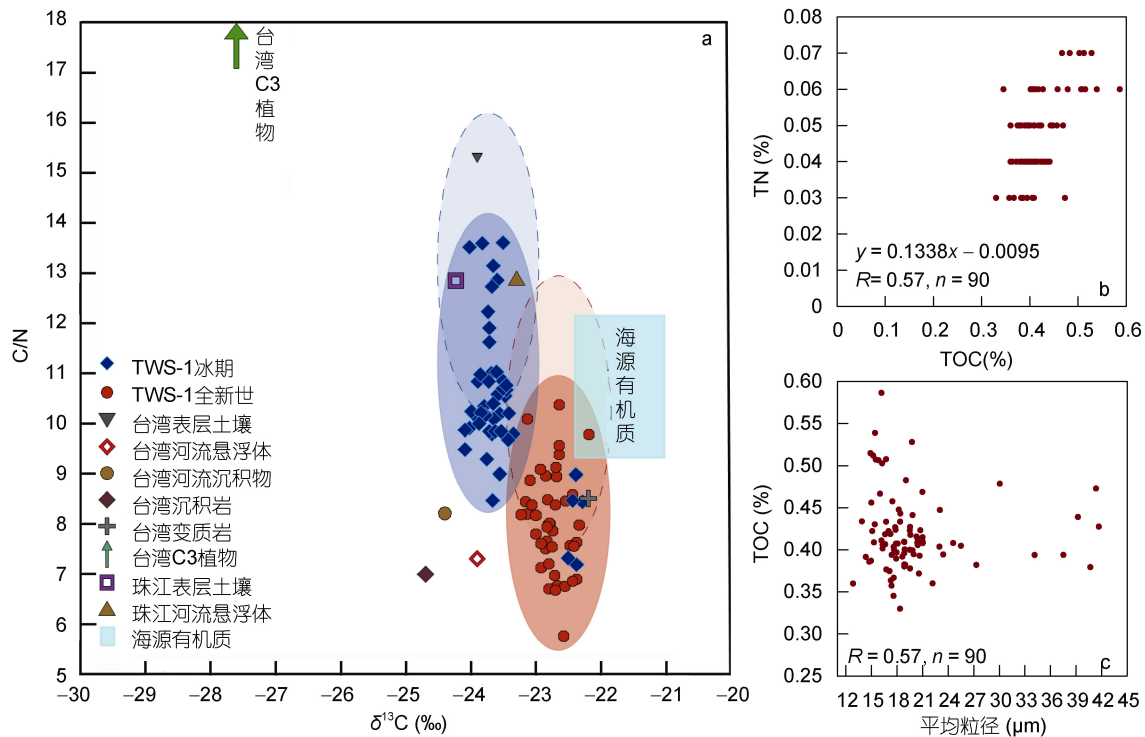


图5 TWS-1 岩芯稳定碳同位素  $\delta^{13}\text{C}$ -C/N 协变图(a)、TN-TOC 相关图(b)、TOC-平均粒径相关图(c)

Fig.5 Cross plots of C/N vs.  $\delta^{13}\text{C}$  of Core TWS-1(a), TN vs. TOC (b) and TOC vs. mean grain size (c)

注: 珠江表层土壤和河流悬浮体数据引自文献(Lin *et al.*, 2019); 台湾河流沉积物、悬浮体、台湾土壤、沉积岩、台湾变质岩、台湾 C3 植物数据引自文献(Lin *et al.*, 2020); 海源有机质 C/N 和  $\delta^{13}\text{C}$  范围数据引自文献(Kao *et al.*, 2006; 于晓果等, 2013); 虚线包围的阴影部分表示 TWS-1 沉积物 C/N 比经过无机氮校正后的范围; R: 相关系数; n: 统计样品数量

所述, C/N 比值的影响因素较多, 而实际台湾和珠江端元有机碳同位素分布接近, 暗示其植被类型可能较为相似, 因此确实很难仅通过 C/N- $\delta^{13}\text{C}_{\text{org}}$  值定量区分陆源有机质是来自台湾还是珠江。尽管如此, TWS-1 孔全新世期间沉积物样品点的分布更靠近台湾端元, 而偏离珠江端元, 说明全新世期间 TWS-1 岩芯沉积物中陆源有机碳来自台湾(图 5a)。虽然冰期时 TWS-1 沉积物样品点分布靠近珠江端元, 但是并不能简单认为冰期物源为珠江。遗憾的是我们不清楚台湾和珠江端元在冰期时的各自沉积物特征, 但是冰期季风减弱导致台湾沉积岩/变质岩较弱的剥蚀(低 C/N 比值)和低海平面暴露的台湾海峡和南海东北部陆架生长的更多 C3/C4 植被(高 C/N 比值)的混合也完全可能产生类似 TWS-1 冰期有机质组成。更重要的是, 结合研究区的地质背景和前人研究, 也可进一步确定研究区冰期物质来源仍主要是台湾(详见后续论述)。除了陆源有机碳的贡献外, 海源自生有机碳对海洋沉积物有机碳组成也有重要影响。相比之下, 陆源脉管植物有机质的碳同位素比值相对于海洋自生有机物更偏负(Emerson *et al.*, 1988; Hedges *et al.*, 1997;

Burdige, 2007), 海洋藻类中  $\delta^{13}\text{C}_{\text{org}}$  值通常为  $-20\text{‰}$ — $-22\text{‰}$ (Meyers, 1997)。TWS-1 沉积物  $\delta^{13}\text{C}_{\text{org}}$  值平均为  $-23\text{‰}$ , 相比陆源端元更加偏正, 说明 TWS-1 沉积物有机碳中包含部分海源有机碳。此外, 我们观察到 TWS-1 岩芯沉积物冰期相对全新世的 C/N 比值较高, 而  $\delta^{13}\text{C}_{\text{org}}$  值偏负, 这可能和冰期陆架暴露剥蚀了更多的富含 C3/C4 植被的陆源沉积物到深海有关, 相比之下, 全新世海平面升高贡献了更多的海源有机碳。

诸多研究表明, 沿着活动大陆边缘分布的高海拔岛屿上的山区河流, 与狭窄陆架和完善的海底峡谷系统所形成的组合, 能快速将陆源有机质输送到深海(Lyons *et al.*, 2002; Blair *et al.*, 2012; Liu *et al.*, 2016a)。如图 1 所示, 台湾地势起伏极大, 中央山脉高高隆起, 台湾西南部河流从中央山脉流出后可直接进入深海。台湾地区降水丰富, 构造运动剧烈, 物理剥蚀极为强烈, 河流携带了大量的陆源碎屑沉积物(Dadson *et al.*, 2003)。TWS-1 岩芯位于台西南盆地陆架坡折带附近, 附近发育有广泛的海底峡谷系统, 如高屏海底峡谷、澎湖海底峡谷群等(Liu *et al.*, 2016a; 聂鑫等, 2017)。高屏溪是台湾西南部最大的一条河流,

每年输送到南海东北部的悬浮沉积物可达 49Mt (Dadson *et al*, 2003)。高屏海底峡谷连接了高屏溪河口、南海东北部陆架、陆坡, 一直延伸至马尼拉海沟东北部, 它与高屏溪构成了一个从陆-海的运输体系, 可有效地将台湾地区侵蚀的陆源碎屑沉积物搬运到南海东北部沉积下来。因此, 从输运机制来说, 台湾是 TWS-1 岩芯中陆源有机碳的主要来源。

除此之外, 有学者对南海北部沉积物物源研究发现, 3Ma 以来南海东北部陆坡区 ODP 1144—1148 站位沉积物的黏土矿物组合特征与台湾西南部相一致, 沉积物主要来自台湾, 这可能与晚上新世以来台湾造山带的形成以及南海北部底流沉积物输送的增强有关(Wan *et al*, 2010)。ODP1144 和 1145 站位晚更新世以来沉积物中的 Sr-Nd 同位素组成也显示与台湾西南部相一致, 而不同于珠江(Boulay *et al*, 2005; Shao *et al*, 2009)。刘志飞等(Liu *et al*, 2016b)通过对末次冰期以来南海北部陆坡区 MD05-2904 和 MD05-2905 岩芯的黏土矿物组分研究发现, 台湾是输送到南海北部的陆源物质的最重要的物源区, MD05-2905 相对 MD05-2904 地理位置上更靠近台湾, 使得台湾来源的陆源碎屑物质贡献程度更高。地震剖面显示, 南海东北部 1000—2700m 等深线发现了底层洋流运输所形成的由东北向西南延伸的河道, 由于河道东侧的沉积速率更高, 有利于沉积物的堆积(Shao *et al*, 2007)。TWS-1 岩芯的水深为 1186m, 结合前人对南海洋流深度的划分(Chao *et al*, 1996), 此处沉积受到深层水底层洋流的影响, 强烈的底流很容易将 TWS-1 站位附近悬浮沉积物搬运到 ODP1144-1148 附近更深的陆坡或大洋盆地中沉积下来, 进一步暗示 TWS-1 岩芯中陆源有机碳主要来自台湾。

有学者研究发现末次冰期以来珠江来源的陆源碎屑物质对南海北部海区的贡献程度约为 15%—25%, 并且距离珠江口越远, 来自珠江陆源碎屑物质的贡献程度越低(Liu *et al*, 2010; Liu *et al*, 2016b)。如图 1 所示, 珠江口距离 TWS-1 站位超过 500km, 二者之间的海底地形十分平坦, 即使末次冰期时海平面下降, 珠江口沿陆架向海延伸, 埋藏河道揭示冰期古珠江入海口离研究站位甚远(鲍才旺, 1995), 珠江来源的沉积物也很难搬运至台西南盆地(图 1)。相比之下, 台湾西南部离站位的直线距离仅 100km, 且地形落差极大, 利于沉积物的输送。此外, 尽管有学者认为南海北部沉积物中较高含量的蒙脱石来自吕宋岛弧体系(Liu *et al*, 2003; Wan *et al*, 2007; Liu *et al*,

2008b), 但是考虑到其对南海东北部海区的年悬浮沉积物输入量与台湾和珠江相差极其悬殊(表 2), 吕宋岛弧来源的有机碳含量对研究区的贡献也十分有限。

基于以上分析, 为简化计算, 我们采用海源-陆源(台湾)两端元模型来量化海洋和陆地对 TWS-1 站位有机质的相对贡献程度。根据公式  $\delta^{13}\text{C}_{\text{org}} = f_{\text{M}} \times \delta^{13}\text{C}_{\text{M}} + f_{\text{T}} \times \delta^{13}\text{C}_{\text{T}}$  (Shultz *et al*, 1976; Minoura *et al*, 1997) 和公式  $f_{\text{M}} + f_{\text{T}} = 1$  联立可求出未知参量  $f_{\text{M}}$ 、 $f_{\text{T}}$ 。其中,  $f_{\text{M}}$  为海源有机碳相对含量,  $f_{\text{T}}$  为陆源有机碳相对含量,  $\delta^{13}\text{C}_{\text{M}}$  为海源有机质碳同位素值,  $\delta^{13}\text{C}_{\text{T}}$  为陆源有机质碳同位素值。基于前人研究, 海源端元  $\delta^{13}\text{C}_{\text{M}}$  值取  $-21.5\text{‰}$  (Kao *et al*, 2000, 2006), 陆源  $\delta^{13}\text{C}_{\text{T}}$  值取台湾西南部河流端元平均组成  $-24.4\text{‰}$  (Lin *et al*, 2020)。结果表明, TWS-1 岩芯沉积物总有机碳中台湾陆源有机碳的相对含量约 47.7%, 海源有机碳相对含量则平均为 52.3%。通过公式: 陆源有机碳含量 = TOC  $\times f_{\text{T}}$ , 陆源有机碳通量 = 陆源有机碳含量  $\times$  MAR, 进而可以分别求出岩芯沉积物中陆源有机碳含量和陆源有机碳通量。TWS-1 岩芯陆源有机碳含量变化范围为 0.13%—0.36%, 平均值 0.24%, 陆源有机碳通量变化范围为 0.015—0.189g/(cm<sup>2</sup>·ka), 平均值为 0.101g/(cm<sup>2</sup>·ka)。二者随时间的变化趋势如图 6 所示。

### 3.2 陆源有机碳埋藏通量的演变及驱动机制

如图 6 所示, TWS-1 岩芯陆源有机碳含量在末次盛冰期到末次冰消期早期(23—13.5ka BP)较高, 平均约 0.31%, 约 13ka BP 以来即冰消期晚期-全新世含量较低, 平均约 0.18%。陆源有机碳通量则基本和总陆源物质通量的变化趋势类似, 在末次冰消期早期(19—13ka BP)和中全新世(7—4ka BP)期间有两个峰值, 二者分别约 0.16g/(cm<sup>2</sup>·ka)和 0.09g/(cm<sup>2</sup>·ka)。其他时期相对较低, 但末次冰盛期中晚期(23—19ka BP)的陆源有机碳通量[约 0.08g/(cm<sup>2</sup>·ka)]仍然高出冰消期晚期-早全新世(13—7ka BP) [约 0.03g/(cm<sup>2</sup>·ka)]和晚全新世(4ka BP 以来) [约 0.05g/(cm<sup>2</sup>·ka)]。

如图 6 所示, 基于末次冰期以来巽它陆架(Hanebuth *et al*, 2000)、新加坡(Hesp *et al*, 1998)和马六甲海峡(Geyh *et al*, 1979)海平面变化数据重建的南海海平面变化曲线可以看出, 冰盛期-冰消期早期(21—13ka BP)期间为南海低海平面时期, 19—14ka BP 较现在海平面低约 80—120m, 这段时间正好对应了陆源有机碳的高含量和高通量, 暗示低海平面更有利于有机碳埋藏。有意思的是, 23—19ka BP 的 LGM 期间, 海平面甚至比冰消期早期 19—14ka BP



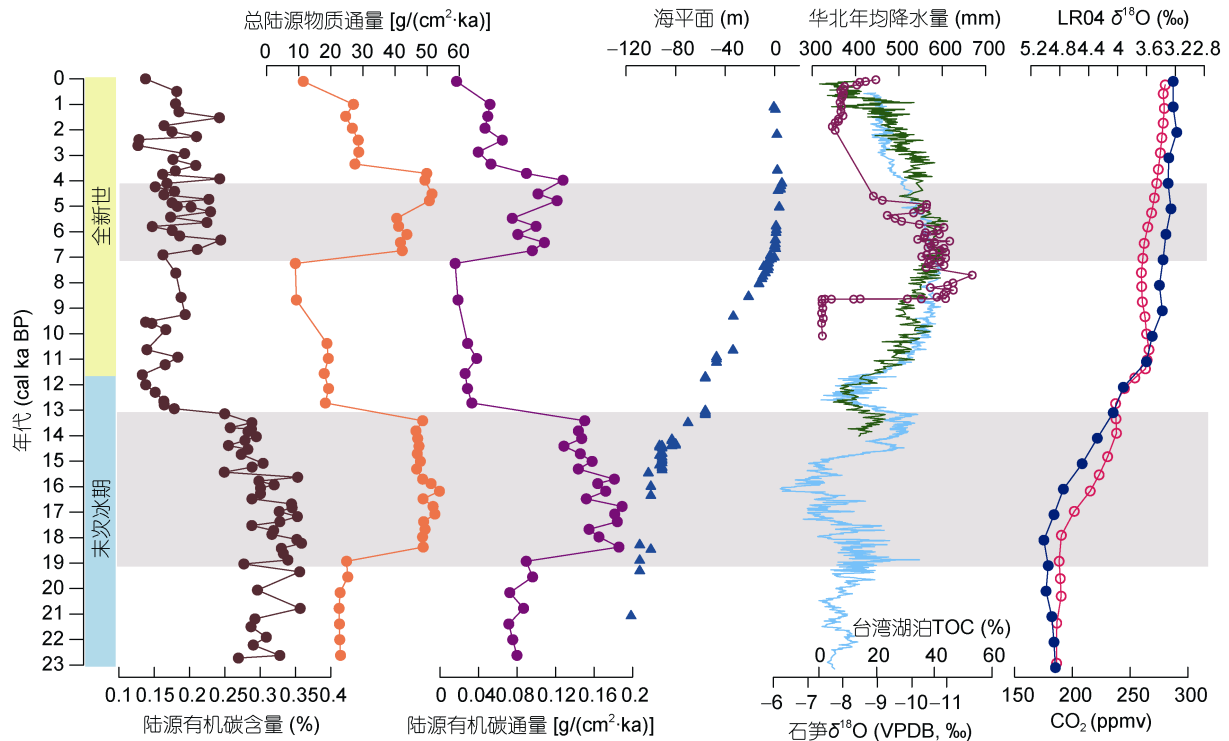


图6 末次冰期以来 TWS-1 岩芯陆源有机碳埋藏通量和南海海平面(Geyh *et al.*, 1979; Hesp *et al.*, 1998; Hanebuth *et al.*, 2000)、华北年均降水量(深绿线, mm)(Chen *et al.*, 2015)、三宝洞石笋  $\delta^{18}\text{O}$ (浅蓝线, ‰)(Wang *et al.*, 2008)、台湾湖泊 TOC 含量(紫红圈线, ‰)(Selvaraj *et al.*, 2007)、南极洲 Dome C 冰芯重建的大气  $\text{CO}_2$  浓度(红色圈线, ppmv)(Lüthi *et al.*, 2008)和 LR04  $\delta^{18}\text{O}$ (深蓝点线, ‰)(Lisiecki *et al.*, 2005)变化趋势对比

Fig.6 Comparison of terrigenous organic carbon flux at Core TWS-1 with the relative sea level in the South China Sea (Geyh *et al.*, 1979; Hesp *et al.*, 1998; Hanebuth *et al.*, 2000), annual precipitation in North China (green line, mm)(Chen *et al.*, 2015), Sanbao cave stalagmite  $\delta^{18}\text{O}$  (blue line, ‰)(Wang *et al.*, 2008), TOC content in Taiwan (purple circle, ‰)(Selvaraj *et al.*, 2007), atmospheric  $\text{CO}_2$  concentration (red circle, ppmv) (Lüthi *et al.*, 2008) and LR04  $\delta^{18}\text{O}$  (dark blue point, ‰) (Lisiecki *et al.*, 2005) since the last glacial  
注: 阴影表示有机碳通量高值期

更低, 但却没有观察到高陆源通量, 这一现象在大西洋大陆边缘也广泛被发现, 被认为可能与冰消期早期低海平面且陆坡更不稳定有关(Maslin *et al.*, 2004)。从冰消期晚期到早全新世期间(14—7ka BP), 海平面快速上升至现代水平, 相应陆源有机碳含量和通量均急剧下降; 7ka BP 以来海平面基本保持稳定, 但陆源有机碳通量在中全新世(7—4ka BP)期间仍处于高值, 说明海平面变化不是此期间的主控因素。研究站位于台西南盆地陆架坡折带附近, 在现代高海平面时期, 来自台湾西南部地区侵蚀的沉积物主要通过海底峡谷进行输送(Liu *et al.*, 2016a; 聂鑫等, 2017), 但末次冰期低海平面时期, 南海东北部陆架(包括台湾海峡)广泛暴露为陆地, 陆架上发育冰期河流, 河口向海延伸, 从而陆架剥蚀成为冰期沉积物向深海输送的重要方式(Hu *et al.*, 2012; Wan *et al.*, 2017)。台湾海峡浅地层剖面冰期的地层中存在下切河道, 表明了冰期陆架河流的发育和老沉积物的剥蚀风化

(Liu *et al.*, 2008a)。因此, 冰期低海平面时期, 原本前间冰期高海平面时期沉积于台湾海峡和南海东北部陆架的台湾源物质在陆架暴露后被发育的古河流重新剥蚀搬运至台西南盆地沉积下来, 这也很好解释了研究站位于末次盛冰期-冰消期早期的高陆源有机碳通量。从冰消期晚期到早全新世期间, 海平面快速上升, 暴露的陆架被海水重新淹没, 陆源有机碳含量及通量相应急剧下降。类似结果在巴布亚湾和墨西哥湾也有发现(Febo *et al.*, 2008; Ingram *et al.*, 2013)。这表明冰期时南海北部陆源有机碳埋藏通量主要受到海平面变化驱动。冰期相对间冰期具有更高的有机碳埋藏通量在全球深海盆地都有发现, 被认为是冰期风尘输入增强或陆架风化增强导致更多的营养物质供应和冰期深海更好的有机碳保存条件(贫氧)(Cartapanis *et al.*, 2016)。我们的工作印证并突出了大陆边缘海平面变化对冰期有机碳埋藏的重要意义。

相反, 全新世高海平面时期, 控制陆源有机碳向

海输送的主要因素则是季风降水驱动下的大陆剥蚀。中国北方高山湖泊中的孢粉(Chen *et al.*, 2015)和华南石笋氧同位素(Wang *et al.*, 2008)是广泛被接受的东亚季风降水强度指标,但石笋氧同位素可能受到水汽来源的影响而被质疑,相比之下北方湖泊孢粉记录被认为更真实地反映了东亚降水强度的变化(Chen *et al.*, 2015; 陈建徽等, 2016)(图 6)。孢粉记录指示的全新世中期为季风最强盛期,这极好对应了南海东北部 TWS-1 岩芯全新世中期(7—4ka BP)的高陆源有机碳通量,晚全新世 3ka BP 以来季风强度快速减弱,对应了陆源有机碳通量的降低。强盛的季风降水促使台湾大陆更强的风化剥蚀(Zhao *et al.*, 2017),更多的陆源物质包括有机碳被输送到大陆边缘盆地沉积下来,表明全新世高海平面时期南海北部有机碳通量的季风驱动。此外,我们还选取了来自台湾的降水记录来直接对比,如台湾湖泊沉积物中 TOC 含量变化被认为可指示台湾地区全新世东亚季风演变(Selvaraj *et al.*, 2007)。如图 6 所示,除了 8.6ka BP 之前的异常低值外,台湾 TOC 总体趋势与华南石笋和华北孢粉记录可较好对比,指示了季风降水在 8.6—4.5ka BP 期间为高值,这与 TWS-1 岩芯全新世以来陆源有机碳含量和通量的高值(7—4ka BP)大致可以对应。但也存在明显相位差,即台湾湖泊峰值要比南海沉积记录要早 1.6ka 左右。这可能有两点原因: 1) Selvaraj 等(2007)采用的是总有机碳测年,里面可能包含部分老碳,使得年龄偏老,这在台湾河流沉积物中很常见,其有机碳年龄可从 2—20ka 不等(Lin *et al.*, 2020); 2) 沉积物从源到汇的搬运通常存在时间差,台湾河流粉砂的搬运时间甚至被认为达到了 10 万年以上(Li *et al.*, 2016)。此外,末次冰期期间,石笋  $\delta^{18}\text{O}$  值所反映的东亚夏季风强度整体趋势与岩芯陆源有机碳含量和通量变化趋势差异较大(图 6),如季风指标显示降水在 20—18ka BP 和 15—13ka BP 之间较强,但有机碳通量则在 19—13ka BP 一直很高。因此,我们认为冰期时季风不是有机碳埋藏通量变化的主控因素。

冰芯记录揭示至少过去 80 万年以来大气  $\text{CO}_2$  浓度(Lüthi *et al.*, 2008)和全球气候(Lisiecki *et al.*, 2005)在冰期-间冰期时间尺度上的演化具有高度一致性(图 6),表明大气  $\text{CO}_2$  在影响乃至调控气候变化中扮演着关键角色。但是,冰期大气  $\text{CO}_2$  浓度为何会大幅度降低?什么机制驱使了“冰”和“碳”的共同变化?这是过去 20 年来国际学术界长期争论的焦点问题(Sigman *et al.*, 2000)。诸多研究认为,全球冰期-间冰期尺度大

气  $\text{CO}_2$  浓度的变化主要受控于大洋内部的生物、物理和化学过程(Jaccard *et al.*, 2009; Bradtmiller *et al.*, 2010; Sigman *et al.*, 2010),陆地风化造成的  $\text{CO}_2$  通量的变化通常被认为很小(Oxburgh, 1998; Foster *et al.*, 2006)。然而,这些研究主要集中在高纬地区,忽视了低纬热带地区冰期陆架风化所带来的巨大影响。我们基于南海北部 ODP1144 站和南部 1143 站的矿物地球化学证据,发现冰期陆架沉积物风化程度比间冰期更高,表明硅酸盐风化通量在冰期低海平面相对间冰期增强而非降低,由此提出了冰期热带陆架风化假说,认为冰期低海平面时期,沉积物供应量较高,广泛暴露的陆架松散沉积物能够再次风化,使得硅酸盐风化通量升高,大气  $\text{CO}_2$  含量下降,模拟表明全球冰期低纬陆架硅酸盐风化可贡献 9%(7ppmv)的冰期大气二氧化碳浓度的降低(Wan *et al.*, 2017)。类似结论随后在西菲律宾海的吕宋陆架也被发现(Xu *et al.*, 2018, 2020)。本研究中 TWS-1 岩芯记录揭示的冰期低海平面时期的高陆源有机碳埋藏通量,暗示冰期南海陆架风化所致的有机碳埋藏也是一个重要的碳汇,对冰期时大气  $\text{CO}_2$  含量的下降可能有重要贡献。此外,全新世高海平面时期,季风驱动的中全新世更强的有机碳埋藏可能也影响了全球碳循环。尽管有研究认为岩石老碳(即原沉积岩或变质岩中的老有机碳重新活化进入沉积物)在陆地剥蚀可能没有被氧化进而快速进入深海而被埋藏起来,这一过程从而不会对大气  $\text{CO}_2$  平衡产生影响(Hilton *et al.*, 2011, 2012)。但是,最新研究表明(Lin *et al.*, 2020),台湾河流向海洋输出的生物有机碳量是台湾陆地风化释放  $\text{CO}_2$  量的两倍,其中台湾西南部河流贡献的新鲜生物有机碳和岩石老有机碳通量比例在 2 : 3 左右。即使排除岩石有机碳,结合我们的陆源有机碳通量重建的工作,可以认为台湾来源有机碳在南海北部的埋藏,是大气的重要碳汇。这两个阶段(冰期和全新世)有机碳埋藏的定量贡献和全球意义有待今后深入工作。

#### 4 结论

本文通过对末次盛冰期以来南海东北部台西南盆地 TWS-1 岩芯沉积物有机质的研究,共得到如下主要结论: (1) 岩芯沉积物中的有机碳包括海源和陆源两种,其中陆源有机碳主要来自台湾; (2) 南海东北部陆源有机碳通量在末次冰消期早期(19—13ka BP)和中全新世(7—4ka BP)期间有两个峰值,分别受控于冰期低海平面时期增强的陆架风化剥蚀和全新世

季风强盛期降水驱动的强烈台湾大陆剥蚀; (3)冰期-间冰期循环中海平面和季风分别驱动的大陆边缘有机碳埋藏可能对全球碳循环和大气 CO<sub>2</sub> 浓度演变有重要影响。

致谢 感谢“科学号”科考船 2016 年南海北部调查航次的全体科学家和船员的辛苦努力。感谢青岛海洋科学与技术试点国家实验室范迪、徐丽萍和王旭晨老师在实验测试中给予的帮助。感谢两位审稿专家对初稿提出的建设性修改意见。

### 参 考 文 献

- 于晓果, 金肖兵, 姚旭莹等, 2013. 甲烷流体活动与沉积物中碳、氮同位素组成响应——南海东北部海洋 号地区研究. *海洋学研究*, 31(3): 1—7
- 汪品先, 闵秋宝, 卞云华等, 1986. 十三万年来南海北部陆坡的浮游有孔虫及其古海洋学意义. *地质学报*, 60(3): 215—225
- 陈建徽, 饶志国, 刘建宝等, 2016. 全新世东亚夏季风最强盛期出现在何时?——兼论中国南方石笋氧同位素的古气候意义. *中国科学: 地球科学*, 46(11): 1494—1504
- 聂 鑫, 罗伟东, 周 娇, 2017. 南海东北部澎湖峡谷群沉积特征. *海洋地质前沿*, 33(8): 18—23
- 黄 维, 汪品先, 2006. 渐新世以来的南海沉积量及其分布. *中国科学 D 辑 地球科学*, 36(9): 822—829
- 鲍才旺, 1995. 珠江口陆架区埋藏古河道与古三角洲. *海洋地质与第四纪地质*, 15(2): 25—34
- Berner R A, Canfield D E, 1989. A new model for atmospheric oxygen over Phanerozoic time. *American Journal of Science*, 289(4): 333—361
- Bianchi T S, Allison M A, 2009. Large-river delta-front estuaries as natural “recorders” of global environmental change. *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America*, 106(20): 8085—8092
- Bjerrum C J, Canfield D E, 2004. New insights into the burial history of organic carbon on the early Earth. *Geochemistry, Geophysics, Geosystems*, 5(8): Q08001
- Blair N E, Aller R C, 2012. The fate of terrestrial organic carbon in the marine environment. *Annual Review of Marine Science*, 4: 401—423
- Bordovskiy O K, 1965. Accumulation and transformation of organic substance in marine sediments I Summary and introduction. *Marine Geology*, 3(1—2): 3—4
- Boulay S, Colin C, Trentesaux A *et al*, 2005. Sediment sources and East Asian monsoon intensity over the last 450 ky. *Mineralogical and geochemical investigations on South China Sea sediments. Palaeogeography, Palaeoclimatology, Palaeoecology*, 228(3—4): 260—277
- Bradtmilller L I, Anderson R F, Sachs J P *et al*, 2010. A deeper respired carbon pool in the glacial equatorial Pacific Ocean. *Earth and Planetary Science Letters*, 299(3—4): 417—425
- Burdige D J, 2007. Preservation of organic matter in marine sediments: controls, mechanisms, and an imbalance in sediment organic carbon budgets?. *Chemical Reviews*, 107(2): 467—485
- Cartapanis O, Bianchi D, Jaccard S L *et al*, 2016. Global pulses of organic carbon burial in deep-sea sediments during glacial maxima. *Nature Communications*, 7: 10796
- 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
- Chao S Y, Shaw P T, Wu S Y, 1996. Deep water ventilation in the South China Sea. *Deep Sea Research Part I: Oceanographic Research Papers*, 43(4): 445—466
- Chen L Y, Luo M, Dale A W *et al*, 2019. Reconstructing organic matter sources and rain rates in the southern West Pacific Warm Pool during the transition from the deglaciation period to early Holocene. *Chemical Geology*, 529: 119291
- Chen F H, Xu Q H, Chen J H *et al*, 2015. East Asian summer monsoon precipitation variability since the last deglaciation. *Scientific Reports*, 5: 11186
- Costa K M, McManus J F, Anderson R F *et al*, 2016. No iron fertilization in the equatorial Pacific Ocean during the last ice age. *Nature*, 529(7587): 519—522
- Dadson S J, Hovius N, Chen H *et al*, 2003. Links between erosion, runoff variability and seismicity in the Taiwan orogen. *Nature*, 426(6967): 648—651
- Emerson S, Hedges J I, 1988. Processes controlling the organic carbon content of open ocean sediments. *Paleoceanography*, 3(5): 621—634
- Febo L A, Bentley S J, Wrenn J H *et al*, 2008. Late Pleistocene and Holocene sedimentation, organic-carbon delivery, and paleoclimatic inferences on the continental slope of the northern Pandora Trough, Gulf of Papua. *Journal of Geophysical Research: Earth Surface*, 113(F1): F01S18
- Foster G L, Vance D, 2006. Negligible glacial-interglacial variation in continental chemical weathering rates. *Nature*, 444(7121): 918—921
- Ganeshram R S, Pedersen T F, Calvert S E *et al*, 2000. Glacial-interglacial variability in denitrification in the world's oceans: Causes and consequences. *Paleoceanography*, 15(4): 361—376
- Geyh M A, Streif H, Kudrass H R, 1979. Sea-level changes during the late Pleistocene and Holocene in the Strait of Malacca. *Nature*, 278(5703): 441—443
- Hanebuth T, Statterger K, Grootes P M, 2000. Rapid flooding of the Sunda Shelf: a late-glacial sea-level record. *Science*, 288(5468): 1033—1035
- Hayes J M, 1993. Factors controlling <sup>13</sup>C contents of sedimentary organic compounds: principles and evidence. *Marine Geology*, 113(1—2): 111—125
- Hedges J I, Oades J M, 1997. Comparative organic geochemistries of soils and marine sediments. *Organic Geochemistry*, 27(7—8): 319—361
- Hesp P A, Hung C C, Hilton M *et al*, 1998. A first tentative Holocene sea-level curve for Singapore. *Journal of Coastal Research*, 14(1): 308—314
- Hilton R G, Galy A, Hovius N *et al*, 2010. The isotopic composition of particulate organic carbon in mountain rivers

- of Taiwan. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 74(11): 3164—3181
- Hilton R G, Galy A, Hovius N *et al*, 2011. Efficient transport of fossil organic carbon to the ocean by steep mountain rivers: an orogenic carbon sequestration mechanism. *Geology*, 39(1): 71—74
- Hilton R G, Galy A, Hovius N *et al*, 2012. Climatic and geomorphic controls on the erosion of terrestrial biomass from subtropical mountain forest. *Global Biogeochemical Cycles*, 26(3): GB3014
- Hu D K, Böning P, Köhler C M *et al*, 2012. Deep sea records of the continental weathering and erosion response to East Asian monsoon intensification since 14 ka in the South China Sea. *Chemical Geology*, 326—327: 1—18
- Hu J F, Peng P A, Jia G D *et al*, 2006. Distribution and sources of organic carbon, nitrogen and their isotopes in sediments of the subtropical Pearl River estuary and adjacent shelf, Southern China. *Marine Chemistry*, 98(2—4): 274—285
- Ingram W C, Meyers S R, Martens C S, 2013. Chemostratigraphy of deep-sea Quaternary sediments along the Northern Gulf of Mexico Slope: Quantifying the source and burial of sediments and organic carbon at Mississippi Canyon 118. *Marine and Petroleum Geology*, 46: 190—200
- Jaccard S L, Galbraith E D, Sigman D M *et al*, 2009. Subarctic Pacific evidence for a glacial deepening of the oceanic respired carbon pool. *Earth and Planetary Science Letters*, 277(1—2): 156—165
- Janecek T R, Rea D K, 1983. Eolian deposition in the northeast Pacific Ocean: Cenozoic history of atmospheric circulation. *Geological Society of America Bulletin*, 94(6): 730—738
- Jia G D, Peng P A, Fang D Y, 2002. Burial of different types of organic carbon in core 17962 from South China Sea since the last glacial period. *Quaternary Research*, 58(1): 93—100
- Kao S J, Liu K K, 2000. Stable carbon and nitrogen isotope systematics in a human-disturbed watershed (Lanyang Hsi) in Taiwan and the estimation of biogenic particulate organic carbon and nitrogen fluxes. *Global Biogeochemical Cycles*, 14(1): 189—198
- Kao S J, Shiah F K, Wang C H *et al*, 2006. Efficient trapping of organic carbon in sediments on the continental margin with high fluvial sediment input off southwestern Taiwan. *Continental Shelf Research*, 26(20): 2520—2537
- Li C, Yang S Y, Zhao J X *et al*, 2016. The time scale of river sediment source-to-sink processes in East Asia. *Chemical Geology*, 446: 138—146
- Lin B Z, Liu Z F, Eglinton T I *et al*, 2019. Perspectives on provenance and alteration of suspended and sedimentary organic matter in the subtropical Pearl River system, South China. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 259: 270—287
- Lin B Z, Liu Z F, Eglinton T I *et al*, 2020. Island-wide variation in provenance of riverine sedimentary organic carbon: a case study from Taiwan. *Earth and Planetary Science Letters*, 539: 116238
- Lisiecki L E, Raymo M E, 2005. A Pliocene-Pleistocene stack of 57 globally distributed benthic  $\delta^{18}\text{O}$  records. *Paleoceanography*, 20(1): PA1003
- Liu Z F, Colin C, Li X J *et al*, 2010. Clay mineral distribution in surface sediments of the northeastern South China Sea and surrounding fluvial drainage basins: source and transport. *Marine Geology*, 277(1—4): 48—60
- Liu J G, Yan W, Chen Z *et al*, 2012. Sediment sources and their contribution along northern coast of the South China Sea: Evidence from clay minerals of surface sediments. *Continental Shelf Research*, 47: 156—164
- Liu J T, Hsu R T, Hung J J *et al*, 2016a. From the highest to the deepest: The Gaoping River—Gaoping Submarine Canyon dispersal system. *Earth-Science Reviews*, 153: 274—300
- Liu J P, Liu C S, Xu K H *et al*, 2008a. Flux and fate of small mountainous rivers derived sediments into the Taiwan Strait. *Marine Geology*, 256(1—4): 65—76
- Liu Z F, Trentesaux A, Clemens S C *et al*, 2003. Clay mineral assemblages in the northern South China Sea: implications for East Asian monsoon evolution over the past 2 million years. *Marine Geology*, 201(1—3): 133—146
- Liu Z F, Tuo S T, Colin C *et al*, 2008b. Detrital fine-grained sediment contribution from Taiwan to the northern South China Sea and its relation to regional ocean circulation. *Marine Geology*, 255(3—4): 149—155
- Liu Z F, Zhao Y L, Colin C *et al*, 2016b. Source-to-sink transport processes of fluvial sediments in the South China Sea. *Earth-Science Reviews*, 153: 238—273
- Luo M, Algeo T J, Tong H P *et al*, 2018. More reducing bottom-water redox conditions during the Last Glacial Maximum in the southern Challenger Deep (Mariana Trench, western Pacific) driven by enhanced productivity. *Deep Sea Research Part II: Topical Studies in Oceanography*, 155: 70—82
- Lüthi D, Le Floch M, Bereiter B *et al*, 2008. High-resolution carbon dioxide concentration record 650,000–800,000 years before present. *Nature*, 453(7193): 379—382
- Lyons W B, Nezat C A, Carey A E *et al*, 2002. Organic carbon fluxes to the ocean from high-standing islands. *Geology*, 30(5): 443—446
- Maslin M, Owen M, Day S *et al*, 2004. Linking continental-slope failures and climate change: testing the clathrate gun hypothesis. *Geology*, 32(1): 53—56
- McKee B A, Aller R C, Allison M A *et al*, 2004. Transport and transformation of dissolved and particulate materials on continental margins influenced by major rivers: benthic boundary layer and seabed processes. *Continental Shelf Research*, 24(7—8): 899—926
- Meade R H, 1996. River-sediment inputs to major deltas. In: Milliman J D, Haq B U eds. *Sea-level Rise and Coastal Subsidence: Causes, Consequences, and Strategies*. Dordrecht: Springer, 63—85
- Meyers P A, 1994. Preservation of elemental and isotopic source identification of sedimentary organic matter. *Chemical Geology*, 114(3—4): 289—302
- Meyers P A, 1997. Organic geochemical proxies of paleoceanographic, paleolimnologic, and paleoclimatic processes. *Organic Geochemistry*, 27(5—6): 213—250

- Middelburg J J, Nieuwenhuize J, 1998. Carbon and nitrogen stable isotopes in suspended matter and sediments from the Schelde Estuary. *Marine Chemistry*, 60(3—4): 217—225
- Milliman J D, Farnsworth K L, 2011. *River Discharge to the Coastal Ocean: A Global Synthesis*. Cambridge: Cambridge University Press, 384
- Milliman J D, Syvitski J P M, 1992. Geomorphic/tectonic control of sediment discharge to the ocean: the importance of small mountainous rivers. *The Journal of Geology*, 100(5): 525—544
- Minoura K, Hoshino K, Nakamura T *et al*, 1997. Late Pleistocene-Holocene paleoproductivity circulation in the Japan Sea: sea-level control on  $\delta^{13}\text{C}$  and  $\delta^{15}\text{N}$  records of sediment organic material. *Palaeogeography, Palaeoclimatology, Palaeoecology*, 135(1—4): 41—50
- Müller A, Voss M, 1999. The palaeoenvironments of coastal lagoons in the southern Baltic Sea, II.  $\delta^{13}\text{C}$  and  $\delta^{15}\text{N}$  ratios of organic matter—sources and sediments. *Palaeogeography, Palaeoclimatology, Palaeoecology*, 145(1—3): 17—32
- Murray R W, Leinen M, Knowlton C W, 2012. Links between iron input and opal deposition in the Pleistocene equatorial Pacific Ocean. *Nature Geoscience*, 5(4): 270—274
- Oxburgh R, 1998. Variations in the osmium isotope composition of sea water over the past 200,000 years. *Earth and Planetary Science Letters*, 159(3—4): 183—191
- Pedersen T F, 1983. Increased productivity in the eastern equatorial Pacific during the last glacial maximum (19,000 to 14,000 yr B.P.). *Geology*, 11(1): 16—19
- Prahl F G, Bennett J T, Carpenter R, 1980. The early diagenesis of aliphatic hydrocarbons and organic matter in sedimentary particulates from Dabob Bay, Washington. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 44(12): 1967—1976
- Prahl F G, Ertel J R, Goni M A *et al*, 1994. Terrestrial organic carbon contributions to sediments on the Washington margin. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 58(14): 3035—3048
- Reimer P J, Bard E, Bayliss A *et al*, 2013. IntCal13 and Marine13 radiocarbon age calibration curves 0–50, 000 years cal BP. *Radiocarbon*, 55(4): 1869—1887
- Roman M R, 1980. Tidal resuspension in Buzzards Bay, Massachusetts: III. Seasonal cycles of nitrogen and carbon: Nitrogen ratios in the seston and zooplankton. *Estuarine and Coastal Marine Science*, 11(1): 9—16
- Schoepfer S D, Shen J, Wei H Y *et al*, 2015. Total organic carbon, organic phosphorus, and biogenic barium fluxes as proxies for paleomarine productivity. *Earth-Science Reviews*, 149: 23—52
- Selvaraj K, Chen C T A, Lou J Y, 2007. Holocene East Asian monsoon variability: Links to solar and tropical Pacific forcing. *Geophysical Research Letters*, 34(1): L01703
- Shao L, Li X J, Geng J H *et al*, 2007. Deep water bottom current deposition in the northern South China Sea. *Science in China Series D: Earth Sciences*, 50(7): 1060—1066
- Shao L, Li X H, Wei G J *et al*, 2001. Provenance of a prominent sediment drift on the northern slope of the South China Sea. *Science in China Series D: Earth Sciences*, 44(10): 919—925
- Shao L, Qiao P J, Pang X *et al*, 2009. Nd isotopic variations and its implications in the recent sediments from the northern South China Sea. *Chinese Science Bulletin*, 54(2): 311—317
- Shigemitsu M, Watanabe Y W, Narita H, 2008. Time variations of  $\delta^{15}\text{N}$  of organic nitrogen in deep western subarctic Pacific sediment over the last 145 ka. *Geochemistry, Geophysics, Geosystems*, 9(10): Q10012
- Shultz D J, Calder J A, 1976. Organic carbon  $^{13}\text{C}/^{12}\text{C}$  variations in estuarine sediments. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 40(4): 381—385
- Sigman D M, Boyle E A, 2000. Glacial/interglacial variations in atmospheric carbon dioxide. *Nature*, 407(6806): 859—869
- Sigman D M, Hain M P, Haug G H, 2010. The polar ocean and glacial cycles in atmospheric  $\text{CO}_2$  concentration. *Nature*, 466(7302): 47—55
- Southon J, Kashgarian M, Fontugne M *et al*, 2002. Marine reservoir corrections for the Indian Ocean and Southeast Asia. *Radiocarbon*, 44(1): 167—180
- Thornton S F, McManus J, 1994. Application of organic carbon and nitrogen stable isotope and C/N ratios as source indicators of organic matter provenance in estuarine systems: evidence from the Tay Estuary, Scotland. *Estuarine, Coastal and Shelf Science*, 38(3): 219—233
- Wan S M, Clift P D, Zhao D B *et al*, 2017. Enhanced silicate weathering of tropical shelf sediments exposed during glacial lowstands: a sink for atmospheric  $\text{CO}_2$ . *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 200: 123—144
- Wan S M, Li A C, Clift P D *et al*, 2007. Development of the East Asian monsoon: mineralogical and sedimentologic records in the northern South China Sea since 20 Ma. *Palaeogeography, Palaeoclimatology, Palaeoecology*, 254(3—4): 561—582
- Wan S M, Li A C, Clift P D *et al*, 2010. Increased contribution of terrigenous supply from Taiwan to the northern South China Sea since 3 Ma. *Marine Geology*, 278(1—4): 115—121
- Wang P X, 1999. Response of Western Pacific marginal seas to glacial cycles: paleoceanographic and sedimentological features. *Marine Geology*, 156(1—4): 5—39
- Wang Y J, Cheng H, Edwards R L *et al*, 2008. Millennial-and orbital-scale changes in the East Asian monsoon over the past 224, 000 years. *Nature*, 451(7182): 1090—1093
- Wang L, Sarnthein M, Erlenkeuser H *et al*, 1999. East Asian monsoon climate during the Late Pleistocene: high-resolution sediment records from the South China Sea. *Marine Geology*, 156(1—4): 245—284
- Winckler G, Anderson R F, Jaccard S L *et al*, 2016. Ocean dynamics, not dust, have controlled equatorial Pacific productivity over the past 500,000 years. *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America*, 113(22): 6119—6124
- Xu Z K, Li T G, Clift P D *et al*, 2018. Bathyal records of enhanced silicate erosion and weathering on the exposed Luzon shelf during glacial lowstands and their significance for atmospheric  $\text{CO}_2$  sink. *Chemical Geology*, 476: 302—315

- Xu Z K, Wan S M, Colin C *et al*, 2020. Enhanced terrigenous organic matter input and productivity on the western margin of the Western Pacific Warm Pool during the Quaternary sea-level lowstands: Forcing mechanisms and implications for the global carbon cycle. *Quaternary Science Reviews*, 232: 106211
- Yang S Y, Jung H S, Lim D I *et al*, 2003. A review on the provenance discrimination of sediments in the Yellow Sea. *Earth-Science Reviews*, 63(1—2): 93—120
- Yang S Y, Tang M, Yim W W S *et al*, 2011. Burial of organic carbon in Holocene sediments of the Zhujiang (Pearl River) and Changjiang (Yangtze River) estuaries. *Marine Chemistry*, 123(1—4): 1—10
- Yu K F, Zhao J X, Shi Q *et al*, 2009. Reconstruction of storm/tsunami records over the last 4000 years using transported coral blocks and lagoon sediments in the southern South China Sea. *Quaternary International*, 195(1—2): 128—137
- Zhao Y, Yang S Y, Liu J T *et al*, 2017. Reconstruction of silicate weathering intensity and paleoenvironmental change during the late Quaternary in the Zhuoshui River catchment in Taiwan. *Quaternary International*, 452: 43—53

## SEA LEVEL CHANGE AND MONSOON DOMINATED EVOLUTION OF TERRIGENOUS ORGANIC CARBON BURIAL FLUX IN THE NORTHEASTERN SOUTH CHINA SEA SINCE THE LAST GLACIAL

QIN Lin<sup>1,3</sup>, WAN Shi-Ming<sup>1,2</sup>

(1. Key Laboratory of Marine Geology and Environment, Institute of Oceanology, Chinese Academy of Sciences, Qingdao 266071, China;  
2. Laboratory for Marine Geology, Pilot National Laboratory for Marine Science and Technology (Qingdao), Qingdao 266237, China;  
3. University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China)

**Abstract** The continental margin basin is the main sedimentary sink of the products of continental weathering and erosion. The burial of organic carbon is of great scientific significance for understanding the global carbon cycle. This study is based on the analysis of AMS<sup>14</sup>C dating, total organic carbon, total nitrogen content, and stable carbon isotope composition of the Core TWS-1 in the Taixinan Basin of the northeastern South China Sea to reveal the source, history, and driven force of terrigenous organic carbon in the study area since the last glacial. Comparison with potential source end-members shows that Taiwan Island was the main source of terrigenous organic carbon to the study site, contributing 58% of the total. The terrigenous materials were mainly transported through submarine canyon channels and shelf rivers during the sea level low-stands. The reconstructed terrigenous organic carbon flux shows two peaks of 0.16g/(cm<sup>2</sup>·ka) during the early deglaciation (19—13ka BP) and 0.09 g/(cm<sup>2</sup>·ka) during the middle Holocene (7—4ka BP). The comprehensive analysis showed that the two peaks were controlled by the enhanced erosion of the continental shelf during the glacial low sea level stands and the intensified erosion in ancient Taiwan Island driven by precipitation during the Holocene maximum monsoon period. Therefore, we believe that the burial of organic carbon in continental margin driven by sea level change and monsoon during the glacial-interglacial cycle may have considerable effects on the global carbon cycle and the evolution of atmospheric CO<sub>2</sub> concentration.

**Key words** South China Sea; the Last glacial-Holocene; sea level change; East Asian monsoon; terrigenous organic carbon; carbon cycle