

学校编码：10384  
学号：22320141151376

密级\_\_\_\_\_

廈門大學

硕士学位论文

东海内陆架沉积有机物碳氮元素  
及其同位素特征

Elemental and Isotopic Characteristics of Sedimentary  
Organic Matter from the Inner Shelf of the East China Sea

王华伟

指导教师姓名：Selvaraj Kandasamy 副教授

专业名称：海洋地质

论文提交日期：2017年5月

论文答辩时间：2017年5月

2017年5月

东海内陆架沉积有机物碳氮元素及其同位素特征

王华伟

指导教师

Selvaraj Kandasamy 副教授

厦门大学

## 厦门大学学位论文原创性声明

本人呈交的学位论文是本人在导师指导下，独立完成的研究成果。本人在论文写作中参考其他个人或集体已经发表的研究成果，均在文中以适当方式明确标明，并符合法律规范和《厦门大学研究生学术活动规范（试行）》。

另外，该学位论文为（古海洋与古气候）课题（组）的研究成果，获得（古海洋与古气候）课题（组）经费或实验室的资助，在（古海洋与古气候）实验室完成。（请在以上括号内填写课题或课题组负责人或实验室名称，未有此项声明内容的，可以不作特别声明。）

声明人（签名）：

年 月 日

## 厦门大学学位论文著作权使用声明

本人同意厦门大学根据《中华人民共和国学位条例暂行实施办法》等规定保留和使用此学位论文，并向主管部门或其指定机构送交学位论文（包括纸质版和电子版），允许学位论文进入厦门大学图书馆及其数据库被查阅、借阅。本人同意厦门大学将学位论文加入全国博士、硕士学位论文共建单位数据库进行检索，将学位论文的标题和摘要汇编出版，采用影印、缩印或者其它方式合理复制学位论文。

本学位论文属于：

1. 经厦门大学保密委员会审查核定的保密学位论文，于 年 月 日解密，解密后适用上述授权。

2. 不保密，适用上述授权。

（请在以上相应括号内打“√”或填上相应内容。保密学位论文应是已经厦门大学保密委员会审定过的学位论文，未经厦门大学保密委员会审定的学位论文均为公开学位论文。此声明栏不填写的，默认为公开学位论文，均适用上述授权。）

声明人（签名）：

年 月 日

## 摘要

在大陆边缘五十到两百年以来的沉积物中，量化海源与陆源有机物能够帮助理解气候角色和人类活动在现代碳的埋藏中所起的作用。本研究于东海内陆架共采集了三根短柱状沉积物（DH-1、DH3-3 和 DH5-1），并分析其有机碳（OC）和总氮（TN）的含量以及其碳、氮同位素的组成（ $\delta^{13}\text{C}$ 、 $\delta^{15}\text{N}$ ），同时测定了沉积物粒径和其中碳酸钙（ $\text{CaCO}_3$ ）的含量，以此来描绘有机物的不同来源并评估其现代的埋藏速率。结果表明位于靠近长江口的 DH1-1 沉积物柱中有机碳和总氮的含量较低，并且平均粒径较大，而相对远离长江口的 DH5-1 沉积物柱中有机碳和总氮的含量较高且平均粒径较小。这表明富含有机物的细颗粒物从长江口被向南输送到了较远的区域，同时反映出在浙闽沿岸泥质区的输送过程受到浙闽沿岸流的水动力分选作用。三根沉积物柱中较小变化范围的摩尔碳氮比（C/N，5.6–7.7）和碳同位素值（ $\delta^{13}\text{C}$ ， $-22.4\%$ 到 $-21.2\%$ ）且在垂向上变化不显著，表明沉积物中有机物主要来自于海源，同时有少许的陆源有机物混入。鉴于过去几十年间长江河流中溶解态无机氮输出的增加，DH1-1 沉积物柱中氮同位素组成（ $\delta^{15}\text{N}$ ）剖面图显示从下到上明显的降低，指明了长江流域农业化肥的施用。为区分陆源与海源有机碳的相对贡献，运用碳同位素两端元混合模型进行计算，结果显示海源有机碳的比例（DH1-1：70%、DH3-3：77%和 DH5-1：65%）占主导优势。进一步算得，在整个东海陆架区域陆源和海源有机碳的埋藏通量分别为  $0.8\text{--}3.0 \text{ Mt C yr}^{-1}$  和  $1.8\text{--}5.9 \text{ Mt C yr}^{-1}$ ，其埋藏效率分别约为 9.1%和 3.9%。

**关键词：**柱状沉积物；有机碳；总氮；稳定同位素；埋藏速率；东海

## Abstract

Quantification of terrestrial versus marine organic matter in sediments accumulated in the river-dominated continental margins for the last 50-200 years is crucial for understanding the role of climate and the impact of human on the modern carbon burial. In this study, three box sediment cores, namely DH1-1, DH3-3 and DH5-1, collected from the inner shelf of East China Sea (ECS) were analyzed for the contents of organic carbon (OC) and total nitrogen (TN) and their stable isotopic compositions ( $\delta^{13}\text{C}$ ,  $\delta^{15}\text{N}$ ), along with grain size and calcium carbonate ( $\text{CaCO}_3$ ) content to delineate the different sources of organic matter and estimate their modern burial rates. The results show that the sediments accumulated close to the Changjiang (Yangtze River) Estuary (CJE) contain low OC and TN contents with high mean grain size (e.g., core DH1-1), while the sediments accumulated relatively far away from the CJE contain high OC and TN contents with low mean grain size. This phenomenon implies the transportation of fine-grained particles (enriched in organic matter) to a longer distance from the CJE, indicating the effect of Zhejiang-Fujian Coastal Current on the hydrodynamics sorting along the Min-Zhe Mud Belt. Narrow molar C/N ratios (5.6–7.7) and  $\delta^{13}\text{C}$  values ( $-22.4$  to  $-21.2\%$ ) in these cores with insignificant down-core variation reflect the predominant contribution of marine-sourced organic matter with a slight incorporation of terrestrial organic matter. An obvious 3‰ decrease of  $\delta^{15}\text{N}$  in core DH1-1 from the bottom to the top suggests the utilization of chemical fertilizer due to agriculture in the Changjiang Basin, considering the increasing of dissolved inorganic nitrogen (DIN) export in Changjiang over the past decades. In order to distinguish the relative contribution of marine- and terrestrial-sourced OC, two end-member  $\delta^{13}\text{C}$  mixing model is employed and the results indicate the predominant burial of marine OC (DH1-1: 70%; DH3-3: 77% and DH5-1: 65%) in the study area. Furthermore, the burial rates of terrestrial and marine OC in the entire shelf of the ECS are estimated at 0.8–3.0 Mt C yr<sup>-1</sup> and 1.8–5.9 Mt C

yr<sup>-1</sup> with average burial efficiencies of around 9.1% and 3.9%, respectively.

**Key Words:** Sediment cores; Organic carbon; Total nitrogen; Stable isotopes; Burial rate; East China Sea

厦门大学博硕士学位论文摘要库

摘要.....	I
Abstract.....	II
第 1 章 绪论.....	1
1.1 研究背景.....	1
1.2 研究区域.....	4
1.2.1 东海表层环流.....	5
1.2.2 表层沉积物分布类型.....	7
1.2.3 沉积物主要来源.....	8
1.2.4 当今环境变化.....	9
第 2 章 方法.....	11
2.1 样品采集.....	11
2.2 实验室分析.....	11
2.2.1 粒径分析.....	11
2.2.2 碳酸钙测定.....	13
2.2.3 有机碳和总氮及其稳定同位素分析.....	13
第 3 章 结果.....	14
3.1 粒径与碳酸钙.....	14
3.2 有机碳和总氮以及摩尔碳氮比.....	14
3.3 碳氮稳定同位素.....	16
第 4 章 讨论.....	19
4.1 有机碳与总氮相关性.....	19
4.2 粒径与有机碳相关性.....	20
4.3 沉积有机物来源.....	21
4.3.1 碳氮比两端元混合模型.....	23

4.3.2 $\delta^{13}\text{C}$ 两端元混合模型.....	25
4.3.3 N/C 与 $\delta^{13}\text{C}$ 三端元混合模型.....	27
4.3.4 $\delta^{13}\text{C}$ 与 $\delta^{15}\text{N}$ 三端元混合模型.....	30
<b>4.4 垂向变化.....</b>	<b>32</b>
4.4.1 有机物来源变化.....	32
4.4.2 人为影响.....	35
<b>4.5 有机碳埋藏速率.....</b>	<b>37</b>
<b>第 5 章 结论.....</b>	<b>41</b>
<b>参考文献.....</b>	<b>42</b>
<b>文章与摘要.....</b>	<b>57</b>
<b>致谢.....</b>	<b>59</b>

## Contents

<b>Chinese abstract</b> .....	I
<b>English abstract</b> .....	II
<b>Chapter 1 Introduction</b> .....	1
<b>1.1 Research background</b> .....	1
<b>1.2 Study area</b> .....	4
1.2.1 Surface circulation in the East China Sea.....	5
1.2.2 Spatial distribution of surface sediment types.....	7
1.2.3 Major sediment sources.....	8
1.2.4 Modern environmental changes.....	9
<b>Chapter 2 Methodology</b> .....	12
<b>2.1 Collection of box cores</b> .....	12
<b>2.2 Laboratory analysis</b> .....	12
2.2.1 Grain size analysis.....	12
2.2.2 Measurement of calcium carbonate.....	14
2.2.3 Measurement of OC and TN and their isotopes.....	14
<b>Chapter 3 Results</b> .....	15
<b>3.1 Grain size and calcium carbonate</b> .....	15
<b>3.2 OC and TN and molar C/N ratio</b> .....	15
<b>3.3 Stable carbon and nitrogen isotopes</b> .....	17
<b>Chapter 4 Discussion</b> .....	20
<b>4.1 Correlation between OC and TN</b> .....	20
<b>4.2 Correlation between grain size and OC</b> .....	21
<b>4.3 Source determination of organic matter</b> .....	22

4.3.1 Two end-member C/N mixing model.....	24
4.3.2 Two end-member $\delta^{13}\text{C}$ mixing model.....	26
4.3.3 Three end-member mixing model with N/C against $\delta^{13}\text{C}$ .....	28
4.3.4 Three end-member mixing model with $\delta^{13}\text{C}$ against $\delta^{15}\text{N}$ .....	31
<b>4.4 Vertical variation.....</b>	<b>33</b>
4.4.1 Sources changes.....	33
4.4.2 Anthropogenic influence.....	36
<b>4.5 Organic carbon burial rate.....</b>	<b>38</b>
<b>Chapter 4 Conclusions.....</b>	<b>42</b>
<b>References.....</b>	<b>43</b>
<b>Publications.....</b>	<b>57</b>
<b>Acknowledgements.....</b>	<b>59</b>

## 第 1 章 绪论

### 1.1 研究背景

大气中温室气体，如二氧化碳、甲烷、氮氧化物等，浓度升高导致的全球气候变暖现已成为人类社会共同关注的问题。因为在所有温室气体中二氧化碳对全球气候变暖的贡献高达 70% (Mellillo et al., 1990)，所以二氧化碳成为最受关注的温室气体。自工业革命以来，化石燃料的燃烧和土地利用方式的改变等人类活动已经对全球碳循环产生了巨大影响。现如今全球碳循环已成为国际合作的科学研究热题之一，同时也成为气候变化和可持续发展研究的核心议题。政府间气候变化专门委员会 (IPCC) 第五次评估报告指出，2011 年大气中二氧化碳的浓度高达 390 ppm，比工业革命前大气中二氧化碳的浓度升高了约 40%，其中化石燃料燃烧排放的碳高达  $365 \times 10^3$  Mt。碳作为有机物的重要组成元素，几乎参与了所有的生物地球化学循环过程 (宋金明等, 2008)。因此，深入研究全球碳循环对理解全球温室效应的成因和规律以及人类活动在其中所扮演的角色有着十分重要的意义。

全球碳循环是由大小不同的碳库，如大气圈、生物圈、水圈和岩石圈等，和碳库之间相互交换的碳通量组成的 (Kandasamy and Nagender Nath, 2016)。图 1-1 展示的为全球碳循环的框架，其中注明了不同的碳库中的碳储量和不同碳库之间的年均通量。由图可知，海洋作为转换周期相对较快且交换通量较大的主要碳库之一，其存储的碳约达  $37800 \times 10^3$  Mt，在全球碳循环中扮演着重要角色。研究表明，约占地球表面积 71% 的海洋是二氧化碳的最终汇聚地 (Sabine 和 Feely, 2007; 宋金明等, 2008)。据估计，每年全球初级生产的碳约为  $110 \times 10^3$  Mt，其中约  $50 \times 10^3$  Mt 的碳来自于海洋生物的生产 (Bianchi, 2011)。海洋中存在着能够将碳从表层向深海输送的两个主要机制，物理泵和生物泵 (Baliño et al., 2001)。其中物理泵机制需要建立在大气中二氧化碳分压大于海水中二氧化碳分压的基础上完成，然而在全球范围和长时间尺度上对大气中二氧化碳收支的调节作用并

不明显。但是生物泵机制能够通过自养生物的光合作用将溶解态无机碳合成颗粒态的有机碳并在重力作用下沉降至海底，最终埋藏于海洋沉积物中，进而实现大气二氧化碳的净吸收 (Ducklow et al., 2001; 宋金明等, 2008)。海洋表层沉积物中储存的碳约为  $1750 \times 10^3$  Mt, 其埋藏通量约为每年 200 Mt (图 1-1) (Berner, 1989; Hedges and Keil, 1995)。陈洋勤 (2004) 认为如果在生物泵发挥最大效率的条件下, 大气中二氧化碳的浓度能够减小到 110 ppm。所以说, 生物泵机制将溶解态的无机碳合成为颗粒态的有机碳被输送至海底并埋藏于海洋沉积物中, 在调节大气二氧化碳和影响全球气候变化中发挥着十分重要的作用。

研究表明, 唯有减少碳的排放和增加碳汇才能有效遏制全球温室效应, 这就需要深入研究海洋碳库, 尤其是海洋沉积物中碳的储量以及埋藏通量。因为海洋沉积物中所埋藏的碳能够在长时间尺度上真正实现碳的封存, 所以研究海洋沉积

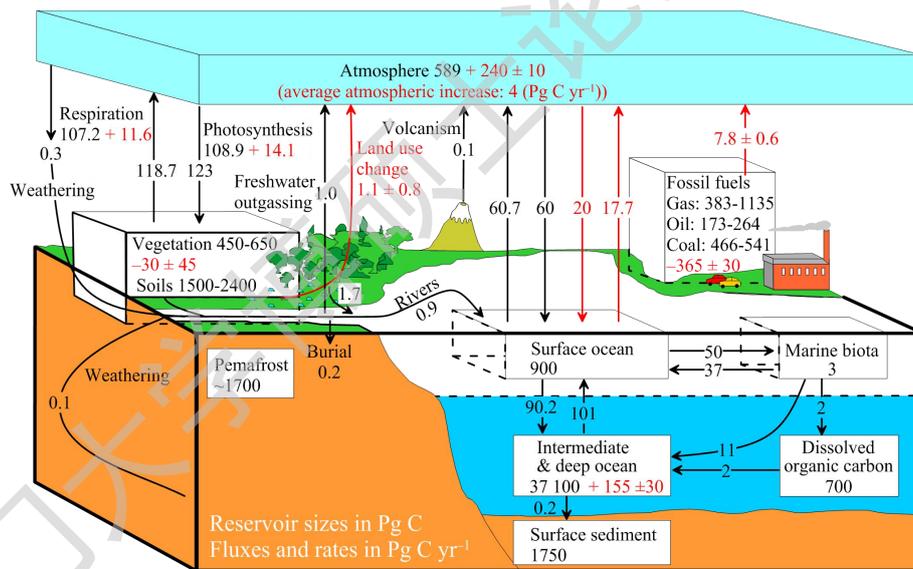


图 1-1 全球碳循环示意图 (参照 Kandasamy and Nagender Nath, 2016, Pg =  $10^3$  Mt)。图中黑色箭头和数字表示工业革命以前各碳库的转化和通量, 红色箭头和数字表示人为影响在各碳库间的转化和通量。

Figure 1-1 Schematic diagram of global carbon cycle (refer to Kandasamy and Nagender Nath, 2016, Pg =  $10^3$  Mt). The black arrows and numbers represent the exchange of carbon among different reservoirs and fluxes before industrial revolution. Red arrows and numbers indicate the exchange of anthropogenic carbon among different reservoirs and fluxes.

物中碳的来源、输送、通量以及储量等具有十分重要的意义。海洋是地球系统中重要的碳库之一，总体上也是大气二氧化碳的汇 (Ducklow et al., 2001)。虽然大洋是海洋的主体，但是大陆边缘作为陆地和海洋的连接地带，因受到河流输入的泥沙和营养物质以及人类活动的各种影响，其生物地球化学过程比大洋更加复杂。所以，探究大陆边缘区域碳循环的过程更有意义（如涉及到人类活动、海流影响、高生产力等），也更具有挑战性（宋金明等，2008；Shi et al., 2016）。尤其值得注意的是大陆边缘海洋沉积物中较高的碳埋藏速率在长时间尺度上对大气二氧化碳的调节起着重要作用。

由大陆架、大陆坡和大陆隆组成的大陆边缘约占到全球海洋总面积的 21% ( $75.3 \times 10^6 \text{ km}^2$ )，其中大陆架的面积 ( $24\text{--}29 \times 10^6 \text{ km}^2$ ) 仅占不到海洋面积的 8% (Liu et al., 2000)。但由于受到来自河流输入、地下水排泄和大气沉降等大量营养物质的供应，使得大陆边缘成为世界上生产力最高的区域 (Walsh, 1991; Jicklls, 1998)。其中河口三角洲和大陆架作为主要的海陆相互作用的交界区域，在全球碳循环中扮演着重要角色 (Chen et al., 2001; Goñi et al., 2006; Wang et al., 2008; Cai, 2011; Bauer et al., 2013)。先前研究表明，海洋沉积物中的有机碳超过 80% 埋藏于大陆边缘 (Berner, 1982; Hedges and Keil, 1995)，尤其是在河口三角洲前缘和沿岸带区域。大陆边缘的海洋沉积物中有机物混合了来自通过河流输入的陆源有机物和海洋初级生产的海源有机物 (Goñi et al., 2006; Tesi et al., 2007; Hu et al., 2009)。其中全球所有河流每年输入海洋的陆源有机碳可达 400–520 Mt，并且约  $58 \pm 17 \text{ Mt}$  碳埋藏于河口三角洲和邻近大陆架 (Schlesinger and Melack, 1981; Hedges et al., 1997; Burdige, 2005; Kandasamy and Nagender Nath, 2016)。因此，大陆边缘有机物的埋藏在生物地球化学循环和全球碳的收支中占据着重要位置 (Ludwig et al., 1996; Bauer and Druffel, 1998; Bianchi et al., 2007; Shi et al., 2016)。

在过去半个多世纪的时间里，人类社会的工业化和都市化发展过程中，不仅使得大气二氧化碳浓度急剧升高，而且农业上化肥的使用、大坝和水库的建造以及土地类型转变，也已经对河流、河口以及边缘海造成了巨大影响 (Bianchi and Allison, 2009)。例如，过剩的营养输入河口和边缘海使得水生生物初级生产力升高，甚至导致富营养化和赤潮的频发 (Nixon, 1995; Geay et al., 2002)。包

括人类来源的陆源有机物通过河流被输送至大陆边缘沉积下来,与此同时并入了水体中浮游植物生产的海源有机物 (Goñi et al., 1998; Burdige, 2005; Wu et al., 2007)。所以,整体上看大陆边缘海洋沉积物中有机物同时是陆源自然来源及人为来源有机物和海源有机物的汇,并且记录了沉积环境的变化 (Meyers, 1994; Wu et al., 2001)。

近年来,东海已经激发了众多科学工作者的兴趣,鉴于东海具有宽阔的大陆架 (超过 500 km)、复杂的环流系统而且靠近人口密集区 (Deng et al., 2006)。之前许多研究尝试运用有机碳含量 (OC)、总氮含量 (TN)、摩尔碳氮比 (C/N)、碳的稳定和放射性同位素 ( $\delta^{13}\text{C}$ 、 $\Delta^{14}\text{C}$ )、氮的稳定同位素 ( $\delta^{15}\text{N}$ )、生物标志物 (例如: 正构烷烃、木质素、脂质和色素等) 以及其他指标 (氨基酸、主微量元素等), 来探究长江口和附近海域悬浮颗粒物 (Wu et al., 2003; Hung et al., 2007; Wu et al., 2007a; Hung et al., 2013, 2016) 和表层沉积物 (Berner, 1982; Kao et al., 2003; Deng et al., 2006; Zhu et al., 2008; Shi et al., 2010; Zhu et al., 2011; Li et al., 2012; Hu et al., 2012; Wu et al., 2013; Li et al., 2014a; Li et al., 2014b) 中有机物的组成及其源汇过程。然而关于沉积物中垂向上有机物的埋藏以及生物地球化学特征,尤其是在近几十到几百年内的新沉积的有机物,鲜有报道。此外, Yang et al. (2007) 指出如果长江输沙量依然保持在低于 270 Mt 的状况下,长江三角洲将继续呈现侵蚀状态。然而长江输沙量的减少对于长江口以及连接的东海陆架碳循环的影响知之甚少,再加上自长江三峡大坝 2003 年建成以来相关的研究为数不多 (Chen, 2000)。

本研究旨在 (1) 研究东海内陆架短柱状沉积物 (约 20 cm) 在垂向上有机碳、总氮的元素以及同位素组成和变化特征; (2) 运用端元混合模型阐明有机物的来源并评估其贡献量; (3) 估算东海内陆架沉积物中不同来源有机物的埋藏速率。此外,本研究中尝试运用同位素结果指出在过去半个世纪以来长江流域人类活动的影响并评估东海在全球碳循环中所扮演的角色。

## 1.2 研究区域

东海位于欧亚大陆板块和太平洋板块之间,属于典型的大陆边缘海,其地理位置介于 21.9 °N 到 33.3 °N 和 117.1 °E 到 131.1 °E 范围内。东海北面以长江口北

岸启东嘴到济州岛西南角的连线为分界线与黄海相连,南面以福建东山岛到台湾南端鹅銮鼻的连线为分界线经台湾海峡与南海相通,西面紧接中国大陆,东面衔接冲绳海槽经九州岛、琉球群岛及台湾岛与太平洋相连(冯士筭等,1999)。东北至西南长约1300 km,东西宽约740 km,海域总面积约达 $77 \times 10^4 \text{ km}^2$ ,其中陆架面积约 $55 \times 10^4 \text{ km}^2$ 。东海平均水深约370 m,其中约65%的区域水深小于200 m,而海底地势自西北向东南逐渐加深,最深处位于冲绳海槽西南端,其深度可达2300 m(苏纪兰和袁业立,2005; Deng et al., 2006)。受东亚季风影响,东海季风气候特征明显,冬季风力较强,盛行风向为从东北指向西南,而夏季风风力较弱,其风向相反为从西南指向东北(李家彪,2000)。

东海作为西太平洋活动大陆边缘的重要组成部分,其构造活动强度较大,断裂构造十分发育。基于四个主要断裂(海礁-东引大断裂、西湖-基隆大断裂、冲绳海槽大断裂及琉球海沟俯冲带),东海主要构造单元被分为浙闽隆起区、东海陆架盆地、钓鱼岛隆裙带、冲绳海槽盆地和琉球隆起区(李家彪,2008)。东海地貌是欧亚大陆板块、太平洋板块和印度板块相互作用的结果,并且后期的水动力作用在地貌形成中也扮演着重要角色。钻井资料证实东海地壳隶属大陆性地壳,许薇龄等(1992)将东海陆架地壳分为上、中、下三层,其中上地壳主要包含新生代沉积层和以酸性岩石为主的古生界浅变质岩,而中地壳和下地壳分别以中性岩类(岩浆岩和变质岩)和基性岩类(麻岩)为主。

### 1.2.1 东海表层环流

东海环流由沿岸流系与外海流系组成(图1-2)。沿岸流系主要包括浙闽沿岸流和台湾暖流(管秉贤,1986)。其中浙闽沿岸流的流向主要受控于盛行季风的风向,冬季由东北流向西南,夏季反之,由西南流向东北且强度稍有减弱(Chen, 2008)。而台湾暖流位于浙闽沿岸流外侧,源自于黑潮暖流绕过台湾岛的分支经台湾海峡进入东海(Huh et al., 2011),方向由西南流向东北,其最北端可达长江口以东,强度具有夏强冬弱的特点(管秉贤,2002)。外海流系主要为黑潮暖流,其源自于由东向西流动的北赤道暖流在菲律宾群岛东岸北折,沿台湾岛东海岸及东海陆架外缘向东北流动,具有高温、高盐、透明度大等特点。黑潮暖流经

台湾岛后受地形抬升影响在台湾岛东北海域形成上升流 (Liu et al., 1992; Gong et al., 1996; Hung et al., 2007), 并且强劲的黑潮暖流次表层水可沿海底抬升地形入侵至东海陆架 (Chen, 1996)。已有研究表明, 黑潮暖流入侵可达舟山群岛附近海域外缘并形成上升流 (Yang et al., 2011; Hu and Wang, 2016)。此外, 长江作为全球水量第四大河, 多年平均径流量约为  $900 \text{ km}^3$ , 其冲淡水盐度低、温度高、密度小, 对长江口及附近海域可造成巨大影响 (Miliman 和 Farnsworth, 2011)。尤其在夏季, 长江冲淡水从长江口向东北方向延伸, 可达济州岛附近 (Liu et al., 2003)。长江冲淡水的影响范围存在季节和年度上的变化, 主要取决于长江径流量的变化 (孙湘平, 2006)。

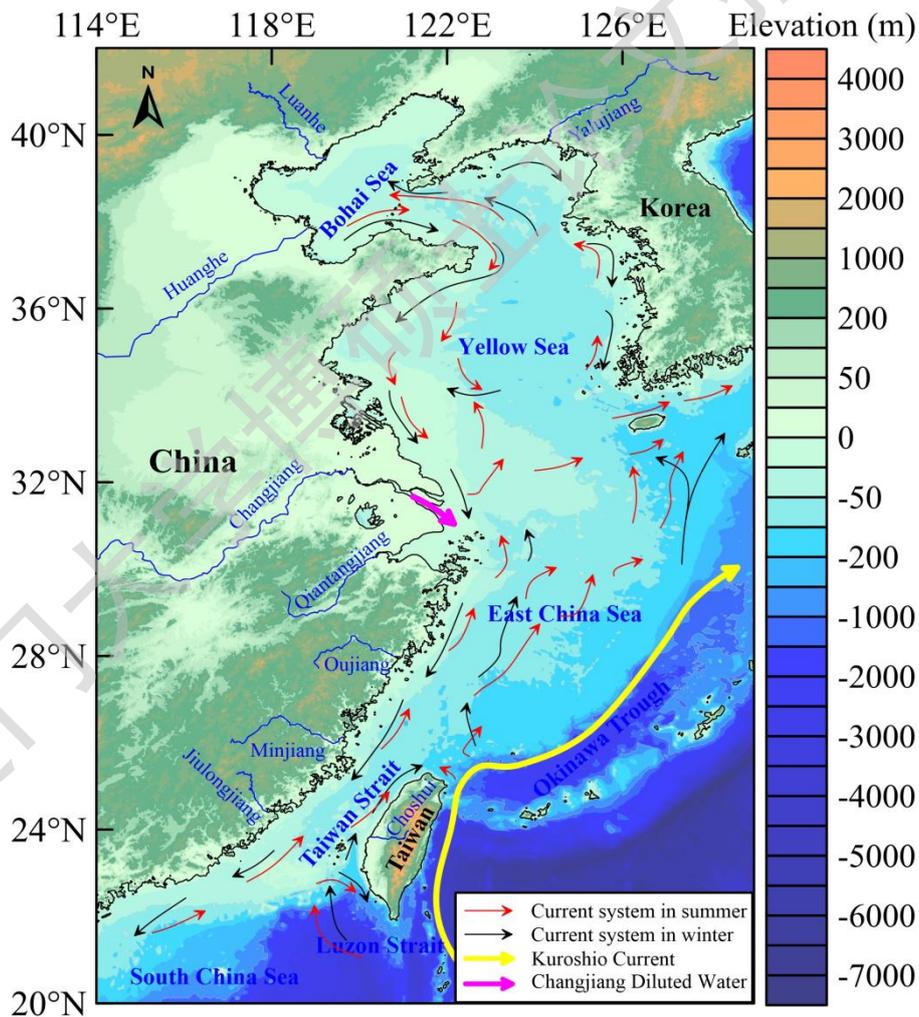


图 1-2 东亚大陆边缘海表层环流示意图 (Chen, 2008; Liu et al., 2010)。

Figure 1-2 A schematic panel of surface current pattern in East Asian marginal seas (Chen, 2008; Liu et al., 2010).

Degree papers are in the "[Xiamen University Electronic Theses and Dissertations Database](#)". Full texts are available in the following ways:

1. If your library is a CALIS member libraries, please log on <http://etd.calis.edu.cn/> and submit requests online, or consult the interlibrary loan department in your library.
2. For users of non-CALIS member libraries, please mail to [etd@xmu.edu.cn](mailto:etd@xmu.edu.cn) for delivery details.

厦门大学博硕士论文摘要库