

DOI: 10.16562/j.cnki.0256-1492.2020090201

细菌细胞膜脂记录的西太平洋暖池约 4 Ma 以来沉积物 风尘陆源输入变化

赵小小¹, 吴玥汀¹, 董良², 章陶亮², 胡邦琦³, 李清³, 王风平²

1. 上海交通大学生命科学技术学院, 上海 200240

2. 上海交通大学海洋学院, 上海 200240

3. 中国地质调查局青岛海洋地质研究所, 青岛 266071

摘要:西菲律宾海作为西太平洋暖池的一部分, 重建其在地质历史时期的热力学变化、陆源输入变化, 对于理解西太平洋暖池在全球地质时间尺度上的作用具有重要意义。利用古菌与细菌的细胞膜质甘油二烷基甘油四醚 (glycerol dialkyl glycerol tetraethers, GDGTs) 对西菲律宾海 XT-47 孔沉积物的陆源输入及其上方水体温度的变化进行重建, 发现该沉积柱顶部 (0~260 cm, 约 16.6~18.8 ka) BIT 指标为 0.01~0.2, $\text{TEX}^{\text{H}}_{86}$ 重建的上层海水平均温度为 22.5 °C, 而底部 (260~632 cm, 约 18.8~4 000 ka) $\text{TEX}^{\text{H}}_{86}$ 重建得到的上层海水温度绝对值波动剧烈 (0.6~26 °C), 在此范围内 BIT>0.3, 并呈现逐渐增加的趋势, 超过 BIT 界定的陆源输入对 $\text{TEX}^{\text{H}}_{86}$ 重建古温度有效性的阈值, 这导致了该深度范围内 $\text{TEX}^{\text{H}}_{86}$ 重建古温度变化的严重偏差。以 260 和 470 cm 为界, 该沉积柱的沉积相出现明显变化, 上层为大量纹层硅藻席沉积, 中层为远洋黏土和硅藻泥互层, 下层为远洋黏土沉积; 同时, 支链 GDGTs (branched GDGTs, br GDGTs) 的组成也出现明显差异, 说明其来源可能有所不同。基于以上分析, 提出 260 cm 以浅, brGDGTs 可能主要为海相原位自生为主; 而 260 cm 深度以下, 主要以风尘输送的陆源 brGDGTs 为主。该结果显示陆源输入的变化可以间接反映东亚冬季风的强弱, 本研究为高低纬之间的海陆相互作用研究提供了新的视角。

关键词: 陆源输入; BIT 指标; GDGTs; 硅藻席; $\text{TEX}^{\text{H}}_{86}$; 西菲律宾海

中图分类号: P736.2

文献标识码: A

Reconstruction of terrestrial input changes in sediments in the Western Pacific warm pool using bacterial membrane lipids

ZHAO Xiaoxiao¹, WU Yueting¹, DONG Liang², ZHANG Taoliang², HU Bangqi³, LI Qing³, WANG Fengping²

1. Shanghai Jiaotong University, School of Life Sciences and Biotechnology, Shanghai 200240, China

2. Shanghai Jiaotong University, School of Oceanography, Shanghai 200240, China

3. Qingdao Institute of Marine Geology, Qingdao 266071, China

Abstract: The West Philippine Sea is a part of the Western Pacific Warm Pool. To reconstruct its thermodynamic changes and terrestrial input changes in the geological history is of great significance for understanding the role of the Warm Pool on a global geological time scale. In this paper, the glycerol dialkyl glycerol tetraethers (GDGTs) of archaea and bacteria is used to reconstruct the temperature and terrestrial input proxy changes for the core XT-47 taking from the West Philippine Sea. The BIT index on top layer of 0~260 cm, corresponding to 16.6~18.8 ka, varies between 0.01~0.2, and the average sea surface temperature reconstructed with $\text{TEX}^{\text{H}}_{86}$ is 22.5 °C. The absolute sea surface temperature at the bottom layer from 260 cm to 632 cm, (18.8~4 000 ka) reconstructed by $\text{TEX}^{\text{H}}_{86}$ fluctuates drastically between 0.6 °C and 26 °C; BIT>0.3 within these depth range, shows a gradual increase trend, exceeding the threshold for the validity of paleotemperature reconstruction of $\text{TEX}^{\text{H}}_{86}$ defined by terrestrial input proxy-BIT, which leads to a serious deviation of the $\text{TEX}^{\text{H}}_{86}$ reconstructed paleotemperature within this depth range. Taking 260 cm and 400 cm as boundaries, the sedimentary facies of the core has changed significantly. In a descending order, the upper layer is

资助项目: 中国地质调查局项目 (DD20191010); 重点研发计划“冷泉系统发育的地质条件及控制作用” (2018YFC0310001); 国家自然科学基金项目“海洋奇古菌完整极性细胞膜脂 GDGTs 与氨氧化速率关系研究” (42072332), “深部生物圈生物地球化学功能研究” (41525011), “海洋沉积物中古菌介导的碳循环机制研究” (91751205), “菲律宾海盆底层水体性质对中更新世气候转型的响应机制” (41976192)

作者简介: 赵小小 (1997—), 女, 硕士研究生, 生物专业, E-mail: xiaoxiao.zhao@sjtu.edu.cn

通讯作者: 董良 (1986—), 男, 助理研究员, 从事生物有机地球化学研究, E-mail: dongliang@sjtu.edu.cn

王风平 (1971—), 女, 教授, 主要从事深部生物圈研究, E-mail: fengpingw@sjtu.edu.cn

收稿日期: 2020-09-02; 改回日期: 2020-11-27. 蔡秋蓉编辑

a large number of laminar diatom mats, the middle layer is interbedded pelagic clay and diatom clay, and the lower layer is pelagic clay deposit; simultaneously, obvious differences in the composition of branched GDGTs (brGDGTs) are observed, indicating that their sources may also be different. Based on the above analysis, we propose that brGDGTs below 260 cm are marine in-situ autochthonous deposits; while that below 260 cm, terrigenous brGDGTs dominate, which are mainly transported as aeolian dust. The results suggest that the changes in terrestrial input can indirectly reflect the strength of the East Asian winter monsoon, and the results may provide new insights for the study of sea-land interactions between high and low latitudes.

Key words: terrestrial input; BIT index; GDGTs; diatom mats; $\text{TEX}_{86}^{\text{H}}$; West Philippine Sea

西太平洋暖池作为全球热量与水汽再分配的重要来源, 对全球气候的调节具有重要影响^[1]。而西菲律宾海盆作为热带西太平洋最大的边缘盆地^[2], 地处西太平洋开阔大洋, 远离大陆, 通常河流输入的陆源物质较少, 而以冬季风输入的亚洲风尘为主^[3-7], 这使得西菲律宾海成为研究北半球高纬驱动下东亚冬季风对低纬气候变化过程影响的重要区域。这一区域沉积物所记录的海洋上层水体热力学和陆源输入在地质历史时期的变化, 对于理解高低纬之间的海陆相互作用具有重要意义。

独特的地理位置与洋流体系造就了该区域相对单一的沉积来源。从洋流系统来看, 北赤道流流经该区域^[2](图 1), 阻挡了自西向东的物质输送, 同时, 北赤道流向北的分支——黑潮也阻挡了日本、台湾和中国大陆向西菲律宾海盆的物质输送, 而北赤道流的南向分支——棉兰老流阻挡了菲律宾吕宋岛以及棉兰老岛向该区域的物质输送^[6, 8], 故从亚洲大陆河流输送的沉积物都仅存在于中国边缘海

以及冲绳海槽^[9]。徐兆凯等结合 Sr-Nd 同位素、稀有元素和总有机碳等数据, 定量研究了第四纪中晚期(0~700 ka)亚洲大陆向西菲律宾海的风尘输入, 发现风尘输入占总碎屑沉积物的 15%~50%, 其余来自火山岛弧(如吕宋岛)的风化^[3]。黏土矿物学证据也表明, 西菲律宾海沉积物中的陆源组分主要为从亚洲大陆由风尘远距离输送的伊利石^[2], 伊利石/蒙脱石的比值常被用来示踪风尘输入的状况, 伊利石/蒙脱石比例越高, 表明风尘输入越强^[6, 10]。而伊利石/蒙脱石比例在冰期高于间冰期, 说明冰期风尘输入相对较高^[10]。蒋富清等同样利用 Sr-Nd 同位素特征分析得出, 西菲律宾海的细砂颗粒沉积主要来源于中国中西部地区以及黄土高原, 且风尘成分和堆积速率有着明显的冰期—间冰期旋回(冰期堆积速率高于间冰期)^[11], 进一步说明全球气候变化是低纬西太平洋地区风尘输入变化的主要控制因素^[12]。基于以上研究, 可以推测在地质历史时期东亚冬季风强盛期, 风尘向西菲律宾海输入了大量陆源物质。

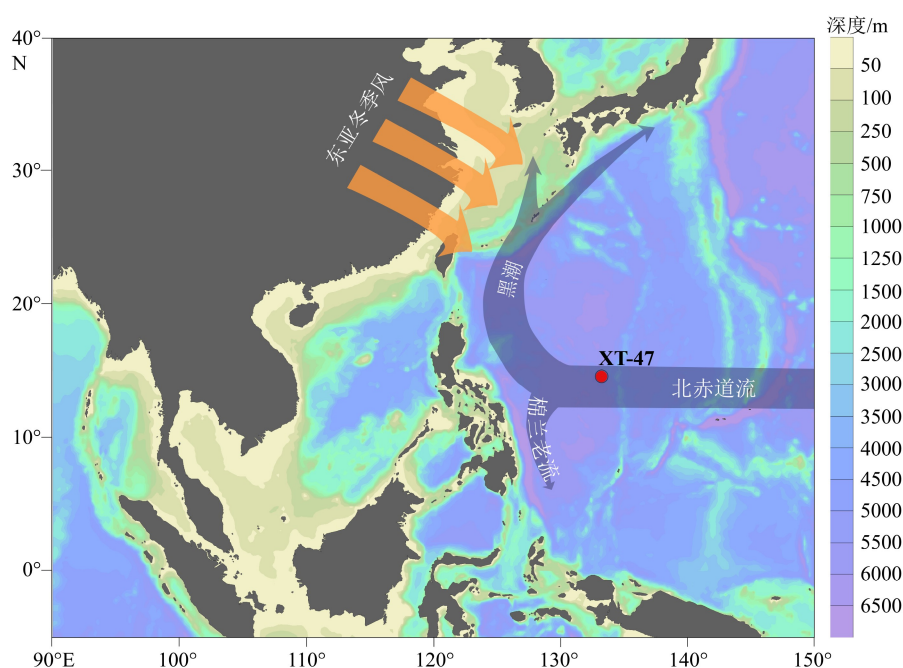


图 1 研究区域风场及洋流示意图

Fig.1 Schematic diagram of wind field and ocean currents in the study area

尽管目前有大量关于西菲律宾海盆陆源风尘输入的研究,但大部分研究主要从岩石学和矿物学角度进行分析^[2-3,13],缺乏亚洲风尘从源到汇、从陆到海全面系统的研究。这使得亚洲风尘如何影响区域性乃至全球性的生物地球化学过程方面的研究受到限制^[14]。另一方面,由于深海海盆沉积物的精确定年存在诸多问题,使得该区域缺乏长时间的地质序列,尤其是有机生物标志化合物方面的记录。保存在沉积物当中的大量有机物已成为重建古气候和古海洋变化的重要载体,为揭示海陆相互作用提供了独立的指标依据。其中,脂类作为微生物细胞膜脂的重要组成部分,通过细胞的新陈代谢对环境的变化产生敏感响应,同时脂类本身及其衍生物可以在地质体中长期保存,是微生物活动及环境变化的优良载体,被用于发展为众多古环境代用指标。而以醚脂类化合物为代表的古菌、细菌细胞膜脂,已被广泛研究与应用^[15]。

古菌细胞膜脂主要由具有类异戊二烯结构的甘油二烷基甘油四醚(isoprenoid glycerol dialkyl glycerol tetraethers, iGDGT)组成^[16]。iGDGTs 通常具有 0~8 个五元环(图 2),最常见的为具有 0~4 个五元环的 GDGT-0, GDGT-1, GDGT-2, GDGT-3, 和 GDGT-4, 以及包含一个环己烷的 Crenarchaeol(通常为奇古菌的特征生标,为纪念这一化合物的发现仍沿用为泉古

菌醇)^[17]。2002 年, Schouten 等根据全球大洋表层沉积物 iGDGTs 的环化率与年平均海表温度(SST)的线性关系,建立了古海水温度的代用指标 TEX₈₆,并得到了广泛应用^[18],尽管该指标的具体内涵仍有争议,但其在冰期—间冰期尺度甚至更长时间尺度仍可作为上层水体温度(表层、次表层)的重要代用指标^[19]。本文仍沿用最初的表层海水温度指标概念,进行相关重建与讨论。

另一种来源于细菌的支链 GDGT(brGDGT, branched GDGT)被广泛发现于全球不同环境,在土壤中含量最高,相关研究发现其环化率(CBT)及其甲基化率(MBT)与土壤的 pH 及大气温度显著相关,被用于重建陆地环境的大气温度及土壤 pH 值的变化^[15]。brGDGT 是由两个 C28 碳链组成,每条链上带有 2~3 个甲基和 0~2 个环戊基(图 2)^[15]。最初,海洋环境中的 brGDGTs 被认为是由土壤细菌产生并搬运到海洋当中^[20]。基于土壤与海洋古菌、细菌 GDGTs 分布的相对丰度差异,荷兰学者提出了新的陆源输入指标—BIT(Branched and Isoprenoid Tetraether),用来指征海洋沉积物中土壤来源有机物的贡献^[15,20],BIT 指数范围是 0 到 1, BIT 指数越高,陆源贡献越大^[20]。

基于此,我们对西菲律宾海盆沉积柱中膜脂组成进行了分析,提供了西菲律宾海盆 4 个百万年以来陆源输入和上层水体温度的变化记录。为进一

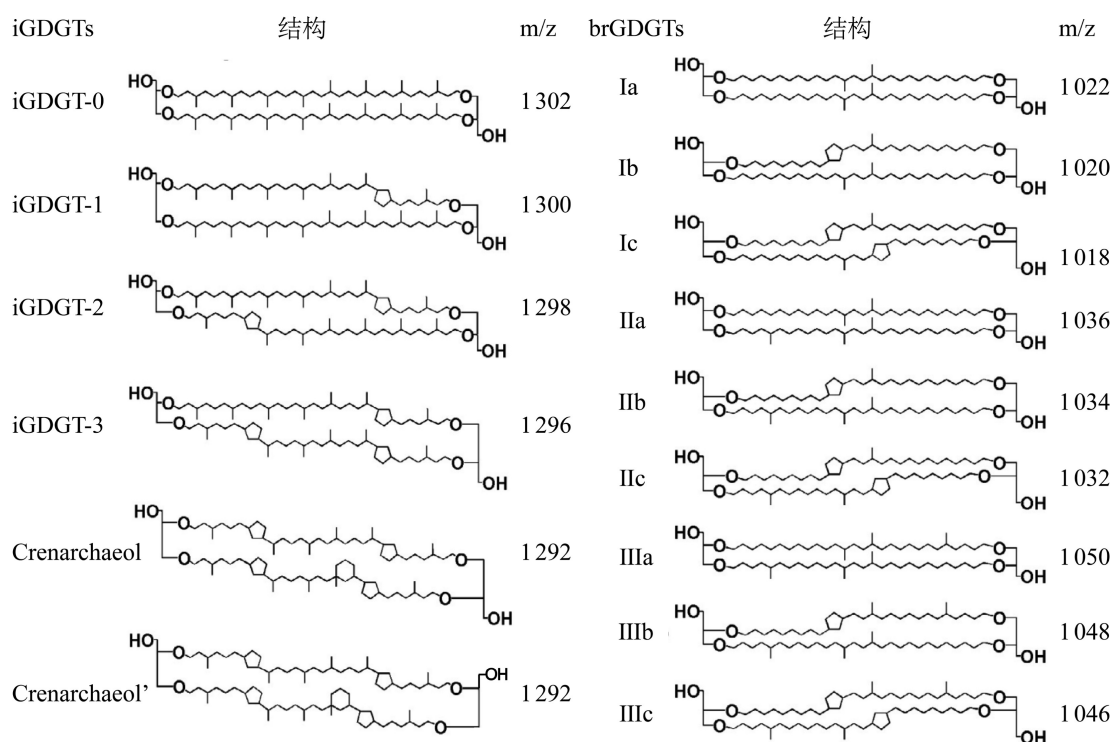


图 2 iGDGTs 与 brGDGTs 结构图^[15-16]

Fig.2 Structures of iGDGTs and brGDGTs^[15-16]

步理解以西太平洋暖池为代表的热带海区与以冬季风为代表的高纬驱动过程之间的相互作用研究提供新的视角。

1 样本采集与研究方法

本研究沉积柱 XT-47(14° 33' 49.1358"N、133° 13' 36.0042"E, 长度 632 cm, 水深 5 700 m)位于西太平洋西菲律宾海盆, 该区域属于菲律宾板块, 处在由不连续的海山组成的帕劳海脊西部边缘, 太平洋中央海脊东端(图 1)。

1.1 定年方法

XT-47 沉积柱 0~260 cm 采用有机碳的 AMS ^{14}C 测年, 结合文献报道的硅藻席沉积时间, 推测前 260 cm 的年龄为 16.6~18.8 或 16.6~29 ka^[6]。260 cm 以深采取放射虫生物地层学定年, 年龄模式如图 3 所示。

1.2 沉积柱特征

本研究沉积柱长度为 632 cm, 沉积物成分特征上存在明显分界(图 4)。其中, 0~260 cm 为灰色纹

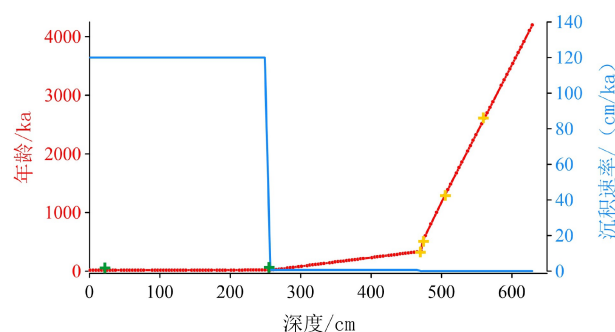


图 3 XT-47 沉积柱记录的深度与年龄、沉积速率对应关系
绿色十字表示用有机碳 AMS ^{14}C 测年的控制点; 黄色十字表示用放射虫生物地层学年龄的控制点。

Fig.3 Correlation between depth, age and sedimentation rate of core XT-47

Green crosses: bulk organic carbon AMS ^{14}C ages; Yellow crosses: radiolarian biostratigraphic ages.

层硅藻席 (LDM); 260~470 cm 为灰黄色硅藻泥 (DC) 和红褐色远洋黏土 (PC) 互层; 而 470~632 cm 为红褐色远洋黏土沉积。

1.3 样品前处理方法

将-20℃ 冷冻保存的沉积物样品冷冻干燥后进行研磨, 装入 40 mL 特氟龙管中, 加入正构四十六

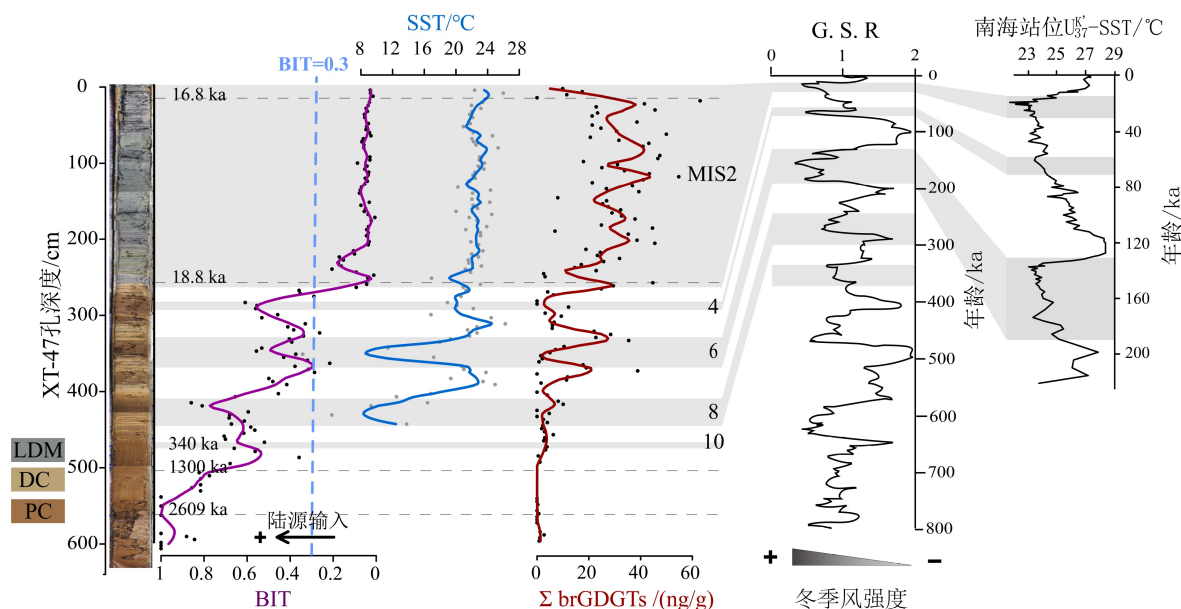


图 4 XT-47 沉积物岩性特征、陆源输入指标 (BIT)、上层海水温度 (SST)、总 brGDGTs 含量变化及其与同纬度南海站位 SST^[21] 和中国黄土粒径指标对比^[22]

图中 BIT、SST 和总 brGDGTs 曲线均由数据点局部加权回归拟合得到; 灰色区域中的数字代表 MIS 时期, LDM: 灰色纹层硅藻席, DC: 灰黄色硅藻泥, PC: 红褐色远洋黏土。

Fig.4 XT-47 sediment lithology, variations of terrestrial input proxy (BIT), sea surface temperature (SST), changes of total brGDGTs compared with SST of South China Sea station site at the same latitude^[21], and grains size ratio (G.S.R) of Chinese loess^[22]

The curves of BIT, SST and total brGDGTs in the figure are all obtained by data point locally weighted regression (LOESS) fitting. The numbers in the gray area represent the MIS stages. LDM: gray laminated diatom mat; DC: gray-yellow diatom clay; PC: reddish brown pelagic clay.

烷内标。然后依次用甲醇、甲醇/二氯甲烷(v : v, 1 : 1)、二氯甲烷,各超声、离心萃取两遍。提取得到总有机物样品过 0.45 μm 滤膜滤除杂质后上机测试。

1.4 测试方法和质量控制

GDGTs 组分利用的是配备了大气压化学电离源 APCI 离子源的液相色谱—串联四级杆飞行时间质谱 6545 (QTOF LC/MS) 进行分析。所用的高效液相是 Agilent 1290 Infinity II HPLC, 分析色谱柱采用串联双超纯硅 HILIC 柱 (150 mm ×2.1 mm, 1.9 μm, Thermo Finnigan; USA), 柱温维持在 40 ℃, 并设置进样量为 5 μL。检测 GDGTs 化合物条件为: 正己烷和异丙醇作为流动相, 流速为 0.2 mL/min, 洗脱梯度为 0~5 min, 84% 正己烷: 16% 乙酸乙酯, 5~65 min; 正己烷比例从 84% 线性减至 82%, 之后在 21 min 内冲洗色谱柱并回到 100% 乙酸乙酯并维持 4 min, 最后用 84% 乙酸乙酯和 16% 的正己烷平衡 30 min, 流速保持在 0.2 mL/min, 化合物在 APCI 源中进行离子化, APCI/MS 条件为: 雾化器压力为 60 psi, 雾化温度达到 400 ℃, 干燥气(N₂)的流速为 5 L/min, 温度达到 200 ℃, 毛细管电压为-3.5 kV, 电晕电流为 5 μA (约 3.2 (约 3.2 kV)。为提高检测信噪比和重现性, 采用全扫模式对离子进行扫描, 目标 GDGTs 化合物核比 (m/z) 为 1 302, 1 300, 1 298, 1 296, 1 292, 1 050, reak/>1 048, 1 046, 1 036, 1 034, 1 032, 1 022, 1 020, 1 018 而标样 C46 GDGT 的荷质比为 744。通过各化合物离子峰 [M+H]⁺ 的面积与加入内标的面积的比值来对 GDGTs 各组分进行定量分析, 分别得到上述 iGDGTs 和 brGDGTs。GDGTs 化合物检测限为 2×10⁻⁴ (图 5)。

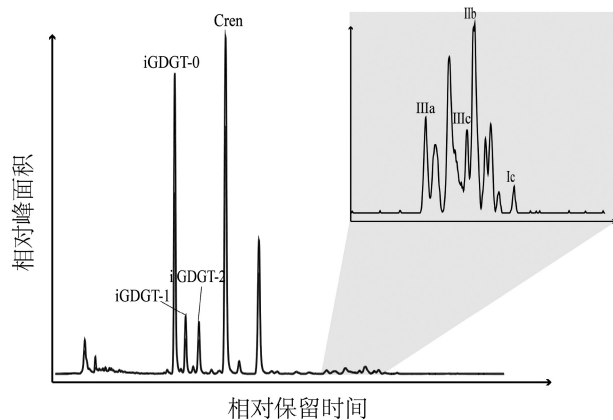


图 5 沉积物中 iGDGTs 和 brGDGTs 的液相色谱-质谱图
Fig.5 Total HPLC-MS ion chromatogram of iGDGTs(a)and brGDGTs(b)of a typical marine sediment sample

1.5 计算公式

对西菲律宾海 XT-47 站位沉积柱的古环境重建基于古海水温度指标 TEX^H₈₆ 和陆源输入指标 BIT。

TEX^H₈₆ 及其衍生的海表温度 (SST) 指标的计算基于 iGDGTs 的浓度 (方括号表示) [23]:

$$\begin{aligned} \text{TEX}^{\text{H}}_{86} &= \text{LOG}([[\text{GDGT} - 2] + [\text{GDGT} - 3] + [\text{Cren}']]/ \\ &\quad ([[\text{GDGT} - 1] + [\text{GDGT} - 2] + [\text{GDG} \\ &\quad \text{T} - 3] + [\text{Cren}']]) \\ \text{SST} &= 68.4 \times \text{TEX}^{\text{H}}_{86} + 38.6 \end{aligned}$$

陆源输入指标 BIT [20]:

$$\begin{aligned} \text{BIT index} &= ([[\text{GDGT} - \text{I}] + [\text{GDGT} - \text{II}] + \\ &\quad [\text{GDGT} - \text{III}]] / ([[\text{Crenarchaeol}] + \\ &\quad [\text{GDGT} - \text{I}] + [\text{GDGT} - \text{II}] + [\text{GDGT} - \text{III}]) \end{aligned}$$

不同甲基数的 brGDGTs 组成百分比按下面公式计算:

$$\begin{aligned} \text{brGDGT} - \text{I}\% &= \sum ([[\text{GDGT} - \text{I}]] / \sum (\text{brGDGTs}) \\ \text{brGDGT} - \text{II}\% &= \sum ([[\text{GDGT} - \text{II}]] / \sum (\text{brGDGTs}) \\ \text{brGDGT} - \text{III}\% &= \sum ([[\text{GDGT} - \text{III}]] / \sum (\text{brGDGTs}) \end{aligned}$$

2 结果

2.1 年龄模式与沉积速率

XT-47 最终年龄模型通过线性内插法生成 (图 3)。图 3 中绿色十字表示用有机碳 AMS ¹⁴C 定年分析的样品深度, 黄色十字表示用放射虫生物地层学定年方法分析的样品深度 (表 1)。深度 0~260 cm (16.6~118.8 ka) 内, 沉积速率为 120 cm/a; 而深度 260~632 cm (18.8~4 100 ka) 内, 沉积速率平均为 0.4 cm/a; 18.8 ka 以来 (16.6~18.8 ka), 沉积速率急剧增加, 说明该阶段发生过大量硅藻的快速沉积事件。

表 1 确定 XT-47 沉积柱年龄模型的年龄控制点及定年方法

Table 1 Age control points and dating method to determine the core XT-47 age model		
深度/cm	年龄/kaBP	定年方法
17	16.8	有机碳AMS ¹⁴ C
257	18.8	有机碳AMS ¹⁴ C
471	340	放射虫
473	510	放射虫
505	1 300	放射虫
561	2 609	放射虫

2.2 生物标志物含量和代用性指标的变化

沉积柱中总 brGDGT 平均浓度为 16.77 ng/g, 浓度范围为 0~62.98 ng/g。0~280 cm 的 brGDGT 平均浓度为 28.39 ng/g, 280 cm 以下平均浓度为 5.69 ng/g (图 4)。

陆源输入指标(BIT)在 0~260 cm(16.6~18.8 ka)深度范围内变化平缓, 仅为 0.01~0.2, 而在深度 260 cm(18.8~4 000 ka)以下, BIT 值呈逐渐上升的总体趋势, 数值为 0.22~1(图 4)。

TEX₈₆ 重建的表层海水温度, 在 0~260 cm(16.6~18.8 ka)变化较为平稳, 平均温度为 22.5 °C, 在 ±3 °C 范围内波动; 在 260 cm 以下波动剧烈。随着深度增加呈现先下降后升高再下降的趋势, 温度变化范围为 0.6~26 °C(图 4)。由于 445 cm 以下的层位, iGDGTs 含量低于仪器检测限, 故无 SST 结果。

3 讨论

3.1 BIT 反映的陆源输入变化及其指示意义

陆源输入指标 BIT 的变化可以分为 3 个阶段(图 4)。首先是 500~632 cm 深度范围内(约 4 100~1 100 ka)主要为远洋黏土沉积, BIT 较高, 为 0.8~1, 说明陆源输入较高。结合西菲律宾海区域特点, 即受到东亚季风的影响为主, 因而这段时期, 季风将大量亚洲风尘输送到该海域并沉积。且该阶段 BIT 值接近于 1, 因为该深度范围内的样品中 Crenarchaeol 的含量远低于 brGDGTs 的含量, 这可能是由于 iGDGTs 相较于 brGDGTs 更容易被降解^[24]。

其次, 在 260~500 cm 深度范围内(约 1 100~18.8 ka)的层位, BIT 值大于 0.3, 表明陆源输入较高, 且在这段时期, BIT 指标呈现明显的冰期—间冰期变化(图 4), 在冰期陆源输入增强, 间冰期陆源输入降低, 但相对来说还是处于比较高的程度(BIT>0.3)。这可能是由于冰期冬季风强盛, 携带大量陆源物质进入西菲律宾海盆, 这与黏土矿物学观测得到的结果相符^[3, 7, 10-11, 25-26]。因此, 我们对比了中国黄土高原指示冬季风强弱的记录, 丁仲礼等将黄土高原土壤粒度 <2 μm 与 >10 μm 的含量比值(G. S. R)作为指标指示冬季风强度^[22], G. S. R 与冬季风强度呈负相关。对比我们的结果发现, G. S. R 指标相位与 BIT 指标相位基本一致, 呈现冰期冬季风增强, 陆源输入增加; 相反, 间冰期冬季风减弱, 陆源输入也随之减少(图 4)。综上, 西菲律宾海盆的陆源输

入应主要受到东亚冬季风的风尘输入影响。因此, 我们推测 brGDGTs 和 iGDGTs 也会随着东亚冬季风从亚洲大陆携带至西菲律宾海域, 而东亚冬季风作为北半球高纬驱动的重要过程^[22], 最终导致了陆源输入指标 BIT 冰期—间冰期变化的模式。需要指出 brGDGTs 在长距离的风尘输送中可能更容易被氧化降解^[16], 但也不排除土壤中的黏土颗粒会与相对稳定的物质结合的可能, 从而保护其不会被轻易降解^[27]。

在 0~260 cm 深度范围内(16.6~18.8 ka), BIT 值较低(BIT<0.3), 说明陆源输入较少, 指示了末次冰盛期以来, 东亚冬季风强度逐渐减弱, 输入到西菲律宾海的风尘物质显著减少。然而对比总 brGDGTs 的含量来看, 0~260 cm 的总 brGDGTs 含量与 260~632 cm 相比更高(图 4)。一般认为, brGDGTs 主要在陆源土壤中产生, 但我们的结果显示, 在 16.6~18.8 ka, 陆源输入低。这些看似矛盾的结果表明, 0~260 cm 的 brGDGTs 可能以海相自生来源为主, 导致该段具有高的 brGDGTs 含量, 却有相对较低的 BIT 值。

3.2 不同来源 brGDGT 组成变化

为了进一步确定 brGDGTs 的来源, 利用三元图对含有不同甲基支链数的 brGDGTs 组成进行了分析(图 6)。将所有深度划分成两段层位, 即 0~265 cm 为一个层位(图中黄色圆点), 用于表征海洋来源的 brGDGTs 样品; 265~609 cm 为另一个层位(图中黑色点), 用于表征陆源的 brGDGTs 样品(图 6), 可以看出, 陆源与海源的 brGDGTs 具有不同的组成。海源的 brGDGTs(0~260 cm)主要集中分布于三元

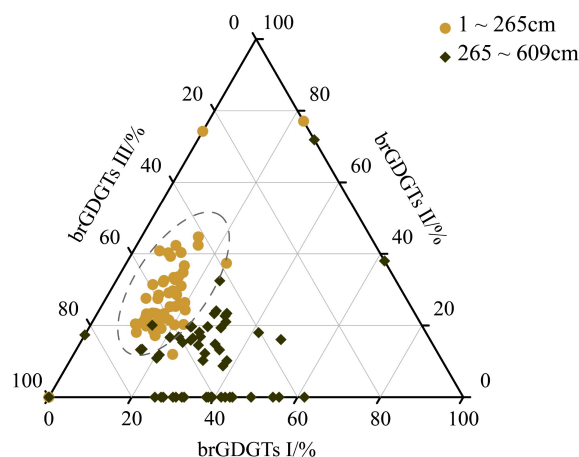


图 6 不同端元 brGDGTs 三元图分布

Fig.6 Ternary graphs of distributions of brGDGTs with different end-members

图左下角偏上,倾向于有更多的五甲基 brGDGTs (brGDGT II) 和更少的四甲基 brGDGTs (brGDGTs I); 而陆源的 brGDGTs (>260 cm) 主要集中分布于三元图左下角偏下,倾向于具有更多的四甲基 brGDGTs 和更少的五甲基 brGDGTs。

虽然普遍认为 brGDGTs 主要来源于陆地土壤,但也有前人研究报道,在海洋水体以及沉积物中也会产生 brGDGTs^[28-30]。肖文杰等提出,当 BIT<0.16 时,海洋沉积物中的 brGDGTs 以海洋来源为主导^[28]。Sinninghe Damsté 等利用全球土壤来源和沉积物来源的 brGDGTs,根据 brGDGTs 甲基数的含量组成进行了三元图分析,发现海洋原位产生的 brGDGTs 的组成和土壤来源的相比有明显不同^[31]。不同来源的沉积物具有不同的 brGDGTs 组成,这可能是由于细菌在不同的生长环境下会通过产生不同甲基支链数的 brGDGTs 对环境进行响应所导致。有研究者提出土壤的温度和 pH 与 brGDGTs 的甲基支链数相关^[28, 32-33]。说明不同环境下温度和 pH 的不同,产生的 brGDGTs 会具有不同甲基支链数。这也为通过甲基化程度来分析 brGDGTs 来源提供参考^[31]。

3.3 陆源输入对于 TEX₈₆ 变化的影响

TEX₈₆^H 重建的上层海水温度 (SST) 与同纬度南海站位 17954 (14° 47.8' N、111° 31.5' E, 水深 1520 m) 由 U₃₇^K 指标重建的 SST 变化幅度有较大差异^[21] (图 4), 推断是由于陆地向海洋输送的 iGDGTs 含量较高导致由 TEX₈₆^H 指标计算得到的 SST 与真实值相比出现偏差。Weijers 等在土壤中检测到了少量的 iGDGT1-3, 说明河流向海洋环境的输送会使 TEX₈₆ 计算得到的 SST 值出现偏差, 对 TEX₈₆ 的使用产生影响^[34]。他们将来自陆源和海源两个端元的样品进行混合, 发现 BIT 值越高, TEX₈₆^H 重建出的 SST 偏差越大, 当 BIT 值达到 0.2~0.3 时, TEX₈₆^H 重建出的 SST 达到 1 °C 的偏差^[34]。而我们的研究数据表明, 在 260 cm 深度以下, BIT 值基本在 0.3 以上, 因此, 260 cm 深度以下层位重建出的 SST 均有相当大的偏差, TEX₈₆^H 在此深度下重建的 SST 不再适用。而在深度 0~260 cm, BIT 平均值为 0.06, 均小于 0.3, TEX₈₆^H 可以较为真实地反映上层水体的温度信息。

3.4 末次冰盛期以来的大量硅藻席沉积

陆源输入也会对西菲律宾海盆初级生产力产生直接影响。有趣的是, XT-47 沉积柱中的确存在独特的沉积相特征: 在 0~260 cm, 观察到了大量纹层硅藻席沉积, 结合放射性同位素测年以及相关文

献, 推测该沉积事件发生在 16.6~18.8 ka, 即末次冰盛期 (LGM) 刚结束时 (图 4)。李铁刚等研究东菲律宾海硅藻席沉积时发现, 东菲律宾海盆成席硅藻主要开始形成于末次冰盛期, 且成席硅藻一般为大型硅藻^[6]。陈敏等在西菲律宾海盆大部分地区的表层沉积中发现巨型硅藻 *Ethmodiscus. Rex* (*E.rex*), 为成席硅藻之一, 本次研究站位也属于该区域^[35]。*E.rex* 勃发需要稳定的成层化的水体条件^[6, 36], 因此, 本研究中发现的成席硅藻勃发与风尘输入的关系为: LGM 期间, 冬季风强烈, 风驱上涌增强, 水体不具备成层化条件, 导致大量营养物质混合。且 *E.rex* 勃发所需的硅主要来源于亚洲风尘输送^[6], 陆源风尘可能携带大量硅和铁, 为 *E.rex* 的勃发创造了条件。而 LGM 以来, 随着冬季风强度的减弱, 风驱上涌也逐渐减弱, 水体层化开始加强, *E.rex* 在稳定的成层化水体中大量繁殖, 促进了大型硅藻的勃发和硅藻席的形成。由此来看, 我们的结果一定程度上间接支持了解释大气 pCO₂ 冰期旋回驱动机制的“硅假说”^[37] 和“硅质碱度泵假说”^[38]。这为冰期大气 pCO₂ 旋回的解释提供了一定的启示。

与前人的记录有所不同, 我们在 XT-47 孔 260~470 cm 深度范围内观察到硅藻泥 (DC) 与远洋黏土 (PC) 交替出现现象 (图 4)。且 DC 出现时期正好对应 BIT 值的波谷。说明 DC 主要在陆源输入降低时形成, 东亚冬季风强度减弱的间冰期沉积。DC 沉积在冰期—间冰期交替出现, 暗示了冰期—间冰期高纬冰量很可能通过东亚季风驱动了低纬热带海区硅藻的勃发。而陆源输入高的时期, 对应 DC 沉积层的消失, 说明冬季风搬运的陆源营养物质不能刺激远洋硅藻的勃发, 而间冰期西菲律宾海可能存在东亚夏季风驱动的上涌, 从而促进了该时段内硅藻的勃发。

4 结论

(1) BIT 指标在西菲律宾海盆显示出明显的冰期—间冰期变化, 且与中国黄土高原地区重建的东亚冬季风强度同相变化。冰期东亚冬季风强盛, BIT 指征的陆源输入增加; 而间冰期东亚冬季风减弱, BIT 陆源输入减小, 指示 BIT 指标仍可用于反映东亚冬季风携带的风尘输入变化。

(2) 末次冰盛期 (LGM) 以前, 西菲律宾海盆陆源输入指标 BIT 大于 0.3, 暗示 LGM 以前有大量陆源输入, 该段 TEX₈₆^H 不能用于海水温度的重建; 而末次冰盛期以后, 陆源输入明显减少, 指示该段 TEX₈₆^H

仍可用于反映上层水体的温度。

(3) 以 LGM 为界, brGDGTs 的组成出现明显差异, 经过端元分析, 我们推测, 在 LGM 之前, 该区域的 brGDGTs 以陆源输入为主; 而在 LGM 以来, 以海相自生为主。

(4) 该孔 0~260 cm 深度范围的硅藻席显示该地区在 LGM 以来存在一个大量硅藻的快速沉积事件, 可能与 LGM 以来成层化水体的形成导致成席硅藻的勃发有关。而在 260~470 cm, 存在 DC 与 PC 交替出现的现象, 且 DC 出现在间冰期, BIT 低值时期, 暗示 DC 沉积由冰期—间冰期旋回驱动。这为解释第四纪大气 $p\text{CO}_2$ 旋回以及西太平洋与亚洲大陆海陆相互作用研究提供重要参考。

参考文献 (References)

- [1] Lea D W. The glacial tropical pacific-not just a west side story [J]. *Science*, 2002, 297(5579): 202-203.
- [2] Xu Z K, Li T G, Wan S M, et al. Evolution of East Asian monsoon: Clay mineral evidence in the western Philippine Sea over the past 700 kyr [J]. *Journal of Asian Earth Sciences*, 2012, 60: 188-196.
- [3] Xu Z K, Li T G, Clift P D, et al. Quantitative estimates of Asian dust input to the western Philippine Sea in the mid-late Quaternary and its potential significance for paleoenvironment [J]. *Geochemistry, Geophysics, Geosystems*, 2015, 16(9): 3182-3196.
- [4] Hun C A, Peng J L, Chen J C. Late Pleistocene pelagic sedimentation in the West Philippine Basin [J]. *Journal of Southeast Asian Earth Sciences*, 1992, 7(2-3): 159-164.
- [5] Seo I, Lee Y I, Yoo C M, et al. Sr-Nd isotope composition and clay mineral assemblages in eolian dust from the central Philippine Sea over the last 600 kyr: Implications for the transport mechanism of Asian dust: Source and transport agent of Asian dust [J]. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 2014, 119(19): 11492-11504.
- [6] 李铁刚, 熊志方, 翟滨. 低纬度西太平洋硅藻席沉积与碳循环[M]. 北京: 海洋出版社, 2015: 1-158. [LI Tiegang, XIONG Zhifang, ZHAI Bin. Laminated Diatom Mat Deposits from the Low-Latitude Western Pacific Linked to Global Carbon Cycle[M]. Beijing: China Ocean Press, 2015: 1-158.]
- [7] Xu Z K, Li T G, Wan S M, et al. Geochemistry of rare earth elements in the mid-late Quaternary sediments of the western Philippine Sea and their paleoenvironmental significance [J]. *Science China Earth Sciences*, 2014, 57(4): 802-812.
- [8] Qiu B. Kuroshio and oyashio currents[M]//Steele J H. Encyclopedia of Ocean Sciences. London: Elsevier Science Ltd., 2001: 1413-1425.
- [9] Liu J P, Xu K H, Li A C, et al. Flux and fate of Yangtze River sediment delivered to the East China Sea [J]. *Geomorphology*, 2007, 85(3-4): 208-224.
- [10] Wan S M, Yu Z J, Clift P D, et al. History of Asian eolian input to the West Philippine Sea over the last one million years [J]. *Palaeogeography, Palaeoclimatology, Palaeoecology*, 2012, 326-328: 152-159.
- [11] Jiang F Q, Zhou Y, Nan Q Y, et al. Contribution of Asian dust and volcanic material to the western Philippine Sea over the last 220 kyr as inferred from grain size and Sr-Nd isotopes [J]. *Journal of Geophysical Research: Oceans*, 2016, 121(9): 6911-6928.
- [12] 万世明, 徐兆凯. 西太平洋风尘沉积记录研究进展[J]. 海洋与湖泊, 2017, 48(6): 1208-1219. [WAN Shiming, XU Zhaokai. Research progress on eolian dust records in the west pacific [J]. *Oceanologia et Limnologia Sinica*, 2017, 48(6): 1208-1219.]
- [13] Jiang F Q, Frank M, Li T G, et al. Asian dust input in the western Philippine Sea: Evidence from radiogenic Sr and Nd isotopes [J]. *Geochemistry, Geophysics, Geosystems*, 2013, 14(5): 1538-1551.
- [14] Wan S M, Sun Y B, Nagashima K. Asian dust from land to sea: processes, history and effect from modern observation to geological records [J]. *Geological Magazine*, 2020, 157(5): 701-706.
- [15] Ge H M, Zhang C L. Advances in GDGT research in Chinese marginal seas: A review [J]. *Science China Earth Sciences*, 2016, 59(6): 1173-1186.
- [16] Schouten S, Hopmans E C, Damsté J S S. The organic geochemistry of glycerol dialkyl glycerol tetraether lipids: A review [J]. *Organic Geochemistry*, 2013, 54: 19-61.
- [17] Pearson A, Ingalls A E. Assessing the use of archaeal lipids as marine environmental proxies [J]. *Annual Review of Earth and Planetary Sciences*, 2013, 41: 359-384.
- [18] Schouten S, Hopmans E C, Schefuß E, et al. Distributional variations in marine crenarchaeotal membrane lipids: a new tool for reconstructing ancient sea water temperatures? [J]. *Earth and Planetary Science Letters*, 2002, 204(1-2): 265-274.
- [19] Li D W, Zhao M X, Tian J, et al. Comparison and implication of TEX_{86} and U_{37}^K temperature records over the last 356 kyr of ODP Site 1147 from the northern South China Sea [J]. *Palaeogeography, Palaeoclimatology, Palaeoecology*, 2013, 376: 213-223.
- [20] Hopmans E C, Weijers J W H, Schefuß E, et al. A novel proxy for terrestrial organic matter in sediments based on branched and isoprenoid tetraether lipids [J]. *Earth and Planetary Science Letters*, 2004, 224(1-2): 107-116.
- [21] Pelejero C, Grimalt J O, Heilig S, et al. High-resolution U_{37}^K temperature reconstructions in the South China Sea over the past 220 kyr [J]. *Paleoceanography and Paleoclimatology*, 1999, 14(2): 224-231.
- [22] Ding Z L, Liu T S, Rutter N W, et al. Ice-volume forcing of East Asian winter monsoon variations in the past 800, 000 years [J]. *Quaternary Research*, 1995, 44(2): 149-159.
- [23] Kim J H, Van Der Meer J, Schouten S, et al. New indices and calibrations derived from the distribution of crenarchaeal isoprenoid tetraether lipids: Implications for past sea surface temperature reconstructions [J]. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 2010, 74(16): 4639-4654.
- [24] Yamamoto M, Shimamoto A, Fukuhara T, et al. Source, settling and degradation of branched glycerol dialkyl glycerol tetraethers in the marine water column [J]. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 2016, 191: 239-254.

- [25] Winckler G, Anderson R F, Fleisher M Q, et al. Covariant glacial-interglacial dust fluxes in the equatorial Pacific and Antarctica [J]. *Science*, 2008, 320 (5872): 93-96.
- [26] Xu Z K, Li T G, Yu X K, et al. Sediment provenance and evolution of the East Asian winter monsoon since 700 ka recorded by major elements in the West Philippine Sea [J]. *Chinese Science Bulletin*, 2012, 58 (9): 1044-1052.
- [27] De Jonge C, Stadnitskaia A, Hopmans E C, et al. Drastic changes in the distribution of branched tetraether lipids in suspended matter and sediments from the Yenisei River and Kara Sea (Siberia): Implications for the use of brGDGT-based proxies in coastal marine sediments [J]. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 2015, 165: 200-225.
- [28] Xiao W J, Wang Y H, Zhou S Z, et al. Ubiquitous production of branched glycerol dialkyl glycerol tetraethers (brGDGTs) in global marine environments: a new source indicator for brGDGTs [J]. *Biogeosciences*, 2016, 13 (20): 5883-5894.
- [29] Liu XL, Zhu C, Wakeham SG, et al. In situ production of branched glycerol dialkyl glycerol tetraethers in anoxic marine water columns [J]. *Marine Chemistry*, 2014, 166: 1-8.
- [30] Zhu C, Weijers J W H, Wagner T, et al. Sources and distributions of tetraether lipids in surface sediments across a large river-dominated continental margin [J]. *Organic Geochemistry*, 2011, 42 (4): 376-386.
- [31] Damsté J S S. Spatial heterogeneity of sources of branched tetraethers in shelf systems: The geochemistry of tetraethers in the Berau River delta (Kalimantan, Indonesia) [J]. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 2016, 186: 13-31.
- [32] Weijers J W H, Schouten S, Van Den Donker J C, et al. Environmental controls on bacterial tetraether membrane lipid distribution in soils [J]. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 2007, 71 (3): 703-713.
- [33] Peterse F, Schouten S, Van Der Meer J, et al. Distribution of branched tetraether lipids in geothermally heated soils: Implications for the MBT/CBT temperature proxy [J]. *Organic Geochemistry*, 2009, 40 (2): 201-205.
- [34] Weijers J W H, Schouten S, Spaargaren O C, et al. Occurrence and distribution of tetraether membrane lipids in soils: Implications for the use of the TEX₈₆ proxy and the BIT index [J]. *Organic Geochemistry*, 2006, 37 (12): 1680-1693.
- [35] 陈敏, 兰彬斌, 沈林南, 等. 西菲律宾海盆表层沉积硅藻分布特征[J]. 微体古生物学报, 2014, 31 (4): 321-334. [CHEN Min, LAN Binbin, SHEN Linnan, et al. Characteristics of diatom distribution in the surface sediments of the Western Philippine Basin [J]. *Acta Micropalaeontologica Sinica*, 2014, 31 (4): 321-334.]
- [36] De Deckker P, Ginge F X. On the occurrence of the giant diatom *Ethmodiscus rex* in an 80-ka record from a deep-sea core, southeast of Sumatra, Indonesia: implications for tropical palaeoceanography [J]. *Marine Geology*, 2002, 183 (1-4): 31-43.
- [37] Harrison K G. Role of increased marine silica input on paleo-*p*CO₂ levels [J]. *Paleoceanography and Paleoclimatology*, 2000, 15 (3): 292-298.
- [38] Nozaki Y, Yamamoto Y. Radium 228 based nitrate fluxes in the eastern Indian Ocean and the South China Sea and a silicon-induced "alkalinity pump" hypothesis [J]. *Global Biogeochemical Cycles*, 2001, 15 (3): 555-567.