



南黄海表层沉积物稀土元素分布特征及其物源指示意义

密蓓蓓, 张 勇, 梅 西, 王忠蕾, 窦衍光

Distribution of rare earth elements in surface sediments of the South Yellow Sea and its implication to sediment provenances

MI Beibei, ZHANG Yong, MEI Xi, WANG Zhonglei, and DOU Yanguang

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.16562/j.cnki.0256-1492.2022072901>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

莱州湾表层沉积物重金属分布特征、污染评价与来源分析

Spatial distribution of heavy metals in the surface sediments of Laizhou Bay and their sources and pollution assessment

海洋地质与第四纪地质. 2021, 41(6): 67

南海南部浅表层柱状沉积物孔隙水地球化学特征对甲烷渗漏活动的指示

Pore water geochemistry of shallow surface sediments in the southern South China Sea and its implications for methane seepage activities

海洋地质与第四纪地质. 2021, 41(5): 112

南海北部神狐海域SH37岩芯浊流沉积及其物源分析

Turbidity deposits and their provenance: evidence from core SH37 in Shenhu area of the South China Sea

海洋地质与第四纪地质. 2021, 41(5): 101

南黄海崂山隆起二叠系砂岩储层特征及其油气勘探前景

Characteristics and hydrocarbon prospects of the Permian sandstone reservoirs of the Laoshan Uplift, South Yellow Sea

海洋地质与第四纪地质. 2021, 41(5): 181

南黄海中部隆起晚新近纪—第四纪沉积序列的地层划分与沉积演化

Stratigraphic classification and sedimentary evolution of the late Neogene to Quaternary sequence on the Central Uplift of the South Yellow Sea

海洋地质与第四纪地质. 2021, 41(5): 25

江苏中部海岸晚第四纪沉积物的粒度与磁化率特征及其古环境意义

Characteristics of grain size and magnetic susceptibility of the Late Quaternary sediments from core 07SR01 in the middle Jiangsu coast and their paleoenvironmental significances

海洋地质与第四纪地质. 2021, 41(5): 210



关注微信公众号, 获得更多资讯信息

密蓓蓓, 张勇, 梅西, 等. 南黄海表层沉积物稀土元素分布特征及其物源指示意义 [J]. 海洋地质与第四纪地质, 2022, 42(6): 93-103.

MI Beibei, ZHANG Yong, MEI Xi, et al. Distribution of rare earth elements in surface sediments of the South Yellow Sea and its implication to sediment provenances[J]. Marine Geology & Quaternary Geology, 2022, 42(6): 93-103.

南黄海表层沉积物稀土元素分布特征及其物源指示意义

密蓓蓓^{1,2}, 张勇^{1,2}, 梅西^{1,2}, 王忠蕾^{1,2}, 窦衍光^{1,3}

1. 中国地质调查局青岛海洋地质研究所, 青岛 266237

2. 青岛海洋科学与技术试点国家实验室, 海洋矿产资源评价与探测技术功能实验室, 青岛 266237

3. 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

摘要: 对南黄海表层沉积物稀土元素数据进行了系统总结, 旨在揭示其赋存特征、分布规律及主要来源。结果表明, 南黄海稀土元素含量为 77.2~261.78 $\mu\text{g/g}$, 平均值为 166.46 $\mu\text{g/g}$; 空间上分布规律显著, 高值区出现在南黄海中部泥质区, 含量基本在 180 $\mu\text{g/g}$ 以上, 而低值区则呈斑块状出现在靠近山东半岛近岸一带, 含量多低于 130 $\mu\text{g/g}$ 。稀土元素的球粒陨石配分模式和上陆壳 (UCC) 配分模式显示各海域总体特征较为一致, 与中国大陆的稀土元素配分曲线类似, 指示了较强的陆源特征, 河流携带的陆源入海物质是其主要的物质来源。通过对稀土元素各特征参数进行相关性分析, 发现南黄海稀土元素组成与沉积物粒度呈较为明显的正相关, 表明了沉积物粒度、矿物组成对稀土元素含量具有显著的控制作用。对比分析稀土元素空间分布规律和南黄海主要入海河流沉积物稀土组成, 结果表明南黄海绝大部分沉积物来自于中国大陆河流, 包括长江、黄河和老黄河等大型河流。在不同环流体系控制下, 大型入海河流控制了南黄海不同区域的物质分布: 西北部主要来自黄河入海物质, 山东半岛沿岸流是其主要的输运动力; 老黄河物质主要沉积在西部海域, 主要驱动力是苏北沿岸流; 南部物质主要来自长江入海物质, 长江冲淡水 and 闽浙沿岸流控制了其分布范围; 东部近岸区域则以朝鲜半岛入海河流携带陆源物质为主, 主要输运动力为朝鲜沿岸流。在此基础上, 以 $\text{La/Yb}=11.7$ 为界, 可将整个南黄海划分为两个物源区, 西部大部分海域为中国大陆来源, 而东部近岸区则为朝鲜半岛来源, 两者分界线基本接近于黄海海槽的位置。总体而言, 大中型河流带来的陆源物源、沉积物粒度以及海域流系格局控制了南黄海表层沉积物稀土元素的组成特征和分布格局。

关键词: 表层沉积物; 稀土元素; 物源; 南黄海

中图分类号: P736.21

文献标识码: A

DOI: 10.16562/j.cnki.0256-1492.2022072901

Distribution of rare earth elements in surface sediments of the South Yellow Sea and its implication to sediment provenances

MI Beibei^{1,2}, ZHANG Yong^{1,2}, MEI Xi^{1,2}, WANG Zhonglei^{1,2}, DOU Yanguang^{1,3}

1. Qingdao Institute of Marine Geology, China Geological Survey, Qingdao 266237, China

2. Laboratory for Marine Mineral Resources, Qingdao National Laboratory for Marine Science and Technology, Qingdao 266237, China

3. Laboratory for Marine Geology, Qingdao National Laboratory for Marine Science and Technology, Qingdao 266237, China

Abstract: To reveal their compositions, distributions, and provenances of rare earth elements in the sediment from the South Yellow Sea, the data in the surface sediments in the area were studied systematically. The results show that the content of rare earth elements ranged from 77.2 to 261.78 $\mu\text{g/g}$, with the average value of 166.46 $\mu\text{g/g}$. The spatial distribution pattern of rare earth element is distinct, showing relative higher value in the muddy area in the central of the South Yellow Sea, where the content is generally more than 180 $\mu\text{g/g}$, while the lower value area appears as patches close to the coastal regions of Shandong Peninsula, and the content is mostly less than 130 $\mu\text{g/g}$. The normalized rare earth elements patterns of chondrite and upper continental crust (UCC) show overall pictures of the entire study area, which is similar to the distribution pattern of rare earth elements in Chinese mainland, indicating clear terrigenous imprint of riverine materials, reflecting the intimacy as the main sediment provenance of the South Yellow Sea. Meanwhile, as shown in the correlation analysis of the characteristic parameters of

资助项目: 中国地质调查局项目 (DD20221710, DD20190208, DD20190205)

作者简介: 密蓓蓓 (1984—), 女, 高级工程师, 主要从事海洋地质研究, E-mail: mpp302@163.com

通讯作者: 窦衍光 (1979—), 男, 研究员, 主要从事海洋沉积研究, E-mail: douyanguang@gmail.com

收稿日期: 2022-07-29; 改回日期: 2022-10-17. 张现荣编辑

rare earth elements, the composition of rare earth elements in the South Yellow Sea is significantly positively correlated with the grain size of sediments, indicating that the sediment grain size and mineral composition controlled the content and composition of rare earth elements in the study area. Based on the spatial distribution pattern of rare earth elements and those from the main rivers into the South Yellow Sea, we believed that the sediment of South Yellow Sea is mainly from the Chinese large rivers, including Yangtze River, modern Yellow River, and old Yellow River. The northwest part is mainly from the Yellow River materials, and the coastal current of Shandong Peninsula is its main transport power. The material of the old Yellow River mainly deposit in the west of the South Yellow Sea, and the main driving force is the coastal current of Jiangsu Province. The material in the southern part of the South Yellow Sea mainly come from the material entering the sea from the Yangtze River, which is controlled by the Yangtze River diluted water and the coastal current of Fujian and Zhejiang. The east coast of the South Yellow Sea is dominated by terrestrial materials carried by the rivers in the Korean Peninsula, and the main transport power is the Korean coastal current. Taking La/Yb=11.7 as the demarcation line, the entire South Yellow Sea can be divided into two realms. Most of the western materials are from Chinese mainland, while the eastern coastal area from the Korean Peninsula. The boundary between these two realms is close to the middle line of the Yellow Sea trough. Therefore, we confirm that the terrestrial provenance, sediment grain size, and marine current system pattern control the composition and distribution pattern of rare earth elements in the surface sediments of the South Yellow Sea.

Key words: surface sediment; rare earth elements; provenance; South Yellow Sea

稀土元素(REE)在表生环境中的化学性质非常稳定,各元素具有相似的地球化学行为,且溶解度极低,这就导致其组成及分布模式受侵蚀风化、运输过程以及沉积成岩的影响极小^[1-4],这也使稀土元素可以作为一种天然的示踪剂,在沉积物“源-汇”过程和运输模式研究中发挥重要作用^[5-8]。南黄海位于中国大陆和朝鲜半岛之间,众多的河流每年携带巨量的沉积物入海,在特定的动力条件下形成了独具特色的沉积格局,是研究陆海相互作用和沉积环境演化的良好场所。已有研究表明南黄海周边多条不同规模的河流贡献了巨量的陆源物质,其中以我国的黄河(包括现代黄河和废黄河)和长江占据绝对的主导地位,近年来的平均年输沙量高达 $1.36 \times 10^9 \text{ t}$ ^[9-11],是中国东部海域沉积物的主要来源^[12-13],其运输范围甚至可穿过冲绳海槽而到达深海区域^[14-15]。朝鲜半岛汇入南黄海的主要河流有汉江、锦江和荣山江,其中流域最广、规模最大的汉江年输沙量只有 $2 \times 10^6 \sim 12.46 \times 10^6 \text{ t}$ ^[16],尽管其规模远小于中国大陆河流,但是其对南黄海的物质贡献同样不可忽视^[17]。前期研究证明,不同的入海河流在原岩、气候、环境等方面的差异较大,这就致使不同河流来源物质在入海后呈现出不同的稀土组成特征^[4,18],而入海后的运输、沉积、再悬浮过程可以进一步改变海底沉积物时空分布特征,形成特定的沉积物“源-汇”体系。南黄海沉积物“源-汇”及其沉积模式研究主要集中在中部泥质沉积体,基本阐明了其形成过程、物质来源和沉积模式^[16,19-23],物源性质具有与中国大陆明显的亲缘性^[24],且最近200 a以来呈较为稳定的趋势。但总体而言,南黄海全海域的系统研究开展不多,尤其是朝鲜半岛物质对南黄海的沉积过程是否有影响,还缺少足够的实

测证据。为此,以南黄海全海域沉积物稀土组成及其空间分布规律为切入点,以周边入海河流沉积物稀土组成为物源判别指标体系,可有效追溯沉积物来源及其输运范围,以此来反演其蕴含的陆海相互作用信息。

为厘清南黄海表层沉积物中稀土元素组成特征、分布规律及输运模式,本文以大量实测数据为基础,借助于地球系统科学的研究思路,详细阐述了南黄海稀土元素组成特征,开展了稀土元素分区并判别其物质来源,结合流系格局推断是现代陆源入海物质的输运规律,以此来提升陆架边缘海沉积物元素地球化学组成特征、分布规律及其控制机制方面的科学认知。

1 材料与方法

2002—2009年,青岛海洋地质研究所依托中国地质调查局1:100万海洋区域地质调查项目“南通幅”和“大连幅”对南黄海海域进行了系统的调查取样,使用箱式或抓斗取样器采集了一系列高质量表层沉积物样品。样品采集方法按照《1:1000000海洋区域地质调查规范》(DZ/T 0247-2009)执行,采样站位按照20 km×20 km的网格间距设计,每个样品选取表层0~5 cm进行采集和保存。本文选取了341个站位表层沉积物样品进行测试分析。另外,研究过程中还收集了公开发表的南黄海周边主要河流样品的稀土元素参数^[25-26],主要包括中国大陆的长江、黄河及朝鲜半岛的汉江、锦江和荣山江的入海沉积物数据,具体站位见图1。

采集的表层沉积物样品在40℃条件下冷冻干燥,用球磨机研磨至200目以下,经马弗炉高温灼

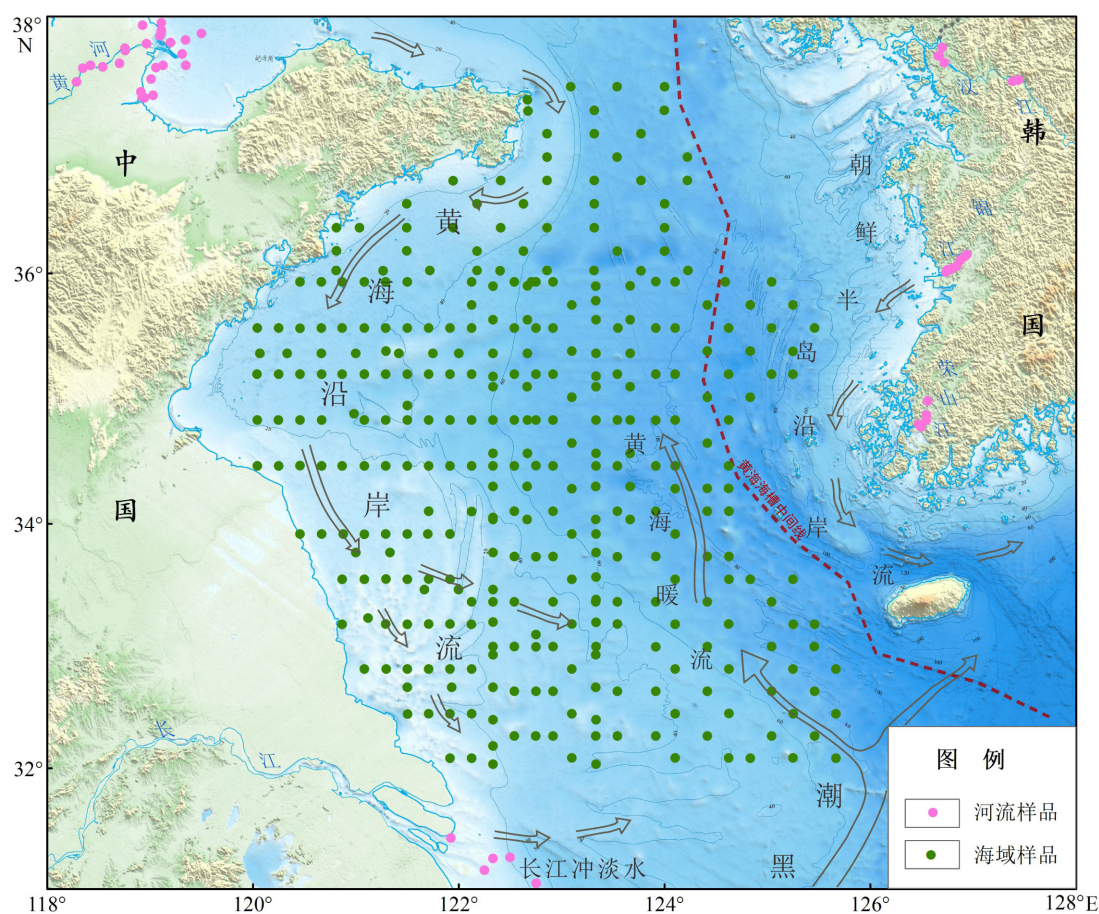


图 1 南黄海流系格局及取样站位分布

Fig.1 Distribution of current systems and sampling stations in the South Yellow Sea

烧后利用 $\text{HNO}_3\text{-HF-HClO}_4$ 完成消解, 再使用等离子质谱仪 (ICP-MS) 测定稀土元素 (La、Ce、Pr、Nd、Sm、Eu、Gd、Tb、Dy、Ho、Lu、Er、Tm 和 Yb) 的含量。测试过程中通过使用国家一级标准物质进行测试, 测试结果比来对样品进行质量监控, 另选取 10% 重复样监测精确度, 确保各个稀土元素含量的相对偏差小于 5%。样品预处理和测试分析在中国地质调查局青岛海洋地质研究所完成。

2 结果

2.1 南黄海稀土元素分布特征

南黄海表层沉积物稀土元素测试结果如表 1 所示, 分别计算了稀土元素总量 (ΣREE)、重稀土总量 (ΣHREE)、轻稀土总量 (ΣLREE)、轻重稀土比值 ($\Sigma\text{LREE}/\Sigma\text{HREE}$)、 $(\text{Gd}/\text{Yb})_{\text{N}}$ 、 $(\text{La}/\text{Yb})_{\text{N}}$ 、 δCe 和 δEu 等特征参数。结果显示, 南黄海表层沉积物中的稀土元素含量为 $77.19\sim 261.78\ \mu\text{g/g}$, 平均值为 $166.46\ \mu\text{g/g}$ (表 1)。南黄海稀土元素值接近于中国

大陆沉积物 ($172.11\ \mu\text{g/g}$)^[27]、黄河和长江等主要入海河流沉积物的稀土元素含量^[6], 而与深海沉积物中的稀土含量 ($125.13\ \mu\text{g/g}$)^[28] 差距较大, 表现出典型陆架区域特征。从空间分布特征来看 (图 2), 南黄海的稀土元素分布并不均匀, 中部泥质区是稀土元素含量最高的区域, 长江口以北的江苏近岸次之, 山东半岛近岸的稀土元素含量最低。结合平均粒径分布图来看, 南黄海中部是沉积物粒径最小的区域, 平均粒径值超过 $6\ \Phi$, 而这个区域也是稀土元素含量最高的区域, 表明粒度与稀土元素分布有很好的对应关系。轻重稀土分异值在南黄海西部和中部较为均一, 往朝鲜半岛方向呈逐渐增加的趋势。因此, 稀土元素多元化的空间分布规律一方面反映了较为复杂的沉积物来源, 另一方面也对水动力格局有很好的指示作用^[18]。

南黄海表层沉积物 $(\text{La}/\text{Yb})_{\text{N}}$ 、 $(\text{Gd}/\text{Yb})_{\text{N}}$ 、 δCe 、 δEu 等 4 个稀土参数平面分布如图 3 所示。 $(\text{Gd}/\text{Yb})_{\text{N}}$ 和 $(\text{La}/\text{Yb})_{\text{N}}$ 可反映 LREE 和 HREE 的相对分异程度, $(\text{La}/\text{Yb})_{\text{N}}$ 为 $8.26\sim 19.18$, 平均值为 10.51; 研究区 $(\text{Gd}/\text{Yb})_{\text{N}}$ 为 $1.46\sim 2.8$, 平均值为 1.85。 δCe 和 δEu

表 1 南黄海海域表层沉积物及周边入海河流沉积物稀土元素含量及特征参数
Table 1 REE content and characteristic parameters of surface sediments in the South Yellow Sea and surrounding rivers

		$\Sigma\text{REE}/(\mu\text{g/g})$	$\Sigma\text{LREE}/(\mu\text{g/g})$	$\Sigma\text{HREE}/(\mu\text{g/g})$	$\Sigma\text{LREE}/\Sigma\text{HREE}$	δEu	δCe	$(\text{La}/\text{Yb})_{\text{N}}$	$(\text{Gd}/\text{Yb})_{\text{N}}$
南黄海	最大值	261.78	235.72	24.41	13.728	0.78	1.14	19.18	2.85
	最小值	77.19	70.54	6.07	7.30	0.46	0.67	8.26	1.46
	平均值	166.46	148.99	16.28	9.18	0.65	0.99	10.51	1.86
河流	长江 ^[26]	186.66	167.04	18.32	9.12	0.64	1.01	10.74	1.95
	黄河 ^[26]	148.08	131.87	15.24	8.65	0.60	1.00	9.68	1.84
	汉江 ^[25]	221.69	204.47	17.21	11.87	0.63	1.05	13.03	1.67
	锦江 ^[25]	225.20	207.48	17.73	11.71	0.71	1.04	13.28	1.72
	荣山江 ^[25]	202.90	186.34	16.56	11.25	0.76	1.05	12.30	1.68

是稀土元素地球化学特征的两个重要参数,可反映 Ce 和 Eu 元素相对于其他稀土元素的分离程度,可灵敏的指示出所研究体系内的地球化学特征^[29],研究区 δCe 的平均值为 0.99, 范围为 0.67~1.14; δEu 平均值为 0.65, 分布范围为 0.46~0.78。从图 3 可以看出,南黄海东部靠近朝鲜半岛的区域 δEu 异常明显,其他区域较为均一; δCe 与 δEu 呈相反的趋势,异常高值区分布在南黄海西部靠近海州湾的区域。 $(\text{La}/\text{Yb})_{\text{N}}$ 和 $(\text{Gd}/\text{Yb})_{\text{N}}$ 分布趋势较为接近,南黄海中西部靠近中国大陆的一侧区域差异不明显,而在南黄海东部靠近朝鲜半岛一侧异常值急剧增加,可能指示了不同的沉积物来源对稀土指标的控制作用。

2.2 南黄海稀土元素配分模式

为了解稀土元素受沉积过程中的混合、均化的影响及不同元素之间的分异程度,一般需要对稀土元素原始数据进行标准化处理^[1],通常使用的方法有两个,一是以北美页岩(NASC)或上地壳(UCC)对稀土元素进行标准化,旨在揭示不同稀土元素之间的分异程度;二是以球粒陨石为标准进行标准化,以此来反映样品相对地球原始物质的分异程度,消除稀土元素奇偶效应。为此,本文以上地壳(UCC)和球粒陨石两种物质为参考对南黄海表层沉积物稀土元素进行标准化处理(图 4)。结果显示,南黄海和周边主要入海河流沉积物稀土元素的 UCC 分布模式整体上较为一致,但轻稀土部分区别较为明显,韩国河流的轻稀土元素较中国大陆河流以及南黄海表层沉积物呈现出不同程度富集,显示出较弱的 Ce 异常,而 Eu 异常不明显。南黄海表层沉积物以及周边入海河流的稀土元素的球粒陨石分布模式呈现基本一致的特征,反映了所研究样品

相对地球原始物质的分异程度相同:配分模式为右倾型,轻重稀土分异较明显,轻稀土(LREE)相对富集,重稀土(HREE)平坦。

3 讨论

3.1 稀土元素控制因素

中国东部海域的表层沉积物主要以陆源碎屑物质为主^[13,30],稀土元素的含量与源区原岩类型、气候条件、人类活动等因素密切相关^[26-31],其中物质来源为控制海域沉积物稀土元素含量的首要因素。南黄海周边的入海河流众多,既有长江、黄河这种大型河流,也有来自朝鲜半岛的中小规模的河流,不同河流在其流域的地质背景、生物面貌、气候分带、人类活动等方面的差异导致其输入入海的陆源碎屑物质稀土元素组成上的显著差异^[2]。长江是中国第一大河,其流域酸性岩浆岩广泛发育,形成与之相关的矿物组合,而酸性岩富含稀土元素,这就导致长江携带的沉积物中稀土含量总体偏高;另外,长江流域地处温暖潮湿的气候带,化学风化作用较强,加快了原岩的侵蚀速度,河流携带泥沙中胶体含量高而吸附较多的稀土元素^[31]。因此,复杂的原岩类型和适宜的气候因素导致了研究区西南部海域靠近长江水下三角洲的沉积物中稀土元素含量较高。黄河是仅次于长江的中国第二大河流,其流域主要位于古老的华北地台上,沉积物以中游广泛分布的黄土来源为主^[32],黄河流域岩石类型以蒸发盐和碳酸盐为主,土壤呈碱性,这些盐类的广泛存在导致了碎屑物质中稀土元素含量偏低^[33];另外,黄河流域地处北方干旱寒冷气候带,化学风化较弱,而物理风化占主导地位,其沉积物的稀土元

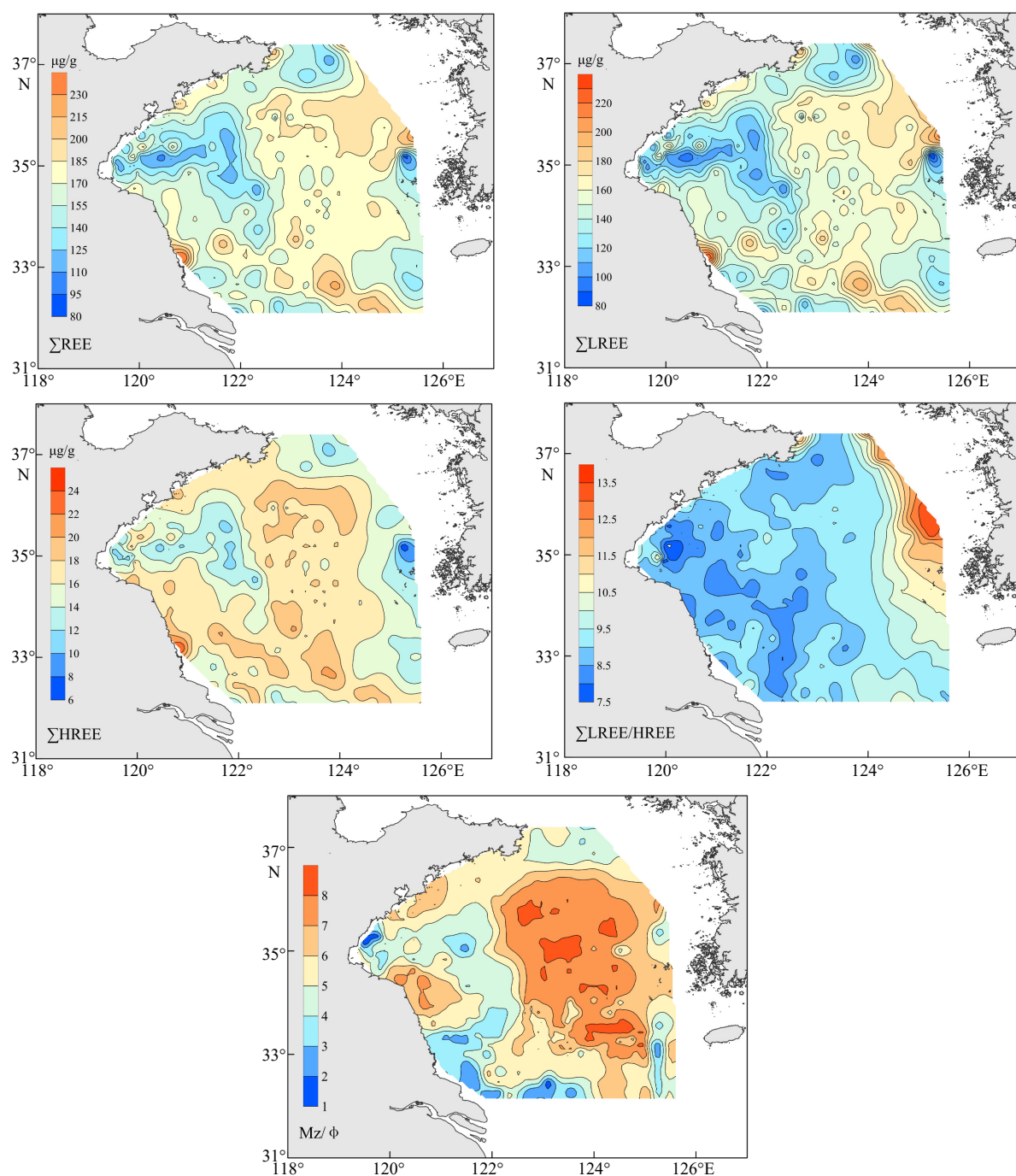


图 2 南黄海表层沉积物稀土元素参数 (ΣREE 、 ΣLREE 、 ΣHREE 、 $\Sigma\text{LREE}/\Sigma\text{HREE}$) 和平均粒径 (M_z) 分布图

Fig.2 The distribution of characteristic parameters of rare earth element (ΣREE , ΣLREE , ΣHREE , $\Sigma\text{LREE}/\Sigma\text{HREE}$) and mean grain size (M_z) in the surface sediments of the South Yellow Sea

素特征基本继承了中游黄土中稀土元素含量偏低的特点, 因此靠近黄河流域的山东半岛、废黄河口周边等海域稀土元素含量较少, 指示了黄河入海物质对这些区域的控制作用。韩国一侧注入南黄海的主要河流有汉江、锦江和荣山江等中小型河流, 流域面积和输沙量都很小, 其中汉江流域面积最大, 也仅为 $2.6 \times 10^4 \text{ km}^2$ ^[6]。韩国这 3 条河流沉积物的稀土元素总含量很高, 而且轻重稀土分异明显,

可能与它所在流域的物质组成有关, 韩国河流流域内源岩的主体以花岗岩为代表的火成岩与片麻岩为代表的变质岩构成, 并有大量第四纪沉积物, 很少有碳酸岩出露, 锦江和荣山江的主要源岩类型是侏罗纪的花岗岩和白垩纪的花岗岩^[34], 原岩类型的差异导致了韩国与中国入海河流沉积物稀土元素组成的不同。

除物质来源外, 沉积物类型也是影响稀土元素

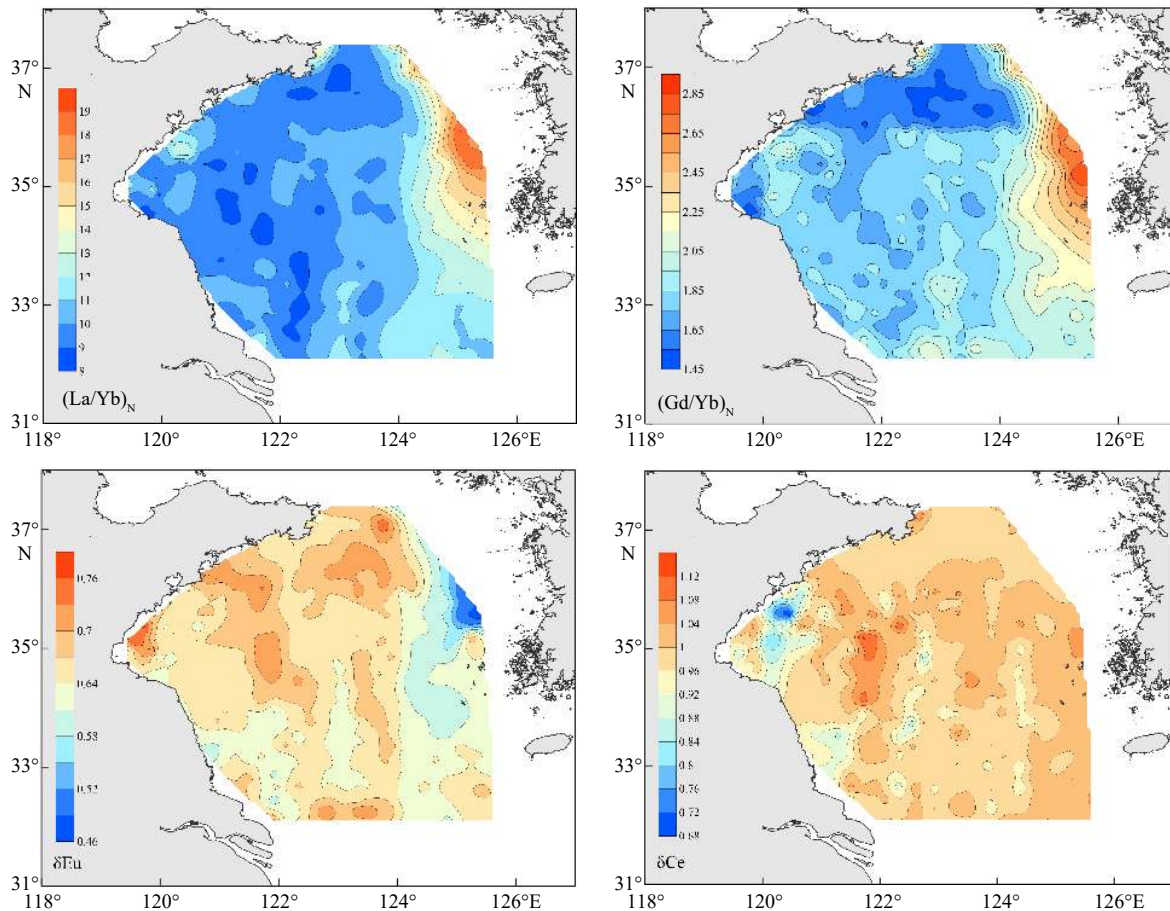


图 3 南黄海表层沉积物稀土元素参数 ($(La/Yb)_N$ 、 $(Gd/Yb)_N$ 、 δEu 、 δCe) 分布图

Fig.3 Distribution of rare earth element parameters ($(La/Yb)_N$, $(Gd/Yb)_N$, δEu and δCe) of surface sediments in South Yellow Sea

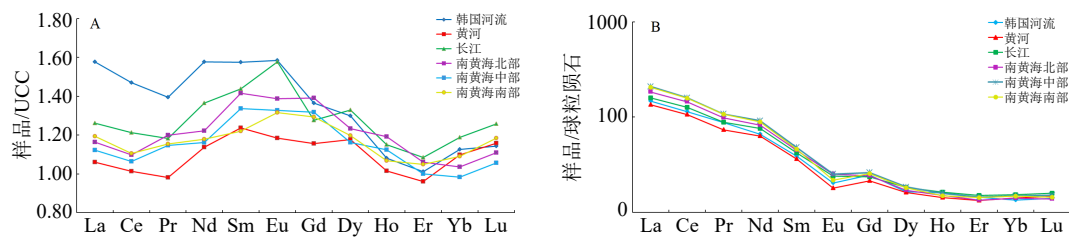


图 4 南黄海表层沉积物及河流稀土元素平均值与上陆壳 (UCC) (A) 和球粒陨石 (B) 标准化配分曲线

Fig.4 The UCC-normalized (A) and chondrite-normalized (B) patterns of rare earth element in the surface sediments from the South Yellow Sea

组成的重要因素。已有研究表明, 稀土元素倾向富集于黏土粒级 ($< 2 \mu m$) 沉积物中^[28], 并可以通过类质同相进入黏土矿物的晶格之中^[27], 或以钛氧化物、磷灰石等富稀土矿物形式出现在黏土相中^[35]。南黄海表层沉积物稀土含量亦符合元素地球化学的粒度控制规律, 与沉积物粒度组成密切相关, 从南黄海的粒径分布来看, 稀土元素富集区主要分布在中部区域(图 3), 其范围和南黄海中部泥质区的范围基本一致, 指示了粒度对沉积物稀土元素的控制作用^[18]。另外, 通过对南黄海表层沉积物平均粒

径(M_z)与稀土元素含量及相关参数之间的相关性进行分析发现, M_z 与 $\sum REE$ 、 $\sum LREE/\sum HREE$ 之间呈较为明显的正相关, 而 M_z 和 δEu 的相关系数非常低, 仅为 -0.113 (表 2)。Eu 是一种变价元素, 通常情况下以 Eu^{3+} 存在, 但是当环境温度足够高且处于还原条件下时部分 Eu 元素会从三价(Eu^{3+})还原成二价(Eu^{2+})^[36-37], 即出现 Eu 异常现象, 因此在表生沉积环境下, Eu 异常可以反映源区原岩的形成演化环境。南黄海陆架海域沉积物以长江、黄河等大型河流所携带的陆源物质为主, 在黄海暖流、黄海

表 2 南黄海稀土元素特征参数相关性分析

Table 2 Correlation analysis of rare earth element characteristic parameters in the South Yellow Sea

	ΣREE	ΣLREE/ΣHREE	δEu	δCe	(La/Yb) _N	(La/Sm) _N	(Sm/Nd) _N	(Gd/Yb) _N	Mz
ΣREE	1								
ΣLREE/ΣHREE	0.857**	1							
δEu	0.297**	-0.230**	1						
δCe	-0.564**	-0.252**	-0.619**	1					
(La/Yb) _N	-0.105	-0.236**	0.232**	0.129	1				
(La/Sm) _N	0.299**	-0.197**	0.961**	-0.655**	0.087	1			
(Sm/Nd) _N	0.330**	-0.010	0.639**	-0.316**	0.052	0.630**	1		
(Gd/Yb) _N	-0.417**	-0.250**	-0.315**	0.214**	0.031	-0.262**	-0.352**	1	
Mz	0.328**	0.404**	-0.113	-0.029	-0.039	-0.070	-0.012	-0.031	1

沿岸流等控制下入海碎屑颗粒物停留时间较短^[13,38],快速输运和沉积过程导致沉积物可以很好地保留原岩的地球化学特征,受后期改造影响较小。

3.2 稀土元素分区及物源判别

由南黄海稀土元素组成和分布规律分析可知,南黄海表层沉积物中稀土元素组成存在一定的空间差异性,其控制因素也较为复杂,稀土元素因其在表生环境中相对稳定的地球化学性质使其在随岩石风化、搬运、沉积后,可将源区的环境信息转移到新的混合源沉积物中,使其成为判别不同来源沉积物成为可能^[2-3,6]。大量的研究表明,稀土元素参数判别图 δEu-(La/Yb)_N、δEu-ΣREE、(La/Yb)_{UCC}-(Gd/Yb)_{UCC} 等可作为区分不同来源沉积物的有效指标,并成功应用于亚洲大陆边缘海域^[4,7]。从研究区稀土元素空间分布特征可以看出,南黄海中西部和东部空间差异性较为显著,为此本文以 (Gd/Yb)_N-(La/Yb)_N 和 δCe-(La/Yb)_N 为物源判别指标体系,将

南黄海表层沉积物稀土元素指标与周边主要入海河流沉积物稀土组成进行对比分析,结果显示,南黄海数据点覆盖了主要入海河流数据值的范围,指示了其多物源稀土组成特征(图 5)。然而,不同海域的稀土组成显示出明显的差异性,表明在不同物质来源的控制下,研究区稀土元素分馏差异明显,也进一步说明 (Gd/Yb)_N-(La/Yb)_N 和 δCe-(La/Yb)_N 等参数可以作为区分南黄海稀土元素来源的良好指标。根据南黄海海域表层沉积物和周边入海河流沉积物稀土元素指标之间的关系,推断南黄海北部物质主要来源于现代黄河物质,西南部海域物质主要来源于废黄河物质,南部沉积物则主要受控于长江,这 3 个主要源区在南黄海中西部呈现出明显的混合过程,导致该区域形成了一个混合来源的格局;而南黄海东部近岸一带,稀土元素指标与朝鲜半岛入海的汉江、锦江和荣山江入海物质基本一致,明显区分于中国大陆来源物质,指示了朝鲜半岛入海物质对南黄海东部近岸区的控制作用(图 5)。

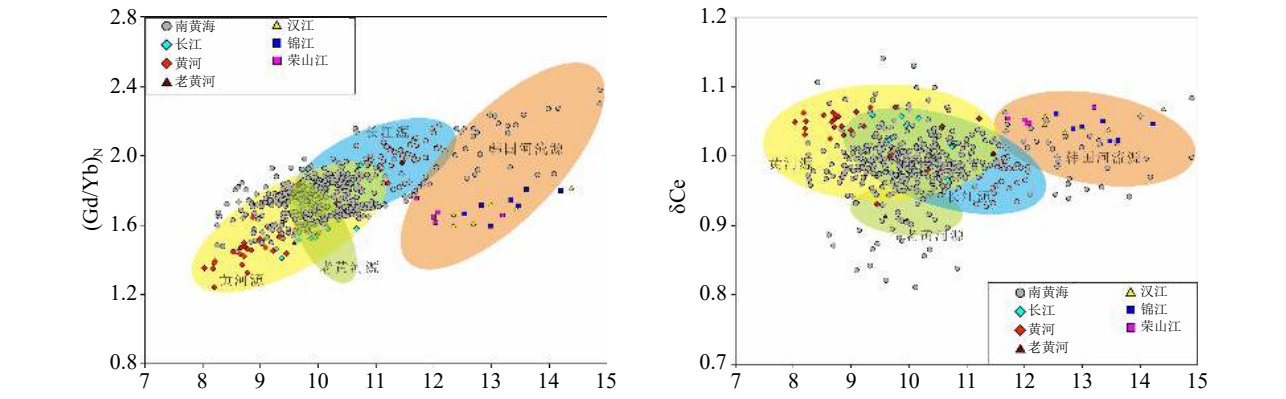


图 5 (Gd/Yb)_N-(La/Yb)_N 和 δCe-(La/Yb)_N 物源判别图

Fig.5 Sediment provenance discrimination diagram using (Gd/Yb)_N-(La/Yb)_N and δCe-(La/Yb)_N

从图 5 可以看出, 中国大陆来源物质和朝鲜半岛入海物质稀土组成的差异主要受 $(La/Yb)_N$ 的影响, 中国大陆来源沉积物 $(La/Yb)_N$ 值基本小于 11.7, 而韩国入海河流 $(La/Yb)_N$ 值则大于 11.7, 可见稀土元素比值 $(La/Yb)_N$ 可作为有效区分中韩两国入海物质的有效指标。为此, 我们以 $(La/Yb)_N = 11.7$ 为界, 可将整个南黄海划分为两个大区, 西部大部分海域为中国大陆来源, 而东部近岸区则为朝鲜半岛来源, 两者分界线基本接近于黄海海槽的位置(图 6)。

沉积物的输运受环流控制明显, 南黄海的流系主要由西侧的黄海沿岸流(山东半岛沿岸流和苏北沿岸流)和中部的海外暖流系统(黄海暖流), 以及冬季较强、南向的朝鲜沿岸流构成; 其间还伴随着稳定的黄海冷水团环流这种局地环流现象^[39-43]。南黄海大部分区域主要以中国的长江和黄河入海物质为主: 前者主要控制研究区的南部区域, 长江流域的高风化程度和适宜的温度加速了长江物源的输入量, 在长江冲淡水及季节性闽浙沿岸流的控制可向北输运, 细颗粒物甚至可以运至南黄海中部^[44],

该区域与长江物质主导的闽浙泥质区稀土组成特征类似^[45], 进一步证明了长江源物质对南黄海中部区域的控制作用; 而后者主要控制研究区的西北部区域, 现代黄河入海的高浓度水体随山东半岛沿岸流南下, 在苏北沿岸流的控制下可输运至南黄海中部; 据研究^[46], 南黄海中部区域再悬浮的海底细颗粒物, 以及大量浮游生物及其分泌物与细小的无机颗粒相结合形成的絮凝体促进了表层无机细颗粒向海底沉降, 最终在冷涡环流体系下形成南黄海中部泥质沉积体^[22, 47], 这个区域的稀土含量高至 $180 \mu\text{g/g}$ 。以韩国入海河流为代表的朝鲜半岛陆源侵蚀物质分布范围较小, 主要集中在南黄海的东部近岸区域。朝鲜半岛河流携带的大部分物质主要在河口和近岸一带沉积, 小部分物质被南北流向的朝鲜半岛沿岸流输运到南黄海的东南区域^[48-50]。因此韩国河流沉积物对南黄海物质贡献有限, 一方面受制于规模较小的人海河流物质通量^[51], 另一方面也受制于较弱的朝鲜半岛沿岸流, 无法将沉积物进行长距离输运。中国大陆以及朝鲜半岛各自独特的源区元素地球化学特征以及环流体系共同控制

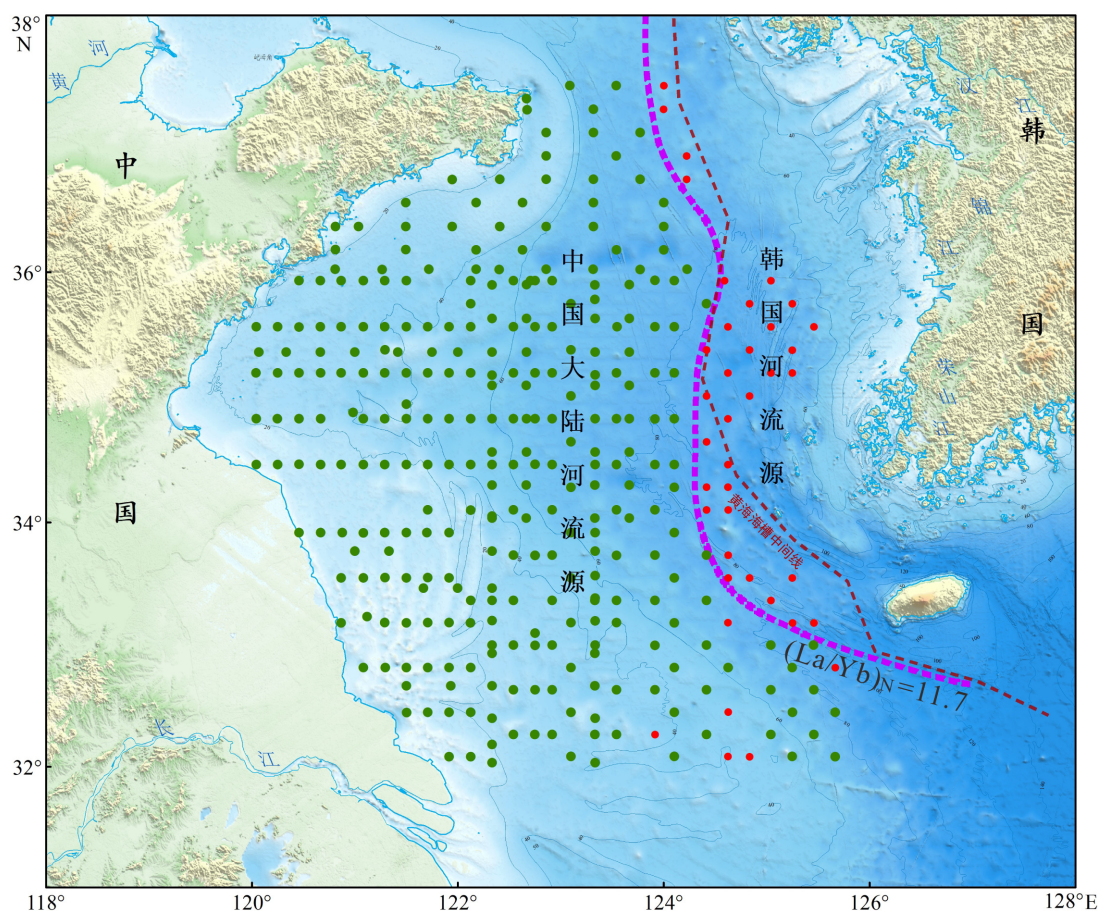


图 6 南黄海物质来源分区图

Fig.6 Sediment provenance discrimination of South Yellow Sea

了南黄海沉积物的分布格局。

4 结论

(1) 南黄海稀土元素含量为 $77.2 \sim 261.78 \mu\text{g/g}$, 平均值为 $166.46 \mu\text{g/g}$; 空间上分布规律显著, 高值区出现在南黄海中部泥质区, 含量基本在 $180 \mu\text{g/g}$ 以上, 低值区则呈斑块状出现在山东半岛沿岸一带, 含量多低于 $130 \mu\text{g/g}$ 。

(2) 稀土元素的球粒陨石配分模式显示出各海域较为一致的总体特征, 与中国大陆的稀土元素分配曲线类似, 指示了较强的陆源特征; 上陆壳配分模式显示韩国河流和中国大陆河流以及南黄海海域表层沉积物的曲线走势区别明显, 表现为韩国源沉积物的轻重稀土分异显著, 轻稀土含量较中国大陆源更高。通过对稀土元素各特征参数的相关性分析, 发现南黄海稀土元素组成与沉积物粒度呈较为明显正相关, 表明了沉积粒度、矿物组成对稀土元素含量的控制作用。

(3) $(\text{Gd/Yb})_{\text{N}}-(\text{La/Yb})_{\text{N}}$ 和 $\delta\text{Ce}-(\text{La/Yb})_{\text{N}}$ 判别结果表明, 南黄海海域的绝大部分物质来源于中国大陆的黄河、长江以及老黄河。综合稀土元素空间分布规律和南黄海主要入海河流沉积物稀土组成, 以 $(\text{La/Yb})_{\text{N}}=11.7$ 为界, 可将整个南黄海划分为两个大区, 中西部大部分海域为中国大陆来源, 而东部近岸区则为朝鲜半岛来源, 两者分界线基本接近于黄海海槽。

致谢: 感谢自然资源部国际合作司给予项目资助。

参考文献 (References)

- [1] McLennan S M. Rare earth elements in sedimentary rocks: Influence of provenance and sedimentary processes [J]. *Reviews in Mineralogy and Geochemistry*, 1989, 21 (1): 169-200.
- [2] Cullers R L. The controls on the major and trace element variation of shales, siltstones, and sandstones of Pennsylvanian-Permian age from uplifted continental blocks in Colorado to platform sediment in Kansas, USA [J]. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 1994, 58 (22): 4955-4972.
- [3] Munksgaard N C, Lim K, Parry D L. Rare earth elements as provenance indicators in North Australian estuarine and coastal marine sediments [J]. *Estuarine, Coastal and Shelf Science*, 2003, 57 (3): 399-409.
- [4] Liu S F, Zhang H, Zhu A M, et al. Distribution of rare earth elements in surface sediments of the western Gulf of Thailand: Constraints from sedimentology and mineralogy [J]. *Quaternary International*, 2019, 527: 52-63.
- [5] Murray R W, Buchholtzen Brink M R, Brumsack H J, et al. Rare earth elements in Japan Sea sediments and diagenetic behavior of Ce/Ce*: results from ODP Leg 127 [J]. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 1991, 55 (9): 2453-2466.
- [6] 杨守业, 李从先, Lee C B, 等. 黄海周边河流的稀土元素地球化学及沉积物物源示踪[J]. *科学通报*, 2003, 48 (11): 1135-1139. [YANG Shouye, LI Congxian, Lee C B, et al. REE geochemistry of suspended sediments from the rivers around the Yellow Sea and provenance indicators [J]. *Chinese Science Bulletin*, 2003, 48 (11): 1135-1139.]
- [7] 窦衍光, 李军, 李炎. 北部湾东部海域表层沉积物稀土元素组成及物源指示意义[J]. *地球化学*, 2012, 41 (2): 147-157. [DOU Yanguang, LI Jun, LI Yan. Rare earth element compositions and provenance implication of surface sediments in the eastern Beibu Gulf [J]. *Geochimica*, 2012, 41 (2): 147-157.]
- [8] Mi B B, Liu S F, Shi X F, et al. A high resolution record of rare earth element compositional changes from the mud deposit on the inner shelf of the East China Sea: Implications for paleoenvironmental changes [J]. *Quaternary International*, 2017, 447: 35-45.
- [9] Milliman J D, Meade R H. World-wide delivery of river sediment to the oceans [J]. *The Journal of Geology*, 1983, 91 (1): 1-21.
- [10] 程天文, 赵楚年. 我国主要河流入海径流量、输沙量及对沿岸的影响[J]. *海洋学报*, 1985, 7 (4): 460-471. [CHENG Tianwen, ZHAO Chunian. 1985. Runoff and sediment discharge into the sea of major rivers in China and their impact on the coast regions [J]. *Acta Oceanologica Sinica*, 1985, 7 (4): 460-471.]
- [11] 杨作升, 王海成, 乔淑卿. 黄河与长江入海沉积物中碳酸盐含量和矿物颗粒形态特征及影响因素[J]. *海洋与湖泊*, 2009, 40 (6): 674-681. [YANG Zuosheng, WANG Haicheng, QIAO Shuqing. Carbonate minerals in estuary sediments of the Changjiang (Yangtze River) and Huanghe (Yellow River): the content, morphology, and influential factors [J]. *Oceanologia et Limnologia Sinica*, 2009, 40 (6): 674-681.]
- [12] 秦蕴珊, 郑铁民. 黄东海地质[M]. 北京: 科学出版社, 1982. [QIN Yunshan, ZHENG Tiemin. *Geology of the Yellow Sea and East China Sea* [M]. Beijing: Science Press, 1982.]
- [13] 石学法, 刘升发, 乔淑卿, 等. 中国东部近海沉积物地球化学: 分布特征、控制因素与古气候记录[J]. *矿物岩石地球化学通报*, 2015, 34 (5): 885-894. [SHI Xuefa, LIU Shengfa, QIAO Shuqing, et al. Geochemical characteristics, controlling factor and record of paleoclimate in sediments from eastern China Seas [J]. *Bulletin of Mineralogy, Petrology and Geochemistry*, 2015, 34 (5): 885-894.]
- [14] Dou Y G, Yang S Y, Liu Z X, et al. Provenance discrimination of siliciclastic sediments in the middle Okinawa Trough since 30 ka: Constraints from rare earth element compositions [J]. *Marine Geology*, 2010, 275 (1-4): 212-220.
- [15] 密蓓蓓, 王中波, 仇晓华, 等. 中全新世以来冲绳海槽氧化还原环境重建及其气候效应[J]. *海洋地质与第四纪地质*, 2019, 39 (4): 107-115. [MI Beibei, WANG Zhongbo, QIU Xiaohua, et al. Reconstruction of the redox environment in Okinawa Trough and its climatic implications since mid-Holocene [J]. *Marine Geology & Quaternary Geology*, 2019, 39 (4): 107-115.]

- [16] Lim D I, Choi J Y, Jung H S, et al. Recent sediment accumulation and origin of shelf mud deposits in the Yellow and East China Seas [J]. *Progress in Oceanography*, 2007, 73 (2): 145-159.
- [17] Liu J, Saito Y, Wang H, et al. Sedimentary evolution of the Holocene subaqueous clinoform off the Shandong Peninsula in the Yellow Sea [J]. *Marine Geology*, 2007, 236 (3-4): 165-187.
- [18] 密蓓蓓, 张勇, 梅西, 等. 中国东部海域表层沉积物稀土元素赋存特征及物源探讨[J]. *中国地质*, 2020, 47 (5): 1530-1541. [MI Beibei, ZHANG Yong, MEI Xi, et al. The rare earth element content in surface sediments of coastal areas in eastern China's sea areas and an analysis of material sources [J]. *Geology in China*, 2020, 47 (5): 1530-1541.]
- [19] 胡邦琦, 杨作升, 赵美训, 等. 南黄海中部泥质区7200年以来东亚冬季风变化的沉积记录[J]. *中国科学:地球科学*, 2012, 55 (10): 1656-1668. [HU Bangqi, YANG Zuosheng, ZHAO Meixun, et al. Grain size records reveal variability of the East Asian Winter Monsoon since the Middle Holocene in the Central Yellow Sea mud area, China [J]. *Science China Earth Sciences*, 2012, 55 (10): 1656-1668.]
- [20] Lu J, Li A C, Zhang J, et al. Yangtze River-derived sediments in the southwestern South Yellow Sea: Provenance discrimination and seasonal transport mechanisms [J]. *Journal of Asian Earth Sciences*, 2019, 176: 353-367.
- [21] Jung H S, Lim D, Jeong D H, et al. Discrimination of sediment provenance in the Yellow Sea: Secondary grain-size effect and REE proxy [J]. *Journal of Asian Earth Sciences*, 2016, 123: 78-84.
- [22] Lim D, Jung H S, Choi J Y. REE partitioning in riverine sediments around the Yellow Sea and its importance in shelf sediment provenance [J]. *Marine Geology*, 2014, 357: 12-24.
- [23] Yang S Y, Jung H S, Lim D I, et al. A review on the provenance discrimination of sediments in the Yellow Sea [J]. *Earth-Science Reviews*, 2003, 63 (1-2): 93-120.
- [24] 朱赖民, 杜俊民, 张远辉, 等. 南黄海中部E2柱样沉积物来源的稀土元素及微量元素示踪[J]. *环境科学学报*, 2006, 26 (3): 495-500. [ZHU Laimin, DU Junmin, ZHANG Yuanhui, et al. Tracing the sediment source at E2 hole in the South Yellow Sea with rare earth element and trace element [J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 2006, 26 (3): 495-500.]
- [25] Xu Z K, Lim D, Choi J, et al. Rare earth elements in bottom sediments of major rivers around the Yellow Sea: Implications for sediment provenance [J]. *Geo-Marine Letters*, 2009, 29 (5): 291-300.
- [26] Yang S Y, Jung H S, Choi M S, et al. The rare earth element compositions of the Changjiang (Yangtze) and Huanghe (Yellow) river sediments [J]. *Earth and Planetary Science Letters*, 2002, 201 (2): 407-419.
- [27] 赵一阳, 鄢明才. 中国浅海沉积物地球化学[M]. 北京: 科学出版社, 1994. [ZHAO Yiyang, YAN Mingcai. *Geochemistry of Sediments of the China Shelf Sea*[M]. Beijing: Science Press, 1994.]
- [28] 王金土. 黄海表层沉积物稀土元素地球化学[J]. *地球化学*, 1990 (1): 44-53. [WANG Jintu. REE geochemistry of surficial sediments from the Yellow Sea of China [J]. *Geochimica*, 1990 (1): 44-53.]
- [29] 赵志根, 高良敏. δEu 、 δCe 计算方法的标准化问题[J]. 标准化报道, 1998, 19 (5): 23-25. [ZHAO Zhigen, GAO Liangmin. Discussion about standardization of methods to calculate δEu 、 δCe [J]. *Reporting of Standardization*, 1998, 19 (5): 23-25.]
- [30] 秦蕴珊, 赵一阳, 陈丽蓉, 等. 东海地质[M]. 北京: 科学出版社, 1987. [QIN Yunshan, ZHAO Yiyang, CHEN Lirong, et al. *Geology of the East China Sea*[M]. Beijing: Science Press, 1987.]
- [31] 蒋富清, 周晓静, 李安春, 等. δEu_N - ΣREEs 图解定量区分长江和黄河沉积物[J]. *中国科学 D 辑:地球科学*, 2009, 52 (2): 232-241. [JIANG Fuqing, ZHOU Xiaojing, LI Anchun, et al. Quantitatively distinguishing sediments from the Yangtze River and the Yellow River using δEu_N - ΣREEs plot [J]. *Science in China Series D:Earth Sciences*, 2009, 52 (2): 232-241.]
- [32] MacRae N D, Nesbitt H W, Kronberg B I. Development of a positive Eu anomaly during diagenesis [J]. *Earth and Planetary Science Letters*, 1992, 109 (3-4): 585-591.
- [33] 杨守业, 李从先. REE示踪沉积物物源研究进展[J]. *地球科学进展*, 1999, 14 (2): 164-167. [YANG Shouye, LI Congxian. Research progress in REE tracer for sediment source [J]. *Advances in Earth Science*, 1999, 14 (2): 164-167.]
- [34] 严杰, 高建华, 李军, 等. 鸭绿江河口及近岸地区稀土元素的物源指示意义[J]. *海洋地质与第四纪地质*, 2010, 30 (4): 95-103. [YAN Jie, GAO Jianhua, LI Jun, et al. Implications of REE for provenance in the Yalu estuary and its adjacent sea area [J]. *Marine Geology & Quaternary Geology*, 2010, 30 (4): 95-103.]
- [35] Caggianelli A, Fiore S, Mongelli G, et al. REE distribution in the clay fraction of pelites from the southern Apennines, Italy [J]. *Chemical Geology*, 1992, 99 (4): 253-263.
- [36] Cullers R L, Barrett T, Carlson R, et al. Rare-earth element and mineralogic changes in Holocene soil and stream sediment: a case study in the wet mountains, Colorado, U. S. A. [J]. *Chemical Geology*, 1987, 63 (3-4): 275-297.
- [37] 李俊, 弓振斌, 李云春, 等. 近岸和河口地区稀土元素地球化学研究进展[J]. *地球科学进展*, 2005, 20 (1): 64-73. [LI Jun, GONG Zhenbin, LI Yunchun, et al. Marine geochemistry approaches of rare earth elements in coastal and estuarial areas [J]. *Advances in Earth Science*, 2005, 20 (1): 64-73.]
- [38] 赵一阳, 李凤业, 秦朝阳, 等. 试论南黄海中部泥的物源及成因[J]. *地球化学*, 1991 (2): 112-117. [ZHAO Yiyang, LI Fengye, QIN Zhaoyang, et al. Source and genesis of mud in the central part of the South Yellow Sea in special reference to geochemical data [J]. *Geochimica*, 1991 (2): 112-117.]
- [39] 郭炳火, 黄振宗, 李培英, 等. 中国近海及邻近海域海洋环境[M]. 北京: 海洋出版社, 2004. [GUO Binghuo, HUANG Zhenzong, LI Peiying, et al. *Marine Environment in the Chinese Offshore Waters and Adjacent Sea Areas*[M]. Beijing: Ocean Press, 2004.]
- [40] 苏纪兰. 中国近海的环流动力机制研究[J]. *海洋学报*, 2001, 23 (4): 1-16. [SU Jilan. A review of circulation dynamics of the coastal oceans near China [J]. *Acta Oceanologica Sinica*, 2001, 23 (4): 1-16.]
- [41] Guan B X. Patterns and structures of the currents in Bohai, Huanghai and East China Seas[J]. Springer Netherlands, 1994: 17-26.
- [42] 袁萍, 王厚杰, 毕乃双, 等. 中国东部陆架海峰面的时空变化及其对细颗粒沉积物输运和沉积的影响[J]. *海洋地质与第四纪地质*, 2020, 40 (3): 25-42. [YUAN Ping, WANG Houjie, BI Naishuang, et al.

- Temporal and spatial variations of oceanic fronts and their impact on transportation and deposition of fine-grained sediments in the East China Shelf Seas [J]. *Marine Geology & Quaternary Geology*, 2020, 40 (3): 25-42.]
- [43] 梅西, 李学杰, 密蓓蓓, 等. 中国海域表层沉积物分布规律及沉积分异模式[J]. 中国地质, 2020, 47 (5): 1447-1462. [MEI Xi, LI Xuejie, MI Beibei, et al. Distribution regularity and sedimentary differentiation patterns of China seas surface sediments [J]. *Geology in China*, 2020, 47 (5): 1447-1462.]
- [44] 蓝先洪, 王红霞, 张志珣, 等. 南黄海表层沉积物稀土元素分布与物源关系[J]. 中国稀土学报, 2006, 24 (6): 745-749. [LAN Xianhong, WANG Hongxia, ZHANG Zhixun, et al. Distributions of rare earth elements and provenance relations in the surface sediments of the South Yellow Sea [J]. *Journal of the Chinese Rare Earth Society*, 2006, 24 (6): 745-749.]
- [45] 朱爱美, 刘季花, 张辉, 等. 东海内陆架泥质区表层沉积物稀土元素的分布特征[J]. 海洋地质与第四纪地质, 2012, 32 (1): 1-10. [ZHU Aimei, LIU Jihua, ZHANG Hui, et al. Distribution pattern of REEs in the inner-shelf mud area of East China Sea [J]. *Marine Geology & Quaternary Geology*, 2012, 32 (1): 1-10.]
- [46] 李文建, 王珍岩, 黄海军. 夏季南黄海悬浮体粒度分布及其影响因素[J]. 海洋地质与第四纪地质, 2020, 40 (6): 49-60. [LI Wenjian, WANG Zhenyan, HUANG Haijun. Grain size distribution pattern and influencing factors of suspended matters in the Southern Yellow Sea during summer season [J]. *Marine Geology & Quaternary Geology*, 2020, 40 (6): 49-60.]
- [47] 刘健, 秦华峰, 孔祥淮, 等. 黄东海陆架及朝鲜海峡泥质沉积物的磁学特征比较研究[J]. 第四纪研究, 2007, 27 (6): 1031-1039. [LIU Jian, QIN Huafeng, KONG Xianghuai, et al. Comparative researches on the magnetic properties of muddy sediments from the Yellow Sea and East China Sea shelves and the Korea strait [J]. *Quaternary Sciences*, 2007, 27 (6): 1031-1039.]
- [48] Chough S K, Lee H J, Yoon S H. Marine Geology of Korean Seas[M]. 2nd ed. Amsterdam: Elsevier Science B. V., 2000.
- [49] Lee H J. A review on the Holocene evolution of an inner-shelf mud deposit in the southeastern Yellow Sea: the Huksan Mud Belt [J]. *Ocean Science Journal*, 2015, 50 (4): 615-621.
- [50] Yang S Y, Youn J S. Geochemical compositions and provenance discrimination of the central south Yellow Sea sediments [J]. *Marine Geology*, 2007, 243 (1-4): 229-241.
- [51] Schubel J R, Shen H T, Park M J. Comparative analysis of estuaries bordering the Yellow Sea[M]//Wolfe D A. Estuarine Variability. New York: Academic Press, 1986: 43-62.