



北极东西伯利亚陆架表层沉积物汞的分布特征及其意义

张振虎, 姚政权, 胡利民, Anatolii Astakhov, 邹建军, 刘焱光, 王昆山, 杨刚, 陈志华, 夏逸, 李秋玲, 冯晗, 石学法

Distribution characteristics and implications of mercury in the surface sediments of the East Siberian Arctic Shelf

ZHANG Zhenhu, YAO Zhengquan, HU Limin, Anatolii Astakhov, ZOU Jianjun, LIU Yanguang, WANG Kunshan, YANG Gang, CHEN Zhihua, XIA Yi, LI Qiuling, FENG Han, and SHI Xuefa

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.16562/j.cnki.0256-1492.2022071801>

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

东海南部陆架水体2011年夏季温盐结构及其对台湾暖流和黑潮入侵的指示

The summer thermohaline structure of 2011 of the southern East China Sea shelf and its implications for the intrusion of Taiwan Warm Current and Kuroshio Current
海洋地质与第四纪地质. 2021, 41(5): 151

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

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

基于ERT技术的含水合物沉积物可视化探测模拟实验

An experimental study on visual detection of hydrate-bearing sediments based on ERT
海洋地质与第四纪地质. 2021, 41(6): 206

东海陆坡—冲绳海槽水体剖面地球化学特征与指示意义

Geochemistry of the water profiles at the slope of East China Sea and Okinawa Trough and its implications
海洋地质与第四纪地质. 2021, 41(6): 102



关注微信公众号，获得更多资讯信息

张振虎, 姚政权, 胡利民, 等. 北极东西伯利亚陆架表层沉积物汞的分布特征及其意义 [J]. 海洋地质与第四纪地质, 2023, 43(1): 49-60.
ZHANG Zhenhu, YAO Zhengquan, HU Limin, et al. Distribution characteristics and implications of mercury in the surface sediments of the East Siberian Arctic Shelf [J]. Marine Geology & Quaternary Geology, 2023, 43(1): 49-60.

北极东西伯利亚陆架表层沉积物汞的分布特征及其意义

张振虎¹, 姚政权^{1,2}, 胡利民^{2,3}, Anatolii Astakhov⁴, 邹建军^{1,2}, 刘焱光^{1,2}, 王昆山^{1,2}, 杨刚^{1,2}, 陈志华^{1,2}, 夏逸¹, 李秋玲¹, 冯晗¹, 石学法^{1,2}

1. 自然资源部第一海洋研究所海洋地质与成矿作用重点实验室, 青岛 266061
2. 青岛海洋科学与技术国家实验室海洋地质过程与环境功能实验室, 青岛 266237
3. 中国海洋大学海洋地球科学学院海底科学与探测技术教育部重点实验室, 青岛 266100
4. 俄罗斯科学院远东分院太平洋海洋研究所, 符拉迪沃斯托克(海参崴) 690041

摘要: 全球变暖导致北极地区冻土退化、海冰消融、河流径流增加及海洋动力发生变化, 这些因素连同日益增加的人类活动都影响北冰洋中汞的输入和运移。对取自北极东西伯利亚陆架的 87 个表层沉积物进行了汞含量测试与分析, 发现沉积物中汞含量的分布有显著的空间差异性, 可分为近岸低汞区 (33 ng/g)、陆架中部汞含量中等区 (58 ng/g) 和北部深水高汞区 (84 ng/g)。总体来看, 从近岸向外海, 汞含量随水深的增大而升高。结合沉积物粒度、有机碳和比表面积等指标, 发现东西伯利亚陆架沉积物中黏土含量与汞含量呈现正相关, 显示了沉积物粒度对汞分布的控制作用。近岸由于受河流输入、海岸侵蚀和环流分选等因素的影响, 沉积物粒径较粗, 导致汞含量较低, 而北部陆架深水区的细粒沉积物则吸附了更多的汞。在楚科奇海和拉普捷夫海, 沉积汞含量和总有机碳含量有较强的正相关性, 而在东西伯利亚海相关性较弱, 这可能是由于东西伯利亚海的沉积有机碳来源相对更为复杂。基于沉积汞的富集因子指标, 我们认为北极东西伯利亚陆架沉积汞的污染水平整体较低, 受人类活动的影响相对较弱。

关键词: 表层沉积物; 汞含量; 污染水平; 北极东西伯利亚陆架

中图分类号: P736.2

文献标识码: A

DOI: 10.16562/j.cnki.0256-1492.2022071801

Distribution characteristics and implications of mercury in the surface sediments of the East Siberian Arctic Shelf

ZHANG Zhenhu¹, YAO Zhengquan^{1,2}, HU Limin^{2,3}, Anatolii Astakhov⁴, ZOU Jianjun^{1,2}, LIU Yanguang^{1,2}, WANG Kunshan^{1,2}, YANG Gang^{1,2}, CHEN Zhihua^{1,2}, XIA Yi¹, LI Qiuling¹, FENG Han¹, SHI Xuefa^{1,2}

1. Key laboratory of Marine Geology and Metallogeny, First Institute of Oceanography, Ministry of Natural Resources, Qingdao 266061, China

2. Laboratory for Marine Geology, Pilot National Oceanography Laboratory for Marine Science and Technology, Qingdao 266237, China

3. College of Marine Geosciences, Key Laboratory of Submarine Geosciences and Prospecting Technology, Ocean University of China, Qingdao 266100, China

4. V. I. Il'ichev Pacific Oceanological Institute, Far Eastern Branch of Russian Academy of Sciences, Vladivostok 690041, Russia

Abstract: Global warming is leading to permafrost degradation, sea-ice melt, increased river runoff, and changes in ocean dynamics in the Arctic region. These factors, plus the increasing human activities, affects the input and transport of mercury in the Arctic Ocean. We analyzed the mercury content in 87 surface sediments (0~2 cm) sampled in the East Siberian Arctic Shelf in the Chukchi Sea, East Siberian Sea, and Laptev Sea during three Sino-Russian Arctic joint expeditions in 2016, 2018, and 2020 at water depth of 9~2546 m. Results show a significant spatial variability in mercury concentration, which can be divided into the nearshore low-mercury zones (33 ng/g), the middle shelf medium-mercury zone (58 ng/g), and the northern deep water high-mercury zone (84 ng/g). In general, the mercury concentration tended to increase with water depth increasing from nearshore toward offshore. Analyses of sediment grain size, total organic carbon, and specific surface area of sediments show that the mercury concentration was positively correlated with the clay content in the surface sediments, indicating the

资助项目: 国家自然科学基金重点项目“末次冰消期以来北极东西伯利亚陆架对快速气候变化的响应”(42130412)

作者简介: 张振虎(1998—), 男, 硕士研究生, 从事海洋沉积与古环境研究, E-mail: zhangzhenhu98@126.com

通讯作者: 姚政权(1980—), 男, 研究员, 主要从事海洋沉积与古环境、古气候研究, E-mail: yaozq@fio.org.cn

收稿日期: 2022-07-18; 改回日期: 2022-09-14. 文凤英编辑

controlling role of sediment grain size in the distribution of mercury. The coarse sediments in the nearshore showed lower mercury concentration due to the influence of river input, coastal erosion, and hydrodynamic sorting, while the fine-grained sediments in the northern shelf are prone to absorb more mercury. There was a strong positive correlation between mercury and total organic carbon in the Chukchi and Laptev Seas, while the correlation was weaker in the East Siberian Sea due probably to more-complexed source of total organic carbon. The enrichment factor of mercury manifests that the overall level of contamination of sedimentary mercury is low at present in the East Siberian Arctic Shelf area, showing relatively weak influence of human activities.

Key words: surface sediments; mercury concentrations; pollution levels; Eastern Siberian Arctic Shelf

汞是一种有毒重金属元素,在大气中停留的时间较长(通常可达6~12个月),因此可以被远距离输运^[1],并在远离其释放源的地方沉积、保存^[2]。煤炭燃烧、矿业开采等人类活动会产生大量的汞^[3],因此环境中汞的含量是评估人为污染程度的一个重要指标^[4]。此外,沉积物中的汞还可以作为指示海洋生产力^[5-6]、火山喷发事件^[7-9]及示踪洋流^[10-11]的有效指标。汞的生物地球化学循环会受到气候和环境变化的影响,在全球变暖背景下,海洋动力环境、河流径流量和初级生产力的变化都会对环境中的汞产生影响^[12]。北极地区温度升高、海冰减少有助于加剧海洋汞的逃逸^[12],冻土融化、径流增加使河流向海洋输运了大量的汞^[13-14],无冰水域初级生产力的提高会导致生物汞含量增加,也会加剧生态系统中甲基汞的产生及其在生物中的积累^[15]。政府间气候变化专门委员会第六次评估报告(IPCC 6)显示,在1850—2020年,全球近地表平均气温大约升高了0.99℃,而北极地区气候变化的速度和幅度是全球平均水平的两倍之多^[16],因此全球变暖导致的一系列环境和气候变化对汞循环的影响在北极地区可能最为显著^[17]。

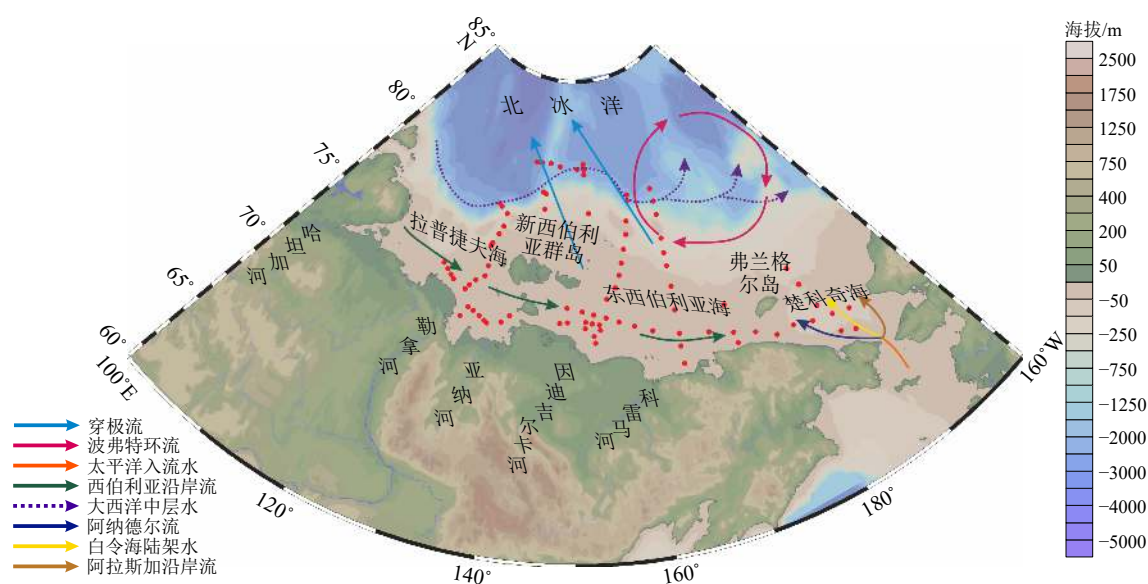
尽管北极地区汞的本地来源有限,但目前在北冰洋生物群落中观测到了较高的汞含量,这主要是由于大气和河流输送到海洋的无机汞的增加导致的^[18-19]。自20世纪90年代发现大气汞消耗事件以来,有学者认为北极可能是中纬度地区排放人为汞的重要的汇^[20],并开始致力于研究北极地区汞的大气动力学^[21]。早期研究认为,北冰洋中大部分汞来源于大气^[20]。基于模拟研究,Fisher等^[19]对这一观点提出了质疑,认为北极河流向北冰洋输运了更多的汞。随后Zhang等^[22]也提出北极河流是北冰洋中汞的重要来源。但上述模拟结果还需要监测数据和地质记录来进行对比验证。为了弄清北极地区汞的循环过程,近几年开始有学者对北极沉积物中汞含量的变化进行研究。Kim等^[23]发现西北冰洋过去200年间沉积物总汞含量变化不大,而且人类活动来源的汞含量较少;Aksentov等^[4]初步估算

了东西伯利亚海不同沉积环境中汞通量的变化。综上,尽管前人在北冰洋进行了有关汞的研究,但北极东西伯利亚陆架已有的数据资料仍相对较少,目前对整个北极东西伯利亚陆架沉积汞的来源、分布及其控制机制还不清楚。本文分析了北极东西伯利亚陆架(包括拉普捷夫海、东西伯利亚海和楚科奇海)表层沉积物的汞含量,结合沉积物粒度、总有机碳和比表面积等指标,揭示了沉积物中汞的分布规律与控制因素,初步评估了北极东西伯利亚陆架沉积汞的污染水平。

1 研究区概况

北极东西伯利亚陆架是世界上最大的陆架^[24],主要包括东西伯利亚海、拉普捷夫海和楚科奇海陆架(图1)。东西伯利亚海南部是西伯利亚,北部有马卡洛夫海盆和门捷列夫海脊,东面以弗兰格尔岛和楚科奇海相隔,西面有新西伯利亚群岛,并通过德米特里-拉普捷夫海峡和桑尼科夫海峡与拉普捷夫海相连(图1)。拉普捷夫海是北极海冰的主要来源地之一,被称为北极“冰工厂”。东西伯利亚海是世界上最大的陆架海,海陆相互作用强烈,海底冻土广泛发育^[25-26]。楚科奇海通过白令海峡连接北冰洋和太平洋,对海平面波动和气候变化等响应敏感^[27]。

北极陆架的河流径流量高达3300 km³/a,占全球河流径流输入量的10%^[28-29]。东西伯利亚陆架周边自东向西分布着科雷马河、因迪吉尔卡河、亚纳河、勒拿河以及哈坦加河等径流量较大的河流(表1)。哈坦加河、勒拿河和亚纳河汇入拉普捷夫海,其中勒拿河是流入东西伯利亚陆架最大的河流,流域面积约2460×10³ km²,年均径流量为532 km³,输沙量达20.7×10⁶ t,汞通量约6591 kg/a,流域内岩性复杂,主要以页岩和变质岩为主^[30]。因迪吉尔卡河和科雷马河汇入东西伯利亚海,其中因迪吉尔卡河流域面积约329.4×10³ km²,年均径流量为54.2 km³,输沙量达11.1×10⁶ t,流域内岩性以页岩为主;科雷马河的流域面积约650×10³ km²,年均径流量为

图 1 北极东西伯利亚陆架概况^[29]及取样站位分布图Fig. 1 Map of the East Siberian Arctic Shelf^[29] and sampling locations表 1 东西伯利亚及周边区域的主要河流特征^[33-37]Table 1 Characteristics of major rivers in eastern Siberia and surrounding areas^[33-37]

河流	流域面积 (10^6 km^2)	径流量 (km^3/a)	输沙量 (10^6 t/a)	汞通量 (kg/a)
鄂毕河	2990	402.0	15.5	2421
叶尼塞河	2540	580.0	4.7	3642
哈坦加河	437.2	85.3	1.7	-
勒拿河	2460	532.0	20.7	6591
亚纳河	224	31.9	4.0	-
因迪吉尔卡河	329.4	54.2	11.1	-
科雷马河	650	122.0	10.1	1107

122 km^3 , 输沙量达 $10.1 \times 10^6 \text{ t}$, 汞通量约 1107 kg/a , 流域内岩性以砂岩为主^[31]。虽然楚科奇海缺少大河的汇入, 但育空河输入白令海的物质会随着白令海入流水进入楚科奇海从而影响沉积物组成^[32]。这些河流将淡水和沉积物输运至河口和陆架区, 其中携带着大量的汞, 经洋流和海冰进而输运至北冰洋^[33-36]。

北冰洋及周边陆架区主要由波弗特环流和穿极流两个表层洋流系统控制(图 1)。加拿大海盆表层水体受风力驱动形成顺时针流向的波弗特环流, 会将来自加拿大北部和波弗特海地区的物质运送至西北冰洋地区。穿极流由拉普捷夫海陆架东部出发穿越北极点并将海冰从西伯利亚大陆架输运到北冰洋中部直至弗拉姆海峡^[29]。除了表层环流以外, 温暖低盐的太平洋入流水经白令海峡流入楚

科奇海后自西向东分成三支继续向北扩散, 分别是: ① 主要影响东西伯利亚海和楚科奇海陆架的阿纳德尔流; ② 流经哈纳浅滩的白令海陆架水, 会带来大量的热量并促进楚科奇海海冰的融化; ③ 沿北美陆架流动的阿拉斯加沿岸流, 最终汇入波弗特环流^[30]。西伯利亚沿岸流源于拉普捷夫海, 自西向东流经东西伯利亚海后到达楚科奇海, 对欧亚大陆陆源碎屑物质向西北冰洋的输运起了重要作用。此外, 沿岸流在楚科奇海转向北冰洋中心海区, 将寒冷的西伯利亚边缘海水体与温暖低盐的白令海入流水体分隔开^[38]。

2 材料与方法

本研究基于 2016、2018 和 2020 年三次中俄北极联合考察航次, 在楚科奇海、东西伯利亚海和拉普捷夫海取得了 87 个表层 $0 \sim 2 \text{ cm}$ 的沉积物样品(图 1), 取样站位水深为 $9 \sim 2546 \text{ m}$, 样品现场采集后即在于 4°C 条件下保存。

我们测试了 87 个沉积物的汞含量, 样品前处理方法参考李日升等^[39]。沉积物样品进行冷冻干燥后, 用玛瑙研钵研磨至 200 目, 准确称取 250 mg 样品于比色管中, 加入 10 mL 王水, 水浴加热 1 h , 取出并冷却至室温, 将王水稀释至 25 mL , 取上层清液进行上机测试。测试仪器为北京吉天仪器有限公司生产的 AFS-930 双道原子荧光光度计, 检出限小于 2 ng/g 。在测试过程中应用标准样品 GBW07343, GSD-6 和 GSD-5a 作为质量监控样, 三种质量监控

样品的回收率分别为 86%、107% 和 103%，并且每隔 10 个样品做一个重复样，样品重复测量的标准偏差小于 1%。所有样品测试工作在自然资源部海洋地质与成矿作用重点实验室完成。

3 结果

3.1 表层沉积汞的含量变化与分布特征

北极东西伯利亚陆架表层沉积汞的含量为 4~119 ng/g，平均值为 68 ng/g，其分布呈现明显的空间差异性(图 2)。表层沉积汞含量的低值主要集中在拉普捷夫海、东西伯利亚海和楚科奇海的近岸区，高值出现在陆架北部深水区(水深为 1136 ~ 2546 m)。总体上，由近岸向远海方向沉积汞含量呈现逐渐增大的趋势。

根据北极东西伯利亚陆架沉积汞含量的分布特征，将研究区划分为 3 个区域(图 2, 表 2)：近岸低汞区(I 区)、陆架中部汞含量中等区(II 区)和北部深水高汞区(III 区)。近岸低汞区(I 区)平均水深为 26 m，沉积汞含量为 4~50 ng/g，平均含量为 33 ng/g。陆架中部汞含量中等区(II 区)大部分位于东西伯利亚陆架中部，部分处于勒拿河、亚纳河入海处和靠近白令海峡的楚科奇海域，这些海域平均水深 89 m，沉积汞含量为 40~114 ng/g，平均含量为 58 ng/g，仅在东西伯利亚海中部一个站位处发现了异常高值(114 ng/g)。北部深水高汞区平均水深达 1 801 m，沉积汞含量为 69~119 ng/g，平均含量

为 84 ng/g。

3.2 表层沉积汞的污染程度

富集因子(enrichment factor, EF)是评估沉积物重金属污染程度的重要参数，是区分人为因素和自然因素导致沉积物中重金属富集的简单方法，沉积汞富集因子的计算公式如下：

$$EF_{Hg} = ([Hg]/[Al])_{\text{样品}} / ([Hg]/[Al])_{\text{背景}}$$

上式中，[Hg]_{样品}和 [Al]_{样品}分别表示沉积物样品中汞和铝元素的含量，[Al]_{背景}和 [Hg]_{背景}分别表示铝和汞元素在研究区域的地球化学背景值。本文在计算中使用上地壳汞、铝元素平均含量作为背景值^[40]，沉积物样品的铝含量数据参考 Sattarova 等^[41]。EF 值在 0.5~1.5 之间表示沉积物中该元素没有异常富集，若 EF 值大于 1.5 则表示由于人类活动或其他过程造成了该元素的相对富集^[42]。

本文计算了北极东西伯利亚陆架表层沉积物中汞元素的富集因子(图 3)，发现除了在东西伯利亚海中部的一个表层沉积物 EF 值(1.9)较大外，其他样品的 EF 值为 0.1~1.4，平均值为 0.8，由此我们

表 2 北极东西伯利亚陆架表层沉积汞含量分区
Table 2 Regional-specific Hg concentrations in the surface sediments of the East Siberian Arctic Shelf

区域	平均水深/m	汞含量/(ng/g)	汞含量平均值/(ng/g)	站位数
I 区	26	4~50	33	34
II 区	89	40~114	58	38
III 区	1801	69~119	84	15

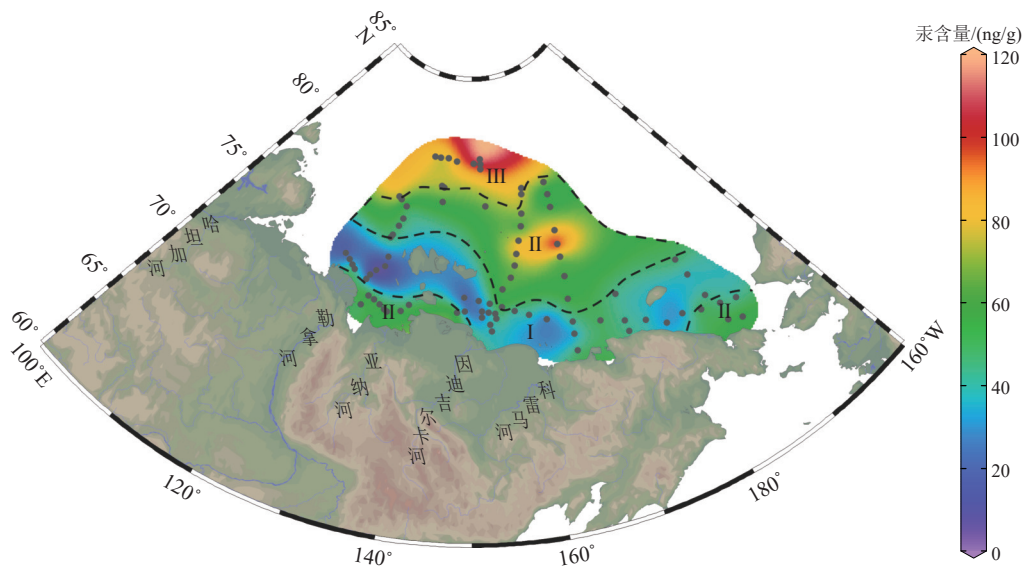


图 2 北极东西伯利亚陆架表层沉积汞的分布特征

Fig.2 Spatial distribution of mercury in the surface sediments of the East Siberian Arctic Shelf

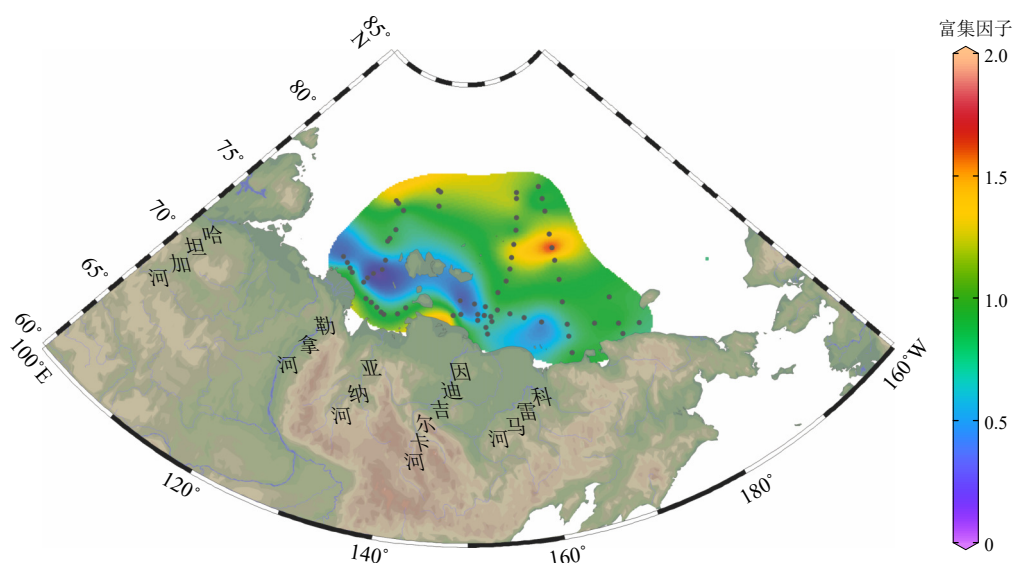


图 3 北极东西伯利亚陆架表层沉积物汞的富集因子分布特征

Fig.3 Distribution of enrichment factor of mercury in the surface sediments of the East Siberian Arctic Shelf

认为目前北极东西伯利亚陆架表层沉积汞污染程度较低, 受人类活动的影响较弱。

4 讨论

4.1 东西伯利亚陆架表层沉积汞分布的影响因素

沉积物中汞含量除受到不同来源的输入量的影响外, 还与沉积物的物理性质密切相关^[43]。本文结合沉积物粒度、比表面积和总有机碳指标, 来探讨导致北极东西伯利亚陆架表层沉积汞空间分布差异的因素。

一般来说, 沉积物中元素大都具有“粒度效应”, 即沉积物的粒度组成对大多数元素的含量有着重要的影响^[44]。北极东西伯利亚陆架表层沉积物粒度结果显示, 沉积物组分以粉砂为主, 其次是黏土, 砂的含量最低^[45]。砂主要分布在新西伯利亚群岛西南侧, 科雷马河入海处和弗兰格尔岛附近; 粉砂主要分布在楚科奇海, 因迪吉尔卡河口和拉普捷夫海东北部; 黏土主要分布在北部深水区。从近岸河口到北部深水区平均粒径呈逐渐变细的趋势(图 4)^[45]。北极东西伯利亚陆架沉积汞含量和粒度具有相似的分布规律, 为了进一步考察沉积物粒度与汞的关系, 我们对沉积汞含量和粒度组分进行了线性拟合分析(图 5), 发现沉积汞含量与平均粒径有较强的相关性($r=0.70$, $P<0.01$), 与黏土含量呈较强的正相关($r=0.70$, $P<0.01$), 与粉砂含量呈较弱的正相关($r=0.43$, $P<0.01$), 而与砂含量呈较强的负相关($r=-0.62$, $P<0.01$)。研究发现细颗粒

物质具有较大的比表面积和表面能, 有利于与更多重金属元素直接接触, 对重金属有很强的吸附性^[46-47]。从北极东西伯利亚陆架表层沉积物比表面积的空间分布可以发现, 比表面积与平均粒径有着相似的变化规律, 且沉积汞含量与比表面积表现为正相关关系(图 6)。这些结果表明, 北极东西伯利亚陆架沉积物中的汞主要吸附在细粒级组分中, 沉积物粒度对沉积汞的分布有一定的控制作用。

除粒度的影响外, 有机质可以在沉积物表面为汞提供更多的结合位点, 从而有利于汞的吸附, 因此有机碳含量的变化也可能影响沉积汞的分布^[43]。东西伯利亚陆架表层沉积物 TOC 的分布在空间上有着明显的差异^[48-49], 在勒拿河入海处、东西伯利亚海东部以及楚科奇海, 表层沉积物中 TOC 含量相对较高; 而在新西伯利亚群岛西南侧、科雷马河入海处和东西伯利亚海西部, TOC 含量相对较低; 由近岸向深海方向, TOC 含量没有表现出与沉积汞相似的变化趋势(图 7)。

东西伯利亚陆架表层沉积物总有机碳含量和沉积汞含量的线性拟合分析进一步表明两者没有明显的相关性(图 8a)。但是, 当我们对东西伯利亚陆架不同海域的总有机碳和沉积汞含量进行相关性分析时(图 8b-d), 发现在拉普捷夫海和楚科奇海总有机碳与沉积汞含量之间有较强的正相关(r 分别为 0.69 和 0.92, P 均小于 0.01), 而在东西伯利亚海, 总有机碳与沉积汞之间没有显著的相关性($r=0.29$, $P>0.01$), 表明北极东西伯利亚陆架总有机碳和沉积汞之间的关系有明显的区域性特征。由于楚科奇海没有大河的直接输入, 沉积物以海岸

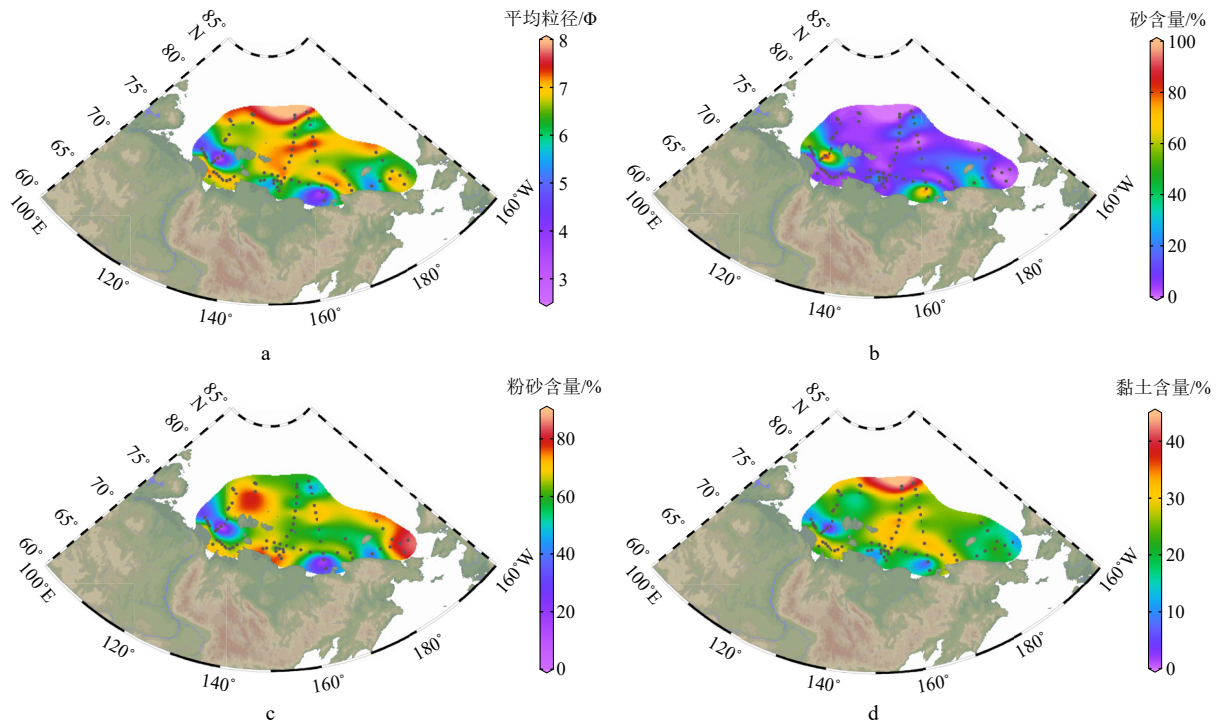


图4 北极东西伯利亚陆架表层沉积物粒度分布特征

粒度数据引自文献 [45,48]。

Fig.4 Grain-size distribution in the surface sediments of the East Siberian Arctic Shelf

Grain-size data are cited from references [45,48].

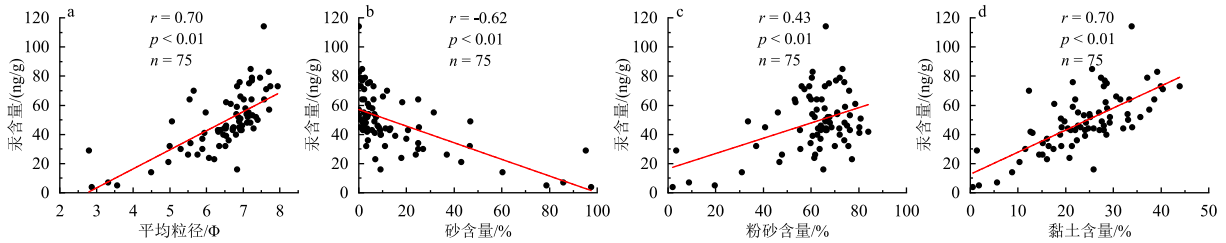


图5 北极东西伯利亚陆架表层沉积物各粒级组分与沉积汞含量的相关性

粒度数据引自文献 [45,48]。

Fig.5 Relationship of sedimentary mercury concentration and grain size in the surface sediments of the East Siberian Arctic Shelf

Grain-size data are cited from references [45,48].

侵蚀和洋流输入为主,受温暖、高盐的太平洋入流水的影响,浮游植物勃发,有机质含量高且稳定碳同位素($\delta^{13}C$)及C/N值等指标显示出典型的海洋浮游植物特征^[49,51],表明有机质以海洋自生来源为主。正是由于楚科奇海有机质来源相对稳定且主要以海源输入为主,所以总有机碳含量与沉积汞含量间的相关性较强($r=0.92, P<0.01$)。拉普捷夫海总有机碳含量整体表现为近岸高、远岸低的分布特征,表明该区域表层沉积物整体受到陆源和海源两个端元的贡献,河口沿岸区域受陆源影响强烈,随着远离海岸,海源有机质的供给更加明显^[25,48,52]。相对于楚科奇海,拉普捷夫海受陆源输入的影响更加

明显,有机质来源更复杂,可能造成了该区域有机碳含量和沉积汞含量间相关系数的降低($r=0.69, P<0.01$)。东西伯利亚海东、西两侧的沉积环境和物质来源有较大区别,在河流和海岸侵蚀作用下,东西伯利亚海西部有机碳以陆源输入为主^[49,53-54],而东西伯利亚海东部由于受到温暖、高盐的太平洋入流水影响,有机碳以海洋自生来源为主^[49,53],而且东西伯利亚海是北极海冰变化最显著的地区之一,海冰消退及陆源输入的增加会改变初级生产力结构,促进“生物泵”运转,引起海源有机碳的变化;另一方面,陆源物质可随海冰被搬运到陆架和深水区,海冰的变化也影响着陆源有机碳的输入及其长距

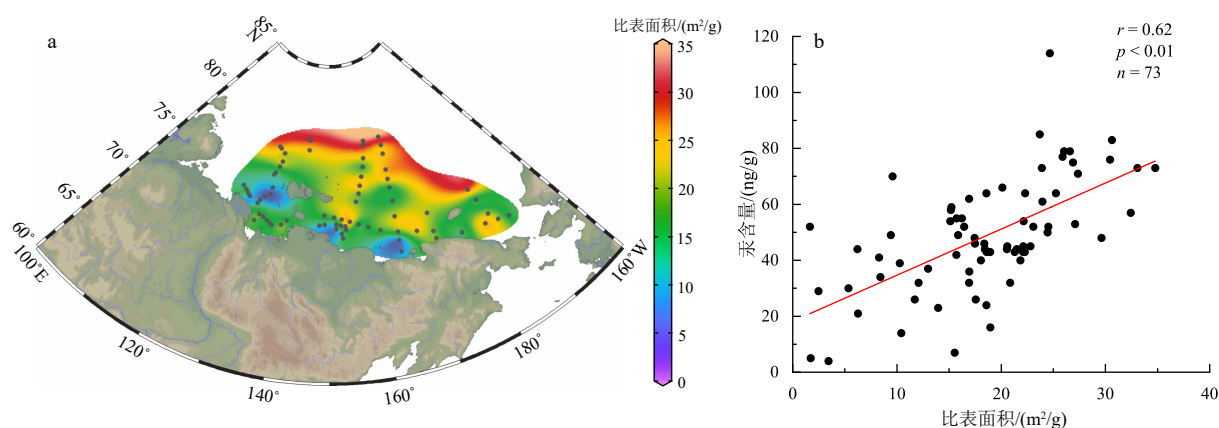


图 6 东西伯利亚陆架表层沉积物比表面积分布 (a) 及其与沉积汞含量的相关性 (b)
比表面积数据引自文献 [49-50]。

Fig.6 Specific surface area distribution in the surface sediments of the East Siberian Arctic Shelf (a) and its relation with sedimentary mercury concentration (b)

Specific surface area data are cited from references [49-50].

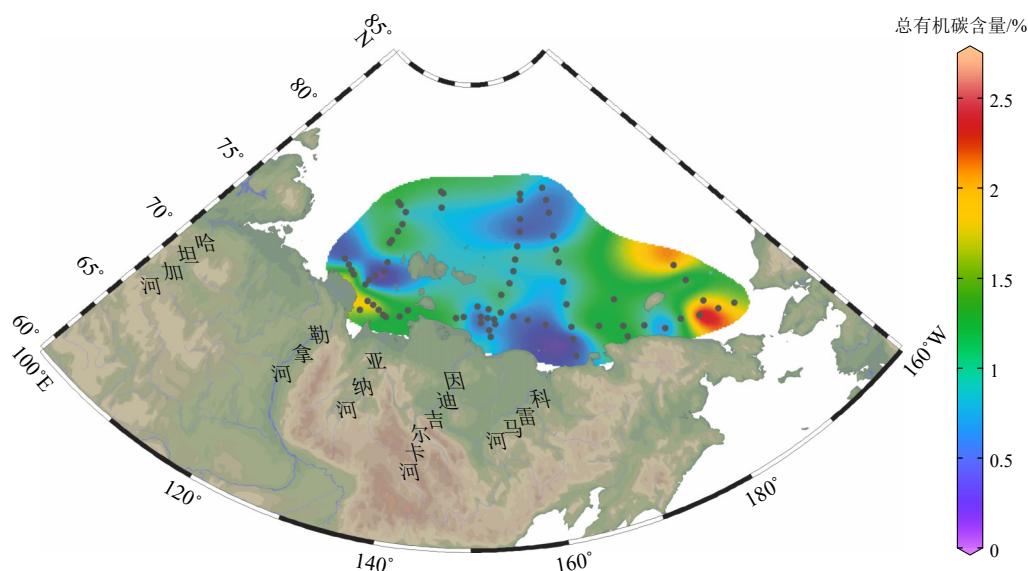


图 7 北极东西伯利亚陆架表层沉积物总有机碳的分布特征
有机碳数据引自文献 [48-49]。

Fig.7 Distribution of total organic carbon in the surface sediments of the East Siberian Arctic Shelf

Total organic carbon data are cited from references [48-49].

离输运^[55-57]。此外,东西伯利亚海岸冻土和海底冻土广泛发育^[25-26],海冰消退、河流径流增大和海岸侵蚀加剧会将大量冻土老碳输送到东西伯利亚陆架。相比于楚科奇海和拉普捷夫海,东西伯利亚海有机碳来源十分复杂^[25,49,57-58],可能导致了东西伯利亚海沉积物中总有机碳含量和沉积汞含量间极低的相关性($r=0.29, P>0.01$)。

4.2 沉积汞变化指示的环境意义

汞可以通过大气、洋流和河流等途径在大范围内输运和沉降^[19,22]。早期研究普遍认为北极地区大

部分汞来源于大气输运^[20],由于缺少本地汞源,其生态系统中的汞主要受全球汞排放驱动^[59]。后来学者通过模拟和实测数据发现,河流是北极地区汞的重要输运途径^[19,22,36,60]。在全球变暖的背景下,河流将北极表层土壤、冰雪和冻土中储存的大量汞输运至海洋,促进了北极地区汞的迁移^[61-63]。从全球来看,河流输运的汞大部分埋藏在河口和陆架沉积物中,部分输运至深海或逃逸到大气中^[22]。结合北极东西伯利亚陆架沉积汞的分布特征发现,在北极河流输入影响最为强烈的区域,并未在其沉积物中发现异常高的汞含量,而高含量的汞出现在北部深

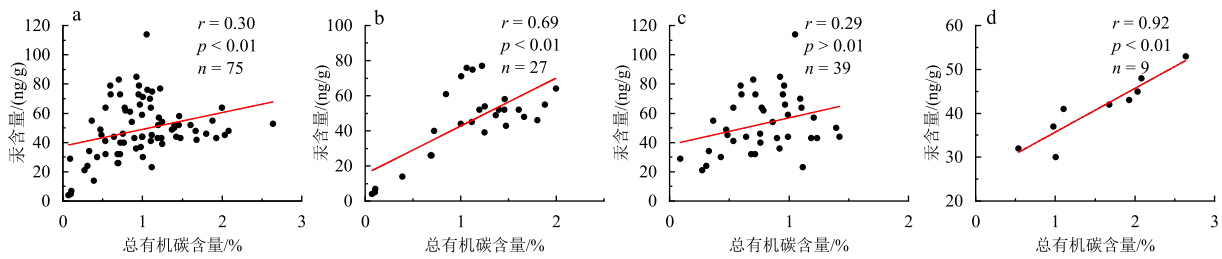


图8 北极东西伯利亚陆架(a)、拉普捷夫海(b)、东西伯利亚海(c)和楚科奇海(d)沉积汞含量与总有机碳的相关性
有机碳数据引自文献[48-49]。

Fig.8 Relationship of sedimentary mercury concentration and total organic carbon in the surface sediments of the East Siberian Arctic Shelf (a), Laptev Sea (b), East Siberian Sea (c), and Chukchi Sea (d)
Total organic carbon data are cited from references [48-49].

水区(图2),表明即使北极河流向北冰洋及其边缘海运输了大量的汞,但河流运输的汞入海后受到后期洋流、海冰等动力因素的影响,会随沉积物在东西伯利亚陆架重新分布并呈现明显的空间差异。北极河流运输的汞会优先影响近岸表层海水的汞含量,同时海洋与大气接触面积的增大会加快Hg(0)的转移速度,使河流运输的汞在河口和陆架区部分逃逸到大气^[22]。现代观测数据发现北极地区6—8月份大气汞含量突然升高,这可能是北极河流运输的汞部分逃逸到大气导致的^[19,22]。而且在水生系统中,大部分汞以Hg(II)的形式存在,颗粒有机碳对其有强烈的吸附作用^[64],而北极河口三角洲处有机碳降解作用较为显著^[65-66],这一过程可能会导致吸附在有机质中的汞发生解吸而进入海水。在以上因素的作用下,北极河流运输的汞部分进入海水和大气而非完全储存在海底沉积物中。此外,在前文中提到,北极东西伯利亚陆架沉积汞更容易吸附在细粒组分中,而在河流、海岸侵蚀影响强烈的近岸区域沉积物粒度较粗,导致在近岸沉积物中并未发现异常高的汞含量。

由此看来,北极东西伯利亚陆架沉积汞空间分布特征与沉积动力状况密切相关。近岸低汞区(I区)通常受到北极河流和海岸侵蚀输入的粗碎屑物质的影响,沉积物粒径普遍较粗,其中弗兰格尔岛附近、科雷马河入海处及新西伯利亚群岛西南部是研究区内沉积物粒度最粗的区域。新西伯利亚群岛的侵蚀物质以粗粒砂岩为主^[67],而且受勒拿河陆源碎屑物质输入的影响,使得新西伯利亚群岛西南侧沉积物颗粒较粗,而科雷马河流域以砂岩为主^[30],导致其入海处沉积物粒径较粗。在弗兰格尔岛附近,由于阿纳德尔流在哈罗德浅滩西侧通过,导致其沉积物为较粗的砂和粉砂质砂^[67],且该区域

由于地形作用导致流速增强,相对细粒的沉积物被搬运至他处而使沉积物粒度相对较粗^[68]。此外,海岸侵蚀也会使近岸沉积物分选较差,粒度较粗。卫星观测显示,在拉普捷夫海到东西伯利亚海海岸带存在强烈的海岸侵蚀作用^[25]。因此,近岸低汞区(I区)主要是由于河流和海岸侵蚀输入了较多粗粒碎屑物质,在西伯利亚沿岸流沿海岸线向东输运过程中,进一步加剧了近岸区沉积物粒径发生分选粗化,从而使得近岸沉积物中汞的含量较低。

陆架中部汞含量中等区(II区)大部分位于东西伯利亚陆架中部,部分位于勒拿河入海处及楚科奇海靠近白令海峡处。与近岸低汞区(I区)相似,北极河流和海岸侵蚀输入的陆源碎屑物质仍是该区域沉积物的主要来源,随着远离海岸,陆源物质输入量减少,海洋自生组分增加,而且陆源碎屑物质在跨陆架输运过程中会发生分选,使粗粒沉积物在近岸沉积,远离海岸粒度变细。此外,北极东西伯利亚陆架区海冰发育,冰缘线会阻隔陆源物质的运输,使得大量粗粒沉积物留在陆架近岸区,陆架上也容易形成冰间湖,湖内波浪和海流作用强烈,大量的细粒物质极易发生再悬浮,在海冰后退的过程中,破碎的海冰可以将细粒沉积物向北搬运^[69]。东西伯利亚陆架中部沉积物平均粒径相对近岸区更细,因为细粒组分对汞有较强的吸附能力,所以该区域沉积汞含量相对近岸区较高。此外,部分近岸海域(如勒拿河入海处及楚科奇海靠近白令海峡处)的沉积物中仍观测到了相对其他近岸区域较高含量的汞,这些区域细颗粒组分和有机碳的含量显著高于附近其他近岸区域(图4、图7),同时在楚科奇海和拉普捷夫海也发现了有机碳与沉积汞较强的相关性(图8),细粒组分和有机碳对汞的吸附可能造成这些区域的沉积汞含量相对较高。

北部深水高汞区(Ⅲ区)是研究区内平均粒径最细的区域,该区域常年被海冰覆盖,总体受陆源碎屑物质输入影响较小,约 1/3 经由河流输入的陆源物质会在穿极流的作用下被运输到北冰洋中部^[70],而且在陆源物质向北运输过程中,较粗的组分会优先沉积在近岸和陆架中部,使得到达深水区的陆源物质细粒组分含量较高。此外,该区域还会受到大西洋中层水的影响,大西洋中层水沿欧亚大陆边缘向东输运,由于其动力较弱^[71],其携带的源自喀拉海和巴伦支海的细粒物质也会在北部深水区产生沉降,而且在顺时针流向的波弗特环流作用下,波弗特海和加拿大海盆中的细粒沉积物也会被输运至北极中部^[29]。这些大量细粒物质的输入,使北部深水区成为整个研究区细粒组分含量最高的区域,由于细粒组分对汞的吸附能力较强,进而导致该区域沉积物汞含量最高。

东西伯利亚陆架从近岸向深水方向,铁锰氧化物含量有明显增大的变化趋势^[41,45],表明陆架中部汞含量中等区(Ⅱ区)和北部深水高汞区(Ⅲ区)在海冰覆盖的影响下,初级生产力更低,有机质供给及氧气消耗量较小,有助于氧化环境的形成。汞是一种对氧化还原条件和生产力敏感的金属元素^[72],铁锰氧化物对汞也有较强的吸附能力^[73-74]。研究区沉积汞与铁锰氧化物呈现出相似的分布特征,体现了沉积环境可能也影响着汞的空间分布特征。

4.3 东西伯利亚陆架沉积汞指示的污染程度

不同类型的基岩风化以及火山活动等因素会使不同海域沉积汞的自然背景值有较大差异,因此沉积物中总汞的绝对含量并不能直接指示人类活动对环境汞污染程度的影响。因此,常通过计算沉积物中金属元素的富集因子,来评估环境中金属元素的富集状况和污染程度^[75]。

本文根据前人在东海和黄海^[76-77]、鄂霍次克海^[23,78]和西北冰洋^[23]已发表的表层沉积汞数据,计算了上述海域表层沉积汞的富集因子,并与北极东西伯利亚陆架数据进行对比(图 9)。结果显示,北极东西伯利亚陆架沉积汞的 EF 值(0.83)明显低于中国东海和黄海(EF 为 1.45),略低于西北冰洋(EF 为 1.01)。而出现在鄂霍次克海的富集因子异常值(EF 为 3.6),可能是由于受到了勘察加半岛、千岛群岛和日本群岛岛弧火山喷发的影响^[79-80]。近年来也有学者计算了东西伯利亚海和拉普捷夫海表层沉积物中其他微量金属元素(如镉、铬、砷、铅、铜、锌、镍)的地质累积指数和富集因子,仅发

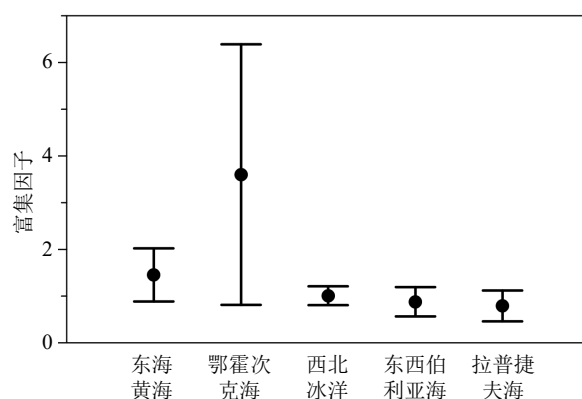


图 9 不同海域表层沉积物汞富集因子平均值对比东海和黄海($N=152$)^[76-77]、鄂霍次克海($N=26$)^[23,78]、西北冰洋($N=7$)^[23]、东西伯利亚海($N=41$, 本文)、拉普捷夫海($N=23$, 本文), N 代表样品数目, 圆点表示富集因子的平均值, 实线表示样品的标准偏差。

Fig.9 Comparison of mean enrichment factor of the sedimentary mercury in surface sediments from different regions

The Yellow Sea and the East China Sea: $N=152$ ^[76-77]; the Okhotsk Sea: $N=26$ ^[23,78]; the western Arctic Ocean: $N=7$ ^[23]. The East Siberian Sea: $N=41$ (this study). The Laptev Sea: $N=23$ (this study). N : the number of samples; the middle dot represents the mean enrichment factor and the vertical solid line represents the standard deviation of the samples.

现了自然过程导致的砷的轻微富集,其他元素均处于无富集和未污染水平且生态风险指数均较低^[41],这一结果与我们基于沉积汞的研究一致。此外, Kim 等还计算了东海、黄海、日本海、鄂霍次克海、白令海和西北冰洋沉积物中的人为汞通量,指出虽然北极-亚北极地区沉积物总汞含量比东海和黄海高,但人为汞通量明显低于东海和黄海海域且自工业化以来并没有显著增加^[23],这可能是因为北极周边地区人类活动输入的汞相对较少导致的。结合本文计算的的东西伯利亚陆架表层沉积物中汞的富集因子,认为北极东西伯利亚陆架沉积汞主要来源于自然过程,沉积汞的污染程度整体较低。

5 结论

(1) 北极东西伯利亚陆架沉积物中汞含量的分布有显著的空间差异性,大致可分为 3 个区:近岸低汞区、陆架中部汞含量中等区和北部深水高汞区。从空间来看,沉积汞含量呈现从近岸河口向深水方向逐渐增大的趋势。

(2) 结合沉积物粒度、总有机碳和比表面积等指标,发现东西伯利亚陆架沉积汞与黏土存在一定正相关,表明沉积物中的汞更容易吸附在细粒黏土

中,反映了陆架沉积物粒度对汞分布的控制作用,表明沉积物源及海洋水动力是控制该区沉积汞分布的主要因素。在楚科奇海和拉普捷夫海,沉积汞和总有机碳有较强的正相关,而在东西伯利亚海相关性较弱,这是因为东西伯利亚海有机碳来源相对更为复杂。

(3)基于计算的北极东西伯利亚陆架表层沉积物中汞的富集因子,并与其他海域的富集因子进行对比,发现北极东西伯利亚陆架沉积汞的污染程度整体较低,表明尚未受到人类活动的显著影响。

致谢: 本文样品来源于2016、2018和2020年3次中俄北极联合考察航次,感谢参加航次调查工作的全体科考队员,感谢审稿专家提出的修改建议。

参考文献 (References)

- [1] Selin N E. Global biogeochemical cycling of mercury: a review [J]. *Annual Review of Environment and Resources*, 2009, 34: 43-63.
- [2] Sonke J E, Heimbürger L E. Mercury in flux [J]. *Nature Geoscience*, 2012, 5(7): 447-448.
- [3] Lindberg S, Bullock R, Ebinghaus R, et al. A synthesis of progress and uncertainties in attributing the sources of mercury in deposition [J]. *AMBIO: A Journal of the Human Environment*, 2007, 36(1): 19-32.
- [4] Aksentov K I, Astakhov A S, Ivanov M V, et al. Assessment of mercury levels in modern sediments of the East Siberian Sea [J]. *Marine Pollution Bulletin*, 2021, 168: 112426.
- [5] Kita I, Kojima M, Hasegawa H, et al. Mercury content as a new indicator of ocean stratification and primary productivity in Quaternary sediments off Bahama Bank in the Caribbean Sea [J]. *Quaternary Research*, 2013, 80(3): 606-613.
- [6] Kita I, Yamashita T, Chiyonobu S, et al. Mercury content in Atlantic sediments as a new indicator of the enlargement and reduction of Northern Hemisphere ice sheets [J]. *Journal of Quaternary Science*, 2016, 31(3): 167-177.
- [7] Scaife J D, Ruhl M, Dickson A J, et al. Sedimentary mercury enrichments as a marker for submarine large igneous province volcanism? Evidence from the Mid-Cenomanian event and Oceanic Anoxic Event 2 (Late Cretaceous) [J]. *Geochemistry, Geophysics, Geosystems*, 2017, 18(12): 4253-4275.
- [8] Font E, Adatte T, Andrade M, et al. Deccan volcanism induced high-stress environment during the Cretaceous-Paleogene transition at Zumaya, Spain: evidence from magnetic, mineralogical and biostratigraphic records [J]. *Earth and Planetary Science Letters*, 2018, 484: 53-66.
- [9] Grasby S E, Them II T R, Chen Z H, et al. Mercury as a proxy for volcanic emissions in the geologic record [J]. *Earth-Science Reviews*, 2019, 196: 102880.
- [10] Lim D, Kim J, Xu Z K, et al. New evidence for Kuroshio inflow and deepwater circulation in the Okinawa Trough, East China Sea: sedimentary mercury variations over the last 20 kyr [J]. *Paleoceanography*, 2017, 32(6): 571-579.
- [11] Zou J J, Chang Y P, Zhu A M, et al. Sedimentary mercury and anti-mony revealed orbital-scale dynamics of the Kuroshio Current [J]. *Quaternary Science Reviews*, 2021, 265: 107051.
- [12] Krabbenhoft D P, Sunderland E M. Global change and mercury [J]. *Science*, 2013, 341(6153): 1457-1458.
- [13] Schuster P F, Striegl R G, Aiken G R, et al. Mercury export from the Yukon River basin and potential response to a changing climate [J]. *Environmental Science & Technology*, 2011, 45(21): 9262-9267.
- [14] Dastoor A P, Durnford D A. Arctic ocean: is it a sink or a source of atmospheric mercury? [J]. *Environmental Science & Technology*, 2014, 48(3): 1707-1717.
- [15] Stern G A, Macdonald R W, Outridge P M, et al. How does climate change influence arctic mercury? [J]. *Science of the Total Environment*, 2012, 414: 22-42.
- [16] IPCC. Climate Change 2021: The Physical Science Basis. Contribution of Working Group I to the Sixth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change [M]. Cambridge: Cambridge University Press, 2021.
- [17] Obrist D, Agnan Y, Jiskra M, et al. Tundra uptake of atmospheric elemental mercury drives Arctic mercury pollution [J]. *Nature*, 2017, 547(7662): 201-204.
- [18] Outridge P M, Macdonald R W, Wang F, et al. A mass balance inventory of mercury in the Arctic Ocean [J]. *Environmental Chemistry*, 2008, 5(2): 89-111.
- [19] Fisher J A, Jacob D J, Soerensen A L, et al. Riverine source of Arctic Ocean mercury inferred from atmospheric observations [J]. *Nature Geoscience*, 2012, 5(7): 499-504.
- [20] AMAP. AMAP Assessment 2002: Heavy Metals in the Arctic [M]. Oslo: Arctic Monitoring and Assessment Programme, 2004.
- [21] Steffen A, Douglas T, Amyot M, et al. A synthesis of atmospheric mercury depletion event chemistry in the atmosphere and snow [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2008, 8(6): 1445-1482.
- [22] Zhang Y X, Jacob D J, Dutkiewicz S, et al. Biogeochemical drivers of the fate of riverine mercury discharged to the global and Arctic oceans [J]. *Global Biogeochemical Cycles*, 2015, 29(6): 854-864.
- [23] Kim H, Lee K, Lim D I, et al. Increase in anthropogenic mercury in marginal sea sediments of the Northwest Pacific Ocean [J]. *Science of the Total Environment*, 2019, 654: 801-810.
- [24] Darby D A, Polyak L, Bauch H A. Past glacial and interglacial conditions in the Arctic Ocean and marginal seas—a review [J]. *Progress in Oceanography*, 2006, 71(2-4): 129-144.
- [25] Vonk J E, Sánchez-García L, van Dongen B E, et al. Activation of old carbon by erosion of coastal and subsea permafrost in Arctic Siberia [J]. *Nature*, 2012, 489(7414): 137-140.
- [26] Shakhova N, Semiletov I, Gustafsson O, et al. Current rates and mechanisms of subsea permafrost degradation in the East Siberian Arctic Shelf [J]. *Nature Communications*, 2017, 8: 15872.
- [27] Stein R, Fahl K, Schade I, et al. Holocene variability in sea ice cover, primary production, and Pacific - Water inflow and climate change in

- the Chukchi and East Siberian Seas (Arctic Ocean) [J]. *Journal of Quaternary Science*, 2017, 32 (3): 362-379.
- [28] Opsahl S, Benner R, Amon R M W. Major flux of terrigenous dissolved organic matter through the Arctic Ocean [J]. *Limnology and Oceanography*, 1999, 44 (8): 2017-2023.
- [29] Stein R. Arctic Ocean Sediments: Processes, Proxies, and Paleoenvironment [M]. Amsterdam: Elsevier, 2008.
- [30] Suchet P A, Probst J L, Ludwig W. Worldwide distribution of continental rock lithology: implications for the atmospheric/soil CO₂ uptake by continental weathering and alkalinity river transport to the oceans [J]. *Global Biogeochemical Cycles*, 2003, 17 (2): 1038.
- [31] Holmes R M, McClelland J W, Peterson B J, et al. A circumpolar perspective on fluvial sediment flux to the Arctic Ocean [J]. *Global Biogeochemical Cycles*, 2002, 16 (4): 1098.
- [32] Guay C K, Falkner K K. Barium as a tracer of Arctic halocline and river waters [J]. *Deep Sea Research Part II: Topical Studies in Oceanography*, 1997, 44 (8): 1543-1569.
- [33] Dastoor A, Angot H, Bieser J, et al. Arctic mercury cycling [J]. *Nature Reviews Earth & Environment*, 2022, 3 (4): 270-286.
- [34] Peterson B J, Holmes R M, McClelland J W, et al. Increasing river discharge to the Arctic Ocean [J]. *Science*, 2002, 298 (5601): 2171-2173.
- [35] Sonke J E, Teisserenc R, Heimbürger-Boavida L E, et al. Eurasian river spring flood observations support net Arctic Ocean mercury export to the atmosphere and Atlantic Ocean [J]. *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America*, 2018, 115 (50): E11586-E11594.
- [36] Zolkos S, Krabbenhoft D P, Suslova A, et al. Mercury export from arctic great rivers [J]. *Environmental Science & Technology*, 2020, 54 (7): 4140-4148.
- [37] Gordeev V V. Fluvial sediment flux to the Arctic Ocean [J]. *Geomorphology*, 2006, 80 (1-2): 94-104.
- [38] Weingartner T J, Danielson S, Sasaki Y, et al. The Siberian coastal current: a wind- and buoyancy-forced Arctic coastal current [J]. *Journal of Geophysical Research: Oceans*, 1999, 104 (C12): 29697-29713.
- [39] 李日升, 郭跃安, 孙冬娥, 等. 化学蒸气发生-多通道原子荧光光谱法同时测定化探样品中的砷、锑、铋、汞 [J]. *理化检验(化学分册)*, 2014, 50 (5): 569-571. [LI Risheng, GUO Yuean, SUN Donge, et al. Simultaneous determination of As, Sb, Bi, and Hg in geological samples by Hg-Multi-channel-AFS [J]. *Physical Testing and Chemical Analysis (Part B: Chemical Analysis)*, 2014, 50 (5): 569-571.]
- [40] Wedepohl K H. The composition of the continental crust [J]. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 1995, 59 (7): 1217-1232.
- [41] Sattarova V, Aksentov K, Astakhov A, et al. Trace metals in surface sediments from the Laptev and East Siberian Seas: levels, enrichment, contamination assessment, and sources [J]. *Marine Pollution Bulletin*, 2021, 173: 112997.
- [42] Zhang J, Liu C L. Riverine composition and estuarine geochemistry of particulate metals in China: weathering features, anthropogenic impact and chemical fluxes [J]. *Estuarine, Coastal and Shelf Science*, 2002, 54 (6): 1051-1070.
- [43] Chakraborty P, Sarkar A, Vudamala K, et al. Organic matter: a key factor in controlling mercury distribution in estuarine sediment [J]. *Marine Chemistry*, 2015, 173: 302-309.
- [44] 赵一阳. 中国海大陆架沉积物地球化学的若干模式 [J]. *地质科学*, 1983 (4): 307-314. [ZHAO Yiyang. Some geochemical patterns of shelf sediments of the China seas [J]. *Scientia Geologica Sinica*, 1983 (4): 307-314.]
- [45] 李秋玲, 乔淑卿, 石学法, 等. 北极东西伯利亚陆架沉积物来源: 来自黏土矿物和化学元素的证据 [J]. *海洋学报*, 2021, 43 (3): 76-89. [LI Qiuling, QIAO Shuqing, SHI Xuefa, et al. Sediment provenance of the East Siberian Arctic Shelf: evidence from clay minerals and chemical elements [J]. *Haiyang Xuebao*, 2021, 43 (3): 76-89.]
- [46] Thorne L T, Nickless G. The relation between heavy metals and particle size fractions within the severn estuary (U. K.) inter-tidal sediments [J]. *Science of the Total Environment*, 1981, 19 (3): 207-213.
- [47] Araújo M F D, Bernard P C, Van Grieken R E. Heavy metal contamination in sediments from the Belgian coast and Scheldt estuary [J]. *Marine Pollution Bulletin*, 1988, 19 (6): 269-273.
- [48] 夏逸. 北极拉普捷夫海现代沉积有机碳源汇过程与埋藏记录 [D]. 自然资源部第一海洋研究所硕士学位论文, 2022. [XIA Yi. Source sink processes and burial records of modern sedimentary organic carbon in the Arctic Laptev Sea [D]. Master Dissertation of First Institute of Oceanography, Ministry of Natural Resources, 2022.]
- [49] 叶君, 胡利民, 石学法, 等. 基于木质素示踪北极东西伯利亚陆架沉积有机碳的来源、输运与埋藏 [J]. *第四纪研究*, 2021, 41 (3): 752-765. [YE Jun, HU Limin, SHI Xuefa, et al. Sources, transport and burial of terrestrial organic carbon in the surface sediments across the East Siberian Arctic shelf, insights from lignin [J]. *Quaternary Sciences*, 2021, 41 (3): 752-765.]
- [50] 于文秀, 胡利民, 石学法, 等. 北极东西伯利亚陆架黑碳的地球化学特征及其环境意义 [J]. *海洋地质与第四纪地质*, 2022, 42 (4): 50-60. [YU Wenxiu, HU Limin, SHI Xuefa, et al. Geochemical characteristics of black carbon in surface sediments of the East Siberian Arctic Shelf and their environmental implications [J]. *Marine Geology & Quaternary Geology*, 2022, 42 (4): 50-60.]
- [51] Stein R. The great challenges in Arctic Ocean paleoceanography [J]. *IOP Conference Series: Earth and Environmental Science*, 2011, 14: 012001.
- [52] Stein R, Fahl K. Holocene accumulation of organic carbon at the Laptev Sea continental margin (Arctic Ocean): sources, pathways, and sinks [J]. *Geo-Marine Letters*, 2000, 20 (1): 27-36.
- [53] Semiletov I, Dudarev O, Luchin V, et al. The East Siberian Sea as a transition zone between Pacific - derived waters and Arctic shelf waters [J]. *Geophysical Research Letters*, 2005, 32 (10): L10614.
- [54] Karlsson E S, Brüchert V, Tesi T, et al. Contrasting regimes for organic matter degradation in the East Siberian Sea and the Laptev Sea assessed through microbial incubations and molecular markers [J]. *Marine Chemistry*, 2015, 170: 11-22.
- [55] Savelieva N I, Semiletov I P, Vasilevskaya L N, et al. A climate shift in seasonal values of meteorological and hydrological parameters for Northeastern Asia [J]. *Progress in Oceanography*, 2000, 47 (2-4): 279-297.
- [56] Stroeve J, Barrett A, Serreze M, et al. Using records from submarine, aircraft and satellites to evaluate climate model simulations of Arctic

- sea ice thickness [J]. *The Cryosphere*, 2014, 8(5): 1839-1854.
- [57] 胡利民, 石学法, 叶君, 等. 北极东西伯利亚陆架沉积有机碳的源汇过程研究进展[J]. *地球科学进展*, 2020, 35(10): 1073-1086. [HU Limin, SHI Xuefa, YE Jun, et al. Advances in the sources and sink of sedimentary organic carbon in the East Siberian Arctic Shelf [J]. *Advances in Earth Science*, 2020, 35(10): 1073-1086.]
- [58] Macdonald R W, Kuzyk Z Z A, Johannessen S C, et al. The vulnerability of Arctic shelf sediments to climate change [J]. *Environmental Reviews*, 2015, 23(4): 461-479.
- [59] Chen L, Zhang Y X, Jacob D J, et al. A decline in Arctic Ocean mercury suggested by differences in decadal trends of atmospheric mercury between the Arctic and northern midlatitudes [J]. *Geophysical Research Letters*, 2015, 42(14): 6076-6083.
- [60] Emmerton C A, Graydon J A, Gareis J A L, et al. Mercury export to the Arctic Ocean from the Mackenzie River, Canada [J]. *Environmental Science & Technology*, 2013, 47(14): 7644-7654.
- [61] St. Pierre K A, Zolkos S, Shakil S, et al. Unprecedented increases in total and methyl mercury concentrations downstream of retrogressive thaw slumps in the western Canadian Arctic [J]. *Environmental Science & Technology*, 2018, 52(24): 14099-14109.
- [62] Schaefer K, Elshorbany Y, Jafarov E, et al. Potential impacts of mercury released from thawing permafrost [J]. *Nature Communications*, 2020, 11(1): 4650.
- [63] Søndergaard J, Tamstorf M, Elberling B, et al. Mercury exports from a High-Arctic river basin in Northeast Greenland (74°N) largely controlled by glacial lake outburst floods [J]. *Science of the Total Environment*, 2015, 514: 83-91.
- [64] Morel F M M, Kraepiel A M L, Amyot M. The chemical cycle and bioaccumulation of mercury [J]. *Annual Review of Ecology and Systematics*, 1998, 29: 543-566.
- [65] Bianchi T S. The role of terrestrially derived organic carbon in the coastal ocean: a changing paradigm and the priming effect [J]. *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America*, 2011, 108(49): 19473-19481.
- [66] Rontani J F, Charrière B, Sempéré R, et al. Degradation of sterols and terrigenous organic matter in waters of the Mackenzie Shelf, Canadian Arctic [J]. *Organic Geochemistry*, 2014, 75: 61-73.
- [67] 汪卫国, 方建勇, 陈莉莉, 等. 楚科奇海悬浮体含量分布及其颗粒组分特征[J]. *极地研究*, 2014, 26(1): 79-88. [WANG Weiguo, FANG Jianyong, CHEN Lili, et al. The distribution and composition of suspended particles in the Chukchi Sea [J]. *Chinese Journal of Polar Research*, 2014, 26(1): 79-88.]
- [68] 王春娟, 刘焱光, 董林森, 等. 白令海与西北冰洋表层沉积物粒度分布特征及其环境意义[J]. *海洋地质与第四纪地质*, 2015, 35(3): 1-9. [WANG Chunjuan, LIU Yanguang, DONG Linsen, et al. The distribution pattern of the surface sediments in the Bering Sea and the western Arctic and its environmental implications [J]. *Marine Geology & Quaternary Geology*, 2015, 35(3): 1-9.]
- [69] Nürnberg D, Wollenburg I, Dethleff D, et al. Sediments in Arctic sea ice: implications for entrainment, transport and release [J]. *Marine Geology*, 1994, 119(3-4): 185-214.
- [70] Charette M A, Kipp L E, Jensen L T, et al. The transpolar drift as a source of riverine and shelf-derived trace elements to the central Arctic Ocean [J]. *Journal of Geophysical Research:Oceans*, 2020, 125(5): e2019JC015920.
- [71] Yurco L N, Ortiz J D, Polyak L, et al. Clay mineral cycles identified by diffuse spectral reflectance in Quaternary sediments from the Northwind Ridge: implications for glacial-interglacial sedimentation patterns in the Arctic Ocean [J]. *Polar Research*, 2010, 29(2): 176-197.
- [72] Figueiredo T S, Santos T P, Costa K B, et al. Effect of deep Southwestern Subtropical Atlantic Ocean circulation on the biogeochemistry of mercury during the last two glacial/interglacial cycles [J]. *Quaternary Science Reviews*, 2020, 239: 106368.
- [73] Quémerais B, Cossa D, Rondeau B, et al. Mercury distribution in relation to iron and manganese in the waters of the St. Lawrence river [J]. *Science of the Total Environment*, 1998, 213(1-3): 193-201.
- [74] Shen J, Feng Q L, Algeo T J, et al. Sedimentary host phases of mercury (Hg) and implications for use of Hg as a volcanic proxy [J]. *Earth and Planetary Science Letters*, 2020, 543: 116333.
- [75] Hasan A B, Kabir S, Reza A H M S, et al. Enrichment factor and geoaccumulation index of trace metals in sediments of the ship breaking area of Sitakund Upazilla (Bhatary-Kumira), Chittagong, Bangladesh [J]. *Journal of Geochemical Exploration*, 2013, 125: 130-137.
- [76] Kim H, Lee K, Lim D I, et al. Widespread anthropogenic nitrogen in northwestern Pacific Ocean sediments [J]. *Environmental Science & Technology*, 2017, 51(11): 6044-6052.
- [77] Kim J, Lim D, Jung D, et al. Sedimentary mercury (Hg) in the marginal seas adjacent to Chinese high-Hg emissions: source-to-sink, mass inventory, and accumulation history [J]. *Marine Pollution Bulletin*, 2018, 128: 428-437.
- [78] Astakhov A S, Gorbarenko S A, Bakhareva G A, et al. Distribution and accumulation rate of ore elements in Holocene and Late Glacial Sediments of the Deryugin Basin, Sea of Okhotsk [J]. *Lithology and Mineral Resources*, 2005, 40(2): 97-113.
- [79] Sattarova V V, Aksentov K I. Geochemistry of mercury in surface sediments of the Kuril Basin of the Sea of Okhotsk, Kuril-Kamchatka Trench and adjacent abyssal plain and northwest part of the Bering Sea [J]. *Deep Sea Research Part II:Topical Studies in Oceanography*, 2018, 154: 24-31.
- [80] Kalinichuk V, Aksentov K, Karnaukh V. Gaseous elemental mercury (Hg (0)) in the surface air over the Sea of Japan, the Sea of Okhotsk and the Kuril-Kamchatka sector of the Pacific Ocean in August-September 2017 [J]. *Chemosphere*, 2019, 224: 668-679.