柴达木盆地第四纪更新世气候变化及其对有机质富集的影响

刘晓雪1.2, 姜振学1.2*, 唐相路1.2, 徐明帅1.2, 邵泽宇3, 朱军3

1 中国石油大学(北京)非常规油气科学技术研究院,北京 102249

- 2 中国石油大学(北京)油气资源与工程全国重点实验室,北京 102249
- 3 中国石油青海油田分公司勘探开发研究院, 酒泉 736202

* 通信作者, jiangzx@cup.edu.cn

收稿日期:2024-03-11;修回日期:2024-04-13 国家自然科学基金面上项目"陆相页岩储层岩石组构和孔隙结构特征及其对含气性的控制机理"(41872135)资助

摘要 有机质是泥页岩生气的基础,研究柴达木盆地第四纪更新世气候变化及其对有机质富集的影响对于柴达 木盆地生物成因气的勘探开发至关重要。本文选取柴达木盆地第四系更新统泥页岩为研究对象,通过主微量元 素分析和饱和烃色谱分析等实验手段,从古湿度和古温度两个方面阐明了第四纪更新世气候变化特征,进而从 生物生产力和有机质保存条件两个方面分析了气候变化对有机质富集的影响,建立了柴达木盆地第四纪更新世 有机质沉积模式。结果表明:(1)第四纪更新世早——中期,气候温凉湿润,草本植物茂盛,草本植物富含纤维 素、半纤维素、糖、淀粉和果胶,提高了水体表层的生物生产力;降水量大,水体分层性好,较强的水体分层 还可使水体下层的还原性增强,有利于从上层沉积下来的有机物的保存,从而有利于沉积有机物的富集;且温 度相对较低,抑制了产甲烷菌的活动,有利于有机质的保存;(2)更新世晚期,在新构造运动下,青藏高原隆 升,气候变得干旱,气温上升,木本植物比例增大,产甲烷菌可利用的营养物质减少,生物生产力下降;水体 分层性减弱,上层富氧水体和下层贫氧水体混合,导致下层水体还原性被破坏,从上层沉降下来的沉积有机物 被破坏,不利于沉积有机物的保存;且温度相对较高,产甲烷菌消耗了大量的有机质,不利于有机质的保存。 研究成果对研究区生物成因气的勘探开发具有理论和实践意义。

关键词 第四纪更新世;泥页岩;生物成因气;生物生产力;保存条件

中图分类号: P618.13; TE122

Quaternary Pleistocene climate change in the Qaidam Basin and its effect on organic matter enrichment

LIU Xiaoxue^{1,2}, JIANG Zhenxue^{1,2}, TANG Xianglu^{1,2}, XU Mingshuai^{1,2}, SHAO Zeyu³, ZHU Jun³

1 Unconventional Petroleum Research Institute, China University of Petroleum-Beijing, Beijing 102249, China 2 State Key Laboratory of Petroleum Resources and Engineering, China University of Petroleum-Beijing, Beijing 102249, China

引用格式:刘晓雪,姜振学,唐相路,徐明帅,邵泽宇,朱军.柴达木盆地第四纪更新世气候变化及其对有机质富集的影响.石油科学通报, 2024,03:394-407

LIU Xiaoxue, JIANG Zhenxue, TANG Xianglu, XU Mingshuai, SHAO Zeyu, ZHU Jun. Quaternary Pleistocene climate change in the Qaidam Basin and its effect on organic matter enrichment. Petroleum Science Bulletin, 2024, 03: 394-407. doi: 10.3969/j.issn.2096-1693.2024.03.029

3 Research Institute of Exploration and Development, Qinghai Oilfield Company, PetroChina, Jiuquan 736202, China

Received: 2024-03-11; Revised: 2024-04-13

Abstract Organic matter is the basis of shale gas generation, and the study of Quaternary Pleistocene climate change in the Qaidam Basin and its effect on organic matter enrichment is crucial for the exploration and development of biogenic gas in the Qaidam Basin. In this paper, the Quaternary shale in the Qaidam Basin is taken as the research object, and Quaternary Pleistocene climate change is clarified in terms of paleo-moisture and paleo-temperature through organic carbon analysis and main and trace element experiments. Then, the influence of climate change on organic matter enrichment is analyzed from two perspectives: biological productivity and organic matter preservation. Finally, the Quaternary Pleistocene organic matter depositional pattern of the Qaidam Basin is established. The results show that (1) in the early-middle Quaternary Pleistocene, the climate was cool and humid, the herbaceous plants were luxuriant, and rich in cellulose, hemicellulose, sugar, starch and pectin, which improved the biological productivity of the surface layer of the water column. The amount of precipitation was high, and the stratification of the water column was good. The strong stratification of the water column also enhanced the reduction level of the lower layer of the water column, which is favorable for the preservation of the organic matter deposited from the upper layer and thus favors the enrichment of sedimentary organic matter. Additionally, relatively low temperatures inhibit the activities of methanogenic bacteria, which is also conducive to the preservation of organic matter. (2) In the late Pleistocene, under the Neotectonic Movement, the Tibetan Plateau uplifted, the climate became arid, and the temperature increased, leading to an increase in the proportion of woody plants and a decrease in the amount of nutrients available to methanogenic bacteria, decreasing the biological productivity of the surface layer of the water column. On the other hand, the stratification of the water column was weakened. The mixing of oxygen-rich water in the upper layer and oxygen-poor water in the lower layer results in the level of reduction of the lower layer of the water column being significantly lowered. The sedimentary organic matter that settled from the upper layer was easily destroyed, which was unfavorable for the preservation of sedimentary organic matter. Additionally, when the temperature was relatively high, methanogenic bacteria consumed a large amount of organic matter, which was also unfavorable for the preservation of organic matter. The research results have important theoretical and practical significance for the exploration and development of biogenic gas in the study area.

Keywords Quaternary Pleistocene; shale; biogenic gas; biological productivity; preservation condition

doi: 10.3969/j.issn.2096-1693.2024.03.029

0 引言

生物气是产甲烷菌在厌氧条件下利用简单小分子 物质(CO2、H2、乙酸等)形成的重要最终产物,储量 占世界天然气储量的20%以上[1-2]。柴达木盆地位于 青藏高原东北部,是我国第四系生物气的重要产区, 已发现涩北一号、涩北二号、台南等多个气田[3-5]。近 年来,在主气田外围和斜坡凹陷区进行了勘探,但未 取得大规模发现,其中很大一部分原因是缺乏生物成 因页岩气形成的物质基础。有机质是泥页岩生烃的物 质基础,而气候变化影响着有机质的富集,因此研究 第四纪更新世气候变化、分析其如何影响有机质富集 成为亟待解决的重要问题。而且,青藏高原作为一个 重要的地理区域,其气候变化对全球气候演变具有极 其重要的意义。尤其是在第四纪这个地球历史上相对 较短的时间段内, 气候变化对人类社会产生了深刻的 影响,如冰川的形成和消融、海平面的波动等。柴达 木盆地作为青藏高原的一部分,其第四纪气候变化的 研究对深入了解全球气候演变的机制和趋势至关重要。

研究古气候特征和变化的指标一般涉及沉积学、

孢粉学、古生物学及元素地球化学等方面,前人研究 第四纪古气候主要借助黄土、哺乳动物化石等载体, 采用磁化率、孢粉、碳氧同位素等指标进行分析,很 少从地球化学元素的角度对气候变化进行探究^[6-10]。 针对柴达木盆地第四纪气候变化研究尚浅,尤其是第 四纪气候变化对有机质富集的影响仍在起步阶段,仍 需进一步深入研究。

本文选取柴达木盆地第四系更新统泥页岩为研究 对象,通过主微量元素分析和饱和烃色谱分析等实验 手段,明确了第四纪更新世气候变化的特征。同时, 从生物生产力和有机质保存两个方面分析了气候变化 对有机质富集的影响。通过这项研究,有望为完善有 机质富集机理提供有力支持,成果对柴达木盆地生物 成因气的勘探开发具有指导意义。

1 地质背景

柴达木盆地位于青海省西部,地处青藏高原的东 北部(图1),是我国最大的陆上生物气田区。盆地受 阿尔金山、祁连山和昆仑山三大山系控制,总面积约



图 1 柴达木盆地区域构造图 Fig. 1 Regional tectonic map of the Qaidam Basin

为 12.1 万 km²,海拔介于 2650~3000 m。盆地西北部主 要为丘陵、低山和洼地间隔分布,东南部地势平坦主要 为平原、湖泊和戈壁,内部地形西北高东南低^[11-12]。

柴达木盆地经历了3个时期的区域演化进程,包 括断陷阶段、坳陷阶段和褶皱回返阶段。早侏罗世至 晚白垩世为断陷阶段,该阶段为内陆断陷盆地演化阶 段, 燕山运动使柴达木盆地整体向上抬升, 遭受强烈 剥蚀。早古新世至上新世为坳陷阶段,该阶段为陆内 塌陷盆地发展时期,盆地开始整体下降,扩大了盆地 内的沉积面积,并伴随有继承性断裂活动。喜马拉雅 早期运动使青藏高原海拔上升,盆地西南部地区出现 一系列逆断层。第四纪为褶皱回返阶段, 该阶段内湖 盆东移并伴随褶皱回返,盆地的沉积中心继续由西向 东迁移。在这一阶段,大多数盆地地表结构已经形成。 盆地的西部地区因青藏高原的上升而发生褶皱回折, 导致新近系与第四系之间出现明显的角度不整合。最 后,在第四纪末期,柴达木盆地受到新的构造运动的 影响,经历了轻微的隆升。柴达木盆地的第四系坳陷 沉积时期相对较新,构造运动相对简单,影响盆地内 构造变形的因素较少。盆地第四纪坳陷构造变形的动 力主要源自盆地北侧,走滑断裂在盆地的现代构造演 化中占据主导地位, 而柴达木盆地东部地区的第四纪 局部构造分布主要受到边界断裂的控制[13-15]。

柴达木盆地以中、新生界沉积为主,由下古生界 岩浆岩和变质岩组成盆地基底、中、新生界为盆地主 要沉积盖层。柴达木盆地的地层发育齐全, 自下而上 分别覆盖着元古界、古生界、中生界和新生界。新生 界第四系是本次研究的主要层系。第四纪, 受喜马拉 雅构造运动的影响,柴达木盆地在隆起和回归过程中 向东倾斜,沉积中心不断由西向东迁移。在第四纪, 柴达木盆地东部的三湖凹陷成为沉积中心,形成了分 布广泛的第四纪内陆湖相沉积。沉积速率在第四纪更 新世达到最高,沉积了厚度较大的第四纪地层。沉积 中心的厚度超过 3100 m, 形成了一套稳定且连续的湖 相沉积。从下到上共识别出11个电性标准层(K13-K11, K11-K10, K10-K9, K9-K7, K7-K6, K6-K5, K5-K4, K4-K3, K3-K2, K2-K1, K1-第四系顶)(图 2)^[16-19]。由于年代新、成岩弱,第 四系尚处于成岩压实初期,岩性以泥页岩、泥质砂岩 夹碳质泥页岩为主(图 2)。

2 样品采集与实验

本次研究共选取了15个样本,其中9个样品来

	地	层		名称	标准层	年龄 /Ma	岩性	岩性描述
					К1 —	1.35		浅灰色、灰白色泥页岩、粉砂质 泥页岩为主,夹灰黑色碳质泥页岩 和灰白色粉砂岩。
					K2 —	1.51		灰色、浅灰色泥页岩、粉砂质泥页岩
					K3 —	1.70		为主,夹灰色钙质泥页岩、浅灰色
				Q ₁₊₂	K4 一 取样层位	1.84		粉砂岩和少量灰黑色碳质泥页岩。
新	第	更	7		K5 -	1.94		
生	四	新	个		K6 -	2.08 2.20	•• ••<	灰色、浅绿色泥页岩、粉砂质泥页岩
界	系	统	泉		取样层位	2.20		为主, 来灰日巴泥贝石、初砂石 和少量灰黑色碳质泥页岩。
			组		K9	2.35		
					K10-	2.48		浅灰色、灰色泥页岩、粉砂质泥页岩
					K11-	2.58	<u> </u>	为主, 夹灰白色泥页岩、粉砂岩和 小量灰黑色碳质泥页岩。
					K 13-	2.80		
	新	上	狮 子					
	近 系	新统	沟组	IN ₂₊₃				
图例								





自T18 井的K9—K7 层段, 6 个样品来自C8 井的K5— K4 层段(钻井位置见图 1)。K9—K7 层段沉积于早— 中更新世, K5—K4 层段沉积于晚更新世^[16-19]。对样 品进行有机质丰度测试、主微量元素分析、饱和烃色 谱分析。有机质丰度采用C230 碳硫分析仪和热解仪进 行测试^[20]。主微量元素采用PW4400/40X射线荧光光 谱仪和X系列II型电感耦合等离子体质谱仪(ICPMS) 进行分析,分析精度优于 5%^[21]。饱和烃色谱分析用 Aniglent 5975 气相色谱仪对烷烃进行色谱分析^[22]。

3 柴达木盆地第四纪更新世气候变化

3.1 古湿度

(1)锶/铜(Sr/Cu)含量比

Sr的富集通常与干燥气候下湖水的集中沉积有关, 气候湿润时, Sr/Cu值≤10;当气候干旱时,该值大 于10^[23]。据统计,K9—K7层段Sr/Cu<10,而K5— K4层段Sr/Cu>10,表明本研究区第四纪早—中期 (K9—K7沉积时期)气候较为湿润,晚期(K5—K4沉 积时期)气候较为干旱。

(2)锶/铷(Sr/Rb)含量比

Rb较为稳定,不易受风化影响,而Sr在潮湿气候中损失,在干旱气候中被保留,因Sr/Rb的高值往往暗示着干旱的气候条件,而低值则暗示着相对湿润的气候^[24]。K9—K7 层段Sr/Rb为1.03~3.48,主要分布在1.03~2.08,K5—K4 层段Sr/Rb为2.06~2.96,明显高于K9—K7 层段,说明K9—K7 层段沉积时气候更加潮湿。

两个参数趋势一致,均说明K9—K7 层段沉积时 气候较为湿润,到K5—K4 层段沉积时气候变得较为 干旱(图3)。

3.2 古温度

500

9-01×/曹 少 2000 2000

2500

3000

1.0

0.8

(1)CaO/(MgO+Al₂O₃)含量比

浮游生物光合作用引起的二氧化碳同化作用是湖 泊内碳酸钙沉淀的重要因素,随着温度升高,光合作 用增强,同时湖水蒸发量也升高,均有利于碳酸钙的 沉淀。因此,湖泊沉积物中自生碳酸钙的高低可反映 当时沉积环境的温度[25-26]。淡水一微咸水湖泊中白 云石主要来源是陆源碎屑,而方解石主要来源是陆源 碎屑和自生沉淀,因此MgO/CaO的比值变化近似可 反映湖泊中白云石和方解石的变化,另外Al₂O₃主要



图 3 柴达木盆地第四系K9—K7 层段和K5—K4 层段沉积 期湿度



Fig. 3 Humidity of the depositional period of the K9–K7 section

来源为陆源碎屑,可校正陆源碎屑输入的变化。因此 CaO/(MgO+Al₂O₃)比值可以反映湖泊自生碳酸钙沉 淀的多少,进而反映气温的高低。K9—K7 层段 CaO/ (MgO+Al₂O₃)为 0.20~0.68, 主要分布在 0.36~0.59, 平均值为0.45; K5-K4层段CaO/(MgO+Al₂O₃)为 0.39~0.59, 平均值为0.50, 略高于K9-K7 层段, 说 明K5—K4 层段沉积时温度高于K9—K7 层段。

(2)Mg/Ca含量比

温度影响元素Mg、Ca的沉淀,湖泊体系中, Mg/Ca 比值的高低可以很好的指示温度的高低^[27-28]。K9—K7 层段Mg/Ca为0.25~0.88,平均值为0.43;K5-K4层段 Mg/Ca为0.22~0.31, 平均值为0.26, 低于K9—K7 层段, 说明K9—K7 层段沉积时温度低于K5—K4 层段。

(3)Ba含量

温度影响钡盐的溶解度, Ba含量越高, 表示 气候越寒冷^[29-30]。K9—K7层段Ba含量为(624.09~ 6086.90)×10⁻⁶; K9—K7 层 段Ba含 量 为(424.52~ 638.59)×10-6;明显低于K9-K7层段,说明K9-K7 层段沉积时水体温度相对较低。

K9—K7 层段具有较低的CaO/(MgO+Al₂O₃)、较 高的Mg/Ca和Ba值, 三者有很好的一致性, 均说明 K9—K7 层段沉积时温度低于K5—K4 层段(图 4)。

K9—K7 层段沉积时,处于间冰期,气候温凉湿 润,至K5-K4层段沉积时,由于青藏运动C幕^[31], 青藏高原迅速隆升,在夏季风和热源作用下,气候变 得干旱,气温上升,这与两个时期氧同位素^[32-33]、磁 化率[34]、岩相变化[35]、化石类型[36]和全球陆地区域气 候模拟结果[37-38]相一致。



图 4 柴达木盆地第四系 K9—K7 层段和 K5—K4 层段沉积期温度

Mg/Ca

(a) Ba含量-Mg/Ca

0.4

0.6

Fig. 4 The paletemperatures of the depositional period of the K9-K7 section and K5-K4 section of the Quaternary in the Qaidam Basin

• K9—K7

K5--K4

0.2

4 气候变化对有机质富集的影响

4.1 气候变化对生物生产力的影响

4.1.1 生物生产力评价参数

(1)铜(Cu)、锌(Zn)含量

Cu作为营养元素在水体中被生物摄食,Zn是数 百种酶的辅元素,参与浮游生物生长的各方面新陈代 谢,对生物体的生长非常重要,而且Cu和Zn还可与 有机质结合或形成络合物沉积^[39-40],因此高值的Cu 和Zn可以指示高的生物生产力。K9—K7 层段Cu含量为(24.12~83.40)×10⁻⁶(平均值为38.98×10⁻⁶,中位数为32.70×10⁻⁶),Zn含量为(68.15~129.40)×10⁻⁶(平均值为97.74×10⁻⁶,中位数为100.74×10⁻⁶);K5—K4层段Cu含量为(12.86~26.57)×10⁻⁶(平均值为19.48×10⁻⁶,中位数为19.04×10⁻⁶),Zn含量为(41.20~97.30)×10⁻⁶(平均值为66.67×10⁻⁶,中位数为66.75×10⁻⁶)(图5)。K9—K7层段Cu含量和Zn含量远高于K5—K4层段,表明K9—K7层段的生物生产力明显高于K5—K4层段。



图 5 柴达木盆地第四系沉积期生物生产力和氧化还原保存条件的综合柱状图

Fig. 5 Integrated histogram of biological productivity and redox preservation conditions during the Quaternary depositional period in the Qaidam Basin (a.K9–K7; b.K5–K4)

(2)总有机碳(TOC)含量

TOC是有生物生产力最直接的指标^[41-42]。K9—K7 层段的TOC为0.78%~1.66%,K5—K4 层段的TOC为 0.13%~0.71%(图5),表明K9—K7 层段的生物生产力 明显高于K5—K4 层段。

Cu含量、Zn含量、TOC表现出较好的一致性。 K9—K7 层段具有较高的Cu含量、Zn含量、TOC,表 明K9—K7 层段具有更高的生物生产力。

4.1.2 气候变化对植被类型的影响

正构烷烃C₂₇/C₃₁比值是表示木本植物和草本植物 优势度的常用参数。当C₂₇为单峰碳数分布主峰时, 这反映了木本植物的较高输入量;而当C₃₁为单峰碳 数分布主峰时,则表示草本植物占据优势地位^[43-44]。 K9—K7 层段的C₂₇/C₃₁比值为 0.86~1.49, K5—K4 层 段的C₂₇/C₃₁比值为 1.58~1.89,说明K9—K7 层段的有 机质来源以草本植物为主,K5—K4 层段的有机质来 源中木本植物所占比例较高。

温凉湿润的环境更有利于草本植物的生长,K9— K7 层段沉积时处于间冰期,气候温凉湿润,灌木及草本 植物花粉占绝对优势(90%以上),主要是篙属、麻黄科 和黎科,较为常见的是禾本科、菊科(除篙属外)、十字 花科、伞形科、蔷薇科等^[45-47]。木本植物花粉少(4.43% 左右),种类单调,较多的是松属,含少量的冷杉和云 杉属及桦、栎、柳、榆属等。K5—K4 层段沉积时由于 青藏高原的快速抬升,夏季风和热源的作用增强,温度 相对K9—K7 层段沉积时略有增加,气候也更加干旱, 木本植物含量随之升高(图 6),花粉占 5.63%,大多为 云杉和冷杉,其它的乔木类,如松、柳属等数量很少。 4.1.3 植被类型对生物生产力的影响

K9—K7 层段沉积时,气候温凉湿润,相对较冷的气候条件对草本植物的生长非常有利。草本植物富含纤维素、半纤维素、糖类、淀粉、果胶等^[5,48],为产甲烷菌提供了丰富的营养物质,从而提高了生物生产力。在K5—K4 层段沉积时,新构造运动使得青藏高原迅速上升到约 2000 m左右^[49-50],夏季风和热源的作用也随之增强,气候变得干燥。在少量降雨和较高温度的双重作用下,木本植物所占比例上升,木本植物的营养物质(如纤维素和半纤维素)含量远低于草本植物^[51-52],造成生物生产力下降(图 7)。

4.2 气候变化对有机质保存的影响

4.2.1 保存条件评价

(1)铀/钍(U/Th)含量比

在氧化环境中,铀(U)通常以UO₂(CO₃)₃⁴的形式存在,具有较高的溶解度。而在还原环境中,UO₂(CO₃)₃⁴以扩散的方式进入沉积物,因此造成沉积物中铀的富集。而钍(Th)是一种相对惰性的元素,通常富集在黏土碎屑中。因此,U/Th值可以作为鉴别氧化还原环境的一个参数,U/Th值越高则表示环境中还原性越强^[23,39,53-55]。柴达木盆地第四系K9—K7层段U/Th为0.18~0.37(平均值为0.26,中位数为0.28),K5—K4层段U/Th为0.20~0.25(平均值为0.22,中位数为0.22)(图5),说明K9—K7层段沉积时水体还原性略强于K5—K4层段沉积时水体。

(2)铬(Cr)含量

氧化环境下, Cr以CrO42-形式存在, 可溶性高,





Fig. 6 Plant type index versus climate index of the depositional period of the K9–K7 section and K5–K4 section of the Quaternary in the Qaidam Basin

而在还原环境中,易被吸附^[56]。因此,高的Cr含量一般反映还原的环境。K9—K7 层段Cr为(97.50~160.00)×10⁻⁶(平均值为130.94×10⁻⁶,中位数为136.25×10⁻⁶),K5—K4 层段Cr含量为(49.24~120.88)×10⁻⁶(平均值为92.31×10⁻⁶,中位数为98.30×10⁻⁶)(图5),说明K9—K7 层段沉积时水体还原性强于K5—K4 层段沉积时。

(3)镍/钴(Ni/Co)含量比

Ni、Co在还原环境下易于富集, Jones和Manning 通过黄铁矿矿化度(DOP)和Ni/Co对比认为, Ni/Co越 高,反映环境还原性越高^[56-57]。K9—K7 层段Ni/Co 为 1.91~2.71(平均值为 2.28,中位数为 2.35),K5— K4 层段Ni/Co为 0.91~2.21(平均值为 1.69,中位数为 1.82)(图 5),说明K9—K7 层段沉积时水体还原性强于 K5-K4 层段沉积时。

3个参数表现出一致性, K9—K7 具有较高的U/Th、 Cr和Ni/Co,均表明K9—K7 层段沉积时还原性均强于 K5—K4 层段沉积时(图 8), K9—K7 层段沉积时有机质 保存条件更好。此外,在K9—K7 层段发现了黄铁矿, 而在K5—K4 层段未发现黄铁矿,也证实了这一点。 4.2.2 气候变化对水体分层程度的影响

水体分层是指水体中不同深度的水层之间存在 着明显的密度(温度等)差异,从而形成了分层现 象^[58-59]。当水体受到外界因素的影响时,如风、流、 温度等,会产生水体的运动和混合,从而使水体中的 物质分布均匀。但是,当这些因素不足以均匀混合水 体中的物质时,就会出现水体分层的现象。

V/(V+Ni)是常用来评价水体分层的参数。V富集



图 7 柴达木盆地第四系 K9—K7 层段和 K5—K4 层段生产力指数随植被类型指数变化图 Fig. 7 Productivity index index versus plant type index of the depositional period of the K9–K7 section and K5–K4 section of



图 8 柴达木盆地第四系 K9—K7 层段和 K5—K4 层段氧化还原保存条件

Fig. 8 Redox conditions of the depositional period of the K9–K7 section and K5–K4 section of the Quaternary in the Qaidam Basin

于水体分层较强的还原环境,Hatch和Leventhal通过 对比黄铁矿矿化度(DOP)和V/(V+Ni)关系后,发现 V/(V+Ni)越高指示水体分层性越强的还原环境^[60]。柴 达木盆地第四系K9—K7 层段的V/(V+Ni)为0.74~0.76, K5—K4 层段的V/(V+Ni)为0.67~0.74,K9—K7 层段沉 积时水体分层性强于K5—K4 层段。Mn和Fe是分异性 较好的元素^[61],K9—K7 层段Mn/Fe含量相对稳定、变 化幅度小(0.0203~0.0279),K5—K4 层段Mn/Fe比值变 化幅度较大(0.0169~0.0315),说明K5—K4 层段发生了 上层水体和下层水体的混合,水体分层性较差,说明 V/(V+Ni)比值可在本地区反映水体的分层程度。

更新世早一中期(K9-K7层段沉积时),气候温

凉湿润,降水充足,水体较深,受到的光照越少,温度越低,密度越大,分层现象就越明显。更新世晚期(K5—K4层段沉积时),气候变得干旱,水体变浅,上层温暖富氧水体和下层贫氧水体混合,分层现象减弱(图 9a)。温度升高,水体中的密度差异减小,而且水体温度升高还会促进水体中的物质混合,从而使水体中的物质分布更加均匀,导致K5—K4层段沉积时水体分层性减弱(图 9b)。

4.2.3 水体分层程度对有机质保存的影响

K9—K7 层段沉积时,温度较低,水体分层较强, 上层水体富氧,而下层水体则缺氧。下层水体的较强 还原性阻碍了沉积有机物的分解(图 10),有机物保存



图 9 柴达木盆地第四系 K9—K7 层段和 K5—K4 层段水体分层指数随气候指数变化图

Fig. 9 Water column stratification index versus climate index of the depositional period of the K9–K7 section and K5–K4 section of the Quaternary in the Qaidam Basin



Fig. 10 Redox conditions versus water column stratification index of the depositional period of the K9–K7 section and K5–K4 section of the Quaternary in the Qaidam Basin

条件好^[54-55]。此外,较低的温度能有效抑制表层条件 下产甲烷细菌的活动,避免浅埋阶段有机物的过度消 耗,从而推迟生物产气的高峰期,有利于有机物的保 存。在K5—K4 层段的沉积期,水体的分层作用减弱, 下层的缺氧水逐渐与上层的富氧温水混合。这导致下 层水体水温升高,缺氧还原环境遭到破坏,沉积有机 物被稀释和氧化分解(图 10)。另一方面,较高的温度 使得产甲烷菌活动增强,有机物在浅埋阶段就被消耗, 不利于有机物的保存。

5 有机质沉积模式

在更新世早一中期(K9—K7 层段沉积时期)(图 11a),气候温凉湿润,降水量大,水体分层性好,草 本植物生长茂盛。这对有机质富集产生了双重影响。 一方面,水体分层较强,导致上层水体含氧量较高, 草本植物富含纤维素、半纤维素、糖、淀粉和果胶, 这些有机物容易被产甲烷菌利用。这促使水体表层的 生物生产力较高。另一方面,较强的水体分层还可使



图 11 柴达木盆地第四纪更新世有机质沉积模式图(a)更新世早一中期;(b)更新世晚期

Fig. 11 Map of Quaternary Pleistocene organic matter deposition patterns in the Qaidam Basin(a) Early-Middle Pleistocene;(b) Late Pleistocene

水体下层的还原性增强,有利于从上层沉积下来的有 机物的保存,从而有利于沉积有机物的富集。同时, 相对较低的温度有效抑制了表层条件下产甲烷菌的活 动,避免了浅埋阶段有机质的过度消耗。这进一步延 缓了生物产气的高峰期,有助于维持有机质的保存。

在更新世晚期(K5—K4 层段沉积时期)(图 11b), 气温升高,降水减少,水体分层被破坏,植被向木本 植物演变。一方面,水体的分层被破坏,下层缺氧水 体与上层温暖富氧水体混合,下层水体的缺氧还原环 境被破坏,上层水体的含氧量降低,水体温度变低。 另一方面,甲烷细菌可利用的营养物质减少。这两个 因素都会降低水体表层的生物生产力。水体分层减弱, 下层还原性被破坏,从上层沉降下来的沉积有机物被 破坏,不利于沉积有机物的保存。同时,温度升高会 增加产甲烷细菌的活性,在埋藏深度较浅的地方会产 生生物气体。浅层生物气由于上层缺乏遮蔽而无法在 储层中积聚,并随之流失,消耗了大量的有机质,不 利于有机质的保存。 对象。通过有机质丰度、主微量元素等多项实验,明确了更新世早一中期和晚期的气候变化,从生物生产 力和有机质氧化还原保存条件两个方面阐明了第四纪 气候变化及其有机质富集的影响。

(1)在更新世早一中期,气候温凉湿润,草本植物 生长茂盛,草本植物富含纤维素、半纤维素、糖、淀 粉和果胶,导致生物生产力较高。同时,降水量大, 水体分层强,下层水体还原性高,有利于上层沉积下 来的有机物的保存,从而有利于沉积有机物的富集。 此外,相对较低的温度有效地抑制了表层条件下产甲 烷菌的活动,防止了有机物在浅埋阶段的过度消耗, 有助于有机质的保存。

(2)在更新世晚期,在新构造运动下,青藏高原隆 升,气候变得干旱,气温上升,木本植物比例增大, 产甲烷菌可利用的营养物质减少,降低了生物生产力。 同时,水体变浅,下层缺氧水体与上层富氧水体混合, 水体分层性减弱,使得下层水体的缺氧还原环境被破 坏,从上层沉降下来的沉积有机物被破坏,不利于有 机质的保存。此外,相对较高的温度促使产甲烷菌更 为活跃,导致有机物在浅埋阶段就被消耗,不利于有 机质的保存。

6 结论

本文选取柴达木盆地第四纪更新世泥页岩为研究

参考文献

- [1] RICE D, CLAYPOOL G. Generation, accumulation, and resource potential of biogenic gas[J]. AAPG Bulletin, 1981, (65): 5–25.
- [2] 张水昌,赵文智,李先奇,等.生物气研究新进展与勘探策略[J].石油勘探与开发,2005,32(4):90-96. [ZHANG S C, ZHAO W Z, LI X Q, et al. Advances in biogenic gas studies and play strategies[J]. Petroleum Exploration and Development, 2005, 32(4): 90-96.]
- [3] 林培贤,张霞,林春明,等. 柴达木盆地三湖坳陷诺北地区第四纪生物气形成及影响因素[J]. 高校地质学报, 2018, 24(6): 810-821. [LIN P X, ZHANG X, LIN C M, et al. Formation mechanism and factors on the accumulations of the quaternary biogenic gas in the Nuobei Area in the Sanhu Depression, Qaidam Basin[J]. Geological Journal of China Universities, 2018, 24(6): 810-821.]
- [4] 付锁堂. 柴达木盆地天然气勘探领域[J]. 中国石油勘探, 2014, 19(4): 1-10. [FU S T. Natural gas exploration in Qaidam Basin[J]. China Petroleum Exploration, 2014, 19(4): 1-10.]
- [5] 宋德康,刘晓雪,邵泽宇,等. 柴达木盆地三湖坳陷第四系泥岩气藏成藏模式[J]. 油气藏评价与开发, 2023, 13(4): 495-504.
 [SONG D K, LIU X X, SHAO Z Y, et al. Accumulation mode of Quaternary mudstone gas reservoir in Sanhu Depression, Qaidam Basin[J]. Petroleum Reservoir Evaluation and Development, 2023, 13(4): 495-504.]
- [6] 蒲阳,张虎才,雷国良,等.西北地区晚第四纪沉积地层一元正脂肪酸酰胺分布特征及古气候意义[J]. 地球科学进展, 2010, 25(5): 533-542. [PU Y, ZHANG H C, LEI G L, et al. Distribution and characteristics of n-fatty acid amides in Late-Quaternary sediments from northwestern China and their paleoclimatic significance[J]. Advances in Earth Science, 2010, 25(5): 533-542.]
- [7] 杨平,陈晔,刘泽纯.柴达木盆地自然伽玛曲线在古气候及沉积环境研究中的应用[J]. 古地理学报, 2003, 5(1): 94-102. [YANG P, CHEN Y, LIU Z C. Application of gamma ray log to study on palaeoclimate and sedimetary environments of the Jurassic in Qaidam Basin[J]. Journal of Palaeogeography, 2003, 5(1): 94-102.]
- [8] ROBERTS H M. The development and application of luminescence dating to loess deposits: A perspective on the past, present and future[J]. Boreas, 2008, 37(4): 483-507.
- [9] COMES H P, KADEREIT J W. The effect of Quaternary climatic changes on plant distribution and evolution[J]. Trends in plant science, 1998, 3(11): 432–438.
- [10] YANG X, ZHU B, WANG X, et al. Late Quaternary environmental changes and organic carbon density in the Hunshandake sandy land,

eastern Inner Mongolia, China[J]. Global and Planetary Change, 2008, 61(1-2): 70-78.

- [11] 单俊峰, 鞠俊成, 张文伟, 等. 柴达木盆地三湖坳陷盐壳遮挡型生物气成藏模式[J]. 天然气工业, 2019, 39(8): 25-32. [SHAN J F, JU J C, ZHANG W W, et al. Hydrocarbon accumulation patterns of salt crust covered biogenic gas reservoirs in the Sanhu Depression, Qaidam Basin[J]. Natural Gas Industry, 2019, 39(8): 25-32.]
- [12] YIN M S, HUANG H P, CHENG L. Molecular fingerprints in shales from the Sanhu biogenic gas fields in eastern Qaidam Basin, NW China: Evidence of biodegradation of shale organic matter[J]. Marine and Petroleum Geology, 2021, 133: 105289.
- [13] PEI G, LIU C Y, HUANG L, et al. Paleosalinity evolution of the Late Cenozoic saline lake in the Qaidam Basin, NE Tibetan Plateau: Tectonic vs. climatic control[J]. Global and Planetary Change, 2018, 165: 44–61.
- [14] 吴婵, 阎存凤, 李海兵, 等. 柴达木盆地西部新生代构造演化及其对青藏高原北部生长过程的制约[J]. 岩石学报, 2013, 29(6):
 2211-2222. [WU C, YAN C F, LI H B, et al. Cenozoic tectonic evolution of the western Qaidam Basin and its constrain on the growth of the northern Tibetan Plateau[J]. Acta Petrologica Sinica, 2013, 29(6): 2211-2222.]
- [15] 薛光华,杨永泰. 柴达木盆地北缘中新生代构造演化与油气的关系[J]. 大庆石油地质与开发, 2002, 21(1): 35-37. [XUE G H, YANG Y T. Mesozoic tectonic evolution of the northern margin of the Qaidam Basin relationship with oil and gas[J]. Petroleum Geology & Oilfield Development in Daqing, 2002, 21(1): 35-37.]
- [16] 党玉琪,张道伟,徐子远,等.柴达木盆地三湖地区第四系沉积相与生物气成藏[J].古地理学报,2004,6(1):110-118. [DANG Y Q, ZHANG D W, XU Z Y, et al. Sedimentary facies and biogenic gas pool of the Quaternary of Sanhu area in Qaidam Basin[J]. Journal of Palaeogeography, 2004, 6(1): 110-118.]
- [17] 管志强,夏斌,吕宝凤. 柴达木盆地三湖地区生物气成藏基本要素及其配置性[J]. 天然气地球科学, 2008, 19(2): 165-170. [GUAN Z Q, XIA B, LV B F. Elementary factors and their configuration of biogas accumulation in eastern Qaidam Basin[J]. Nature Gas Geoscience, (2): 165-170.]
- [18] 魏国齐, 刘德来, 张英, 等. 柴达木盆地第四系生物气形成机理、分布规律与勘探前景[J]. 石油勘探与开发, 2005, 32(4): 84-89.
 [WEI G Q, LIU D L, ZHANG Y, et al. For mation mechaism, distributon feature and exploration prospect of the Quaternary biogenic gas in Qaidam Basin, NW China[J]. Petroleum Exploration and Development, 2005, 32(4): 84-89.]
- [19] LIU X X, JIANG Z X, TANG X L, et al. Geochemical characteristics and origin of the formation water of the saline lake basin: A case study of the Quaternary Qigequan Formation in the Sanhu Depression, Qaidam Basin[J]. Geoscience Letters, 2024, 11(14): 1–13.
- [20] 安成,柳广弟,孙明亮,等.鄂尔多斯盆地三叠系延长组长 7,亚段页岩纹层发育特征及类型划分[J]. 石油科学通报, 2023, 8(2):
 125-140. [AN C, LIU G, SUN M, et al. Development characteristics and classification of shale laminae in the Chang 7, sub-member of the Triassic Yanchang Formation in the Ordos Basin[J]. Petroleum Science Bulletin, 2023, 8(2): 125-140.]
- [21] 汪凯明,罗顺社.碳酸盐岩地球化学特征与沉积环境判别意义——以冀北坳陷长城系高于庄组为例[J].石油与天然气地质,2009, 30(3): 343-349. [WANG K M, LUO S S. Geochemical characters of carbonates and indicative significance of sedimentary environment - an example from the Gaoyuzhuang Formation of the Changcheng system in the northern Hebei Depression[J]. Oil & Gas Geology, 2009, 30(3): 343-349.]
- [22] 任俊豪,李美俊,阳孝法,等.加拿大麦凯河油砂含油性差异的形成机理[J].石油科学通报,2024,9(1):73-88. [REN J, LI M, YANG X, et al. Mechanism of oil content difference in Mackay River oil sands, Canada[J]. Petroleum Science Bulletin, 2024,9(1):73-88.]
- [23] FATHY D, ABART R, WAGREICH M, et al. Late campanian climatic-continental weathering assessment and its influence on source rocks deposition in southern Tethys, Egypt[J]. Minerals, 2023, 13(2): 160.
- [24] YU K, LIU L, LI A, et al. The Rb/Sr ratios of the bulk sediments in Lake Chaonaqiu of Liupan Mountains, the western Chinese Loess Plateau and its paleoclimate implications[J]. Quaternary Sciences, 2023, 43(1): 122–130.
- [25] 杜晨,张兵,张世涛,等. 浅谈湖泊沉积环境演变中元素地球化学的应用及原理[J]. 地质与资源, 2012, 21(5): 487-492. [DU T, ZHANG B, ZHANG S T, et al. Application and principle of element geochemistry in the evolution of lake sedimentary environment geology and resources[J]. Geology and Resources, 2012, 21(5): 487-492.]
- [26] SHETTIMA B, ADAMS F D, HARUNA A I, et al. Geochemical facies of the Turonian Gongila Formation, Bornu (chad) Basin, Nigeria: implication for provenance, paleoclimate and paleoweathering conditions[J]. International Journal of Research–GRANTHAALAYAH, 2018, 6(4): 144–156.
- [27] 吴永红. 湖泊沉积物 Mg/Ca作为气候代用指标的局限性[J]. 安庆师范学院学报(自然科学版), 2016, 22(3): 102-105. [WU Y Y. Limitation of Mg/Ca ratio as a climate indicator in lake sediment[J]. Journal of Anqing Normal University(Natural Science Edition), 2016, 22(3): 102-105.]
- [28] HOOGAKKER B A A, KLINKHAMMER G P, ELDERFIELD H, et al. Mg/Ca paleothermometry in high salinity environments[J]. Earth and Planetary Science Letters, 2009, 284(3-4): 583-589.
- [29] 谢建磊,赵宝成,战庆,等.元素地球化学在古环境和古生态研究中的应用综述[J].上海国土资源, 2015, 36(3): 64-70. [XIE J L, ZHAO B C, ZHAN Q, et al. Review of geochemical applications for paleenvironmental and paleoecological analyses[J]. Shanghai Land

& Resources, 2015, 36(3): 64-70.]

- [30] 李华章. 北京地区第四纪古地理研究[M]. 北京: 地质出版社, 1995. [LI H Z. Study on the quaternary paleogeography in Beijing region[M]. Beijing: Geological Publishing House, 1995.]
- [31] 朱筱敏,康安,韩德馨,等. 柴达木盆地第四纪环境演变、构造变形与青藏高原隆升的关系[J]. 地质科学, 2003, (3): 367-376.
 [ZHU X M, KANG A, HAN D X, et al. Relation among Quaternary environment evolution, tectonic deformation in the Qaidam Basin and uplifting of the Qinghai-Tibet Plateau[J]. Chinese Journal of Geology(Scientia Geologica Sinica), 2003, (3): 367-376.]
- [32] 尹成明,李伟民, ANDREA R,等. 柴达木盆地新生代以来的气候变化研究:来自碳氧同位素的证据[J]. 吉林大学学报(地球科学版), 2007, (5): 901-907. [YIN C M, LI W, ANDREA R, et al. Cenozoic climate changes in the Qadidam Basin, Western China: evidenced from carbon and oxygen stable isotope[J]. Journal of Jilin University(Earth Science Edition), 2007, (5): 901-907.]
- [33] MCCLYMONT E L, ELMORE A C, KENDER S, et al. Pliocene Pleistocene evolution of sea surface and intermediate water temperatures from the southwest Pacific[J]. Paleoceanography, 2016, 31(6): 895–913.
- [34] 王永贵,李义民,陈宗颜,等. 柴达木盆地第四纪沉积环境演化[J]. 水文地质工程地质, 2009, 36(1): 128-132. [WANG Y G, LI Y M, CHEN Z Y, et al. Evolution of the sedimentary environment in the Qadidam Basin over the Quaternary Period[J]. Hydrogeology & Engineering Geology, 2009, 36(1): 128-132.]
- [35] WANG J, FANG X, APPEL E, et al. Pliocene–Pleistocene climate change at the NE Tibetan Plateau deduced from lithofacies variation in the drill core SG-1, western Qaidam Basin, China[J]. Journal of Sedimentary Research, 2012, 82(12): 933–952.
- [36] 朱筱敏,康安,胡宗全,等. 柴达木盆地第四系层序地层特征与油气评价[J]. 石油勘探与开发, 2002, (1): 56-60. [ZHU X M, KANG A, HU Z Q, et al. Quaternary sequence stratigraphy and hydrocarbon evaluation in Qaidam Basin[J]. Petroleum Exploration and Development, 2002, (1): 56-60.]
- [37] WATANABE Y, ABE-OUCHI A, SAITO F, et al. Astronomical forcing shaped the timing of early Pleistocene glacial cycles[J]. Communications Earth & Environment, 2023, 4(1): 113.
- [38] BROWN J L, HILL D J, DOLAN A M, et al. PaleoClim, high spatial resolution paleoclimate surfaces for global land areas[J]. Scientific data, 2018, 5(1): 1–9.
- [39] CHASAPIS C T, NTOUPA P S A, SPILIOPOULOU C A, et al. Recent aspects of the effects of zinc on human health[J]. Archives of toxicology, 2020, 94: 1443-1460.
- [40] DESAULTY A M, PETELET-GIRAUD E. Zinc isotope composition as a tool for tracing sources and fate of metal contaminants in rivers[J]. Science of the total environment, 2020, 728: 138599.
- [41] KHAN M Z, FENG Q, ZHANG K, et al. Biogenic silica and organic carbon fluxes provide evidence of enhanced marine productivity in the Upper Ordovician-Lower Silurian of South China[J]. Palaeogeography, Palaeoclimatology, Palaeoecology, 2019, 534: 109278.
- [42] SCHOEPFER S D, SHEN J, WEI H, et al. Total organic carbon, organic phosphorus, and biogenic barium fluxes as proxies for paleomarine productivity[J]. Earth-Science Reviews, 2015, 149: 23–52.
- [43] MATHEWS R P, CHETIA R, AGRAWAL S, et al. Early Palaeogene climate variability based on n-alkane and stable carbon isotopic composition evidenced from the Barsingsar Lignite-bearing sequence of Rajasthan[J]. Journal of the Geological Society of India, 2020, 95: 255-262.
- [44] YANG Q L, GUO J. Reconstruction of the paleoclimate from valikhanov loess sequence in central Asia arid zone since 32 ka through N-alkane biomarker analysis[J]. Available at SSRN, 2022: 4072913.
- [45] CAI M, FANG X, WU F, et al. Pliocene–Pleistocene stepwise drying of central Asia: Evidence from paleomagnetism and sporopollen record of the deep borehole SG-3 in the western Qaidam Basin, NE Tibetan Plateau[J]. Global and Planetary Change, 2012, 94: 72–81.
- [46] 唐领余, 沈才明. 青藏高原上新世以来植被与气候研究进展[J]. 地球科学进展, 1996, (2): 198-203. [TANG L Y, SHEN C M. Progresses in the study of vegetation and climate changes since Pliocene in the Qinghai-Xizang Platea[J]. Advances in Earth Science, 1996, (2): 198-203.]
- [47] 吴国瑄, 王开发. 柴达木盆地西北部第四纪孢粉分析[J]. 冰川冻土, 1987, 9(2): 157-164. [Sporo-pollen analysis of the Quaternary in the Northwest of the Chaidam Bain[J]. Journal of Glaciology and Geocryology, 1987, 9(2): 157-164.]
- [48] DANG Y, ZHAO W, SU A, et al. Biogenic gas systems in eastern Qaidam Basin[J]. Marine and Petroleum Geology, 2008, 25(4-5): 344-356.
- [49] YU M, DICK J M, FENG C, et al. The tectonic evolution of the East Kunlun Orogen, northern Tibetan Plateau: A critical review with an integrated geodynamic model[J]. Journal of Asian Earth Sciences, 2020, 191: 104168.
- [50] DING L, KAPP P, CAI F, et al. Timing and mechanisms of Tibetan Plateau uplift[J]. Nature Reviews Earth & Environment, 2022, 3(10): 652–667.
- [51] 关德师. 控制生物气富集成藏的基本地质因素 [J]. 天然气工业, 1997, 17(1-3): 8-12. [GUAN D S. Fundamental geologic factors controlling biogas accumulation[J]. Natural Gas Industry, 1997, 17(1-3): 8-12.]
- [52] 刘建, 徐莹, 赵智鹏. 生物气源岩评价指标体系研究 [J]. 海洋地质前沿, 2015, 31(1): 16-23. [LIU J, XU Y, ZHAO Z P. Research of

the evaluation indicator system for biogenic gas source rocks[J]. Marine Geology Frontiers, 2015, 31(1): 16–23.]

- [53] ALGEO T J, MAYNARD J B. Trace-element behavior and redox facies in core shales of Upper Pennsylvanian Kansas-type cyclothems[J]. Chemical geology, 2004, 206(3-4): 289-318.
- [54] ZHANG K, JIA C Z, SONG Y, et al. Analysis of Lower Cambrian shale gas composition, source and accumulation pattern in different tectonic backgrounds: A case study of Weiyuan Block in the Upper Yangtze region and Xiuwu Basin in the Lower Yangtze region[J]. Fuel, 2020, 263: 115978.
- [55] ZHANG K, SONG Y, JIA C Z, et al. Formation mechanism of the sealing capacity of the roof and floor strata of marine organic-rich shale and shale itself, and its influence on the characteristics of shale gas and organic matter pore development[J]. Marine and Petroleum Geology, 2022, 140: 105647.
- [56] 韦恒叶. 古海洋生产力与氧化还原指标——元素地球化学综述[J]. 沉积与特提斯地质, 2012, 32(2): 76-88. [WEI H Y. Productivity and redox proxies of palaeo-oceans: An overview of elementary geochemistry[J]. Sedimentary Geology and Tethyan Geology, 2012, 32(2): 76-88.]
- [57] YAN H U, YONGXING H U, XIANG Z, et al. Geochemical features and geological significance of sandstone-type uranium deposit in Zhenyuan area, southwestern Ordos Basin[J]. Geoscience, 2020, 34(6): 1153.
- [58] LI H, LAN J, QIN B, et al. Effects of Term climate change and selective discharge schemes on the thermal stratification of a large deep reservoir, Xin'anjiang Reservoir, China[J]. Water, 2022, 14(20): 3279.
- [59] AHONEN S A, SEPPÄLÄ J, KARJALAINEN J S, et al. Increasing air temperature relative to water temperature makes the mixed layer shallower, reducing phytoplankton biomass in a stratified lake[J]. Freshwater Biology, 2023, 68(4): 577–587.
- [60] HATCH J R, LEVENTHAL J S. Relationship between inferred redox potential of the depositional environment and geochemistry of the Upper Pennsylvanian (Missourian) Stark shale member of the Dennis Limestone, Wabaunsee County, Kansas, USA[J]. Chemical Geology, 1992, 99(1–3): 65–82.
- [61] KOINIG K A, SHOTYK W, LOTTER A F, et al. 9000 years of geochemical evolution of lithogenic major and trace elements in the sediment of an alpine lake-the role of climate, vegetation, and land-use history[J]. Journal of paleolimnology, 2003, 30: 307–320.

(编辑 付娟娟)