

<https://doi.org/10.3799/dqkx.2018.334>



早三叠世海洋异常的碳—氮—硫同位素记录

宋虎跃, 童金南, 杜 勇, 宋海军, 田 力, 楚道亮

中国地质大学生物地质与环境地质国家重点实验室, 湖北武汉 430074

摘要: 早三叠世作为显生宙最大生物灭绝之后的一段特殊地质历史时期, 不仅见证了海洋生物的迟缓复苏, 而且记录了极其动荡的海洋环境变化, 该时期异常的生物环境事件及其机制已经成为当前国际地质学者关注的重大科学问题之一。近些年来, 研究学者在早三叠世的碳—氮—硫异常循环研究中取得了许多重要的进展, 这对深入理解该时期的环境演变及其对生物复苏的影响十分重要。重点回顾近年来关于早三叠世古海洋碳—氮—硫循环方面的研究进展, 对当前存在的科学问题及发展趋势进行分析和总结。

关键词: 早三叠世; 碳同位素; 氮同位素; 硫同位素; 海洋缺氧; 地层学。

中图分类号: P539.7

文章编号: 1000-2383(2018)11-3922-10

收稿日期: 2017-12-20

Large Perturbed Marine Carbon-Nitrogen-Sulfur Isotopes during Early Triassic

Song Huyue, Tong Jinnan, Du Yong, Song Haijun, Tian Li, Chu Daoliang

State Key Laboratory of Biogeology and Environmental Geology, China University of Geosciences, Wuhan 430074, China

Abstract: Early Triassic oceans recorded the delayed biotic recovery and the large perturbed environments. Hence, the environmental events and their mechanism became one of the key scientific topics for the geological scientists. In recent years, researchers have made many significant progresses in the marine carbon-nitrogen-sulfur cycles of the Early Triassic, which are important for understanding the co-evolution between the biotic recovery and environmental changes. The progress, problem and future development in the researches of carbon-nitrogen-sulfur cycles during the Early Triassic have been reviewed and summarized.

Key words: Early Triassic; carbon isotope; nitrogen isotope; sulfur isotope; ocean anoxia; stratigraphy.

古—中生代之交记录了显生宙最大的生物灭绝事件和历时最长的生态系统重建过程(童金南和殷鸿福, 2009; Shen *et al.*, 2011; Chen and Benton, 2012; Song *et al.*, 2013), 与之相对应, 海洋和陆地发生了一系列异常且恶劣的环境事件(Payne *et al.*, 2004; Shen *et al.*, 2011; Chen and Benton, 2012; Sun *et al.*, 2012; Song *et al.*, 2013, 2014)。该时期生物—环境事件研究是认识和理解地球生物学核心理论——“生物与环境协同演化关系”的重要实例, 同时也是国际地质学者关注和致力解决的关键科学问题之一。

该时期出现的异常环境包括: 长期的温室气候导致的海水高温(Sun *et al.*, 2012; Romano *et al.*, 2013); 广泛存在的海洋缺氧环境(Song *et al.*, 2012; Grasby *et al.*, 2013; Clarkson *et al.*, 2016; Huang *et al.*, 2017); 动荡的海洋碳—氮—硫循环过程(Payne *et al.*, 2004; Horacek *et al.*, 2007a, 2009; Tong *et al.*, 2007; Song *et al.*, 2013, 2014; Grasby *et al.*, 2016)等。由于二叠纪—三叠纪之交古环境变化相关的总结文章较多(宋海军和童金南, 2016; 及其参考文献), 本文在

基金项目: 国家自然科学基金项目(Nos.41872033, 41402302, 41661134047); 湖北省自然科学基金项目(No.2017CFB610); 安徽省国土资源科技项目(No.2016-K-5)。

作者简介: 宋虎跃(1986—), 男, 副教授, 主要从事古—中生代之交古海洋环境演变研究。ORCID: 0000-0002-9895-208X. E-mail: hysong@cug.edu.cn

引用格式: 宋虎跃, 童金南, 杜勇, 等, 2018. 早三叠世海洋异常的碳—氮—硫同位素记录. 地球科学, 43(11): 3922-3931.

此不对生物大灭绝时期的古环境变化作过多论述.当前关于早三叠世古环境变化的证据大多数来自海相沉积记录,因此本文重点围绕早三叠世异常的海洋碳、氮、硫循环过程进行阐述和总结,同时对其中仍存在的科学问题进行了剖析,为今后进一步的深入研究提供一定的参考.

1 早三叠世异常的碳同位素波动

碳循环研究是认识和理解当代全球变暖问题的重要手段,同时对重建地质历史时期气候和生态系统演变过程十分重要(Kump and Author, 1999; 周广胜, 2003).在重大地质突变期的碳循环研究工作中,学者们主要利用沉积岩记录的无机碳和有机碳同位素来重建古海水、植物的碳同位素组成和同位素分馏系数,然后模拟计算不同碳库的循环过程及大气 CO₂ 含量的变化情况(Berner and Rao, 1994; Kump and Arthur, 1999; Berner and Kothavala, 2001; Berner, 2004, 2006).

1.1 早三叠世碳同位素研究现状和进展

早三叠世是继伊迪卡拉纪之后,海洋碳循环最为动荡的时期之一(Payne *et al.*, 2004; Knoll *et al.*, 2007; 沈树忠等, 2010),剧烈的碳同位素波动与二叠纪—三叠纪之交的生物大灭绝事件及其后的生物迟缓复苏过程紧密相关,因此备受关注(曹长群等, 2002; Payne *et al.*, 2004; Tong *et al.*, 2007; Meyer *et al.*, 2011).我国学者在 21 世纪初对华南安徽巢湖地区的早三叠世地层开展无机碳同位素研究工作,发现该时期记录了数次碳同位素漂移事件(Tong *et al.*, 2002).随后,Payne *et al.*(2004)在《Science》上发表了早三叠世异常的碳循环及其与生态演变关系的文章,揭开了早三叠世碳同位素研究的序幕,同时也使得越来越多的学者关注早三叠世异常的生物环境事件.在过去的十多年时间里,国内外学者围绕华南和其他地区的海相地层开展了系统的无机碳同位素研究工作(Payne *et al.*, 2004; Zuo *et al.*, 2006; Galfetti *et al.*, 2007a; Horacek *et al.*, 2007a, 2007b; Tong *et al.*, 2007; Brühwiler *et al.*, 2009; Horacek *et al.*, 2009; 黄思静等, 2012; Clarkson *et al.*, 2013; Song *et al.*, 2013; 黄可可等, 2013; Caravaca *et al.*, 2017).结果显示(图 1):(1)海相无机碳同位素在短短的 5 个百万年时间里发生了 3~4 次显著的负漂和相应的正漂事件,全岩有机碳同位素呈现类似的变化

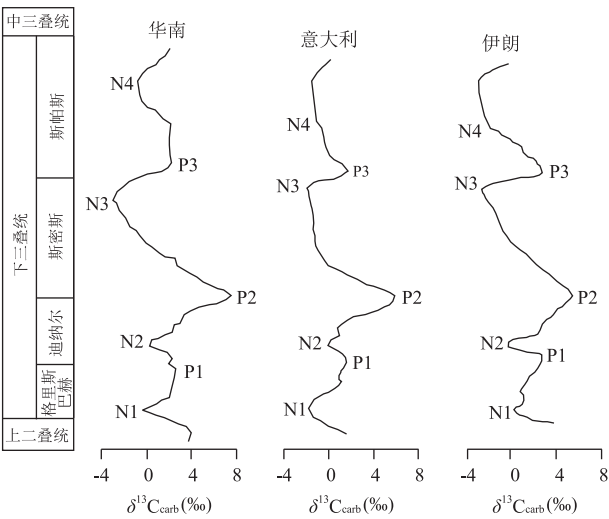


图 1 早三叠世碳同位素组成全球对比
Fig.1 Global correlation of the Early Triassic carbon isotope changes
 $\delta^{13}\text{C}_{\text{carb}}$ 结果均相对于 VPDB;碳同位素分别引自:华南,Payne *et al.* (2004); 意大利,Horacek *et al.* (2007a); 伊朗,Horacek *et al.* (2007b);N 代表碳同位素负偏事件,P 代表碳同位素正漂事件

(Grasby *et al.*, 2013; Meyer *et al.*, 2013).(2)无机碳同位素波动幅度大,最大可以达到 8‰.(3)无机碳同位素漂移事件具有全球可对比性,在华南、中国西藏、欧洲、北美和日本等地区均有发现,代表了古特提斯洋、新特提斯洋和泛大洋等不同的地区(Song *et al.*, 2013).(4)不同地区的碳同位素的绝对值存在明显的差异.研究人员提出以下假说来解释碳同位素的波动:初级生产力的变化(Payne *et al.*, 2004; Zuo *et al.*, 2006; Tong *et al.*, 2007);火山活动(Payne and Kump, 2007);有机碳埋藏的变化(Horacek *et al.*, 2007a);甲烷水合物的合成与分解(黄思静等, 2012);后期成岩作用的影响(Thomazo *et al.*, 2016)等,目前尚未形成定论.值得注意的是,当前报道的早三叠世碳同位素主要是无机碳同位素结果,仅有少量的研究报道了同时期低分辨率的有机碳同位素变化(Galfetti *et al.*, 2007b; Meyer *et al.*, 2013; Sun *et al.*, 2015),且主要集中在华南、美国西部、Spitsbergen 地区和加拿大北部地区(Galfetti *et al.*, 2007b; Grasby *et al.*, 2013; Meyer *et al.*, 2013),冈瓦纳北缘仅有 Smithian-Spathian 之交少量的有机碳同位素数据(Brühwiler *et al.*, 2009).

1.2 碳同位素研究仍面临的问题

由于二叠纪—三叠纪之交生物大灭绝后早三叠世地层中生物化石相对稀少,因此生物地层学研究

手段在很多沉积相和剖面地层对比中发挥不了作用.令人欣喜的是,早三叠世典型的无机碳同位素演化曲线大体上可以进行全球对比,这为解决该时期地层划分和对比提供了有效的解决途径(Tong *et al.*, 2007; Song *et al.*, 2013).但是,在缺乏碳酸盐沉积的碎屑岩相区,无机碳同位素不能被用来进行碳同位素地层研究工作.在这种情况下,有机碳同位素常常被用来进行地层划分和对比(Grasby *et al.*, 2013, 2016; Wignall *et al.*, 2016).的确如此,全球不同地区早三叠世的有机碳同位素组成也呈现了几次显著的漂移事件,虽然这些漂移事件发生的时间大体上是一致的(Grasby *et al.*, 2013; Meyer *et al.*, 2013),但是由于有机碳同位素的变化与高分辨率的生物地层之间的相互关系尚未建立,因此一些学者在进行地层对比时使用的标准存在一定的差异.例如:有机碳同位素的正漂事件常被用来确定碎屑岩相区的 Smithian-Spathian 界线,大多数研究显示该次正漂事件在 Smithian 顶部开始,在 Spathian 底部结束(Grasby *et al.*, 2013; Meyer *et al.*, 2013).然而,Wignall *et al.* (2016) 则将该次正漂过程整个标定在 Spathian 亚阶的底部.由此可见,利用碳同位素进行精确的地层划分和对比仍需进一步的研究工作来证实.

海洋初级生产力变化是导致碳同位素发生变化的主要原因,因此学者们常常利用碳同位素的变化探讨早三叠世海洋初级生产力的变化情况.例如,很多研究表明二叠纪末生物大灭绝导致初级生产力大量消失,同时也引发了碳同位素的负漂事件(曹长群等, 2002; Zuo *et al.*, 2006).然而,一些学者并不认为该时期生产力发生下降,甚至认为初级生产力是上升的(Meyer *et al.*, 2011; Shen *et al.*, 2015).Meyer *et al.* (2011) 认为初级生产力的繁盛造成早三叠世出现显著的碳同位素水深梯度.笔者同时也对华南早三叠世的碳同位素区域性差异进行了系统研究,发现碳同位素水深梯度的主因并不是初级生产力水平的变化,而是早三叠世异常的海水化学结构和环境变化(Song *et al.*, 2013).但是,我们并不排除早三叠世海洋初级生产力对碳同位素波动的重要影响.两者之间具体呈现一种什么关系,仍是值得研究的一个科学问题.

近几年,相关研究提出后期成岩作用是导致早三叠世碳同位素变化的一个主要原因(Li and Jones, 2016; Thomazo *et al.*, 2016),这为进一步认识碳同位素的变化提供了新的思路.今后在开展

碳同位素研究工作时,不仅要利用常规的地球化学指标判断碳同位素是否受到后期成岩作用的影响,同时也要开展相应的微相工作,判别其与微相特征是否具有相互联系.值得说明的一点是,早三叠世几次显著的碳同位素波动均能够进行全球对比,而后期成岩作用一般都具有区域性差异,由此可见成岩作用引发全球碳同位素变化的几率相对较小.但是,后期成岩作用很有可能是导致早三叠世碳同位素微小变化和区域性差异的重要原因.因此,这方面的研究工作对深入认识早三叠世碳同位素的变化具有一定的科学意义.

1.3 碳同位素研究的趋势

同步开展无机和有机碳同位素对解析早三叠世异常碳循环过程至关重要.开展无机碳和有机碳同位素研究工作对探讨碳同位素分馏大小、大气和海水 CO_2 分压大小、初级生产力和分解者类型变化有着重要的指示意义,可以进一步探讨碳循环过程与早三叠世温室气候的相互联系(Kump and Author, 1999; Meyer *et al.*, 2013; Luo *et al.*, 2014).根据两者的耦合关系还可以探讨海洋中无机碳库和有机碳库的大小关系.例如:在埃迪卡拉时期无机碳和有机碳同位素变化出现明显的脱耦关系,被认为当时海洋中可能存在巨型有机碳库,当有机碳库被部分氧化时,无机碳库的同位素组成发生显著变化,而有机碳的同位素组成则变化较小(Fike *et al.*, 2006; McFadden *et al.*, 2008).在正常的海洋中,有机碳同位素的组成则主要受控于无机碳同位素组成和同位素分馏系数,一般与无机碳同位素呈现相同的变化.来自华南和美国西部的研究显示早三叠世有机碳同位素变化与无机碳演变具有相似性,因而被认为其组成和变化受控于无机碳同位素和分馏大小的变化(Meyer *et al.*, 2013; Caravaca *et al.*, 2017).但是,这些研究目前只是建立在分辨率比较低的有机碳同位素研究的基础上,未能揭示其在无机碳同位素发生显著漂移时期(Griesbachian-Dienerian 时期, Dienerian-Smithian 之交, Smithian-Spathian 之交, Spathian 中晚期)的具体变化情况,更没有关于无机碳同位素和有机碳同位素的直接耦合关系的对照研究.此外, Berner (Berner and Rao, 1994; Berner, 2006; Berner and Kothavala, 2001) 提出的 GEOCARB II、III 和 GEOCARBSULF 模型可以根据碳同位素和硫同位素组成及分馏系数来定量计算大气 CO_2 浓度和有机碳埋藏的变化情况.并且利用该模型定量计算了中二叠世—中三叠世的 O_2 浓度

变化情况 (Berner, 2005), 采用的时间间隔是 1 个百万年. 尽管结果显示了二叠纪—三叠纪之交碳埋藏和大气 O₂ 浓度发生了明显的变化, 但是没能清楚地揭示其在早三叠世温室气候时期的具体变化情况. 由此可见, 围绕全球不同地区同步开展无机碳—有机碳同位素研究工作是今后的研究趋势. 另外利用碳同位素组成和碳循环模型对海洋和大气的碳循环过程进行定量模拟计算也是一个重要的研究方向.

2 早三叠世有机氮同位素研究处于初级阶段, 亟待深入研究

氮元素不仅是生物体的重要组成部分, 也是生物不可或缺的营养元素, 对海洋初级生产力和生命的演化具有重要作用. 在不同的氧化还原环境中, 氮的生物地球化学循环过程 (包括生物固氮过程、氨的同化过程、硝化过程、反硝化过程、硝酸根的同化过程及厌氧氧化过程) 和氮同位素的分馏显著不同 (Minagawa and Wada, 1986; Wada and Hattori, 1990; Sigman and Cascotti, 2001). 因此, 保存在海洋沉积物中有机质的氮同位素组成具有示踪氧化还原环境和海洋初级生产力变化的潜力 (Jenkyns *et al.*, 2001; Luo *et al.*, 2011; Knies *et al.*, 2013; Grasby *et al.*, 2016), 并且已经在前寒武纪和显生宙重大地质突变期得到了很好的应用 (Jenkyns *et al.*, 2001; Luo *et al.*, 2018).

2.1 早三叠世有机氮同位素研究现状和展望

目前, 国内外学者已对二叠纪—三叠纪之交的氮同位素开展较系统的研究工作, 研究区域涵盖华南、越南、加拿大等地区, 发现有机氮同位素在生物大灭绝时期发生了显著的变化, 提出海洋氮循环过程在大灭绝前后发生了重要的转变 (Algeo *et al.*, 2007; Cao *et al.*, 2009; Luo *et al.*, 2011; Knies *et al.*, 2013; Grasby *et al.*, 2016; 雷丽丹, 2017). 但是, 对早三叠世长时间尺度的氮同位素研究开展很少, 仅有 Grasby *et al.* (2016) 在《Geology》上报道的 Pangea 西北缘的早三叠世海相剖面的氮同位素的变化情况. 发现氮同位素在早三叠世早期出现一次明显的下降, 在 Griesbachian 时期出现一次显著的下降 (9‰ 降至 ~5‰), 但是这次下降明显滞后于华南古洋氮同位素的变化 (Cao *et al.*, 2009; Luo *et al.*, 2011; Knies *et al.*, 2013; 雷丽丹, 2017), 反映了全球氮循环在不同地区存在明显的差异. 之后

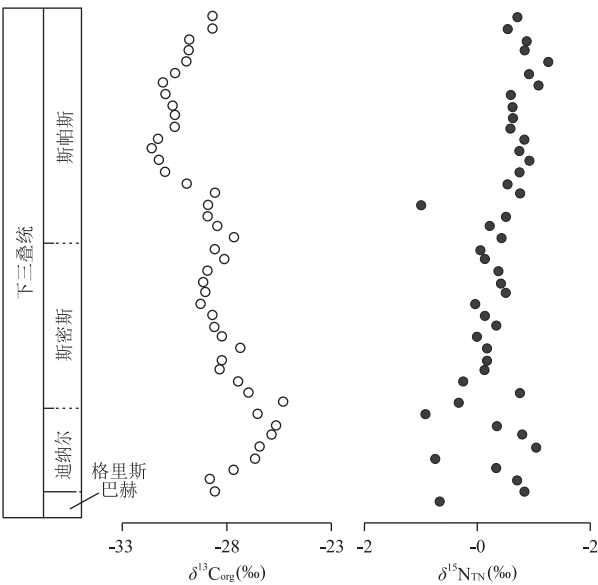


图 2 珠穆朗玛峰地区早三叠世全岩有机碳—氮同位素初步结果

Fig. 2 Early Triassic organic carbon-nitrogen isotope curves in the Everest area

未发表数据; $\delta^{13}\text{C}_{\text{org}}$ 结果均相对于 VPDB; $\delta^{15}\text{N}_{\text{TN}}$ 结果均相对于空气中氮气; TN 代表全岩总有机氮

氮同位素在 Dienerian 早期进一步下降至 ~2‰, 低同位素组成一直持续到中三叠世. 他们依据有机碳同位素组成和氮同位素组成提出该地区早三叠世海洋缺乏生物可利用氮, 导致海洋初级生产力下降, 出现显著的“nutrient gap” (Grasby *et al.*, 2016). 碳同位素和硫同位素一般能够代表全球大尺度的海洋环境变化, 尤其是早三叠世的无机碳同位素可以进行很好的全球对比. 与之不同, 有机氮同位素受区域环境变化影响较大, 因此单一地区或者沉积相区的氮同位素研究并不能揭示全球的氮循环过程, 而开展早三叠世多区域长时间尺度的有机氮同位素和碳同位素对照研究对全面认识古海洋的氧化还原环境及海洋初级生产力变化十分重要.

笔者最近对藏南拉孜县的早三叠世地层样品开展了初步的有机氮同位素分析工作 (图 2), 发现该地区有机氮同位素与北半球 Pangea 周缘的结果类似 (整体呈现较低的值). 但值得注意的是, 藏南氮同位素在 Griesbachian 和 Dienerian 时期就已经降至 2‰ 之下, 与加拿大地区的结果存在明显的差异. 深入的研究工作可以进一步揭示珠穆朗玛峰地区早三叠世古海洋的氮同位素演化特征, 与碳同位素研究工作相结合可以进一步探究古海洋环境和生产力的具体变化.

由此可见,早三叠世古海水的氮同位素变化在全球不同纬度和地区的表现形式存在较大的差异,这不仅直接指示氮循环过程存在显著的差异性,同时也反映了该时期异常的海洋环境也存在不均一性,与当前系统古环境研究方面所取得的进展相吻合 (Song *et al.*, 2014; Clarkson *et al.*, 2016; Huang *et al.*, 2017).所以,围绕全球不同地区和沉积相区的早三叠世地层剖面开展系统的氮同位素研究工作迫在眉睫,该项工作是全面揭示早三叠世氮循环和古海洋环境演变行之有效的途径之一.

3 早三叠世硫同位素研究现状,面临的问题及研究趋势

海洋的硫循环过程主要受控于硫酸盐还原菌的代谢活动和海水的氧化还原条件 (Bottrell and Newton, 2006).由于有机质和硫酸盐是参与硫酸盐还原菌代谢的重要物质,因此海洋的碳循环过程与硫循环过程联系密切,特别是在显著的海洋缺氧时

期,海水的硫同位素与碳同位素组成呈现同步变化 (Gill *et al.*, 2011; Song *et al.*, 2014).沉积岩石中的硫酸盐矿物及黄铁矿中的硫同位素组成是研究古海洋硫循环过程的重要手段,相关工作在研究地球早期生物起源、大气演化及显生宙重大突变期的古环境变化中发挥了重要的作用 (Fike *et al.*, 2015).

3.1 早三叠世硫同位素研究进展

早在 20 世纪 80 年代,国内外学者通过对早三叠世地层中零星保存的石膏矿物开展硫同位素研究工作,发现海水硫同位素组成在早三叠世发生了一次显著的正漂移,被称为显生宙著名的一次“catastrophic chemical event” (Holser, 1977; Cortecci *et al.*, 1981; 陈锦石等, 1986; Chen and Chu, 1988).但是由于石膏矿物在海相地层中沉积不连续,尤其在海水硫酸盐浓度较低的时期(如早三叠世),因此对开展高分辨硫同位素研究造成障碍.令人欣喜的是,保存在碳酸盐晶格中的微量硫酸根被证实可以代表原始海水的硫同位素组成 (Kampschulte and Strauss, 2004).相关学者对二叠系—三

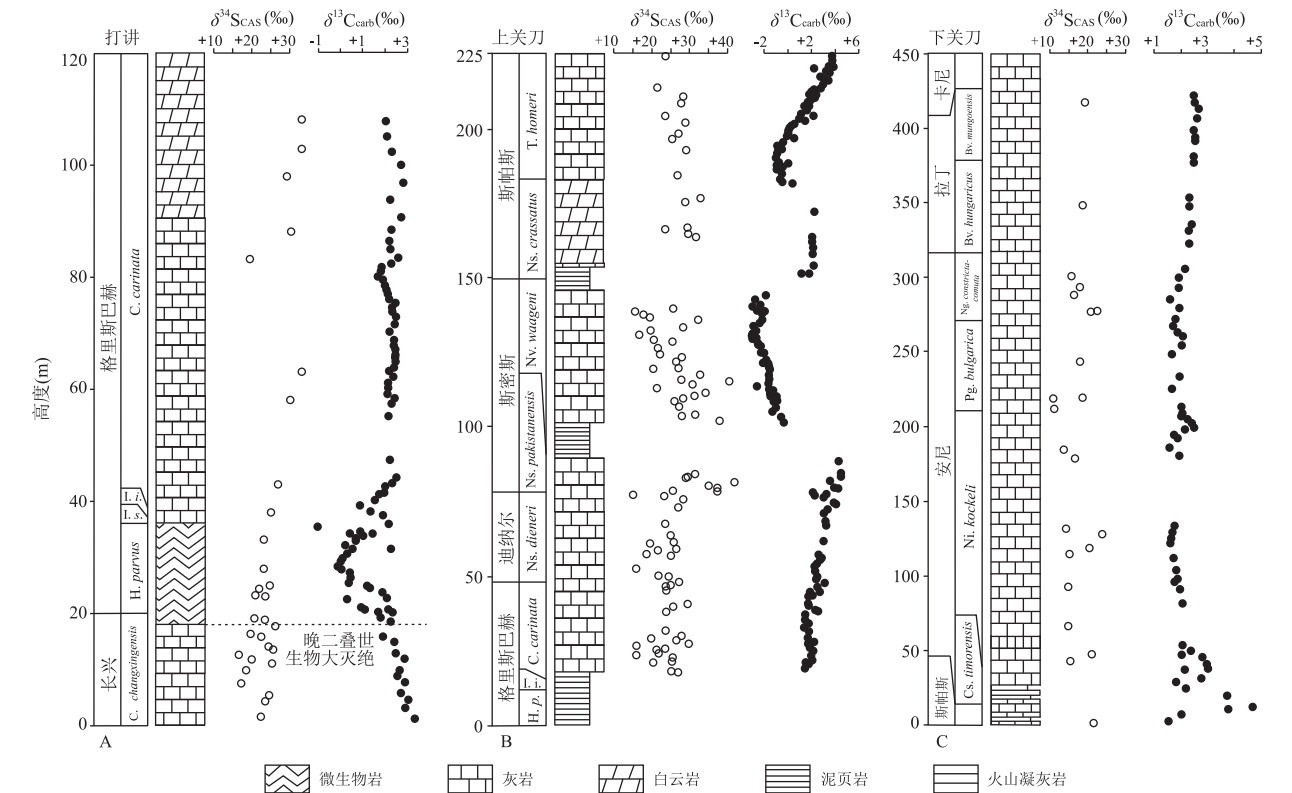


图 3 打讲、上关刀、下关刀剖面早三叠世 $\delta^{34}\text{S}_{\text{CAS}}$, $\delta^{13}\text{C}_{\text{carb}}$ 曲线

Fig.3 Early Triassic $\delta^{34}\text{S}_{\text{CAS}}$, $\delta^{13}\text{C}_{\text{carb}}$ curves from Dajiang, Lower and Upper Guandao sections

据 Song *et al.* (2014); $\delta^{13}\text{C}_{\text{carb}}$ 结果均相对于 VPDB; $\delta^{34}\text{S}_{\text{CAS}}$ 结果均相对于 VCDT. C.= *Clarkina*; H.= *Hindeodus parvus*; I.s.= *Isarcicella staeschi*; I.i.= *Isarcicella isarcica*; Ns.= *Neospathodus*; Nv.= *Novispathodus*; T.= *Triassospathodus*; Cs.= *Chiosella*; Ni.= *Nicoraella*; Pg.= *Paragondolella*; Bv.= *Budurovignathus*

叠系界线的碳酸盐晶格硫同位素开展了系统的研究工作,发现硫同位素在生物大灭绝前后发生了显著的波动,该现象与同时期广泛存在的缺氧环境及强盛的硫酸盐还原作用相关(Newton *et al.*, 2004; Riccardi *et al.*, 2006; Luo *et al.*, 2010; Kaiho *et al.*, 2012; Song *et al.*, 2014).笔者对华南早三叠世不同沉积环境的地层剖面开展了系统的硫同位素研究工作(Song *et al.*, 2010, 2014)(图 3),建立了二叠纪末生物大灭绝后长达 15 个百万年的硫同位素演化特征,发现硫同位素在整个早三叠世偏重且处于异常波动的状态,并且硫同位素与碳同位素的变化具有一定的耦合关联,反映了极端气候和缺氧环境下古海洋碳、硫循环联系密切.动荡的硫循环过程反映了早三叠世海水的硫酸根浓度(<4 mmol/L)较现代大洋(28 mmol/L)下降了很多,导致硫同位素在全球不同的研究剖面呈现出一定的差异(Song *et al.*, 2014; Bernasconi *et al.*, 2017).这种差异已经在华南南盘江盆地和扬子台地之间以及南盘江盆地内部不同沉积环境中有所体现(Song *et al.*, 2014; 未发表资料).显而易见,仅靠华南早三叠世的硫同位素数据尚不能恢复该时期全球的硫同位素的演化特征,仍需要对全球不同区域的早三叠世地层开展详细的硫同位素研究工作.

3.2 早三叠世硫同位素亟待解决的科学问题

如上文所述,早三叠世硫同位素的系统研究工作开展相对较少,但由于早三叠世与现代及其他时期正常的海洋环境不同(海水的硫酸盐浓度很高,硫同位素呈现均一的状态),而该时期海水的氧化还原状态和海水硫同位素组成则呈显著的不均一性(Marenco *et al.*, 2008; Song *et al.*, 2014; Bernasconi *et al.*, 2017),因此需要对全球不同地区的早三叠世地层开展系统的硫同位素研究工作才能全面重建早三叠世海洋硫循环的过程.其次,最近的研究工作表明,很多碳酸盐晶格硫酸根的硫同位素组成及黄铁矿的硫同位素组成受后期成岩的影响十分明显(Thomazo *et al.*, 2016),即我们所得到的硫同位素组成可能反映的是后期成岩过程中某个局限的微环境变化,而不是原始海水水体的环境变化情况.因此,在开展硫同位素研究工作的过程中,要结合岩石镜下沉积微相特征、成岩作用地球化学评价指标等多方面结果来判别获取的硫同位素组成是否能够代表原始海水的硫同位素组成和硫循环特征.此外,近年来兴起的多硫同位素指标也是研究硫循环和古环境变化的重要手段,早三叠世相应工作的开展对

进一步揭示该时期的硫循环十分重要.

4 碳—氮—硫同位素三位一体可以更有效地重建古海洋环境信息

在古海洋环境重建过程中,任何单一的指标都无法准确或全面地还原古海洋环境的变化情况.同时利用多种指标开展相应的研究工作,有利于从不同的角度去揭示古环境的具体变化及时空特征.如上文所述,海水的氧化还原条件会直接影响有机质埋藏过程,进而导致海洋的碳循环过程和碳同位素组成发生变化.但是,碳同位素的变化还可能由其他条件的变化引发,我们不能够单独依据碳同位素的变化推断氧化还原环境的变化情况.由于氧化还原条件也是控制氮同位素和硫同位素分馏大小的重要因素,同样可以影响到氮循环和硫循环过程.在这种情况下,研究人员可以利用碳—氮—硫同位素提供的综合信息来限定海水氧化还原环境的变化,同时也能够阐明同位素各自变化的主要原因.除氧化还原条件外,海洋初级生产力与海水的碳、硫循环过程密切相关.当海洋初级生产力增大时,大量有机质埋藏会使得海水碳同位素组成增重,同时有机质埋藏加剧也可以促进硫酸盐还原过程,进而影响硫循环过程和同位素组成.由此可见,碳—氮—硫循环和同位素之间的变化紧密相联,且与海洋初级生产力和氧化还原环境的变化直接相关.同时开展碳—氮—硫同位素研究工作可以重建各自的循环过程,同时更加全面地恢复海洋初级生产力和氧化还原环境的变化情况.此外,研究人员还可以进一步利用 GEO-CARB 和 GEOCARBSULF 模型(Berner and Rao, 1994; Berner, 2006; Berner and Kothavala, 2001)计算大气 CO_2 浓度的变化情况,进而探讨碳—氮—硫循环、海洋环境与大气二氧化碳浓度之间的相互联系.然而,相关的综合研究工作目前尚未报道,特别是氮同位素和硫同位素的研究工作开展较少.笔者认为,围绕早三叠世地层开展碳—氮—硫同位素三位一体的研究工作将会对全面揭示早三叠世海洋环境的时间—空间演化起到重要的作用.

5 结语

早三叠世海洋异常的碳—氮—硫循环过程已经成为当前地球生物学研究领域的重要内容,研究者

通过系统研究工作已取得了一些重要的科学认识,但是仍存在着许多重要的科学问题,尤其是该时期古海水的氮、硫同位素的系统研究工作开展较少,有待进一步的深入研究.由于碳—氮—硫循环和同位素之间的变化紧密相联,且与海洋初级生产力和氧化还原环境的变化直接相关.所以开展碳—氮—硫同位素三位一体系统研究工作不仅可以重建各自的循环过程,同时可以更加全面地恢复海洋初级生产力和氧化还原环境的变化情况,也是今后科学发展的一个趋势.此外,利用碳—氮—硫同位素组成进一步定量模拟计算同时期相应物质循环变化情况将是今后一个重要的研究方向,得到的创新性结果可以让人们更加直观地理解该时期异常的碳—氮—硫循环过程及环境变化,同时为进一步揭示早三叠世生物迟复苏与异常环境的相互演变关系提供重要的信息.

致谢:感谢美国辛辛那提大学 Thomas Algeo 教授,加州大学河畔分校 Timothy Lyons 教授,宾夕法尼亚州立大学 Lee Kump 教授对本研究工作的指导和帮助.感谢审稿专家认真审阅稿件!

References

- Algeo, T. J., Hannigan, R., Rowe, H., et al., 2007. Sequencing Events across the Permian-Triassic Boundary, Guryul Ravine (Kashmir, India). *Palaeogeography, Palaeoclimatology, Palaeoecology*, 252 (1): 328—346. <https://doi.org/10.1016/j.palaeo.2006.11.050>
- Bernasconi, S. M., Meier, I., Wohlwend, S., et al., 2017. An Evaporite-Based High-Resolution Sulfur Isotope Record of Late Permian and Triassic Seawater Sulfate. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 204: 331—349. <https://doi.org/10.1016/j.gca.2017.01.047>
- Berner, R. A., 2004. The Phanerozoic Carbon Cycle: CO₂ and O₂. Oxford University Press, New York.
- Berner, R. A., 2005. The Carbon and Sulfur Cycles and Atmospheric Oxygen from Middle Permian to Middle Triassic. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 69 (13): 3211—3217. <https://doi.org/10.1016/j.gca.2005.03.021>
- Berner, R. A., 2006. Geocarbsulf: A Combined Model for Phanerozoic Atmospheric O₂ and CO₂. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 70 (23): 5653—5664. <https://doi.org/10.1016/j.gca.2005.11.032>
- Berner, R. A., Kothavala, Z., 2001. Geocarb III: A Revised Model of Atmospheric CO₂ over Phanerozoic Time. *American Journal of Science*, 301 (2): 182—204.
- Berner, R. A., Rao, J. L., 1994. Phosphorus in Sediments of the Amazon River and Estuary: Implications for the Global Flux of Phosphorus to the Sea. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 58 (10): 2333—2339. [https://doi.org/10.1016/0016-7037\(94\)90014-0](https://doi.org/10.1016/0016-7037(94)90014-0)
- Bottrell, S. H., Newton, R. J., 2006. Reconstruction of Changes in Global Sulfur Cycling from Marine Sulfate Isotopes. *Earth-Science Reviews*, 75 (1): 59—83.
- Brühwiler, T., Goudemand, N., Galfetti, T., et al., 2009. The Lower Triassic Sedimentary and Carbon Isotope Records from Tulong (South Tibet) and Their Significance for Tethyan Palaeoceanography. *Sedimentary Geology*, 222 (3—4): 314—332. <https://doi.org/10.1016/j.sedgeo.2009.10.003>
- Cao, C. Q., Love, G. D., Hays, L. E., et al., 2009. Biogeochemical Evidence for Euxinic Oceans and Ecological Disturbance Presaging the End-Permian Mass Extinction Event. *Earth and Planetary Science Letters*, 281 (3—4): 188—201. <https://doi.org/10.1016/j.epsl.2009.02.012>
- Cao, C. Q., Wang, W., Jing, Y., 2002. Carbon Isotope Changes near Permo-Triassic Boundary in Meishan, Zhejiang. *Chinese Science Bulletin*, 47 (4): 302—306 (in Chinese).
- Caravaca, G., Thomazo, C., Vennin, E., et al., 2017. Early Triassic Fluctuations of the Global Carbon Cycle: New Evidence from Paired Carbon Isotopes in the Western USA Basin. *Global and Planetary Change*, 154: 10—22. <https://doi.org/10.1016/j.gloplacha.2017.05.005>
- Chen, J. S., Chu, X. L., 1988. Sulfur Isotope Composition of Triassic Marine Sulfates of South China. *Chemical Geology: Isotope Geoscience Section*, 72 (2): 155—161. [https://doi.org/10.1016/0168-9622\(88\)90063-2](https://doi.org/10.1016/0168-9622(88)90063-2)
- Chen, J. S., Chu, X. L., Shao, M. R., 1986. Sulfur Isotope of the Triassic Sea. *Scientia Geologica Sinica*, 21 (4): 330—338 (in Chinese with English abstract).
- Chen, Z. Q., Benton, M. J., 2012. The Timing and Pattern of Biotic Recovery Following the End-Permian Mass Extinction. *Nature Geoscience*, 5 (6): 375—383. <https://doi.org/10.1038/ngeo1475>
- Clarkson, M. O., Richoz, S., Wood, R. A., et al., 2013. A New High-Resolution $\delta^{13}\text{C}$ Record for the Early Triassic: Insights from the Arabian Platform. *Gondwana Research*, 24 (1): 233—242. <https://doi.org/10.1016/j.gr.2012.10.002>
- Clarkson, M. O., Wood, R. A., Poulton, S. W., et al., 2016. Dynamic Anoxic Ferruginous Conditions during the End-Permian Mass Extinction and Recovery. *Nature Communications*, 7: 12236. <https://doi.org/10.1038/ncomms12236>
- Cortecci, G., Reyes, E., Berti, G., et al., 1981. Sulfur and Oxygen Isotopes in Italian Marine Sulfates of Permian and Triassic Ages. *Chemical Geology*, 34 (1—2): 65—79.

- Fike, D. A., Bradley, A. S., Rose, C. V., 2015. Rethinking the Ancient Sulfur Cycle. *Annual Review of Earth and Planetary Sciences*, 43(1): 593–622. <https://doi.org/10.1146/annurev-earth-060313-054802>
- Fike, D. A., Grotzinger, J. P., Pratt, L. M., et al., 2006. Oxidation of the Ediacaran Ocean. *Nature*, 444(7120): 744–747. <https://doi.org/10.1038/nature05345>
- Galfetti, T., Bucher, H., Brayard, A., et al., 2007a. Late Early Triassic Climate Change: Insights from Carbonate Carbon Isotopes, Sedimentary Evolution and Ammonoid Paleobiogeography. *Palaeogeography, Palaeoclimatology, Palaeoecology*, 243(3–4): 394–411. <https://doi.org/10.1016/j.palaeo.2006.08.014>
- Galfetti, T., Hochuli, P. A., Brayard, A., et al., 2007b. Smithian-Spathian Boundary Event: Evidence for Global Climatic Change in the Wake of the End-Permian Biotic Crisis. *Geology*, 35(4): 291. <https://doi.org/10.1130/g23117a.1>
- Gill, B. C., Lyons, T. W., Young, S. A., et al., 2011. Geochemical Evidence for Widespread Euxinia in the Later Cambrian Ocean. *Nature*, 469(7328): 80–83. <https://doi.org/10.1038/nature09700>
- Grasby, S. E., Beauchamp, B., Embry, A., et al., 2013. Recurrent Early Triassic Ocean Anoxia. *Geology*, 41(2): 175–178. <https://doi.org/10.1130/g33599.1>
- Grasby, S. E., Beauchamp, B., Knies, J., 2016. Early Triassic Productivity Crises Delayed Recovery from World's Worst Mass Extinction. *Geology*, 44(9): 779–782.
- Holser, W. T., 1977. Catastrophic Chemical Events in the History of the Ocean. *Nature*, 267(5610): 403–408.
- Horacek, M., Brandner, R., Abart, R., 2007a. Carbon Isotope Record of the P/T Boundary and the Lower Triassic in the Southern Alps: Evidence for Rapid Changes in Storage of Organic Carbon. *Palaeogeography, Palaeoclimatology, Palaeoecology*, 252(1–2): 347–354. <https://doi.org/10.1016/j.palaeo.2006.11.049>
- Horacek, M., Richoz, S., Brandner, R., et al., 2007b. Evidence for Recurrent Changes in Lower Triassic Oceanic Circulation of the Tethys: The $\delta^{13}\text{C}$ Record from Marine Sections in Iran. *Palaeogeography, Palaeoclimatology, Palaeoecology*, 252(1–2): 355–369. <https://doi.org/10.1016/j.palaeo.2006.11.052>
- Horacek, M., Koike, T., Richoz, S., 2009. Lower Triassic $\delta^{13}\text{C}$ Isotope Curve from Shallow-Marine Carbonates in Japan, Panthalassa Realm: Confirmation of the Tethys $\delta^{13}\text{C}$ Curve. *Journal of Asian Earth Sciences*, 36(6): 481–490. <https://doi.org/10.1016/j.jseas.2008.05.005>
- Huang, K. K., Huang, S. J., Lan, Y. F., et al., 2013. Review of the Carbon Isotope of Early Triassic Carbonates. *Advances in Earth Science*, 28(3): 357–365 (in Chinese with English abstract).
- Huang, S. J., Huang, K. K., Lü, J., et al., 2012. Carbon Isotopic Composition of Early Triassic Marine Carbonates, Eastern Sichuan Basin, China. *Science China Earth Sciences*, 42(10): 1508–1522 (in Chinese).
- Huang, Y. G., Chen, Z. Q., Wignall, P. B., et al., 2017. Latest Permian to Middle Triassic Redox Condition Variations in Ramp Settings, South China: Pyrite Framboid Evidence. *Geological Society of America Bulletin*, 129(1–2): 229–243. <https://doi.org/10.1130/b31458.1>
- Jenkyns, H. C., Gröcke, D. R., Hesselbo, S. P., 2001. Nitrogen Isotope Evidence for Water Mass Denitrification during the Early Toarcian Oceanic Anoxic Event. *Paleoceanography*, 16(6): 593–603. <https://doi.org/10.1029/2000pa000558>
- Kaiho, K., Oba, M., Fukuda, Y., et al., 2012. Changes in Depth-Transsect Redox Conditions Spanning the End-Permian Mass Extinction and Their Impact on the Marine Extinction: Evidence from Biomarkers and Sulfur Isotopes. *Global and Planetary Change*, 94–95: 20–32. <https://doi.org/10.1016/j.gloplacha.2012.05.024>
- Kampschulte, A., Strauss, H., 2004. The Sulfur Isotopic Evolution of Phanerozoic Seawater Based on the Analysis of Structurally Substituted Sulfate in Carbonates. *Chemical Geology*, 204(3): 255–286. <https://doi.org/10.1016/j.chemgeo.2003.11.013>
- Knies, J., Grasby, S. E., Beauchamp, B., et al., 2013. Water Mass Denitrification during the Latest Permian Extinction in the Sverdrup Basin, Arctic Canada. *Geology*, 41(2): 167–170. <https://doi.org/10.1130/g33816.1>
- Knoll, A. H., Bambach, R. K., Payne, J. L., et al., 2007. Paleophysiology and End-Permian Mass Extinction. *Earth and Planetary Science Letters*, 256(3–4): 295–313. <https://doi.org/10.1016/j.epsl.2007.02.018>
- Kump, L. R., Arthur, M. A., 1999. Interpreting Carbon-Isotope Excursions: Carbonates and Organic Matter. *Chemical Geology*, 161(1–3): 181–198. [https://doi.org/10.1016/S0009-2541\(99\)00086-8](https://doi.org/10.1016/S0009-2541(99)00086-8)
- Lei, L. D., 2017. Marine Redox Variability and Its Coupling with Oceanic C-N Biogeochemical Cycling across the Permian-Triassic Boundary in South China (Dissertation). China University of Geosciences, Wuhan (in Chinese with English abstract).
- Li, R., Jones, B., 2016. Diagenetic Overprint on Negative $\delta^{13}\text{C}$ Excursions across the Permian/Triassic Boundary: A Case Study from Meishan Section, China. *Palaeogeography, Palaeoclimatology, Palaeoecology*, 468: 18–

33. <https://doi.org/10.1016/j.palaeo.2016.11.044>
- Luo, G. M., Algeo, T. J., Huang, J. H., et al., 2014. Vertical $\delta^{13}\text{C}_{\text{org}}$ Gradients Record Changes in Planktonic Microbial Community Composition during the End-Permian Mass Extinction. *Palaeogeography, Palaeoclimatology, Palaeoecology*, 396: 119–131. <https://doi.org/10.1016/j.palaeo.2014.01.006>
- Luo, G. M., Junium, C. K., Izon, G., et al., 2018. Nitrogen Fixation Sustained Productivity in the Wake of the Palaeoproterozoic Great Oxygenation Event. *Nature Communications*, 9 (1): 69–78. <https://doi.org/10.1038/s41467-018-03361-2>
- Luo, G. M., Kump, L. R., Wang, Y. B., et al., 2010. Isotopic Evidence for an Anomalously Low Oceanic Sulfate Concentration Following End-Permian Mass Extinction. *Earth and Planetary Science Letters*, 300 (1): 101–111. <https://doi.org/10.1016/j.epsl.2010.09.041>
- Luo, G. M., Wang, Y. B., Algeo, T. J., et al., 2011. Enhanced Nitrogen Fixation in the Immediate Aftermath of the Latest Permian Marine Mass Extinction. *Geology*, 39 (7): 647–650. <https://doi.org/10.1130/g32024.1>
- Marenco, P. J., Corsetti, F. A., Hammond, D. E., et al., 2008. Oxidation of Pyrite during Extraction of Carbonate Associated Sulfate. *Chemical Geology*, 247 (1): 124–132. <https://doi.org/10.1016/j.chemgeo.2007.10.006>
- McFadden, K. A., Huang, J., Chu, X., et al., 2008. Pulsed Oxidation and Biological Evolution in the Ediacaran Doushantuo Formation. *Proceedings of the National Academy of Sciences*, 105 (9): 3197–3202. <https://doi.org/10.1073/pnas.0708336105>
- Meyer, K. M., Yu, M., Jost, A. B., et al., 2011. $\delta^{13}\text{C}$ Evidence That High Primary Productivity Delayed Recovery from End-Permian Mass Extinction. *Earth and Planetary Science Letters*, 302 (3/4): 378–384. <https://doi.org/10.1016/j.epsl.2010.12.033>
- Meyer, K. M., Yu, M., Lehmann, D., et al., 2013. Constraints on Early Triassic Carbon Cycle Dynamics from Paired Organic and Inorganic Carbon Isotope Records. *Earth and Planetary Science Letters*, 361: 429–435. <https://doi.org/10.1016/j.epsl.2012.10.035>
- Minagawa, M., Wada, E., 1986. Nitrogen Isotope Ratios of Red Tide Organisms in the East China Sea: A Characterization of Biological Nitrogen Fixation. *Marine Chemistry*, 19 (3): 245–259. [https://doi.org/10.1016/0304-4203\(86\)90026-5](https://doi.org/10.1016/0304-4203(86)90026-5)
- Newton, R. J., Pevitt, E. L., Wignall, P. B., et al., 2004. Large Shifts in the Isotopic Composition of Seawater Sulphate across the Permo-Triassic Boundary in Northern Italy. *Earth and Planetary Science Letters*, 218 (3): 331–345. [https://doi.org/10.1016/s0012-821x\(03\)00676-9](https://doi.org/10.1016/s0012-821x(03)00676-9)
- Payne, J., Kump, L., 2007. Evidence for Recurrent Early Triassic Massive Volcanism from Quantitative Interpretation of Carbon Isotope Fluctuations. *Earth and Planetary Science Letters*, 256 (1/2): 264–277. <https://doi.org/10.1016/j.epsl.2007.01.034>
- Payne, J. L., Lehmann, D. J., Wei, J., et al., 2004. Large Perturbations of the Carbon Cycle during Recovery from the End-Permian Extinction. *Science*, 305 (5683): 506–509. <https://doi.org/10.1126/science.1097023>
- Riccardi, A. L., Arthur, M. A., Kump, L. R., 2006. Sulfur Isotopic Evidence for Chemocline upward Excursions during the End-Permian Mass Extinction. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 70 (23): 5740–5752.
- Romano, C., Goudemand, N., Vennemann, T. W., et al., 2013. Climatic and Biotic Upheavals Following the End-Permian Mass Extinction. *Nature Geoscience*, 6 (1): 57–60. <https://doi.org/10.1038/ngeo1667>
- Shen, J., Schoepfer, S. D., Feng, Q. L., et al., 2015. Marine Productivity Changes during the End-Permian Crisis and Early Triassic Recovery. *Earth-Science Reviews*, 149: 136–162.
- Shen, S. Z., Crowley, J. L., Wang, Y., et al., 2011. Calibrating the End-Permian Mass Extinction. *Science*, 334 (6061): 1367–1372. <https://doi.org/10.1126/science.1213454>
- Shen, S. Z., Zhu, M. Y., Wang, X. D., et al., 2010. A Comparison of the Biological, Geological Events and Environmental Backgrounds between the Neoproterozoic-Cambrian and Permian-Triassic Transitions. *Science China Earth Sciences*, 40 (9): 1228–1244 (in Chinese).
- Sigman, D. M., Cascodotti, K. L., 2001. Nitrogen Isotopes in the Ocean. Academic Press, London.
- Song, H. J., Tong, J. N., 2016. Mass Extinction and Survival during the Permian-Triassic Crisis. *Earth Science*, 41 (6): 901–918 (in Chinese with English abstract).
- Song, H. J., Wignall, P. B., Tong, J. N., et al., 2012. Geochemical Evidence from Bio-Apatite for Multiple Oceanic Anoxic Events during Permian-Triassic Transition and the Link with End-Permian Extinction and Recovery. *Earth and Planetary Science Letters*, 353: 12–21.
- Song, H. Y., Tong, J. N., Algeo, T. J., et al., 2013. Large Vertical $\delta^{13}\text{C}_{\text{DIC}}$ Gradients in Early Triassic Seas of the South China Craton: Implications for Oceanographic Changes Related to Siberian Traps Volcanism. *Global and Planetary Change*, 105: 7–20. <https://doi.org/10.1016/j.gloplacha.2012.10.023>
- Song, H. Y., Tong, J. N., Algeo, T. J., et al., 2014. Early Trias-

- sic Seawater Sulfate Drawdown. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 128: 95—113.
- Song, H. Y., Tong, J. N., Song, H. J., et al., 2010. Excursion of Sulfur Isotope Compositions in the Lower Triassic of South Guizhou, China. *Journal of Earth Science*, 21 (S1): 158—160.
- Sun, Y., Joachimski, M. M., Wignall, P. B., et al., 2012. Lethally Hot Temperatures during the Early Triassic Greenhouse. *Science*, 338 (6105): 366—370. <https://doi.org/10.1126/science.1224126>
- Sun, Y. D., Wignall, P. B., Joachimski, M. M., et al., 2015. High Amplitude Redox Changes in the Late Early Triassic of South China and the Smithian-Spathian Extinction. *Palaeogeography, Palaeoclimatology, Palaeoecology*, 427: 62—78. <https://doi.org/10.1016/j.palaeo.2015.03.038>
- Thomazo, C., Vennin, E., Brayard, A., et al., 2016. A Diagenetic Control on the Early Triassic Smithian-Spathian Carbon Isotopic Excursions Recorded in the Marine Settings of the Thaynes Group (Utah, USA). *Geobiology*, 14 (3): 220—236. <https://doi.org/10.1111/gbi.12174>
- Tong, J. N., Qiu, H., Zhao, L., et al., 2002. Lower Triassic Inorganic Carbon Isotope Excursion in Chaohu, Anhui Province, China. *Journal of Earth Science*, 13 (2): 98—106.
- Tong, J. N., Yin, H. F., 2009. Advance in the Study of Early Triassic Life and Environment. *Acta Palaeontologica Sinica*, 48 (3): 497—508 (in Chinese with English abstract).
- Tong, J. N., Zuo, J. X., Chen, Z. Q., 2007. Early Triassic Carbon Isotope Excursions from South China: Proxies for Devastation and Restoration of Marine Ecosystems Following the End-Permian Mass Extinction. *Geological Journal*, 42 (3—4): 371—389. <https://doi.org/10.1002/gj.1084>
- Wada, E., Hattori, A., 1990. Nitrogen in the Sea: Forms, Abundance, and Rate Processes. CRC Press, Boca Raton.
- Wignall, P. B., Bond, D. P. G., Sun, Y. D., et al., 2016. Ultra-Shallow-Marine Anoxia in an Early Triassic Shallow-Marine Clastic Ramp (Spitsbergen) and the Suppression of Benthic Radiation. *Geological Magazine*, 153 (2): 316—331. <https://doi.org/10.1017/s0016756815000588>
- Zhou, G. S., 2003. Global Carbon Cycle. Meteorology Press, Beijing (in Chinese).
- Zuo, J. X., Tong, J. N., Qiu, H. O., et al., 2006. Carbon Isotope Composition of the Lower Triassic Marine Carbonates, Lower Yangtze Region, South China. *Science in China (Series D)*, 49 (3): 225—241. <https://doi.org/10.1007/s11430-006-0225-8>

附中文参考文献

- 曹长群, 王伟, 金玉珩, 2002. 浙江煤山二叠—三叠系界线附近碳同位素变化. 科学通报, 47 (4): 302—306.
- 陈锦石, 储雪蕾, 邵茂茸, 1986. 三叠纪海的硫同位素. 地质科学, 21 (4): 330—338.
- 黄可可, 黄思静, 兰叶芳, 等, 2013. 早三叠世海相碳酸盐碳同位素研究进展. 地球科学进展, 28 (3): 357—365.
- 黄思静, 黄可可, 吕杰, 等, 2012. 早三叠世海水的碳同位素组成与演化—来自四川盆地东部的研究. 中国科学 (D 辑), 42 (10): 1508—1522.
- 雷丽丹, 2017. 华南古中生代之交古海洋氧化 (博士学位论文). 武汉: 中国地质大学.
- 沈树忠, 朱茂炎, 王向东, 等, 2010. 新元古代—寒武纪与二叠—三叠纪转折时期生物和地质事件及其环境背景之比较. 中国科学, 40 (9): 1228—1240.
- 宋海军, 童金南, 2016. 二叠纪—三叠纪之交生物大灭绝与残存. 地球科学, 41 (6): 901—918.
- 童金南, 殷鸿福, 2009. 早三叠世生物与环境研究进展. 古生物学报, 48 (3): 497—508.
- 周广胜, 2003. 全球碳循环. 北京: 气象出版社.