

新疆独山子泥火山沉积物及孔隙水的 地球化学特征与流体来源

黄华谷^{1,2}, 李 牛², 王钦贤², 陈多福²

(1.广东省地质调查院, 广东 广州 510080; 2.中国科学院 广州地球化学研究所 边缘海地质重点实验室, 广东 广州 510640)

摘 要: 对陆地泥火山流体来源及其向地表渗漏过程中的改造作用开展研究, 有利于加深理解泥火山释放甲烷的碳排放过程。新疆准噶尔盆地南缘独山子泥火山柱状沉积物和地表沉积物的矿物和元素组成, 以及沉积物孔隙水离子组成等的分析结果显示, 泥火山沉积物孔隙水 Na^+ 和 Cl^- 间具有很好的正相关性, 具有比海水高的 Na^+/Cl^- 和 Li^+/Cl^- 值、低的 K^+/Cl^- 和 $\text{Mg}^{2+}/\text{Cl}^-$ 。泥火山沉积物与围岩相比, 富集伊利石、绿泥石和方解石, 缺少蒙脱石, 富集 Ca、亏损 Si, 这些变化主要与黏土矿物的脱水转变有关。表明泥火山流体主要来源于深部低盐度沉积物孔隙水, 但经历了地表的蒸发作用, 并混合了大气降水。

关键词: 泥火山; 孔隙水; 沉积物; 地球化学; 改造作用; 流体来源; 新疆

中图分类号: P588.2; P595 文献标志码: A 文章编号: 1001-1552(2015)02-0325-009

0 引 言

泥火山是地下深部高压泥浆和气体为主的流体, 通过断层等高渗透性通道向地表运移, 并喷出地表, 在地表形成的锥状沉积体 (Milkov, 2000; Kopf, 2002)。泥火山活动过程中往往喷出大量气体, 绝大部分喷出的气体以 CH_4 为主, 小部分以 CO_2 或 N_2 为主 (Dimitrov, 2002)。估计每年泥火山向大气排放 CH_4 的总量可达 10~20 Tg (Etioppe et al., 2011)。 CH_4 是重要的温室气体, 其温室效应是 CO_2 的 20 倍以上 (Shindell et al., 2009)。因此, 泥火山释放 CH_4 在全球大气 CH_4 估算和气候变化中是一个不可忽略的重要因素 (Milkov, 2005; Milkov and Etioppe, 2005)。

泥火山在全球分布比较广泛, 但主要发育在阿

尔卑斯山-特提斯带 (阿尔卑斯山-黑海-里海-喜马拉雅山) 和环太平洋带 (Kopf, 2002; Sun, 2010)。泥火山与油气藏有着空间上和成因上的联系, 很多大型含油气盆地 (如准噶尔盆地、阿塞拜疆和墨西哥湾等) 都发育有泥火山 (Neurauter and Bryant, 1990; Fu et al., 2007; Etioppe et al., 2009; Mazzini, 2009; Zheng et al., 2010a, 2010b)。

我国新疆准噶尔盆地南缘发育了一些与油气田相关联的泥火山, 喷溢气体组分主要为 CH_4 , 来源深度大约为 3600 m, 同时也可能存在浅部 CO_2 还原反应所生成的次生 CH_4 (Nakada et al., 2011; 高苑等, 2012)。泥火山渗漏气体组分、碳同位素和氮同位素具有典型的热成因和壳源特征 (戴金星等, 2012; 高苑等, 2012; Wan et al., 2013)。这些泥火山的形成和

收稿日期: 2013-11-19; 改回日期: 2015-02-07

项目资助: 中国科学院西部行动计划项目 (编号: KZCX2-XB3-03) 和国家自然科学基金 (批准号: 41273112 和 41273041) 联合资助。

第一作者简介: 黄华谷 (1981-), 男, 工程师, 从事沉积地球化学和矿产地质研究。Email: huanghg0203@163.com

通信作者: 陈多福 (1962-), 男, 研究员, 从事沉积地球化学和海洋地质研究。Email: cdf@gig.ac.cn

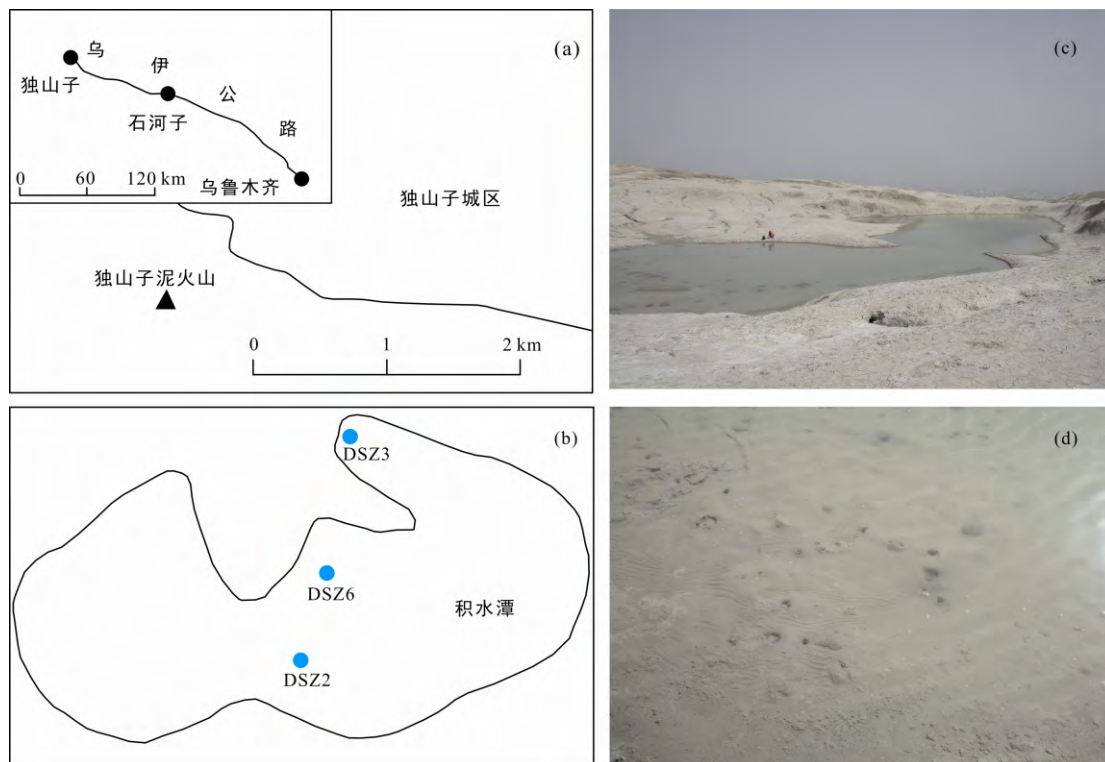
泥浆喷溢可能与地震活动有关(王道, 2000; 高小其等, 2008), 是压力差导致地下水沿断裂带上升, 与通道周围泥质岩的细颗粒物混合形成泥浆, 上涌喷出地表而形成(李梦等, 2013)。最为典型的独山子泥火山已经活动了几十年(李锰等, 1996; 王道等, 1997), 至今仍不断向外喷出泥浆和气体, 而且泥火山喷出流体中可见油花, 显示了可能来源于深部的油气储层。对油花的生物标志化合物的研究表明, 油源可能是侏罗系与古近系烃源岩的混合产物(李梦等, 2013)。

陆地泥火山喷发的流体地球化学研究表明, 泥火山释放的流体具有多种来源, 而且在地下具有复杂的运移过程, 并经历了多种改造作用, 流体原有的化学成分和同位素信息均会发生改变(Dia et al., 1999; You et al., 2004; Mazzini, 2009)。陆地泥火山流体可能来自于沉积物(岩)孔隙水、深层卤水, 并有大气降水的混入, 从而导致原有的化学成分和同位素信息会受到水-岩作用、有机质降解、流体中甲烷的有氧和厌氧氧化作用或流体与围岩之间的化学交换作用等的改造(Martin et al., 1996; Planke et al., 2003; Nath et al., 2008; Liu et al., 2009; Cheng et al., 2012)。

本文拟通过研究准噶尔盆地南缘独山子泥火山柱状沉积物和地表沉积物的矿物、元素和孔隙水离子组成特征, 探讨泥火山流体的来源及可能经历的改造作用。

1 样品与分析方法

独山子泥火山位于我国新疆准噶尔盆地南缘(Fu et al., 2007), 距离独山子城区约 1 km, 海拔 896 m (坐标为 $N44^{\circ}18'19.34''$, $E84^{\circ}50'46.45''$)(图 1)。该泥火山曾经历过多次活动, 最近的一次强烈活动发生在 1995 年(王道等, 1997)。目前仅存 2 个活动的泥浆喷口, 其中一个堆积泥火山锥, 不断有泥浆和甲烷气体溢出。独山子山顶分布一个较大的积水潭, 水潭底部沉积物可见有大量的气泡冒出。我们在泥火山喷发形成的面积约为 $6.8 \text{ m} \times 23.8 \text{ m}$ 的水池中采集了 3 个沉积柱样(DSZ6, DSZ3, DSZ2)及孔隙水样品(图 1), 在水池周围地表采集了 6 个沉积物样。泥火山柱状沉积物孔隙水用 Rhizon 采样器依 3~10 cm 间距采集, 获得的孔隙水 3~15 ml 加入氯化银稳定剂保存, 沉积物样依 2 cm 间隔采集。



(a) 独山子泥火山位置; (b) 柱状沉积物孔隙水采集位置; (c) 独山子泥火山顶积水潭; (d) 独山子泥火山积水潭中的喷气孔及气泡。

图 1 新疆准噶尔盆地南缘独山子泥火山地理位置图和样品采集

Fig.1 Map showing the location of the Dushanzi (DSZ) mud volcano and sampling sites

孔隙水离子组成用超纯水稀释 1000 倍后, 孔隙水的 Cl^- 、 SO_4^{2-} 、 Na^+ 、 K^+ 、 Li^+ 、 Mg^{2+} 、 Ca^{2+} 、 NH_4^+ 等离子的含量分析在中国科学院广州地球化学研究所同位素地球化学国家重点实验室完成, 采用美国戴安公司 Dionex-ICS-900 型离子色谱仪测试, 检出最低值大约为 $0.1 \mu\text{g/g}$, 精度及准确度都小于 5%。

孔隙水的总有机碳(TOC)在中国科学院广州地球化学研究所有机地球化学国家重点实验室 TOC-V CPH 型总有机碳分析仪器上完成, 可测定范围为 0~25000 $\mu\text{g/L}$, 检测下限为 $4 \mu\text{g/L}$, 测定精度 1.5%。

全岩粉末样品的物相分析(XRD)由中国科学院广州地球化学研究所的 Bruker X-射线衍射仪(D8 Advance)完成, 工作参数为 Cu 靶 $K\alpha$ 射线, 石墨单色器, 测试电压为 40 kV, 电流为 40 mA, 扫描角度为 $5^\circ\sim 70^\circ(2\theta)$, 步进扫描, 步宽为 0.02° , 发散狭缝

为 0.5° , 接收狭缝为 0.15 mm, 防散射狭缝为 0.5° , 矿物含量依面积法进行半定量分析, 结果由 SIROQUANT 程序完成(Taylor, 1991)。

全岩主量元素采用中国科学院广州地球化学研究所同位素地球化学国家重点实验室 ZSX100e 的 Rigak X-射线荧光光谱仪测试, 由 36 种涵盖硅酸盐样品范围的参考标准物质双变量拟合工作曲线确定, 基体校正依经验 Traill-Lachance 程序进行, 分析精度优于 1%~5%(Li et al., 2005)。

2 分析结果

2.1 孔隙水离子成分

独山子泥火山沉积物孔隙水离子成分分析结果见表 1。除了 DSZ2 的 TOC 外, 所有离子成分变化规律基本类似, 总体呈现出随深度变化先增大后减小, 在中部达到最大值的分布特征(图 2)。

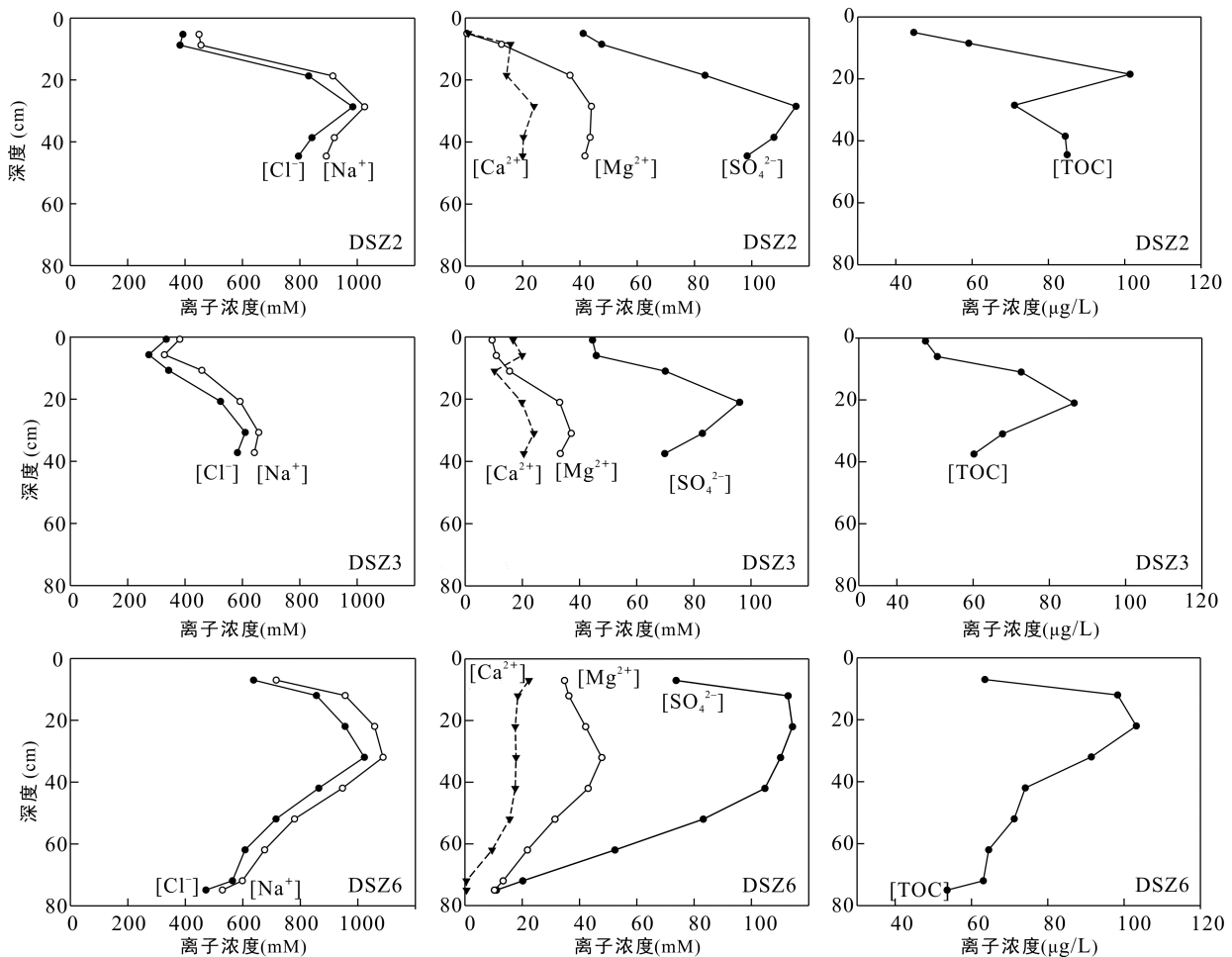


图 2 独山子泥火山 DSZ2, DSZ3 和 DSZ6 中 Na^+ 、 Cl^- 、 Mg^{2+} 、 Ca^{2+} 、 SO_4^{2-} 和 TOC 随深度变化图

Fig.2 Profiles of Na^+ 、 Cl^- 、 Mg^{2+} 、 Ca^{2+} 、 SO_4^{2-} and TOC in the cores DSZ2, DSZ3 and DSZ6 of the Dushanzi mud volcano

表 1 独山子泥火山的沉积物孔隙水离子化学成分
Table 1 Ion compositions of sediment pore fluids from the DSZ mud volcano

编号	h*	Cl ⁻	SO ₄ ²⁻	Li ⁺	Na ⁺	NH ₄ ⁺	K ⁺	Mg ²⁺	Ca ²⁺	TOC	Na ⁺ /Cl ⁻	Mg ²⁺ /Cl ⁻	Ca ²⁺ /Cl ⁻	K ⁺ /Cl ⁻	SO ₄ ²⁻ /Cl ⁻	Li ⁺ /Cl ⁻
DSZ2-1	5	392	41.1	0.03	449	0.01	0.04	0.54	1.11	45	1.15	0.0014	0.0028	0.0001	0.105	0.08
DSZ2-2	8.5	382	47.6	0.05	455	0.01	0.54	12.6	15.8	59	1.19	0.0331	0.0414	0.0014	0.125	0.13
DSZ2-3	18.5	830	83.7	0.08	915	0.01	0.78	36.5	14.4	101	1.1	0.044	0.0174	0.0009	0.101	0.10
DSZ2-4	28.5	984	115	0.10	1025	0.01	0.89	44.0	24.0	71	1.04	0.0447	0.0244	0.0009	0.117	0.10
DSZ2-5	38.5	842	108	0.11	920	0.01	0.88	43.5	20.3	84	1.09	0.0517	0.0241	0.001	0.128	0.13
DSZ2-6	44.5	795	98.4	0.10	892	0.01	0.90	41.7	20.0	85	1.12	0.0525	0.0252	0.0011	0.133	0.13
DSZ3-1	1	335	44.6	0.05	382	0.01	0.48	9.41	16.8	48	1.14	0.0281	0.0501	0.0014	0.167	0.15
DSZ3-2	6	274	45.9	0.04	329	1.89	0.60	10.9	19.9	51	1.2	0.0397	0.0728	0.0022	0.204	0.15
DSZ3-3	11	343	70.0	0.06	459	2.90	0.65	15.5	10.3	73	1.34	0.0452	0.03	0.0019	0.183	0.17
DSZ3-4	21	524	96.0	0.10	592	0.01	1.10	33.1	19.9	87	1.13	0.0631	0.0379	0.0021	0.136	0.19
DSZ3-5	31	610	83.0	0.11	657	0.01	1.19	37.1	24.1	68	1.08	0.0608	0.0394	0.002	0.120	0.18
DSZ3-6	37.5	583	69.8	0.10	642	0.01	1.09	33.3	20.5	60	1.1	0.0571	0.0352	0.0019	0.133	0.17
DSZ6-1	7	637	73.7	0.10	716	0.01	1.15	34.8	22.4	64	1.12	0.0546	0.0351	0.0018	0.116	0.16
DSZ6-2	12	856	112	0.10	956	0.01	1.14	36.3	18.5	98	1.12	0.0424	0.0216	0.0013	0.132	0.12
DSZ6-3	22	956	114	0.11	1058	0.01	1.40	42.1	17.6	103	1.11	0.0441	0.0184	0.0015	0.120	0.12
DSZ6-4	32	1023	110	0.12	1088	0.01	1.56	47.8	17.9	91	1.06	0.0467	0.0175	0.0015	0.108	0.12
DSZ6-5	42	864	105	0.12	947	0.01	1.24	43.0	17.6	74	1.1	0.0498	0.0203	0.0014	0.121	0.14
DSZ6-6	52	715	83.2	0.10	780	0.01	0.84	31.4	15.6	71	1.09	0.0439	0.0219	0.0012	0.116	0.14
DSZ6-7	62	608	52.3	0.07	676	0.01	0.62	21.8	9.48	65	1.11	0.0359	0.0156	0.001	0.086	0.12
DSZ6-8	72	564	20.2	0.05	598	0.01	0.45	13.3	0.52	63	1.06	0.0236	0.0009	0.0008	0.036	0.09
DSZ6-9	75	471	11.0	0.04	529	0.01	0.34	10.3	0.56	54	1.12	0.0218	0.0012	0.0007	0.023	0.08

注: h*: 为沉积物表层地表之下的深度, 单位为 cm; 离子浓度单位为 mM, Na⁺/Cl⁻、Mg²⁺/Cl⁻、Ca²⁺/Cl⁻、K⁺/Cl⁻ 和 SO₄²⁻/Cl⁻ 单位为 mM/mM, Li⁺/Cl⁻ 为 μM/mM, TOC 为孔隙水有机碳含量, 单位为 μg/L。

DSZ2 的 Cl⁻ 浓度为 382~984 mM, 部分样品超过了正常海水的 Cl⁻ 浓度(556 mM), 垂向上最高值出现在深度 28.5 cm 附近, 最低值出现在沉积物表层附近。SO₄²⁻ 浓度为 41.1~115 mM, Na⁺ 浓度为 449~1025 mM, Mg²⁺ 浓度为 0.54~44.01 mM, Ca²⁺ 浓度为 1.11~24 mM, TOC 浓度为 45~101 μg/L。

DSZ3 各离子浓度变化和 DSZ2 类似, 只是最低值不是出现在地表附近, 而是在 6 cm 左右。

DSZ6 采样深度达到了 80 cm, Na⁺、Cl⁻、Mg²⁺ 和 Ca²⁺ 在深度 32 cm 处达到最高值以后持续下降。SO₄²⁻ 和 TOC 在 22 cm 处达到最高值以后持续下降, 最低值分别达到了 10.98 mM 和 54 μg/L, 特别是 Ca²⁺ 浓度在 75 cm 处降低到 0.56 mM。

2.2 沉积物的矿物和主量元素

XRD 分析结果显示, 独山子泥火山地表沉积物与柱状沉积物的矿物成分类似, 都以伊利石、绿泥石、石英和钠长石为主, 含少量的钾长石和方解石, 个别样品含少量其他矿物, 如 D5 为白色角砾, 石英含量为 30%, 重晶石含量为 26.1%, 石膏含量为 43.9%(表 2)。

独山子泥火山(DSZ6)所有柱状沉积物样品都含有绿泥石、伊利石、石英、钾长石、钠长石和方解石(表 2), 与泥火山围岩 DSZ-00(Fu et al., 2007; Zheng et al., 2010a, 2010b)相比, 泥火山沉积物相对富集方解石、伊利石和绿泥石, 没有蒙脱石。其中, 独山子泥火山沉积物中的方解石达到 6.7%~12.5%。

泥火山沉积物所有样品都具有高含量的 SiO₂ (50.00%~60.78%) 和 Al₂O₃ (14.69%~17.20%)(表 3), 相对于围岩样品 DSZ-00, 泥火山沉积物的 Ca 极度富集, 其次 Fe、Mn、Mg 和 P 为富集, K、Na、Al 和 Ti 相似, Si 稍有亏损(图 3)。

3 讨论

相对于其他离子, 独山子泥火山流体主要富集 Na⁺ 和 Cl⁻, 这和其他地区发育的泥火山流体成分特征基本一致(Dia et al., 1999; You et al., 2004; Hensen et al., 2007; Liu et al., 2009; Chao et al., 2011)。独山子泥火山流体在 Na⁺-Cl⁻ 图解中, 虽然部分样品 Cl⁻ 值高于海水, 但同海水值一起均落在同一条直线上(图 4), 说明独山子泥火山流体可能具

表 2 独山子泥火山柱状沉积物、围岩和地表沉积物的矿物成分(%)
Table 2 Mineral compositions(%) of the DSZ6 core sediments, host rock and surface sediments

编号	钠长石	蒙脱石	石英	伊利石	绿泥石	钾长石	方解石
DSZ-00	30.86	6.18	23.61	39.76*	-	-	-
DSZ6-1-5	19.1	-	27.1	24.0	13.0	4.7	12.1
DSZ6-6-10	21.9	-	19.0	23.4	19.9	7.5	8.3
DSZ6-11-15	15.7	-	24.1	37.6	15.8	-	6.9
DSZ6-16-20	14.2	-	20.7	32.8	13.8	8.3	10.2
DSZ6-20-21	19.1	-	18.5	25.3	23.4	3.9	9.7
DSZ6-21-22	17.3	-	18.8	32.5	20.6	2.0	8.9
DSZ6-22-23	14.5	-	21.0	41.5	12.1	2.8	8.2
DSZ6-23-24	12.5	-	21.8	41.3	14.2	2.4	7.9
DSZ6-24-25	19.3	-	18.3	36.3	17.1	2.3	6.7
DSZ6-25-26	18.1	-	21.4	30.2	21.1	-	9.2
DSZ6-26-27	20.8	-	22.3	27.0	17.4	-	12.5
DSZ6-27-28	16.3	-	22.7	31.4	15.6	2.2	11.8
DSZ6-28-29	17.1	-	19.6	34.8	15.9	2.4	10.1
DSZ6-29-30	17.3	-	19.3	31.7	18.5	2.8	10.4
DSZ6-30-31	16.8	-	20.8	38.0	12.6	2.3	9.5
DSZ6-31-32	19.6	-	19.7	31.2	14.2	2.8	12.4
DSZ6-32-33	16.1	-	17.1	36.9	18.6	-	11.1
DSZ6-33-34	12.7	-	20.3	36.6	17.7	3.1	9.6
DSZ6-34-35	17.2	-	17.1	30.1	17.0	7.9	10.1
DSZ6-35-36	16.7	-	17.5	38.9	17.2	-	10.8
DSZ6-36-37	14.1	-	18.5	36.1	14.6	5.0	11.6
DSZ6-37-38	18.1	-	22.1	24.0	19.3	4.8	11.6
DSZ6-38-39	15.0	-	26.5	25.4	20.5	4.6	8.0
D1	18.0	-	29.1	21.4	14.5	5.2	11.8
D2	19.9	-	23.5	23.1	17.4	6.3	9.8
D3*	7.2	-	21.0	23.2	18.0	8.1	9.5
D4*	17.0	-	20.4	19.3	19.3	6.3	10.7
D6	23.9	-	36.2	17.2	18.0	-	4.7
D5	26.1*	43.9*	30.0	-	-	-	-

注: DSZ-00 为泥火山未受蚀变的围岩, 其 39.76%为云母含量; DSZ6-1-5 编号中 1-5 为所采样品深度区间(单位: cm, 下同)。D1-D6 是泥火山表层沉积物, 其中 D5 中的 26.1%和 43.9%分别为重晶石和石膏含量, D3*和 D4*中还含有 3%和 7%的其他矿物。- 代表低于检测限。

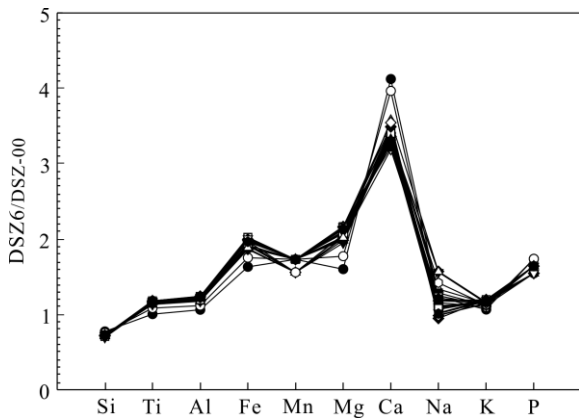


图3 独山子泥火山DSZ6柱状沉积物的主量元素围岩标准化图
Fig.3 Major elements distribution of the DSZ6 core sediments of the DSZ mud volcano normalized by the host rock

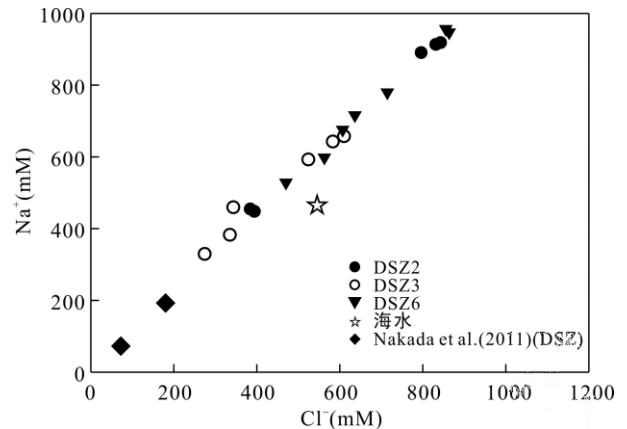


图 4 独山子泥火山孔隙水中 Na⁺和 Cl⁻关系图
Fig.4 Plot of Na⁺ vs Cl⁻ of the pore water of the DSZ core sediments

表 3 泥火山柱状沉积物和围岩 XRF 测定的主量元素含量(%)
Table 3 Major element compositions(%) of the DSZ6 core sediments and host rock

编号	深度 (cm)	SiO ₂	TiO ₂	Al ₂ O ₃	Fe ₂ O ₃ *	MnO	MgO	CaO	Na ₂ O	K ₂ O	P ₂ O ₅	LOI	Total
DSZ-00	0	72.77	0.622	13.92	3.39	0.06	1.75	1.26	2.18	2.74	0.10	3.24	102.03
DSZ6-1-5	5	55.79	0.62	14.69	5.51	0.10	2.79	5.19	2.67	2.9	0.18	9.01	99.46
DSZ6-6-10	15	54.28	0.67	15.45	5.92	0.10	3.09	4.99	2.51	2.99	0.18	9.37	99.55
DSZ6-11-15	25	51.55	0.70	16.25	6.34	0.09	3.40	4.23	3.39	3.13	0.17	10.24	99.49
DSZ6-16-20	35	52.36	0.72	16.36	6.38	0.10	3.46	4.34	2.90	3.13	0.16	9.73	99.65
DSZ6-20-21	41	52.51	0.71	16.48	6.37	0.10	3.48	4.31	2.79	3.05	0.17	9.71	99.68
DSZ6-21-22	43	52.34	0.72	16.5	6.41	0.10	3.50	4.28	2.42	3.13	0.17	10.08	99.64
DSZ6-22-23	45	52.12	0.71	16.34	6.3	0.09	3.46	4.23	3.41	3.17	0.16	9.62	99.64
DSZ6-23-24	47	52.23	0.73	16.62	6.49	0.09	3.52	4.23	2.56	3.15	0.16	9.83	99.62
DSZ6-24-25	49	51.64	0.73	16.72	6.55	0.09	3.59	4.17	2.57	3.16	0.16	10.29	99.67
DSZ6-25-26	51	50.00	0.71	16.39	6.47	0.09	3.51	4.01	2.71	3.05	0.16	13.34	100.43
DSZ6-26-27	53	51.38	0.73	16.81	6.66	0.10	3.67	4.19	2.63	3.19	0.16	10.16	99.68
DSZ6-27-28	55	51.21	0.72	16.54	6.49	0.10	3.54	4.24	3.08	3.07	0.17	10.55	99.69
DSZ6-28-29	57	51.86	0.73	16.85	6.69	0.10	3.62	4.17	2.39	3.21	0.16	9.83	99.61
DSZ6-29-30	59	51.78	0.72	16.98	6.66	0.09	3.60	4.11	2.31	3.21	0.17	9.94	99.57
DSZ6-30-31	61	51.74	0.72	16.83	6.64	0.10	3.65	4.36	2.37	3.15	0.17	10.07	99.79
DSZ6-31-32	63	51.55	0.72	16.30	6.37	0.10	3.52	4.50	3.40	3.13	0.17	9.91	99.66
DSZ6-32-33	65	51.24	0.73	17.16	6.84	0.10	3.77	4.05	2.58	3.25	0.17	9.81	99.70
DSZ6-33-34	67	50.84	0.73	17.11	6.83	0.10	3.78	4.28	2.34	3.26	0.17	10.13	99.57
DSZ6-34-35	69	51.39	0.73	17.20	6.75	0.10	3.78	4.39	2.05	3.26	0.16	9.88	99.69
DSZ6-35-36	71	51.7	0.72	17.06	6.69	0.10	3.76	4.46	2.13	3.14	0.17	9.89	99.82
DSZ6-36-37	73	51.97	0.73	16.92	6.66	0.10	3.71	4.18	2.15	3.11	0.17	10.11	99.80
DSZ6-37-38	75	51.52	0.73	17.06	6.78	0.10	3.78	4.12	2.21	3.24	0.16	10.09	99.78
DSZ6-38-39	78	51.5	0.72	16.92	6.64	0.10	3.73	4.11	2.19	3.20	0.17	10.62	99.89

注: Fe₂O₃*为全铁氧化物含量。

有同一来源,即来自于沉积物孔隙水。

独山子泥火山 3 个柱状沉积物孔隙水 Cl⁻浓度为 274~1023 mM, 远高于代表源区地表喷口池水中的 Cl⁻含量(72.4~180 mM, Nakada et al., 2011), 其最高值也远大于正常海水值(556 mM)。考虑到准噶尔盆地高蒸发率和研究区内不发育石盐, 沉积物孔隙水中如此高的 Cl⁻浓度可能是由地表强烈蒸发作用所引起。孔隙水 Na⁺-Cl⁻显著正相关也显示了地表蒸发作用。这一现象与相似地理与气候条件下的阿塞拜疆 Dashgil 泥火山相一致, 其沉积物孔隙水的高盐度也是由地表蒸发作用引起的(Mazzini et al., 2009)。

由于泥浆和流体快速喷出地表, 遭受生物和非生物作用相对较弱, 而且 Cl 是孔隙水中化学性质最为保守的元素, 因此地表喷口池水离子组成可能代表泥火山源区离子性质。独山子泥火山喷口池水中 Cl⁻含量为 72.4~180 mM(Nakada et al., 2011), 约为海水值的 1/3。而且独山子泥火山孔隙水相对于海水具有更高的 Na⁺/Cl⁻和 Li⁺/Cl⁻值, 更低的 K⁺/Cl⁻和 Mg²⁺/Cl⁻值(表 1)。

世界上大多数泥火山相对于海水都亏损 Cl⁻, 通常被解释为黏土矿物脱水(Kastner et al., 1991; Dia et al., 1999; Brown et al., 2001; Dählmann and de Lange,

2003; You et al., 2004), 或者大气降水注入的结果(Aquilina et al., 1997; Dia et al., 1999)。在地温大于 60 的深度以下, 黏土矿物脱水被认为是产生流体低盐度的主要原因(Vrolijk et al., 1991; Kastner et al., 1991, 1993)。此外, 蒙脱石向伊利石转化不仅降低孔隙水盐度, 而且释放蒙脱石层间 Na⁺和移走流体中的 K⁺。模拟实验证明约 50 时海相沉积物将释放 Li⁺和 B⁺(Chan et al., 1994; You et al., 1996; James et al., 2003)。因此, 孔隙水中 Li 的升高和 K 的丢失可能指示黏土矿物脱水的作用。

同时, 独山子泥火山沉积物中含有大量的伊利石和绿泥石, 而未受泥火山活动影响的泥火山围岩都含蒙脱石(表 2)。Nakada et al. (2011)运用自生方解石和水之间的氧同位素分馏获得独山子平衡温度, 在深度 3670±200 m 可能为 81 °C, 达到了蒙脱石脱水反应和蒙脱石向伊利石转化所需要的温度。在如此高的温度下, 会导致水-岩作用的发生, 沉积物中 Ca、Si 溶解和 Mn、Fe 富集。而且泥火山流体在深部运移或喷发出地表以后, 由于离子浓度的变化, 导致流体中方解石的沉淀, 沉积物中 Ca、Mg 和 Fe 富集。Nakada et al. (2011)对独山子泥火山地表喷口池中离子饱和系数通过计算得出, 泥火山流体对

于方解石和白云石都是饱和。以上均说明独山子泥火山深部可能发生蒙脱石脱水(包括层间水的丢失)和温度升高引起的蒙脱石向伊利石的转化, 导致了孔隙水盐度的降低。

此外, 独山子泥火山3个柱状沉积物孔隙水 Cl^- 浓度均从地表向下逐渐增高, 在约30 cm处达到最大值, 然后向下 Cl^- 浓度下降。台湾雷公湖泥火山柱状沉积物孔隙水中 Cl^- 浓度为527~666 mM, 从表层往下不断增加, 在9 cm处达到最高值后随着深度加深而降低, 也存在相似的分布特征(Chang et al., 2012)。因此独山子泥火山30 cm以下降低的 Cl^- 浓度, 可能说明在深部的流体具有低盐度特征, 可能与黏土矿物脱水有关。30 cm以下的沉积物孔隙水离子组成可能是源区低盐度的流体与地表经过蒸发作用的流体相混合的结果, 而在30 cm以上的孔隙水离子组成可能受到降水稀释作用的影响。

4 结 论

新疆准噶尔盆地南缘独山子泥火山流体和沉积物的地球化学特征显示, 泥火山流体成分主要为 Na^+ 和 Cl^- , 且 Na^+ 与 Cl^- 呈显著的正相关, 表明独山子泥火山流体来源于沉积物孔隙水。柱状沉积物孔隙水 Cl^- 含量远高于代表源区的地表喷口池水中的值, 显示了地表蒸发作用的影响。

泥火山沉积物孔隙水 Cl^- 浓度从地表向下逐渐增高, 在约30 cm处达到最大值, 然后随深度加深而降低。并且, 泥火山沉积物中含有较多的伊利石和绿泥石, 而未受泥火山活动影响的泥火山围岩则富含蒙脱石。此外, 与围岩DSZ-00相比, 泥火山沉积物富含Ca、Fe、Mn、Mg和P, 亏损Si, 说明独山子泥火山的深部源区沉积物发生了蒙脱石脱水作用, 形成了源区的低盐度流体, 30 cm以下沉积物孔隙水离子组成是源区低盐度流体与蒸发作用混合的结果, 而30 cm以上的孔隙水离子组成可能受到降水稀释作用的影响。

致谢: 中国科学院广州地球化学研究所陈毅凤副研究员和曹运诚参加了野外工作, 野外工作中得到了中国科学院地质与地球物理研究所兰州油气资源研究中心郑国东研究员的建议和帮助。感谢两位审稿人对本文评审提出的修改意见。

参考文献(References):

戴金星, 吴小奇, 倪云燕, 汪泽成, 赵长毅, 王兆云, 刘

- 桂侠. 2012. 准噶尔盆地南缘泥火山天然气的地球化学特征. 中国科学(D辑), 42(2): 178-190.
- 高小其, 王海涛, 高国英, 高歌, 王中道, 陆明勇, 桑丽荣, 杨晓芳, 郭卫英, 许秋龙. 2008. 霍尔果斯泥火山活动与新疆地区中强以上地震活动关系的初步研究. 地震地质, 30(2): 464-472.
- 高苑, 王永莉, 郑国东, 孟培, 吴应琴, 杨辉, 张虹, 王有孝. 2012. 新疆准噶尔盆地独山子泥火山天然气地球化学特征. 地球学报, 33(6): 989-994.
- 李猛, 王道, 李茂伟, 戴晓敏. 1996. 新疆独山子泥火山喷发特征的研究. 内陆地震, 10(4): 359-362.
- 李梦, 刘冬冬, 郭召杰. 2013. 准噶尔盆地南缘泥火山活动及其伴生油苗的地球化学特征和意义. 高校地质学报, 19(3): 484-490.
- 王道. 2000. 新疆北天山地区泥火山与地震. 内陆地震, 12(4): 350-353.
- 王道, 李茂玮, 李猛, 戴晓敏. 1997. 新疆独山子泥火山喷发的初步研究. 地震地质, 19: 14-16.
- Aquilina L, Dia A N, Boulegue J, Bourgois J and Fouillac A M. 1997. Massive barite deposits in the convergent margin off Peru: Implications for fluid circulation within subduction zones. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 61(6): 1233-1245.
- Brown K M, Saffer D M and Bekins B A. 2001. Smectite diagenesis, pore-water freshening, and fluid flow at the toe of the Nankai wedge. *Earth and Planetary Science Letters*, 194(1-2): 97-109.
- Chan L H, Gieskes J M, You C F and Edmond J M. 1994. Lithium isotope geochemistry of sediments and hydrothermal fluids of the Guaymas basin, Gulf of California. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 58(20): 4443-4454.
- Chang Y H, Cheng T W, Lai W J, Tsai W Y, Sun C H, Lin L H and Wang P L. 2012. Microbial methane cycling in a terrestrial mud volcano in eastern Taiwan. *Environmental Microbiology*, 14(4): 895-908.
- Chao H C, You C F, Wang B S, Chung C H and Huang K F. 2011. Boron isotopic composition of mud volcano fluids: Implications for fluid migration in shallow subduction zones. *Earth and Planetary Science Letters*, 305(1-2): 32-44.
- Cheng T W, Chang Y H, Tang S L, Tseng C H, Chiang P W, Chang K T, Sun C H, Chen Y G, Kuo H C, Wang C H, Chu P H, Song S R, Wang P L and Lin L H. 2012. Metabolic stratification driven by surface and subsurface interactions in a terrestrial mud volcano.

- The ISME Journal*, 6(12): 2280–2290.
- Dählmann A and de Lange G J. 2003. Fluid-sediment interactions at Eastern Mediterranean mud volcanoes: A stable isotope study from ODP Leg 160. *Earth and Planetary Science Letters*, 212(3–4): 377–391.
- Dia A N, Castrec-Rouelle M, Boulegue J and Comeau P. 1999. Trinidad mud volcanoes: Where do the expelled fluids come from? *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 63(7–8): 1023–1038.
- Dimitrov L I. 2002. Mud volcanoes—the most important pathway for degassing deeply buried sediments. *Earth-Science Reviews*, 59(1–4): 49–76.
- Etiopie G, Feyzullayev A, Milkov A V, Waseda A, Mizobe K and Sun C H. 2009. Evidence of subsurface anaerobic biodegradation of hydrocarbons and potential secondary methanogenesis in terrestrial mud volcanoes. *Marine and Petroleum Geology*, 26(9): 1692–1703.
- Etiopie G, Nakada R, Tanaka K and Yoshida N. 2011. Gas seepage from Tokamachi mud volcanoes, onshore Niigata Basin (Japan): Origin, post-genetic alterations and CH₄-CO₂ fluxes. *Applied Geochemistry*, 26(3): 348–359.
- Fu B H, Zheng G D, Ninomiya, Y, Wang C Y and Sun G. 2007. Mapping hydrocarbon-induced mineralogical alterations in the northern Tian Shan using ASTER multispectral data. *Terra Nova*, 19(4): 225–231.
- Hensen C, Nuzzo M, Hornibrook E, Pinheiro L M, Bock B, Magalhaes V H and Brückmann W. 2007. Sources of mud volcano fluids in the Gulf of Cadiz—indications for hydrothermal imprint. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 71(5): 1232–1248.
- James R H, Allen D E and Seyfried W E. 2003. An experimental study of alteration of oceanic crust and terrigenous sediments at moderate temperatures (51 to 350 °C): Insights as to chemical processes in near-shore ridge-flank hydrothermal systems. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 67(4): 681–691.
- Kastner M, Elderfield H, Jenkins W J, Gieskes J M and Gamo T. 1993. Geochemical and isotopic evidence for fluid in the western Nankai subduction zone, Japan // Hill I A, Taira A and Firth J V. Proceeding of the Ocean Drilling Program Scientific Reports 131. Ocean Drilling Program, College Station, TX: 397–413.
- Kastner M, Elderfield H and Martin J B. 1991. Fluids in convergent margins: what do we know about their composition, origin, role in diagenesis and importance for oceanic chemical fluxes? *Philosophical Transactions of the Royal Society A*, 335, 243–259.
- Kopf A J. 2002. Significance of mud volcanism. *Reviews of Geophysics*, 40(2): 1–52.
- Li X H, Qi C S, Liu Y, Liang X R, Tu X L, Xie L W and Yang Y H. 2005. Petrogenesis of the Neoproterozoic bimodal volcanic rocks along the western margin of the Yangtze Block: New constraints from Hf isotopes and Fe/Mn ratios. *Chinese Science Bulletin*, 50(21): 2481–2486.
- Liu C C, Jean J S, Nath B, Lee M K, Hor L I, Lin K H and Maity J P. 2009. Geochemical characteristics of the fluids and muds from two southern Taiwan mud volcanoes: Implications for water-sediment interaction and groundwater arsenic enrichment. *Applied Geochemistry*, 24(9): 1793–1802.
- Martin J B, Kastner M, Henry P, LePichon X and Lallement S. 1996. Chemical and isotopic evidence for sources of fluids in a mud volcano field seaward of the Barbados accretionary wedge. *Journal of Geophysical Research-Solid Earth*, 101(B9): 20325–20345.
- Mazzini A. 2009. Mud volcanism: Processes and implications. *Marine and Petroleum Geology*, 26(9): 1677–1680.
- Mazzini A, Svensen H, Planke S, Guliyev I, Akhmanov G G, Fallik T and Banks D. 2009. When mud volcanoes sleep: Insight from seep geochemistry at the Dashgil mud volcano, Azerbaijan. *Marine and Petroleum Geology*, 26(9): 1704–1715.
- Milkov A V. 2000. Worldwide distribution of submarine mud volcanoes and associated gas hydrates. *Marine Geology*, 167(1–2): 29–42.
- Milkov A V. 2005. Global distribution of mud volcanoes and their significance in petroleum exploration as a source of methane in the atmosphere and hydrosphere and as a geohazard // Martinelli G and Panahi B. Mud Volcanoes, Geodynamics and Seismicity: 29–34.
- Milkov A V and Etiopie G. 2005. Global methane emission through mud volcanoes and its past and present impact on earth climate. *International Journal of Earth Sciences*, 94(3): 493–494.
- Nakada R, Takahashi Y, Tsunogai U, Zheng G D, Shimizu H and Hattori K H. 2011. A geochemical study on mud volcanoes in the Junggar Basin, China. *Applied Geochemistry*, 26(7): 1065–1076.
- Nath B, Jean J S, Lee M K, Yang H J and Liu C C. 2008. Geochemistry of high arsenic groundwater in Chia-Nan plain, Southwestern Taiwan: Possible sources and

- reactive transport of arsenic. *Journal of Contaminant Hydrology*, 99(1–4): 85–96.
- Neurauter T W and Bryant W R. 1990. Seismic expression of sedimentary volcanism on the continental slope, northern Gulf of Mexico. *Geo-Marine Letters*, 10(4): 225–231.
- Planke S, Svensen H, Hovland M, Banks D A and Jamtveit B. 2003. Mud and fluid migration in active mud volcanoes in Azerbaijan. *Geo-Marine Letters*, 23(3–4): 258–268.
- Shindell D T, Faluvegi G, Koch D M, Schmidt G A, Unger N and Bauer S E. 2009. Improved Attribution of Climate Forcing to Emissions. *Science*, 326(5953): 716–718.
- Sun C H, Chang S C, Kuo C L, Wu J C, Shao P H and Oung J N. 2010. Origins of Taiwan's mud volcanoes: Evidence from geochemistry. *Journal of Asian Earth Sciences*, 37(2): 105–116.
- Taylor J C. 1991. Computer programs for standardless quantitative analysis of minerals using the full powder diffraction profile. *Powder Diffraction*, 6: 2–9.
- Vrolijk P, Fisher A and Gieskes J. 1991. Geochemical and geothermal evidence for fluid migration in the Barbados accretionary prism (ODP Leg 110). *Geophysical Research Letters*, 18(5): 947–950.
- Wan Z F, Shi Q H, Guo F, Zhong Y and Xia B. 2013. Gases in Southern Junggar Basin mud volcanoes: Chemical composition, stable carbon isotopes, and gas origin. *Journal of Natural Gas Science and Engineering*, 14: 108–115.
- You C F, Castillo P R, Gieskes J M, Chan L H and Spivack A J. 1996. Trace element behavior in hydrothermal experiments: Implications for fluid processes at shallow depths in subduction zones. *Earth and Planetary Science Letters*, 140(1–4): 41–52.
- You C F, Gieskes J M, Lee T, Yui T F and Chen H W. 2004. Geochemistry of mud volcano fluids in the Taiwan accretionary prism. *Applied Geochemistry*, 19(5): 695–707.
- Zheng G, Fu B H, Takahashi Y, Kuno A, Matsuo M and Zhang J. 2010a. Chemical speciation of redox sensitive elements during hydrocarbon leaching in the Junggar Basin, Northwest China. *Journal of Asian Earth Sciences*, 39(6): 713–723.
- Zheng G D, Fu B H, Kuno A and Matsuo M. 2010b. Iron speciation in bleached rocks by hydrocarbon leaching in Dushanzi Mud Volcano, NW China. *Journal of Physics: Conference Series* 217 012048, doi: 10.1088/1742-6596/217/1/012048.

Geochemical Features and Origins of Pore Fluids and Sediments of the Mud Volcanoes in Southern Margin of the Junggar Basin, Xinjiang, Northwestern China

HUANG Huagu^{1,2}, LI Niu², WANG Qinxian² and CHEN Duofu²

(1. Guangdong Geologic Survey Institute, Guangzhou 510080, Guangdong, China; 2. Key Laboratory of Marginal Sea Geology, Guangzhou Institute of Geochemistry, Chinese Academy of Sciences, Guangzhou 510640, Guangdong, China)

Abstract: Fluid sources and geochemical processes involved in terrestrial mud volcanoes are of great significance for understanding the chemical processes of methane emission to the atmosphere. Mud sediments ejected from the Dushanzi mud volcano, which is located along the southern margin of the Junggar Basin, northwestern China, were collected by hand core sampling. The ionic compositions of the pore fluids, minerals and major elements of the ejected sediments and surface sediments were analyzed. The results showed that significant correlation between Cl^- and Na^+ in pore fluids. Relative to seawater, the mud volcano fluids have higher ratios of K^+/Cl^- and $\text{Mg}^{2+}/\text{Cl}^-$ and lower ratios of Na^+/Cl^- and Li^+/Cl^- . The mud sediments are enriched in illite, chlorite and calcite but depleted in smectite relative to the host rocks of the mud volcano. The changes in the mud and pore fluids are mainly related to clay mineral dehydration. The fluids were mainly derived from ancient sedimentary low salinity pore fluids, but modified by the surface evaporation and meteoric surface water.

Keywords: mud volcano; pore fluid; sediment; geochemistry; modification; fluid source; Xinjiang