

DOI: 10.16562/j.cnki.0256-1492.2020061801

# 南海东沙海域深水区末次冰期以来天然气水合物稳定带演化

刘杰<sup>1,2</sup>, 刘丽华<sup>1</sup>, 吴能友<sup>3</sup>, 邬黛黛<sup>1</sup>, 金光荣<sup>1</sup>, 杨睿<sup>3</sup>

1. 中国科学院广州能源研究所, 广州 510640

2. 自然资源部海底矿产资源重点实验室, 广州 510075

3. 青岛海洋地质研究所, 青岛 266071

**摘要:** 利用基于热力学理论的 CSMHYD 程序, 模拟预测了末次冰期以来南海东沙海域深水区天然气水合物稳定带 (GHSZ) 的演化特征, 同时讨论了海平面、底水温度对该区天然气水合物稳定带变化的影响, 以及水合物分解对环境的影响。结果表明: ①水深超过 595 m 的海域具备形成天然气水合物的环境条件; GHSZ 平均厚度可达 245 m, 其中最厚区位于研究区东部, 超过 380 m, 其次为东沙陆坡段与台湾浅滩陆坡段的结合部。②末次冰期 (LGM) 以来东沙海域 GHSZ 厚度呈现不对称旋回变化, 按照时间由老到新可以分为 TC1、TC2、TC3、TC4 和 TC5 共 5 个完整的旋回。稳定带变化的减薄半旋回持续时间要长于增厚半旋回。TC1—TC4 旋回内 GHSZ 厚度变化受海平面升降的控制, TC5 旋回内稳定带厚度变化受到海底温度的控制。③在由陆缘向中央海盆方向逐渐增大的高地温梯度背景下, LGM 以来海底温度和海平面变化对 GHSZ 的影响在中层水范围内大于深层水; 同时水柱引起的压力效应在中层水深度范围内相对较大, 深层水范围内海平面变化对 GHSZ 的影响十分有限。东沙海域  $\text{CaCO}_3$  含量异常降低可能受水合物分解释放的甲烷气进入水体后引起海水酸化的影响。

**关键词:** 天然气水合物; 稳定带厚度; 天然气水合物分解; 末次冰期; 东沙海域

中图分类号:P736.21 文献标识码:A

## Evolution of gas hydrate stability zone in the deep water of Dongsha sea area since the Last Glaciation Maximum

LIU Jie<sup>1,2</sup>, LIU Lihua<sup>1</sup>, WU Nengyou<sup>3</sup>, WU Daidai<sup>1</sup>, JIN Guangrong<sup>1</sup>, YANG Rui<sup>3</sup>

1. Key Laboratory of Gas Hydrate, Guangzhou Institute of Energy Conversion, Guangzhou 510640, China

2. Key Laboratory of Marine Mineral Resources, Ministry of Natural Resources, Guangzhou 510075, China

3. Qingdao Institute of Marine Geology, Qingdao 266071, China

**Abstract:** The evolutionary history of the gas hydrate stability zone (GHSZ) in the Dongsha deep water area since the last glacial maximum (LGM) is simulated and predicted using the CSMHYD program, and the fluctuations of sea level and bottom water temperature and their effects on the thickness of gas hydrate stability zone as well as the effects of hydrate decomposition on environment are carefully investigated and discussed. The results show that: (1) Gas hydrate could form in the sea area at a water depth more than 595 m; the current theoretical thickness of GHSZ is 245 m on average, and the maximum could be over 380 m which is located in the eastern part of the study area. Another area with large thickness is found at the juncture of the Dongsha continental slope and the Taiwan shoal continental slope. (2) The thickness of GHSZ in the Dongsha sea area has changed in an asymmetrical pattern since the LGM. It can be divided chronologically into five complete cycles, named TC1, TC2, TC3, TC4 and TC5 respectively. The thinning half-cycles are longer in time than those of the thickening ones. The thickness of GHSZ in cycles of TC1-TC4 is controlled by sea level fluctuation, while the thickness of cycle TC5 mainly controlled by sea bottom temperature. (3) The seabed temperature and sea level changes bring stronger effects on GHSZ thickness in the intermediate water area rather than in the deep water area. Meanwhile, the pressure effect is relatively obvious in the intermediate water depth area. The influence of sea level variation on GHSZ in the deep water area is limited. The abnormal decrease in  $\text{CaCO}_3$  content in the Dongsha sea area is possibly due to the acidification caused by the methane released from gas hydrates dissociation.

**Key words:** gas hydrate; thickness of gas hydrate stable zones; gas hydrate dissociation; Last Glacial; Dongsha sea area

**资助项目:** 自然资源部海底矿产资源重点实验室项目“天然气水合物油气系统数值模拟研究”(KLMRR-2017-B-08); 广东省促进经济发展专项资金(海洋经济发展用途)项目“南海泥质粉砂天然气水合物储层开采流固产出预测与控制技术研究”(GDNRC[2020]047); 广东省科技计划项目“广东省社会发展科技协同创新中心建设”(20180207)

**作者简介:** 刘杰(1986—), 男, 助理研究员, 从事海域天然气水合物成藏地质条件分析, E-mail: liujie1@ms.giec.ac.cn

**通讯作者:** 刘丽华(1968—), 女, 研究员, 博士, 主要从事天然气水合物地球化学研究, E-mail: liulh@ms.giec.ac.cn

**收稿日期:** 2020-06-18; **改回日期:** 2020-09-23。文凤英编辑

天然气水合物(以下简称水合物)是由水和气体(甲烷为主)组成的笼状结构的化合物, 稳定存在于高压低温环境中; 主要分布于海底沉积物和陆地永久冻土区。天然气水合物的形成和分解受压力、温度、气体组分和盐度等环境条件的制约, 是一个动态过程<sup>[1-3]</sup>。深入认识这一动态过程, 尤其是水合物稳定带(GHSZ)厚度变化对海底甲烷水合物藏富集成矿规律的研究、潜在地质灾害的预测和对全球碳循环、(古)气候变化的评估有着重要的科学意义。

水合物的动态成藏过程会留下独特的地形地貌、地球化学、地球物理等方面证据。在水合物蕴藏区, 海底滑塌、麻坑群和水合物丘等微地形地貌特征常与水合物的分解和气体的渗漏密切相关<sup>[4]</sup>。孔隙水组分、海底自生碳酸盐含量、生物标志化合物等地球化学异常可以指示天然气水合物发育的动态变化过程<sup>[5-7]</sup>。而地球物理探测, 则主要是从双似海底反射层(BSR)或多 BSR 特征来识别。世界上已知的典型双 BSR 或多 BSR 存在于挪威西部大陆边缘、日本南海海槽、布莱克海脊和黑海多瑙河深海扇等<sup>[8-9]</sup>。

2013 年钻探结果表明东沙海域深水区含天然气水合物沉积层位于海底 220 m 以内的粉砂质黏土沉积物中; 水合物实物样品中甲烷气体含量超过 99%。据孔隙水 Cl<sup>-</sup>浓度含量推算的水合物饱和度大于 45%<sup>[10]</sup>。针对该区域内水合物动态成藏过程已经做了大量研究<sup>[6,10-11]</sup>。陈芳等<sup>[11]</sup>对南海东沙海域陆坡区 973-3 柱状样有孔虫、碳酸钙和黄铁矿分析发现, 该岩芯有孔虫的  $\delta^{13}\text{C}$  在末次盛冰期(LGM)多个层位均发生负偏, 表明 LGM 东沙海域至少发生过 4 次强度相当的甲烷渗漏事件, 推测甲烷渗漏的最大可能是海平面下降引起水合物分解。相关研究成果不仅为水合物动态演化提供了地质地球化学证据, 也指出了水合物分解的可能期次、甲烷通量的变化以及水合物分解的可能诱因。遗憾的是 LGM 以来 GHSZ 厚度的变化特征、水合物分解释放甲烷总量以及区域环境条件对 GHSZ 影响定量评价等方面尚有待深入。

本文以东沙海域深水区为研究区, 模拟 65 ka 以来 GHSZ 厚度的变化特征; 揭示该区域内 LGM 和现今的 GHSZ 平面分布和变化情况; 分析 LGM 以来环境改变对 GHSZ 厚度变化的影响; 估算 LGM 以来水合物分解释放的总量, 初步探讨水合物分解对区域环境的影响。

## 1 地质背景

东沙海域深水区位于台西南盆地, 该盆地处于南海东北部被动大陆边缘, 东接欧亚板块和吕宋岛弧碰撞形成的台湾弧陆碰撞造山带, 西侧与珠江口盆地相接。中中新世—上新世, 盆地发生大规模沉降运动, 形成了巨厚的半深海—深海沉积。研究区水深为 200~3600 m, 向东南方向逐渐变深(图 1a、1b)。上下陆坡分界线位于 2100 m 等深线处, 上陆坡区发育近北北西向的峡谷/冲沟群<sup>[12]</sup>(图 1b); 峡谷间则被线性脊状地貌所分隔, 下陆坡区地形相对平坦。根据陆坡走向和地形变化, 研究区陆坡分为东沙陆坡段和台湾浅滩陆坡段(图 1b)。东沙陆坡段陆架宽阔平坦, 接受来自东沙群岛以及东沙台地的物源。台湾浅滩陆坡段的陆架相对狭窄, 其西侧的物源来自华南大陆, 东侧接受来自台湾岛的大量沉积物供给。在深水底流沉积作用下, 研究区发育大量高沉积速率堆积体<sup>[13]</sup>。活跃的浊流和底流作用使得该研究区成为南海沉积速率非常高的海区。

根据水体的温度、盐度和 pH 值, 南海水体分为 3 层: (1)表层水(0~350 m); (2)中层水(350~1350 m); (3)深层水(>1350 m)<sup>[14]</sup>。南海中层水温度为 3.7~10.6 °C, 呈南西至北东方向顺时针运动。深层水主要为北太平洋深层水经巴士海峡进入南海海盆, 沿陆架向西做逆时针运动<sup>[15]</sup>。其温度在 2~3.7 °C 内变化, 超过 2800 m 的下部深层水温度趋于稳定(2 °C)<sup>[16]</sup>(图 1c、1d)。

## 2 方法与数据的来源

### 2.1 GHSZ 厚度计算方法

GHSZ 是天然气水合物-水-气体三相平衡的热力学稳定范围, 主要受温度、压力、盐度约束。海水温度-压力变化曲线与水合物相平衡线的交点是 GHSZ 的顶界, 沉积地层中温度与水合物相边界交点的深度是 GHSZ 底界, 底界到海底的距离是 GHSZ 厚度。有多个模型可以计算水合物的相平衡条件, 其中基于热力学理论的 CSMHYD 程序应用较广泛<sup>[17]</sup>。本文依据东沙海域实际资料(盐度为 34.5‰)<sup>[18]</sup>, 采用该程序模拟计算 GHSZ 的厚度。部分输入数据取值依据见下文。

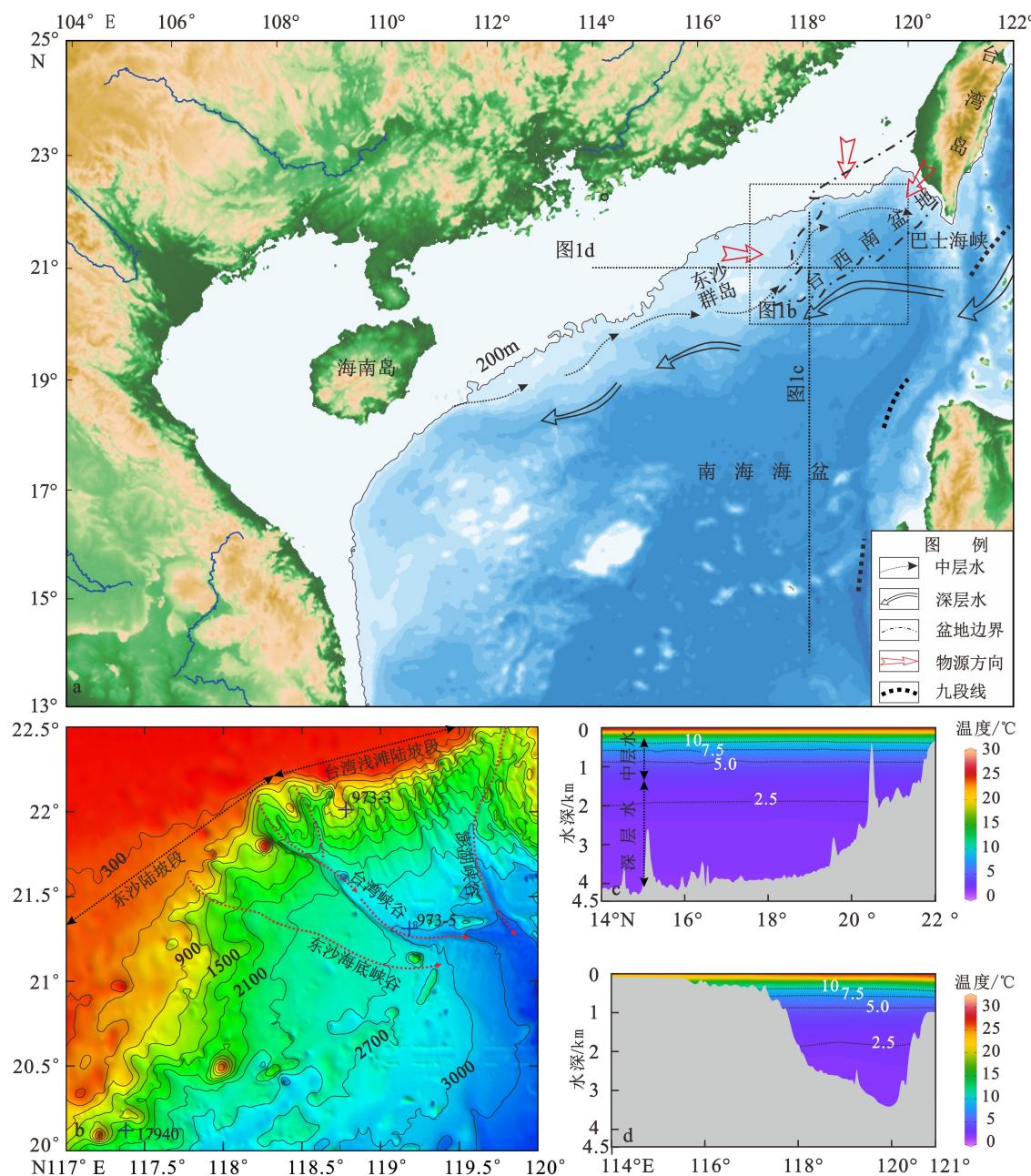


图 1 台西南盆地和研究区的位置图 (a)、研究区水深地形图 (b) 和水体温度剖面图 (c, d)

水深数据来自 NOAA 网站; 图 c 和 d 用软件 Ocean Data View<sup>[16]</sup>制作。

Fig.1 The location map of the Southwest Taiwan Basin and the study area(a), Bathymetric map of the study area(b)and water temperature profile(c,d)

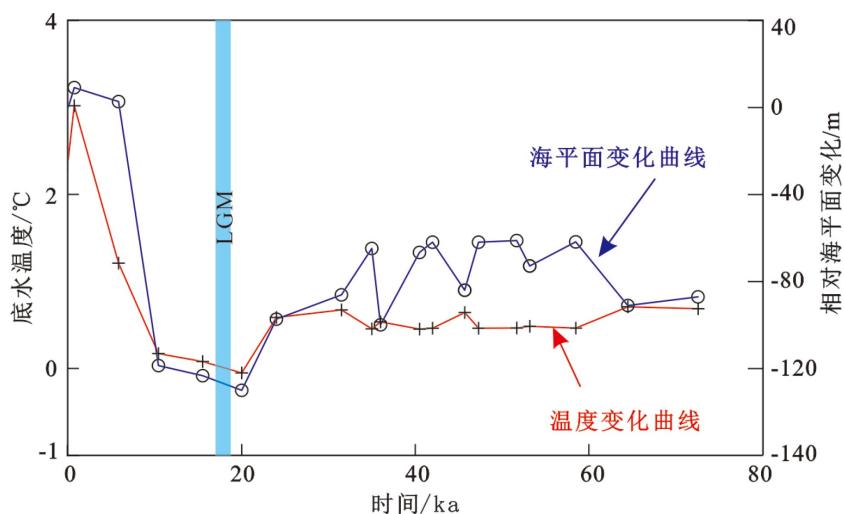
water depth data from National Geophysical Data Center website; figures c and d are made with Ocean Data View, Schlitzer, 2009.

## 2.2 数据的来源及依据

### 2.2.1 静水压力

模拟水合物稳定带厚度的区域分布时,忽略潜在的局部异常压力对天然气水合物相平衡的影响,采用地层静水(岩)压力计算 GHSZ 厚度。压力数据通过海底深度数据获得,而深度数据则取自美国国家地球物理数据中心(NGDC)的 ETOP02 数据库。

第四纪以来南海地区的海平面变化趋势和幅度与全球一致<sup>[19-20]</sup>。Bates 等<sup>[20]</sup>利用 ODP1148 站位的底栖有孔虫氧同位素数据,重建了 5 Ma 以来南海的相对海平面和深海温度,结果显示末次冰期时南海海平面与现在相比下降了约 130 m,深水水团温度最低接近 0 °C<sup>[20]</sup>。本文采用 Bates 等<sup>[20]</sup>的全球海平面变化趋势,模拟甲烷水合物稳定带厚度的变化(图 2 中蓝色曲线)。

图 2 模拟天然气水合物稳定带演化史所采用的相对海平面变化和温度变化曲线<sup>[20]</sup>Fig.2 Relative sea level change and temperature change curve used to simulate the evolution of GHSZ<sup>[20]</sup>

### 2.2.2 海底温度

基于文献报道的海底水温数据<sup>[21-22]</sup>和美国国家海洋和大气管理局的 WOA13 模型(<https://www.nodc.noaa.gov/OC5/woa13/>)，获得东沙海域海底温度分布图(图 3a)。东沙海域深水区海底温度为 2~13 °C，等温线与海底地形变化的趋势基本一致，海底温度随着水深的加深而变小；在水深 595 m 处，温度条件可以满足水合物形成的临界温度。在水深 1760~3000 m 范围内海底温度变化较慢(在 2~3 °C)。

研究认为水团温度的变化是影响水合物稳定的重要因素<sup>[23]</sup>。海域天然气水合物常分布在松散的沉积物内，孔隙水与底层水相连，海底表层温度的变化与水团的温度变化一致。目前还没有关于南海水团结构和温度在千年尺度上演变的报道。因此，假设 LGM 以来东沙海域中层水和深层水间温度变化同步同幅，采用基于 ODP1148 站位底栖有孔

虫  $\delta^{18}\text{O}$  获得的深层水古温度变化曲线(图 2 中红色曲线)，来分析海底温度变化对 GHSZ 厚度的影响。

### 2.2.3 地温梯度

地温梯度(热流值除以热导率)直接影响水合物底界面埋深，而地温梯度主要源于海底热流探针测量和钻孔测量数据。本文采用的地温梯度数据主要为海底热流探针数据<sup>[21-26]</sup>，得到的海底表层地温梯度应略大于 GHSZ 内平均地温梯度。东沙海域地温梯度变化为 40~90 °C/km，平均热流值为 60 °C/km，是高热流背景的海域(图 3b)。研究区中部的热流可达 80~110 °C/km(图 3b)。

南海北部流花运动(1.87~1.4 Ma)期间曾伴随强烈的火山活动。数值模拟表明该构造运动引起的热效应，到目前为止已对该区水合物稳定域的发育没有影响<sup>[27-28]</sup>，因此本文假设地温梯度 LGM 以来保持不变。

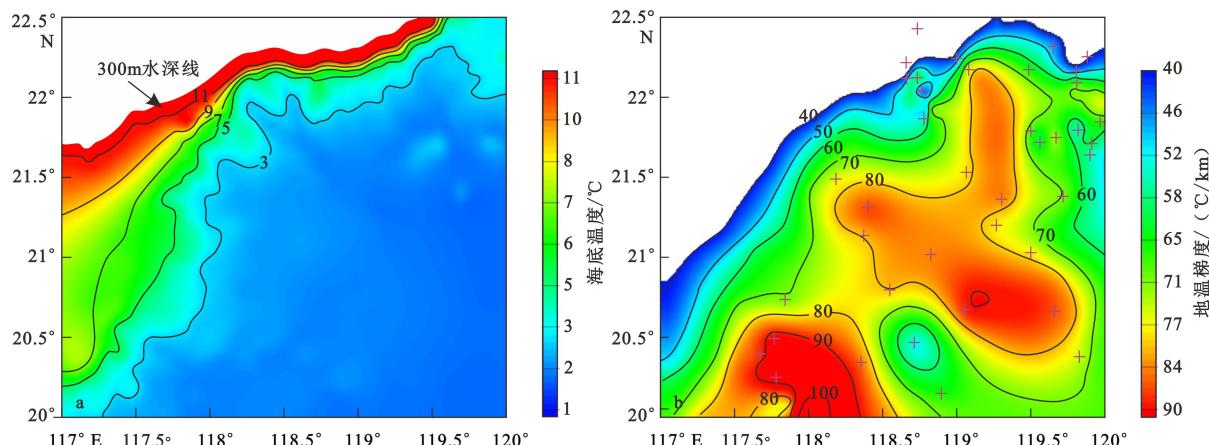


图 3 东沙海域深水区海底温度(a)和地温梯度(b)分布图

Fig.3 distribution of bottom temperature(a)and geothermal gradient(b)in the deep water area of Dongsha sea area

### 3 结果与讨论

#### 3.1 973-3 站位处 GHSZ 和水合物演化的旋回性

973-3 站位水深为 1026 m。采用网格化插值得到海底温度为 4.5 °C, 地温梯度为 50 °C/km, 计算得到 GHSZ 厚度为 182.5 m(图 4a)。假设地温梯度不变, 根据研究区水深和温度数据, 模拟 LGM 以来该站位水合物稳定带厚度演化情况。LGM 以来东沙海域水合物稳定带厚度呈现旋回变化(图 4b), 稳定带厚度由增厚到减薄 2 个半旋回组成一个完整的旋回。从底部向上稳定带厚度变化呈现 5 个完整旋回, 即 TC1(64.5~53.2 ka)、TC2(53.2~45.7 ka)、TC3(45.7~36 ka)、TC4(36~24 ka) 和 TC5(24 ka~)。

从 GHSZ 厚度变化时间来看, 其变化旋回具有不对称性, 且减薄半旋回持续时间要长于增厚半旋回的时间。TC1—TC4 旋回期间海底温度变化不大, 比现今低 1.69~1.95 °C。这 4 个旋回内稳定带厚度变化受海平面升降的控制, 即海平面上升则稳定带厚度增厚, 海平面下降则稳定带厚度减薄, 厚度为 207~217 m。各旋回内 GHSZ 厚度变化不大, 上升半旋回最大厚度仅比下降半旋回厚度大 10 m 左右。TC5 旋回内海底温度和海平面变化幅度几乎同步增大。该旋回在 20 ka 时海底温度比现今低

2.45 °C, 海平面比现今低 130 m, 稳定带厚度达到最大值(215 m)。TC5 旋回的增厚半旋回大致对应 LGM 时期, 该时期 GHSZ 增厚主要由海底温度下降引起。海平面下降会导致更多粗粒沉积物沉积, 有利于形成高饱和度水合物。TC5 旋回的减薄半旋回即 LGM 末期至今, 由于海底温度的上升导致 GHSZ 减薄。

除了温压条件外, 水合物在海洋沉积物中的成藏受到其他环境条件, 尤其是气体供给和沉积速率等控制<sup>[29]</sup>。水合物中的甲烷多为有机碳降解产物, 有机碳含量越高, 越有利于原位生物成因气的产生, 相应地微生物成因水合物的饱和度也较高。Johnson 等<sup>[30]</sup>研究来自印度大陆边缘 9 个水合物站位的样品, 发现含水合物沉积层中总有机碳含量多数大于 1%, 而且高饱和度水合物多发育于总有机碳含量最高的克里希纳-戈达瓦里(Krishna-Godavari, K-G)盆地。越来越多的研究表明沉积速率影响有机碳含量, 而沉积物物性特征和稳定带底界的迁移过程等影响水合物的成藏条件。沉积速率较高或粒度较粗的沉积体多是水合物形成和聚集的有利层位<sup>[31-34]</sup>, 如布莱克海台处发育的等深流沉积体<sup>[31]</sup>、印度 K-G 盆地的碎屑流沉积体<sup>[32]</sup>、墨西哥湾北部深水区的浊积水道-天然堤复合体系<sup>[33]</sup>等水合物发育区。东沙海域沉积物中的有机碳含量与神狐海域钻探区的相近(平均值均为 0.7%), 但东沙海域 120 ka

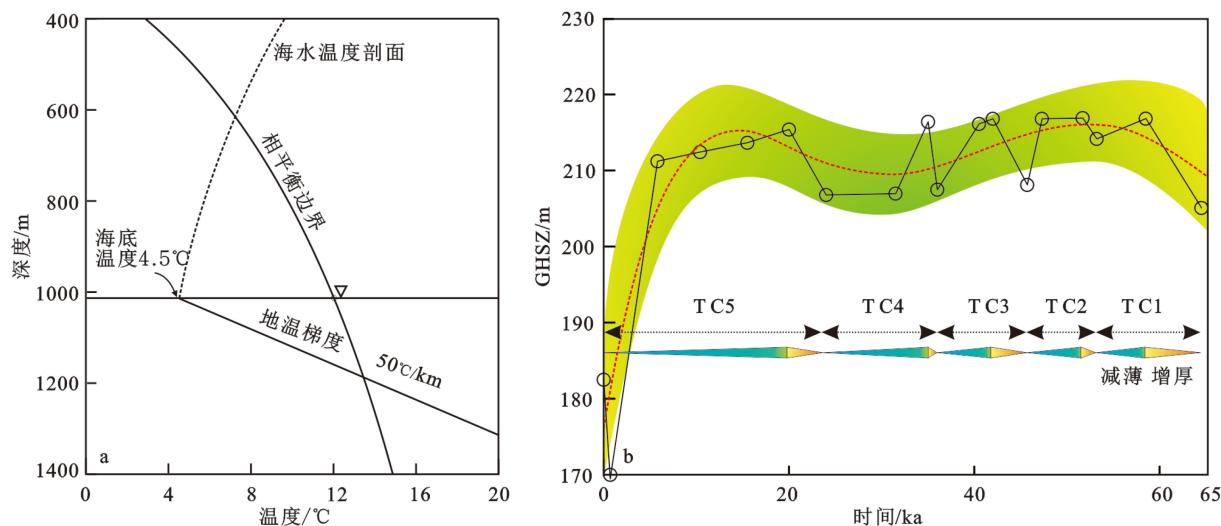


图 4 末次冰期以来东沙海域天然气水合物稳定带厚度的演化

a. 表示 973-3 站位的天然气水合物稳定带相图; b. 表示 973-3 站位的水合物稳定带厚度变化, 其中红色虚线表示拟合曲线, 拟合相关系数为 0.854, 标准误差估计为 5.38 m, 阴影表示 95% 的置信区间。黑色折线表示稳定带厚度的变化曲线。

Fig.4 Thickness evolution of GHSZ in Dongsha sea area since the Last Glaciation

a. Shows the phase diagram of GHSZ at station 973-3; b. shows the thickness change of GHSZ at station 973-3, in which the red dotted line represents the fitting curve; the fitting correlation coefficient is 0.854, the estimated standard error is 5.38 m, and the shadow represents the 95% confidence interval. The black line represents the curve of the thickness of GHSZ.

以来的平均沉积速率( $46.9\sim73.3\text{ cm/ka}$ )远高于神狐钻探区和南海其他地区,且该区域浊流体系十分发育,沉积物粒度较粗,这些可能是导致东沙海域钻探区天然气水合物饱和度高(>45%)的重要因素。同时,东沙海域的沉积速率和总有机碳含量均显示出冰期或间冰期中的亚冰阶高,而相邻的间冰期或亚间冰阶低的特点,尤其是LGM以来这种特点尤为明显<sup>[35-37]</sup>。根据沉积速率和总有机碳含量这两个影响水合物饱和度的重要参数以及GHSZ旋回性变化的特征,可以推测天然气水合物饱和度也具有类似的旋回特征。

### 3.2 LGM 以来 GHSZ 的平面分布和变化

TC5 旋回中 GHSZ 最大值出现在增厚半旋回向减薄半旋回过渡的转换处,大致处于 LGM。根据前述原理,分析 TC5 旋回内现今和 LGM 时期 GHSZ 平面分布与变化特征,计算网格精度为  $0.3^\circ \times 0.25^\circ$ ,

结果显示水合物钻探航次 GMGS-2 内的现今 GHSZ 厚度为  $60\sim250\text{m}$ ,这与钻孔测井解释水合物稳定带底界面埋深一致<sup>[38]</sup>,而本文所绘制的 GHSZ 厚度图精度更高。随着海水加深,现今的 GHSZ 从凹陷边缘向凹陷中心逐渐增厚(图 5a)。现今 GHSZ 厚度在研究区东北部的台湾浅滩陆坡段随水深的增加迅速增大,而西部东沙陆坡段由于地形相对平缓,厚度变化不显著。GHSZ 分布面积为  $6.49 \times 10^4 \text{ km}^2$ ,最小水深约 595 m。现今 GHSZ 厚度的面积加权平均值为 245 m,厚度最大的区域呈条带状或环状分布于研究区的东部,超过 380 m。LGM 时期 GHSZ 平面分布特征与现今一致(图 5b)。LGM 时期 GHSZ 的 250 m 等厚线向浅水区移动迁移了 5 km,相当于现今的 586 m 水深处,分布面积为  $6.62 \times 10^4 \text{ km}^2$ ,大于当前面积。其时 GHSZ 厚度的面积加权平均值为 271 m,最大厚度出现在东部水深超过 3200 m 的区域,厚度可达 450 m 以上。TC5 旋回期间,GHSZ

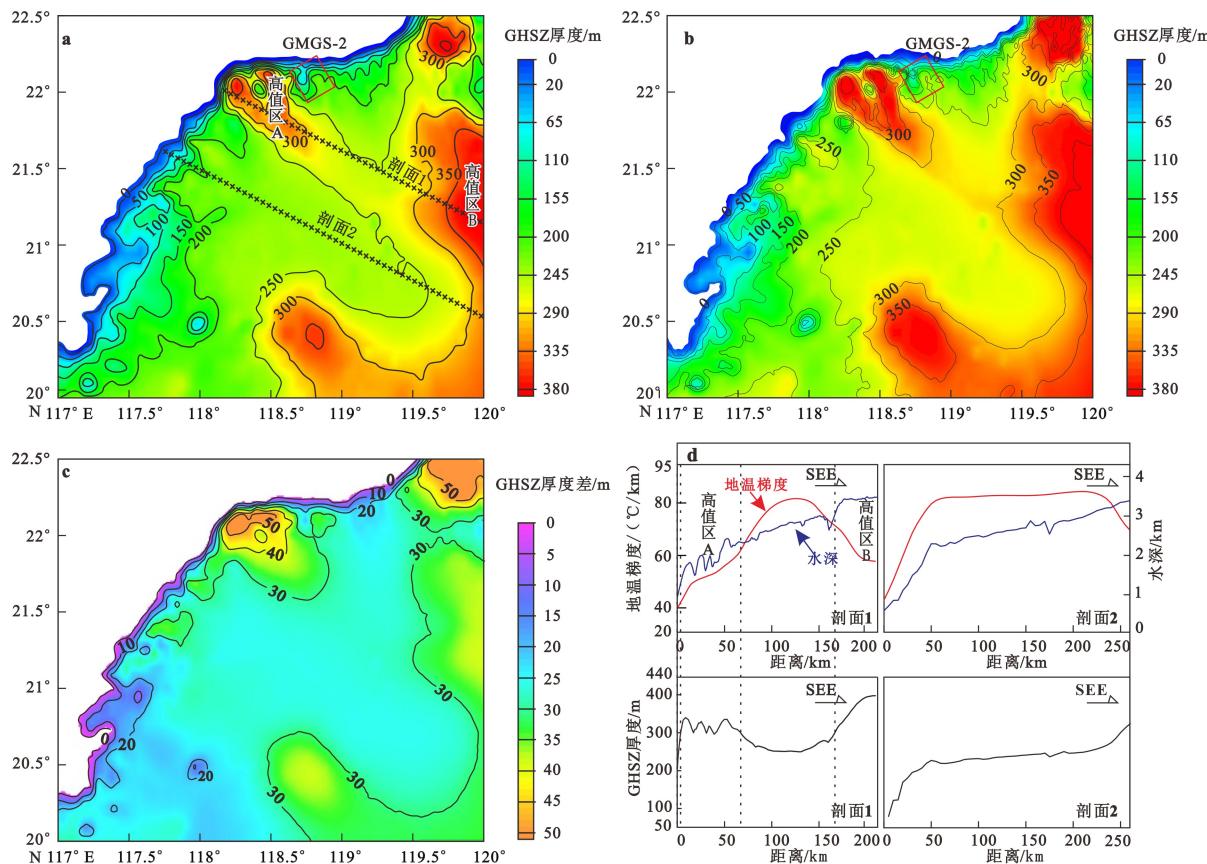


图 5 东沙海域深水区现今和 LGM 时期的 GHSZ 厚度分布

- a. 现今 GHSZ 厚度平面分布特征, b. LGM 时期 GHSZ 厚度平面分布特征, c. LGM 时期 GHSZ 厚度与现今 GHSZ 之差,
- d. 剖面 1 和 2 上的地温梯度、水深和 GHSZ。

Fig.5 Distribution of GHSZ thickness in deep water area of Dongsha sea area during present and LGM

- a. The thickness distribution of GHSZ at present; b. the thickness distribution of GHSZ in LGM period; Fig c. The thickness difference between GHSZ at present and GHSZ in LGM period; Fig. d. the geothermal gradient, water depth and GHSZ on profile 1 and 2.

最大厚度相对现今减薄了 0~65 m, 平均减薄量为 25 m, GHSZ 减薄厚度由浅水区向深水区呈现先增大后减小到再次增大的趋势(图 5c)。厚度减薄最大的区域与 GHSZ 厚度最大区域分布一致, 为 30~65 m。

不同时代 GHSZ 厚度剖面 1 和剖面 2 上分布特征(图 5d)显示, 水深和地温梯度共同控制了 GHSZ 的平面分布。海底温度和静水压力随着水深的增加分别呈指数降低和线性增大, 而南海北部陆坡的地温梯度受到地幔热流的控制, 具有沿地壳厚度减薄的方向(也就是水深加深方向)呈上升的趋势。在 SSE 走向的剖面 1 上 GHSZ 厚度呈“U型”分布的特征, 即中部为低值区, 西部和东部为 GHSZ 高值区(厚度大于 300 m)A 和 B, 其中高值区 A 位于西部浅水区, 水深为 1000~2500 m, 地温梯度由 40 °C/km 逐渐增加到 62 °C/km, 现今 GHSZ 厚度为 300~345 m。高值区 B 位于东部深水区, 水深大于 3100 m, 地温梯度由 72 °C/km 降低到 58 °C/km, 现今 GHSZ 厚度随之由 300 m 上升到 380 m。而水深为 2500~3100 m 的中部区域, 由于地温梯度高于 A 区, 现今 GHSZ 厚度相应地也明显小于 A 区, 厚度为 250~300 m。剖面 2 所处水深为 718~3392 m, 地温梯度为 43~84 °C/km。水深 2293~3212 m 范围内地温梯度为 80~84 °C/km, 沿剖面变化不大。剖面 2 的 GHSZ 厚度则呈“S型”, 仅剖面右侧穿过 1 个高值区, 这是由于与剖面 1 相比, 剖面 2 左侧相同水深处的地温梯度明显高于剖面 1 中高值区 A。

### 3.3 温压条件改变对不同水层内 GHSZ 的影响

水体温度和海平面变化常常具有同向变化的趋势。水体温度升高时, 往往伴随着海平面的上升, 从而(部分)抵消了底水温度上升带来的影响。不同水深处, GHSZ 厚度对温度和压力条件变化的敏感程度不同, 这使得不同水深处影响 GHSZ 厚度变化的主要因素存在差异。Mienert 等<sup>[39]</sup>认为新仙女木事件末期, 挪威外海上陆坡区域和下陆坡区域受到海平面升高的影响导致水合物稳定带厚度变化趋势相反。

为了定量分析温度和压力改变对 GHSZ 厚度的影响, 以剖面 2 为例, 采用单因素分析法分析 LGM 以来温压条件变化对 GHSZ 厚度的影响。结果表明海平面不变、海底温度上升 2.45 °C 的情况下, GHSZ 厚度相对 LGM 时期减薄 34 m(图 6a)。在中层水水深范围内, GHSZ 厚度减薄 47~72 m, 且水深 718.5 m 处降幅最大达 71%。而在深层水范围内, 稳定带厚

度减薄量仅在 32~42 m 之间窄幅度波动, 降幅为 10%~21%。当海平面上升 130 m, 海底温度不变时, GHSZ 厚度相对 LGM 时期的平均增加值为 7.6 m(图 6b)。在中层水水深范围内, GHSZ 厚度增加 18~44 m, 水深 718 m 处增幅率最大达 41%。而在深层水范围内, 稳定带厚度增加 4~15 m, 且在大部分区域 GHSZ 厚度增加值在 4~6 m 之间窄幅波动, 而相应的降幅为 1%~2.6%。同时考虑温度上升 2.45 °C 和海平面上升 130 m 时, 剖面 2 上 LGM 时期 GHSZ 厚度为 107~356 m, 超过现今厚度 20~36 m(图 6c), 该结果与只考虑温度或海平面单一因素引起的 GHSZ 厚度之差(图 6d)接近。综上所述, 温压条件改变对不同水层内 GHSZ 的影响不同。①在由陆缘向中央海盆方向逐渐增大的高地温梯度背景下, LGM 以来海底温度和海平面变化对 GHSZ 的影响在中层水范围内大于深层水; 同时水压效应在中层水深度范围内相对较大, 深层水范围内海平面变化对 GHSZ 的影响十分有限。②海底温度的上升对 GHSZ 的减薄效应可以完全抵消海平面上升对 GHSZ 的增厚效应, 因而 LGM 以来稳定带厚度变化受到海底温度的控制。

### 3.4 水合物分解的环境效应

LGM 以来, 由于底水变暖导致 GHSZ 底界上移, GHSZ 底部附近水合物层可能分解。体积法估算 LGM 时期水合物所含甲烷资源量约为标准状态下的  $1.55 \times 10^{13} \text{ m}^3$ , 现今水合物所含甲烷资源量为  $1.37 \times 10^{13} \text{ m}^3$ (沉积物的孔隙度 45%, 水合物的饱和度为 1.2%, 气体体积膨胀因子 160), 以此估算 LGM 以来水合物分解释放的甲烷量约为  $1.8 \times 10^{12} \text{ m}^3$ 。

海域水合物分解释放的甲烷可在海洋水体中形成羽状流, 并在海底留下了海底下陷、气体溢出口和麻坑群等微地形地貌特征<sup>[40]</sup>。甲烷进入海水后可氧化形成  $\text{CO}_2(\text{CO}_3^{2-})$ , 导致海水酸化, 影响自生矿物形成以至于自生  $\text{CaCO}_3$  含量降低, 还可能引发其他系列的生态环境效应。南海北部海域多个站位 LGM 以来的  $\text{CaCO}_3$  含量记录均呈现低值异常的特征<sup>[5]</sup>, 17940 孔  $\text{CaCO}_3$  含量 11.3 kaBP 左右开始突然降低, 从 16% 降至 8%, 至 8 kaBP 左右才恢复到正常水平。同时, 17940 孔底栖有孔虫外生种 *C. wuellerstorfi* 壳体  $\delta^{13}\text{C}$  在 11.3 kaBP 左右发生负偏, 至 10 kaBP 负偏幅度高达 1.4‰。另外, 17940 孔沉积物中有机碳的堆积速率在 11.3~8.0 kaBP 突然增加一倍。这些地球化学方面的证据指示, 该区可能发生过较大规模的的甲烷释放, 甲烷氧化反应及产

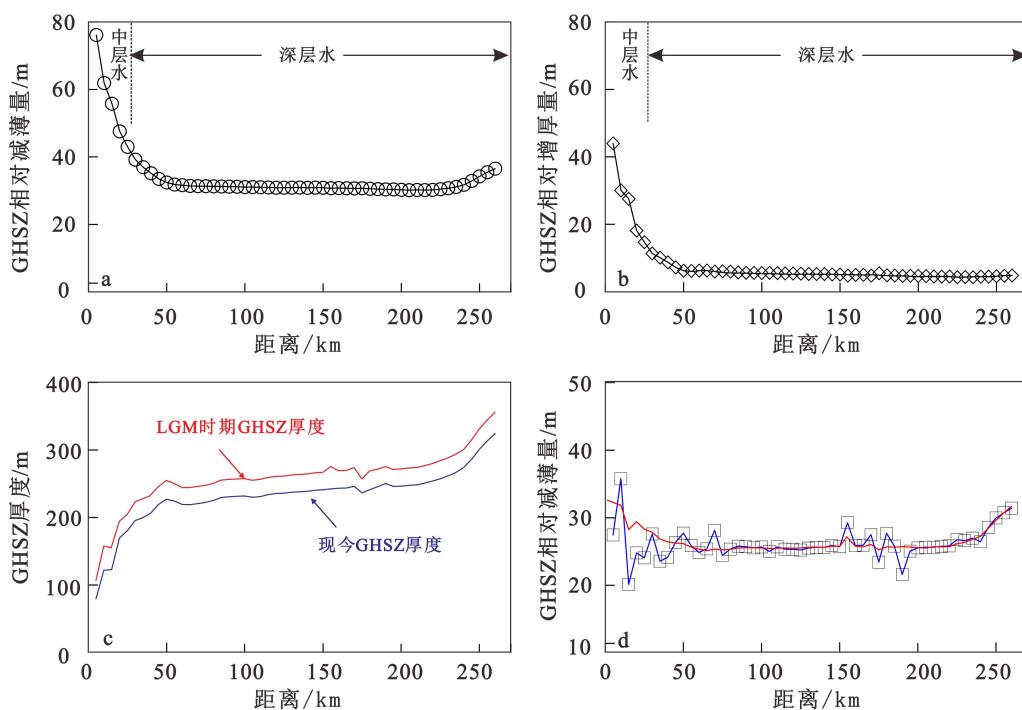


图 6 东沙海域深水区温压条件变化对水合物稳定带厚度的影响

位置见图 5a 中剖面 2; 剖面 2 第一个点的坐标为(21.59°N, 117.8°E), 以后每隔 5 km 取一个数据点, 共计 52 个数据点。

a.LGM 以来海底温度上升 2.45 °C, 假设海平面不变时, GHSZ 厚度相对 LGM 时期的减薄量; b.LGM 以来海平面上升 123 m, 假设海底温度不变时, GHSZ 厚度相对 LGM 时期的增厚量; c.LGM 时期(红色曲线)和现今的 GHSZ(蓝色曲线)厚度; d.蓝色线表示 LGM 时期与现今 GHSZ 的厚度差, 红色线表示图 a 减去图 b 的厚度差。

Fig.6 The influence of temperature and pressure on the thickness of GHSZ in deep water area of Dongsha

The location is shown in Section 2 in Fig.5a; the coordinates of the first point in Section 2 are( 117.8 ° E, 21.59 ° N), and then one data point is taken every 5km, a total of 52 data points.

a.The sea floor temperature has increased by 2.45 °C since LGM, assuming that the sea level remains unchanged, the GHSZ thickness is thinner than that in LGM period;b.The sea level has increased by 123 m since LGM, assuming that the sea floor temperature remains unchanged, the GHSZ thickness is thicker than that in LGM period;c.The thickness in LGM period( red curve) and GHSZ at present( blue curve); ;d.The thickness in blue line represents the thickness in LGM period and GHSZ at present; The red line indicates the thickness difference of figure a minus figure b .

物导致海水酸化和碳酸盐的溶解。与此相对应, 17940 孔水合物稳定带厚度在此期间厚度由 234 m 减薄为 177 m, 相对减薄幅度达到 24%。这一“低钙事件”很可能是该区天然气水合物稳定带减薄, 造成水合物分解所致。

东沙海域的钻探取样不但获得位于 GHSZ 之上埋藏相对较深的弥散状水合物样品, 还在部分站位发现了紧邻海底之下(约 10 m)的脉状、瘤状水合物<sup>[10]</sup>。地震反射剖面显示东沙海域滑塌构造发育, 但单个滑塌体规模不大, 同时代表水合物底界面的 BSR 多位于滑塌体内或与滑移面重合, 呈不连续或突变状<sup>[41]</sup>。特定底栖有孔虫种属数量变化与稳定碳同位素组成(<sup>13</sup>C 出现明显负偏现象, 且 δ<sup>18</sup>O 增高), 表明东沙海域 973-3 和 973-5 柱状样海底滑塌形成于水合物分解之后<sup>[42]</sup>。根据东沙海域近海底水合物、滑塌体和紧临 GHSZ 之上的水合物的空间分布

关系, 推测滑塌的形成过程如下: 温压条件的改变, 使得 GHSZ 之上的天然气水合物发生分解; GHSZ 下伏游离甲烷气得到分解甲烷的补充, 但气柱达到临界压力, 先存断层被激活, 从而引发海底滑坡或塌陷。同时游离甲烷沿着滑塌体内的断裂快速向上运移, 在近海底形成块状水合物, 甚至活动的流体溢出口。

## 4 结论

(1) 东沙海域深水区水深大于 595 m 海域具备形成水合物的温压条件; GHSZ 厚度的面积加权平均值为 245 m。研究区东部稳定带的厚度最大, 最大厚度超过 380 m。末次盛冰期以来东沙海域天然气水合物稳定带厚度减薄导致水合物分解释放的甲烷量约为  $1.8 \times 10^{12} \text{ m}^3$ 。

(2)末次冰期以来东沙海域GHSZ厚度呈现不对称旋回变化的特征。从底部向上可以分为TC1、TC2、TC3、TC4和TC5共5个完整旋回。稳定带变化的减薄半旋回持续时间要长于增厚半旋回。TC1—TC4旋回内GHSZ厚度变化受海平面升降的控制,TC5旋回内稳定带厚度变化受到海底温度的控制。沉积速率和总有机碳含量及其易降解性是影响水合物饱和度的重要因素。推测天然气水合物饱和度的变化也具有和冰期间冰期相应的旋回特征。

(3)在由陆缘向海盆方向逐渐增大的高地温梯度背景下,LGM以来海底温度和海平面变化对GHSZ的影响在中层水范围内大于深层水;同时水柱引起的压力效应在中层水深度范围内相对较大,深层水范围内十分有限。LGM以来东沙海域水合物分解释放的甲烷量约 $1.8\times10^{12}\text{ m}^3$ ,可能诱发海水酸化甚至海底滑坡。

## 参考文献(References)

- [1] Majorowicz J, Safanda J, Osadetz K. Inferred gas hydrate and permafrost stability history models linked to climate change in the Beaufort-Mackenzie Basin, Arctic Canada [J]. *Climate of the Past*, 2012, 8(2): 667-682.
- [2] Handwerger A L, Rempel A W, Skarbek R M. Submarine landslides triggered by destabilization of high-saturation hydrate anomalies [J]. *Geochemistry, Geophysics, Geosystems*, 2017, 18(7): 2429-2445.
- [3] Riboulet V, Ker S, Sultan N, et al. Freshwater lake to salt-water sea causing widespread hydrate dissociation in the Black Sea [J]. *Nature Communications*, 2018, 9(1): 117.
- [4] Serie C, Huuse M, Schodt N H. Gas hydrate pingos: Deep seafloor evidence of focused fluid flow on continental margins [J]. *Geology*, 2012, 40(3): 207-210.
- [5] 叶黎明, 初凤友, 葛倩, 等. 新仙女木末期南海北部天然气水合物分解事件[J]. 地球科学-中国地质大学学报, 2013, 38(6): 1299-1308. [YE Liming, CHU Fengyou, GE Qian, et al. A rapid gas hydrate dissociation in the northern South China Sea since the Late Younger Dryas [J]. *Earth Science-Journal of China University of Geosciences*, 2013, 38(6): 1299-1308.]
- [6] 陈芳, 陆红峰, 刘坚, 等. 南海东北部陆坡天然气水合物多期次分解的沉积地球化学响应[J]. 地球科学-中国地质大学学报, 2016, 41(10): 1619-1629. [CHEN Fang, LU Hongfeng, LIU Jian, et al. Sedimentary geochemical response to gas hydrate episodic release on the northeastern slope of the South China Sea [J]. *Earth Science-Journal of China University of Geosciences*, 2016, 41(10): 1619-1629.]
- [7] Musgrave R J, Bangs N L, Larrasoña J C, et al. Rise of the base of the gas hydrate zone since the last glacial recorded by rock magnetism [J]. *Geology*, 2006, 34(2): 117-120.
- [8] 宋海斌, 江为为, 张岭. 海洋天然气水合物的地球物理研究(IV): 双似海底反射[J]. 地球物理学进展, 2003, 18(3): 497-502. [SONG Haibin, JIANG Weiwei, ZHANG Ling. Geophysical researches on marine gas hydrates(IV): Double bottom simulating reflections [J]. *Progress in Geophysics*, 2003, 18(3): 497-502.]
- [9] Zander T, Haeckel M, Berndt C, et al. On the origin of multiple BSRs in the Danube deep-sea fan, Black Sea [J]. *Earth & Planetary Science Letters*, 2017, 462: 15-25.
- [10] 张光学, 陈芳, 沙志彬, 等. 南海东北部天然气水合物成藏演化地质过程[J]. 地学前缘, 2017, 24(4): 15-23. [ZHANG Guangxue, CHEN Fang, SHA Zhibin, et al. The geological evolution process of natural gas hydrate reservoirs in the northeastern South China Sea [J]. *Earth Science Frontiers*, 2017, 24(4): 15-23.]
- [11] 陈芳, 庄畅, 张光学, 等. 南海东沙海域末次冰期异常沉积事件与水合物分解[J]. 地球科学-中国地质大学学报, 2014, 39(11): 1617-1616. [CHEN Fang, ZHUANG Chang, ZHANG Guangxue, et al. Abnormal sedimentary events and gas hydrate dissociation in Dongsha area of the South China Sea during Last Glacial Period [J]. *Earth Science-Journal of China University of Geosciences*, 2014, 39(11): 1617-1616.]
- [12] 殷绍如, 王嘹亮, 郭依群, 等. 东沙海底峡谷的地貌沉积特征及成因[J]. 中国科学: 地球科学, 2015, 55(6): 971-985. [YIN Shaoru, WANG Liaoqiang, GUO Yiqun, et al. Morphology, sedimentary characteristics, and origin of the Dongsha submarine canyon in the northeastern continental slope of the South China Sea [J]. *Science China Earth Sciences*, 2015, 55(6): 971-985.]
- [13] Shao L, Li X J, Geng J H, et al. Deep water bottom current deposition in the northern South China Sea [J]. *Science in China Series D: Earth Sciences*, 2007, 50(7): 1060-1066.
- [14] Chen C T A, Wang S L. Influence of intermediate water in the western Okinawa Trough by the outflow from the South China Sea [J]. *Journal of Geophysical Research*, 1998, 103(C6): 12683-12688.
- [15] 李前裕, 赵泉鸿, 钟广法, 等. 新近纪南海深层水的增氧与分层[J]. 地球科学-中国地质大学学报, 2008, 33(1): 1-11. [LI Qianyu, ZHAO Quanhong, ZHONG Guangfa, et al. Deep water ventilation and stratification in the Neogene South China Sea [J]. *Earth Science-Journal of China University of Geosciences*, 2008, 33(1): 1-11.]
- [16] Schlitzer R. Ocean Data View Software[EB/OL]. <http://odv.awi.de/> (last access: 7 May 2015), 2009.
- [17] Sloan E D, Koh C A. Clathrate Hydrates of Natural Gases[M]. 3rd ed. Florida: CRC Press, 2008.
- [18] Zeng L L, Wang Q, Xie Q, et al. Hydrographic field investigations in the Northern South China Sea by open cruises during 2004-2013 [J]. *Science Bulletin*, 2015, 60(6): 607-615.
- [19] Bintanja R, van de Wal R S W, Oerlemans J. Modelled atmospheric temperatures and global sea levels over the past million years [J]. *Nature*, 2005, 437(7055): 125-128.
- [20] Bates S L, Siddall M, Waelbroeck C. Hydrographic variations in deep ocean temperature over the mid-Pleistocene transition [J]. *Quaternary Science Reviews*, 2014, 88: 147-158.
- [21] Shyu C T, Chen Y J, Chiang S T, et al. Heat flow measurements over bottom simulating reflectors, offshore southwestern Taiwan [J].

- [Terrestrial, Atmospheric and Oceanic Sciences](#), 2006, 17(4): 845-869.
- [22] Yang X Q, Shi X B, Zhao J F, et al. Bottom water temperature measurements in the South China Sea, eastern Indian Ocean and western Pacific Ocean [J]. *Journal of Tropical Oceanography*, 2018, 37(5): 86-97.
- [23] Kennett J P, Cannariato K G, Hendy I L, et al. Carbon isotopic evidence for methane hydrate instability during quaternary interstadials [J]. *Science*, 2000, 288(5463): 128-133.
- [24] 徐行, 李亚敏, 罗贤虎, 等. 南海北部陆坡水合物勘探区典型站位不同类型热流对比[J]. 地球物理学报, 2012, 55(3): 998-1006. [XU Xing, LI Yamin, LUO Xianhu, et al. Comparison of different-type heat flows at typical sites in natural gas hydrate exploration area on the northern slope of the South China Sea [J]. *Chinese Journal of Geophysics*, 2012, 55(3): 998-1006.]
- [25] 施小斌, 王振峰, 蒋海燕, 等. 张裂型盆地地热参数的垂向变化与琼东南盆地热流分布特征[J]. 地球物理学报, 2015, 58(3): 939-952. [SHI Xiaobin, WANG Zhenfeng, JIANG Haiyan, et al. Vertical variations of geothermal parameters in rifted basins and heat flow distribution features of the Qiongdongnan Basin [J]. *Chinese Journal of Geophysics*, 2015, 58(3): 939-952.]
- [26] 施小斌, 于传海, 陈梅, 等. 南海北部陆缘热流变化特征及其影响因素分析[J]. 地学前缘, 2017, 24(3): 56-64. [SHI Xiaobin, YU Chuanhai, CHEN Mei, et al. Analyses of variation features and influential factors of heat flow in the northern margin of the South China Sea [J]. *Earth Science Frontiers*, 2017, 24(3): 56-64.]
- [27] Liao W Z, Lin A T, Liu C S, et al. Heat flow in the rifted continental margin of the South China Sea near Taiwan and its tectonic implications [J]. *Journal of Asian Earth Sciences*, 2014, 92: 233-244.
- [28] 栾锡武, 张亮, 岳保静. 南海北部陆坡海底火山活动对天然气水合物成藏的影响[J]. 现代地质, 2010, 24(3): 424-432. [LUAN Xiwu, ZHANG Liang, YUE Baojing. Influence on gas hydrates formation produced by volcanic activity on northern South China Sea slope [J]. *Geoscience*, 2010, 24(3): 424-432.]
- [29] Wallmann K, Pinero E, Burwicz E, et al. The global inventory of methane hydrate in marine sediments: A theoretical approach [J]. *Energies*, 2012, 5(7): 2449-2498.
- [30] Johnson J E, Phillips S C, Torres M E, et al. Influence of total organic carbon deposition on the inventory of gas hydrate in the Indian continental margins [J]. *Marine & Petroleum Geology*, 2014, 58: 406-424.
- [31] Matveva T V, Soloviev V A. Geological control over gas hydrate accumulation on the Blake outer ridge, western North Atlantic (*from DSDP and ODP data*) [J]. *Russian Geology and Geophysics*, 2002, 43(7): 662-671.
- [32] Riedel M, Collett T S, Kumar P, et al. Seismic imaging of a fractured gas hydrate system in the Krishna-Godavari Basin offshore India [J]. *Marine and Petroleum Geology*, 2010, 27(7): 1476-1493.
- [33] Boswell R, Frye M, Shelander D, et al. Architecture of gas-hydrate-bearing sands from Walker Ridge 313, Green Canyon 955, and Alaminos Canyon 21: Northern deepwater Gulf of Mexico [J]. *Marine and Petroleum Geology*, 2012, 34(1): 134-149.
- [34] Noguchi S, Shimoda N, Takano O, et al. 3-D internal architecture of methane hydrate-bearing turbidite channels in the eastern Nankai Trough, Japan [J]. *Marine and Petroleum Geology*, 2011, 28(10): 1817-1828.
- [35] 陈芳, 苏新, Nurnberg D, et al. 南海东沙海域末次冰期最盛期以来的沉积特征[J]. 海洋地质与第四纪地质, 2006, 26(6): 9-17. [CHEN Fang, SU Xin, Nurnberg D, et al. Lithologic features of sediments characterized by high sedimentation rates since the last glacial maximum from dongsha area of the south china sea [J]. *Marine Geology and Quaternary Geology*, 2006, 26(6): 9-17.]
- [36] 赵绍华, 刘志飞, 陈全, 等. 南海北部末次冰期以来深水沉积物组成及其堆积速率的时空变化特征[J]. *中国科学: 地球科学*, 2017, 60(7): 1368-1381. [ZHAO Shaohua, LIU Zhifei, CHEN Quan, et al. Spatiotemporal variations of deep-sea sediment components and their fluxes since the last glaciation in the northern South China Sea [J]. *Science China Earth Sciences*, 2017, 60(7): 1368-1381.]
- [37] Huang W, Wang P X. A quantitative approach to deep-water sedimentation in the South China Sea: Changes since the last glaciation [J]. *Science in China Series D: Earth Sciences*, 1998, 41(2): 195-201.
- [38] Li L, Liu H J, Zhang X, et al. BSRs, estimated heat flow, hydrate-related gas volume and their implications for methane seepage and gas hydrate in the Dongsha region, northern South China Sea [J]. *Marine and Petroleum Geology*, 2015, 67: 785-794.
- [39] Mienert J, Vanneste M, Bünz S, et al. Ocean warming and gas hydrate stability on the mid-Norwegian margin at the Storegga Slide [J]. *Marine and Petroleum Geology*, 2005, 22(1-2): 233-244.
- [40] 刘斌. 南海北部陆坡东沙海域海底丘状体气体与水合物分布[J]. 海洋学报, 2017, 39(3): 68-75. [LIU Bin. Gas and gas hydrate distribution around seafloor mound in the Dongsha area, north slope of the South China Sea [J]. *Haiyang Xuebao*, 2017, 39(3): 68-75.]
- [41] 张丙坤, 李三忠, 夏真, 等. 南海北部海底滑坡与天然气水合物形成与分解的时序性[J]. 大地构造与成矿学, 2014, 38(2): 434-440. [ZHANG Bingkun, LI Sanzhong, XIA Zhen, et al. Time sequence of submarine landslides and gas hydrates in the northern South China Sea [J]. *Geotectonica et Metallogenica*, 2014, 38(2): 434-440.]
- [42] 黄怡, 王淑红, 颜文, 等. 南海北部东沙海域天然气水合物分解事件及其与海底滑塌的关系[J]. 热带海洋学报, 2018, 37(4): 61-69. [HUANG Yi, WANG Shuhong, YAN Wen, et al. Gas hydrate dissociation event and its relationship with submarine slide in Dongsha Area of northern South China Sea [J]. *Journal of Tropical Oceanography*, 2018, 37(4): 61-69.]