



## Doctoral Thesis

# Linking serpentization, fluid fluxes mass transfer and microbial activity at Lost City: geochemical and isotopic constraints

**Author(s):**

Delacour, Adélie

**Publication Date:**

2007

**Permanent Link:**

<https://doi.org/10.3929/ethz-a-005502496> →

**Rights / License:**

[In Copyright - Non-Commercial Use Permitted](#) →

This page was generated automatically upon download from the [ETH Zurich Research Collection](#). For more information please consult the [Terms of use](#).

DISS. ETH NO. 17198

**LINKING SERPENTINIZATION, FLUID FLUXES,  
MASS TRANSFER AND MICROBIAL ACTIVITY AT LOST CITY:  
GEOCHEMICAL AND ISOTOPIC CONSTRAINTS**

A dissertation submitted to

ETH ZURICH

for the degree of

Doctor of Sciences

presented by

Adélie Delacour

Diplômée d'Etudes Approfondies, Université de Clermont-Ferrand

born 08.10.1978

citizen of France

accepted on the recommendation of

PD Dr. Gretchen L. Bernasconi-Green, ETH Zurich, examiner  
Prof. Dr. Alan B. Thompson, ETH Zurich, co-examiner  
Prof. Dr. Deborah S. Kelley, University of Washington, co-examiner  
PD Dr. Stefano M. Bernasconi, ETH Zurich, co-examiner

2007

## **Abstract**

Mantle peridotites and lower crustal rocks are major components of the oceanic crust and are commonly exposed near and along slow- and ultraslow-spreading ridges at the intersection with transform faults. These portions of heterogeneous oceanic crust are often uplifted along long-lived, low-angle detachment faults and form dome-like massifs known as oceanic core complexes (OCCs). Penetration of seawater along deep-penetrating fault systems leads to the alteration of the mantle peridotites during serpentinization processes, which have important consequences for the chemical compositions and physical properties of the oceanic crust and for global geochemical cycles (e.g., carbon, sulfur, volatiles). This thesis is part of a multidisciplinary project on the Atlantis Massif (AM), an OCC located at the intersection of the Mid-Atlantic Ridge (MAR, 30°N) and the Atlantis Transform Fault. This dome-like massif was the target of numerous investigations in the past ten years and, on its southern wall, hosts the recently discovered Lost City Hydrothermal Field (LCHF), a peridotite-hosted hydrothermal system composed of carbonate and brucite chimneys that vent low-temperature and high-pH fluids.

This study presents petrological, geochemical and isotopic (Sr, Nd, S and C) data on samples collected by submersible at the peridotite-dominated southern wall and drilled by the Integrated Ocean Drilling Program (IODP) at the gabbroic central dome (Site U1309) of the Atlantis Massif. The motivation of these studies is to understand lateral and vertical heterogeneities in crustal architecture, deformation, fluid fluxes, serpentinization and alteration conditions within the massif. Specifically, the main goals of this thesis were: (1) to understand variations in conditions of serpentinization, and chemical and mineralogical changes accompanying crustal accretion and alteration; (2) to quantify fluid-rock interaction and fluid-fluxes, and to determine their influence on the chemical compositions of the basement rocks; (3) to characterize the origin and evolution of volatiles in the peridotite-hosted Lost City hydrothermal system; (4) to identify the links between serpentinization and microbial activity at Lost City; and (5) to compare the metamorphic and alteration conditions between the southern wall and the central dome of the massif. This thesis consists of four self-contained manuscripts intended for publication in peer-reviewed journals. Additional chapters and an appendix provide supplementary information to complete the study.

The drilled section of the central dome (IODP Site U1309) is predominantly composed of gabbroic rocks with rare serpentinized harzburgites and minor olivine-rich troctolites with a poikilitic texture. Low to moderate water-rock ratios (2 to 39) and reducing conditions in the upper section of Hole 1309D are indicated by Sr-isotope signatures close to seawater values, by  $^{34}\text{S}$ -enriched isotope compositions, and by Ni-rich low-S sulfide assemblages in the serpentinites. Relatively homogeneous and mantle-like Sr-, Nd-, and S-isotope compositions in the gabbroic rocks and olivine-rich troctolites attest to limited seawater-rock interaction downhole. Local variations from mantle-like isotopic compositions at depth in the gabbroic section are related either to magmatic variability or to interaction with fluids channeled in fault zones (e.g., at 1100 mbsf). The presence of an anhydrite vein (739 mbsf) in the gabbros and of mackinawite, a Fe-Ni sulfide, in the olivine-rich troctolites constrains temperatures of the late circulating fluids at depth to 150-200°C.

In contrast, the southern wall of the AM is dominated by serpentinized harzburgites intruded by minor gabbroic bodies and has experienced significantly higher seawater fluxes and mass transfer during hydrothermal circulation and long-lived serpentinization. High water-rock ratios from  $\sim 20$  up to  $10^6$  in the serpentinites are indicated by seawater-like Sr- and S-isotope compositions and a change from mantle-like Nd isotope compositions towards unradiogenic seawater-like Nd isotope compositions. High fluid fluxes at the southern wall have significant consequences on carbon and sulfur speciation and their respective isotopic compositions. A predominance of pyrite in the gabbros and serpentinites indicate that relatively oxidizing conditions prevailed at the southern wall. Pervasive serpentinization resulted in a net loss of sulfides and an uptake of seawater sulfate in the serpentinites. In addition, carbon geochemical studies indicate that high fluid fluxes transported marine DOC into the basement rocks, in particular into the serpentinites, and likely overprinted earlier signatures of abiotically produced hydrocarbons. Microbial influence is evident by the sulfur isotope compositions of sulfates and sulfides in serpentinites beneath the active structures of the LCHF. In addition, a minor component of in-situ chemosynthesis may be inferred from the presence of squalane in serpentinite samples beneath the LCHF.

The southern wall of the AM and the LCHF represent a more evolved system with higher fluid fluxes and more oxidizing conditions than most systems found to date. Variations in chemical and isotopic compositions between the basement rocks and the fluids venting at Lost City suggest that different areas with varying degrees of serpentinization are tapped by seawater-derived fluids channeled and expelled along fault zones at the southern wall. Our study shows for the first time that Nd isotopes are most sensitive to high fluid fluxes in long-

lived peridotite-hosted systems and are therefore an important geochemical tracer to quantify fluid-rock interaction. In addition, our study highlights the effects of such long-lived hydrothermal systems on the chemical compositions of peridotite-dominated oceanic crust and on the chemical exchanges between the mantle, the oceans and the biosphere. Collectively long-lived serpentinization processes and high seawater fluxes influence the composition of the oceanic lithosphere and global cycles of the oceans by releasing reduced volatiles to the oceans, by exchange and uptake of elements (e.g., Sr, Nd, B, U, REE), and by removing sulfate and marine DOC from seawater.

## Résumé

Les péridotites du manteau et les roches plutoniques sont des composantes majeures de la croûte océanique et affleurent fréquemment le long des rides océaniques lentes et ultra-lentes. Ces portions de croûte océanique hétérogène sont exhumées en surface par le jeu de failles de détachement et forment des dômes appelés des « core complexes » océaniques (OCCs). Des systèmes de failles profondes permettent à l'eau de mer de circuler dans le dôme et d'altérer les péridotites lors de la serpentinisation, avec pour conséquences des modifications importantes de la composition chimique et des propriétés physiques de la croûte océanique, et des transferts d'éléments chimiques avec l'océan (soufre, carbone, volatils). Cette thèse fait partie d'un projet multidisciplinaire sur l'Atlantis Massif (30°N), un « core complexe » océanique situé à l'intersection de la ride Médio-Atlantique et de l'Atlantis Transform Fault. Ce massif a fait l'objet de nombreuses études ces dix dernières années et abrite, dans sa partie sud, le système hydrothermal de Lost City. Ce système hydrothermal atypique repose sur un substratum principalement ultramafique et est composé de cheminées de carbonate et de brucite d'où émanent des fluides alcalins à basse température.

Cette étude présente des données pétrologiques, géochimiques et isotopiques (Sr, Nd, S et C) sur des échantillons collectés à l'aide de sous-marins au sud de l'Atlantis Massif et sur des échantillons récoltés par forage (expéditions IODP, « Integrated Ocean Drilling Program ») au niveau du dôme central, avec pour but de comprendre les variations des conditions de serpentinisation, d'altération, et de déformation ainsi que les variations lithologiques au sein de l'Atlantis Massif. Plus précisément, les principaux objectifs de cette thèse sont : (1) de comprendre les variations des conditions de serpentinisation, et les changements chimiques et minéralogiques qui accompagnent l'accrétion crustale et l'altération ; (2) de quantifier les interactions fluide-roche et les flux de fluides, et de déterminer leurs influences sur la composition chimique des roches du substratum ; (3) de caractériser l'origine et l'évolution des volatils du système hydrothermal de Lost City lié à la serpentinisation des péridotites ; (4) d'identifier les liens entre la serpentinisation et l'activité microbienne à Lost City ; et (5) de comparer les conditions d'altération et de métamorphisme entre la partie sud du massif et le dôme central. Cette thèse est constituée de quatre manuscrits

destinés à être publiés dans des revues scientifiques internationales. Des chapitres additionnels ainsi qu'un appendice apportent des données supplémentaires à cette étude.

Le dôme central (Site U1309), foré lors de deux campagnes IODP, est composé principalement de gabbros intercalés avec de rares harzburgites serpentinisées et des troctolites à olivine à texture poecilitique. Dans la partie supérieure du puit de forage principal (1309D), les serpentinites ont des compositions isotopiques en Sr proche de celle de l'eau de mer et des compositions isotopiques en soufre enrichies en  $^{34}\text{S}$  indiquant des rapports eau/roche faibles à modérés (2 à 39). Des assemblages de sulfures riches en Ni et pauvres en S caractérisent les serpentinites et les troctolites à olivine et reflètent des conditions réductrices au niveau du dôme central. En profondeur, les roches gabbroïques sont caractérisées par des compositions isotopiques homogènes en Sr, Nd et S proches de celle du manteau indiquant une interaction roche-eau de mer limitée. Cependant, il existe quelques variations isotopiques d'origine magmatique et/ou liées à l'interaction de fluides circulant dans des zones de failles (e.g. à 1100 mbsf). La présence d'une veine d'anhydrite dans les gabbros (739 mbsf) et de mackinawite, un sulfure de fer et de nickel, dans les troctolites à olivine indiquent des températures de 150 à 200°C pour les fluides tardifs circulant en profondeur dans le massif.

Contrairement au dôme central, la partie sud de l'Atlantis Massif est principalement constituée d'harzburgites serpentinisées et d'intrusions gabbroïques mineures. Les compositions isotopiques des roches de cette partie du massif indiquent des flux importants d'eau de mer et des transferts d'éléments liés à la circulation hydrothermale et aux processus de serpentinisation. Les compositions isotopiques en soufre et en Sr des serpentinites proches de celles de l'eau de mer, ainsi que les rapports isotopiques du Nd changeant vers des valeurs non-radiogéniques de l'eau de mer, indiquent des rapports eau/roche élevés de  $\sim 20$  à  $10^6$ . Ces rapports eau/roche élevés ont des conséquences importantes sur la spéciation du carbone et du soufre et sur leurs compositions isotopiques respectives. La prédominance de pyrite dans les serpentinites et les gabbros indiquent des conditions relativement oxydantes au sud du massif. Il en résulte une perte de sulfures et une incorporation des sulfates de l'eau de mer dans les serpentinites. De plus, les compositions isotopiques en carbone et la présence de composés organiques dans les serpentinites indiquent que les flux importants d'eau de mer ont permis le transport de la matière organique marine dissoute dans les serpentinites, et ont probablement effacé la signature des composés organiques produits de manière abiotique par des réactions de type Fischer-Tropsch. L'influence microbienne est mise en évidence par les compositions isotopiques négatives des sulfates et des sulfures des serpentinites qui forment le substratum

des cheminées hydrothermales actives de Lost City. De plus, la présence de squalène dans certaines serpentinites pourrait indiquer une composante mineure de chimiosynthèse in-situ.

La partie sud de l'Atlantis Massif et le système hydrothermal de Lost City représentent un système plus évolué que tous les systèmes étudiés jusqu'à maintenant, avec des flux de fluides significativement élevés et des conditions plus oxydantes. Les variations des compositions géochimiques et isotopiques entre les roches du substratum et les fluides hydrothermaux émis à Lost City suggèrent que différentes régions avec des degrés variables de serpentinisation interagissent avec les fluides hydrothermaux qui sont ensuite émis le long des zones de failles du sud du massif. Notre étude démontre pour la première fois que les isotopes du Nd sont plus sensibles aux importants flux de fluides des systèmes hydrothermaux liés à la serpentinisation des péridotites et sont par conséquent un outil géochimique important pour quantifier les interactions fluide-roche. De plus, notre étude souligne les effets de ces systèmes hydrothermaux sur la composition chimique de la croûte océanique, et sur les échanges chimiques entre le manteau, les océans et la biosphère. Conjointement, les processus de serpentinisation et les flux importants de fluides influencent la composition de la lithosphère océanique et les grands cycles géochimiques en émettant des volatils dans les océans, en échangeant des éléments chimiques (Sr, Nd, B, U, REE) et en captant les sulfates et la matière organique marine dissoute de l'eau de mer.