



統合国際深海掘削計画 (IODP)  
— 2003 年から 10 年の成果 —

## Exp. 311 : ガスハイドレート成因解明に向けて —大陸縁辺域の GH 掘削の成果—

吉岡 秀佳      秋葉 文雄  
金子 雅紀      北島 弘子  
東 陽介      橋本 善孝

Exp. 311 乗船者一同

**Expedition 311 reports : Formation mechanism of gas hydrate on the continental margin**

**Hideyoshi Yoshioka • Fumio Akiba • Masanori Kaneko • Hiroko Kitajima • Yosuke Higashi • Yoshitaka Hashimoto**

よしおか ひでよし : 産業技術総合研究所  
あきば ふみお : (有) 珪藻ミニラボ  
かねこ まさのり : 岡山大学  
(現在: 海洋研究開発機構)  
きたじま ひろこ : テキサス A&M 大学  
(現在: 産業技術総合研究所)  
ひがし ようすけ : 産業技術総合研究所  
(現在: 科学技術振興機構)  
はしもと よしたか : 高知大学

沈み込み帯の付加体構造に分布するガスハイドレート (GH) の形成モデルを検証すべく、Cascadia Margin を横断するように 5 箇所、logging と掘削調査が行われた。沈み込み帯の地質条件と関連した GH の分布が明らかになり、メタンの起源や深部流体の移動、微生物によるメタン生成活動について研究が行われた。

### 1. はじめに

IODP Exp. 311 は、2005 年秋にバンクーバー島沖合の Cascadia Margin に分布するガスハイドレート (GH) を研究対象として調査が行われた。Cascadia Margin については、以前に ODP Leg146 (Westbrook *et al.* 1994) や Leg 204 (Tréhu *et al.* 2003) において調査が行われている。Leg 146 では、Cascadia Margin 北部と Northern Hydrate Ridge において BSR を超えた深度まで掘削が行われ、GH は採取されなかったもののその兆候を見つけた。Leg 204 では、Southern Hydrate Ridge を対象とし、表層の GH が発見された (Suess *et al.* 1999)。Exp. 311 では、前 2 回の調査結果を踏まえさらに発展すべく、調査範囲を広げ、Cascadia Margin 北部において沈み込み帯を横断する方向に沿った 4 箇所 (両端の距離は 32 km) と cold vent のある 1 箇所の合計 5 箇所において logging 及び掘削調査が行われた (図 1)。調査の目的は、沈み込み帯の付加構造に分布する GH の形成モデルの検証であった。沈み込み帯の付加構造に形成される GH の形成については、Hyndman and Davis (1992) がモデルを提唱している。彼らは、海底下に強い擬似反射面 BSR を検出し、それが GH の安定領域の下部境界に相当することに注目して、BSR より深い場所から流体が移動してきてメタンが供給され GH が形成されたと考えた。Exp. 311 では、彼らのモデルや、モデルに関連する様々なパラメータを検証するために、Cascadia Margin の広い範囲において、GH の産状や濃度、分布の支配要因、流体の移動経路、堆積物物性、GH の分布と地化学的特徴や微生物学的特徴との関係を解明することを目的とした。

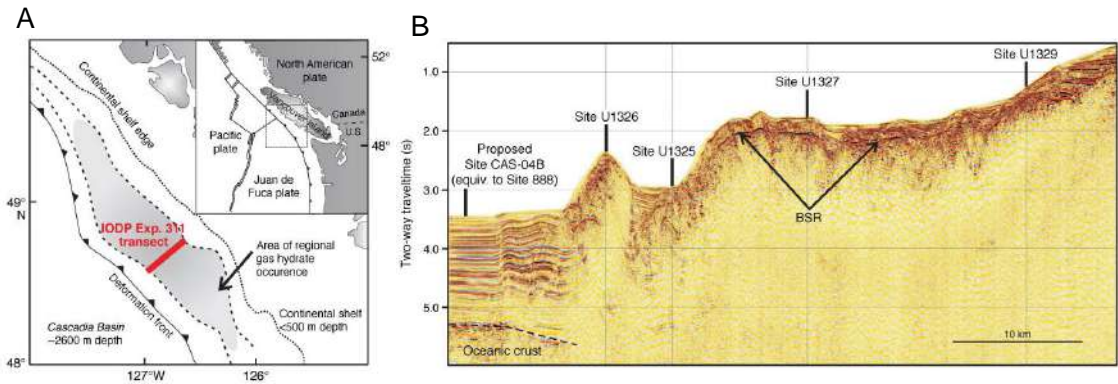


図1 Cascadia Marginの地図 (A) と掘削場所の震探図 (B). (文献 [12] から引用)

航海は、ジョイデスレゾリューション (JR) 号で行われ、2005年の8/28にパナマのバルボアから出港したが、乗船研究者のほとんどは9/19にアメリカのアストリア港から乗船した。日本人研究者は6名参加した (但し、1名はアメリカの大学院生)。JR号は、アストリアを出港後、まず、U1325に向かいLWD/MWDとwireline loggingを行い、その後、U1326, U1327, U1328, U1329の順で同様な調査を行った。U1327とU1328ではloggingに加えて、vertical seismic profileが測定された。そして9/28から、U1329, U1327, U1328, U1325, U1326の順でAPC (Advanced Piston Core System) やXCB (Extended Core Barrel) を用いたコアリングが行われ、のべ1217.76 mに及ぶ海底堆積物を採取し、各種圧力コア (PCS, FPC, HRC) を43個採取することに成功した。そして、10/28にカナダのビクトリアに入港して航海を終了した。

## 2. 航海の成果

Exp. 311では、堆積学、コア物性、微古生物学、地化学、微生物学の様々な分野の研究が行われた。結果の詳細については、IODPのwebサイトにScientific Resultsとしてまとめてあるのでそちらを参照されたい (Riedel *et al.*, 2006)。ここでは、主にGHの分布や成因に関連する研究をピックアップして解説する。GHの存在は、loggingによるresistivityやP波速度、間隙水の塩化物濃度、コアの赤外 (IR) 画像やテクスチャー (GHは常圧

下では溶解してスープのようにドロドロの状態になる)等で判断した。5箇所のGH分布を示す結果を図2に示す (Riedel *et al.*, 2006)。Cold ventの近くのU1328では、表層近くにおいてGHが観察された。その他のサイトではU1329を除いて深部でGHが観察された。最も大陸側に近いU1329では、付近においてBSRが地震探査によって微かに検出されていたが、LWD/MWDによる観測やIR画像、間隙水の組成等でGHの兆候は見つからなかった。U1328以外の4サイトにおけるGHの深度分布に注目すると、U1326の西方にあるプレート境界の変形フロントからの距離に比例して上部境界深度が大きくなる傾向が見られた。つまり、最も変形フロントに近いU1326では、47 mbsfでGHが観察され、真ん中のU1327では111 mbsf、最も東側で変形フロントから遠いU1329では、GHは見られなかった。GHの飽和率は、wireline electrical resistivityやLWDのelectrical resistivityのデータから計算したり (Malinverno *et al.*, 2008)、圧力コアの脱ガス実験で評価した結果、U1329を除くサイトで、およそ5%以下の低い飽和率であった。U1326とU1327では、局所的に砂層に挟まれる形で、50%を超える深度があった。それぞれの濃集帯の深度は50 - 120 mbsfと120 - 140 mbsfであり、それぞれのBSR深度 (264 mbsfと230 mbsf) より浅かった。なお、珪藻化石分析の結果によれば、採取された堆積物の時代は、U1329以外ではすべて1.6 Ma以降の第四紀であるが、

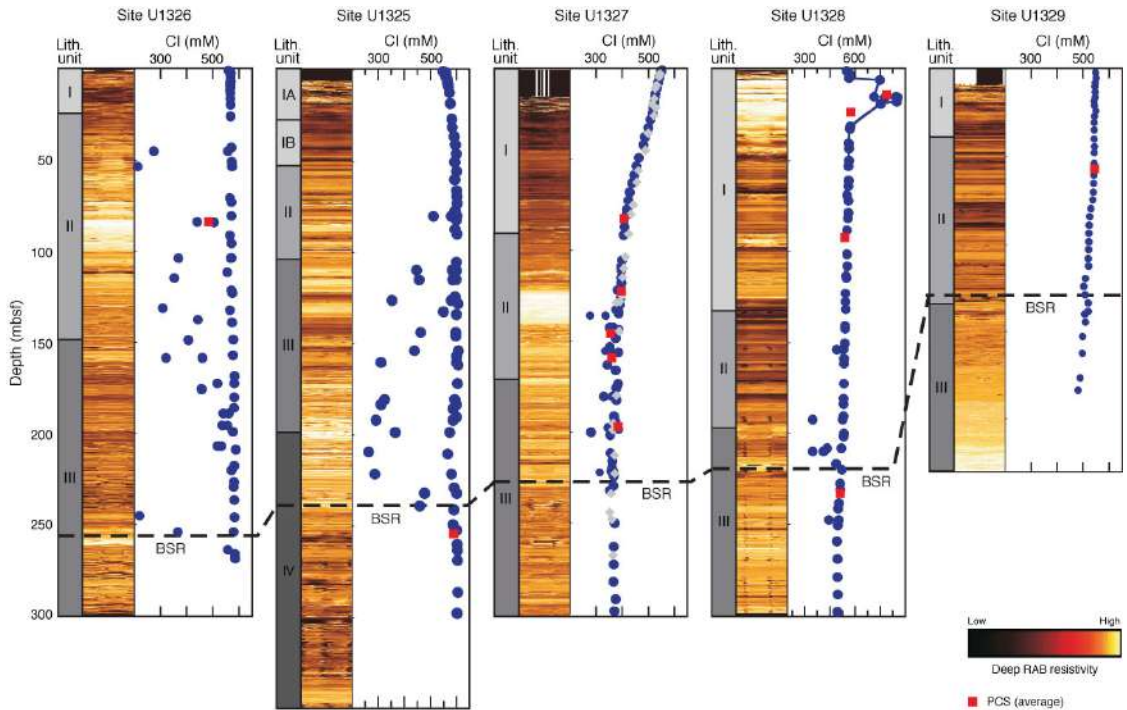


図2 LWDのresistivityデータと間隙水中の塩化物濃度. (文献 [12] から引用)

U1329 では上部中新統の上に鮮新統を欠如した不整合で第四系が重なっていることが分かった。

以上のような結果は、Hyndman and Davies (1992) が提唱するような、メタンが深部から供給されて BSR 近くで安定領域に入り GH が形成されて濃集するというモデルとは矛盾する。船上でのコア観察の結果、GH はタービダイトの砂層に含まれることが多く (図 3, Torres *et al.* 2008), IR 画像と比較して、間隙水組成を詳細に調べた。Hashimoto and Minazawa (2008) は、堆積物の粒径分布を解析し GH の分布との関係を調べた。

次に、間隙水とガス分析の結果概要を解説する。間隙水中の塩化物濃度や塩分濃度は、流体の移動を評価する指標となる。U1327 と U1328 (表層を除く)、U1329 では、塩化物濃度や塩分濃度は、深くなるに従って減少する傾向にあった (図 2)。Na, L, Ca, Mg 濃度も同様に減少傾向にあり、深部から淡水組成の流体の寄与を示唆していた。寄与の程度は、変形フロントからの距離に関係し

ているように見え (Torres *et al.* 2009), 淡水の供給源としては、低温下の粘土鉱物の脱水反応によって生成された淡水が考えられた。一方で、U1325 や U1326 では、深くなるにつれて海水組成より高くなる傾向が見られた。これは、低温下で火山灰からゼオライトができる続成反応が原因として考えられた。U1328 の表層近くの GH 分布域において塩化物濃度や塩分濃度が高い値を示すのは、GH の形成に伴い、淡水成分が GH に取り込まれ、それ以外のイオンが間隙水に濃縮したことが原因であると解釈された。

コア堆積物やボイドガス分析の結果については、ほとんどメタンで構成されていたが、炭素数 2 (エタン) 以上の炭化水素も僅かであるが検出された。それらの濃度は、深部からの寄与を示唆していた。Pohlman *et al.* (2009) は、メタンと二酸化炭素の安定炭素同位体比の深度プロファイルから微生物によるメタン生成活動について推察した。彼らは、5 サイトのメタンと二酸化炭素の炭素

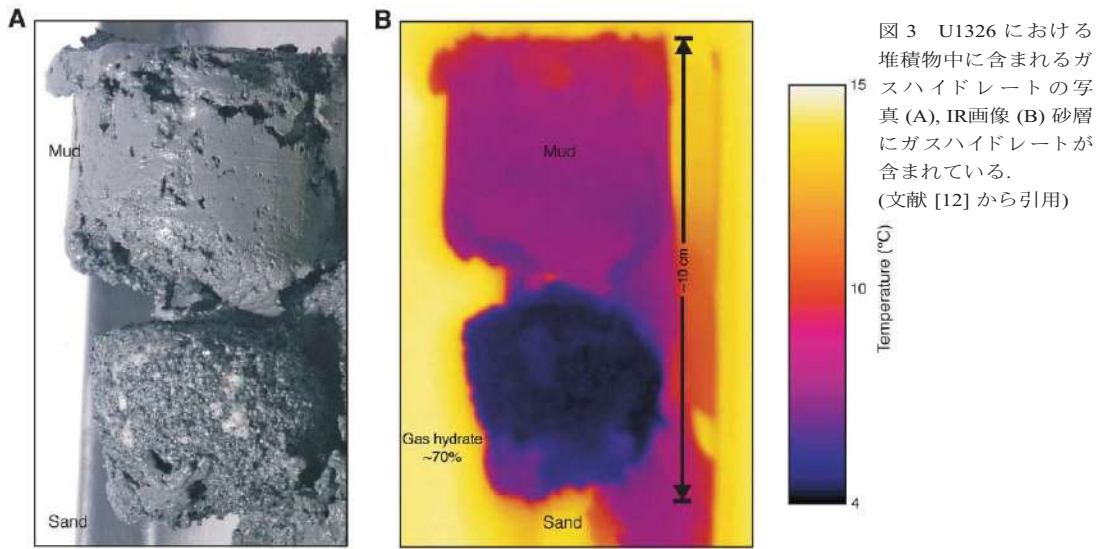


図3 U1326における堆積物中に含まれるガスハイドレートの写真(A)、IR画像(B) 砂層にガスハイドレートが含まれている。(文献 [12] から引用)

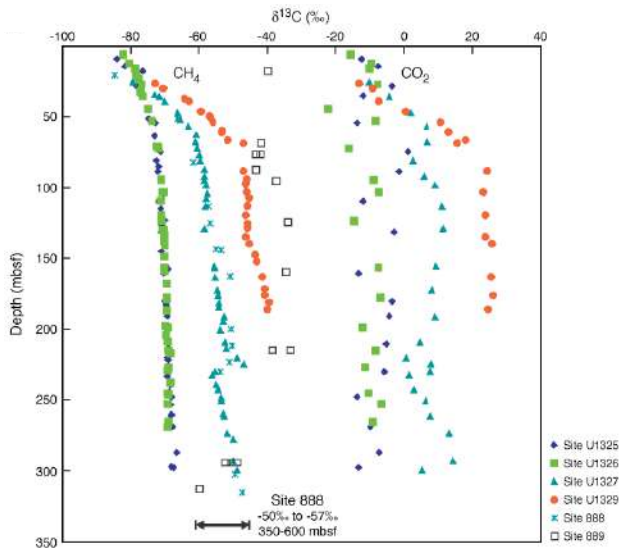


図4 メタンと二酸化炭素の炭素同位体比の深度プロフィール。(文献 [12] から引用)

同位体比を測定し、両者が一定の差を(61%~66%)を保って、深度が増すに従って高い値(変形フロントに近いU1326とU1325では、-82.2%;最も西側のU1329では、-39.5%)に漸移していく傾向を見つけた(図4)。メタンの炭素同位体比の値のみを見ると、5サイトでは、浅部には微生物メタン生成が含まれ、深部に熱分解起源のメタンが混合しているように解釈されるが、彼らは、二酸化炭素の炭素同位体比に着目し、メタンと二酸化炭素の炭素同位体比が一定の差を保って

おり、それが微生物による炭酸還元経路によるメタン生成に伴う同位体分別作用と一致していること、また、メタンの水素同位体比(約-172‰)から、すべてのサイトにおいて、微生物による炭酸還元経路のメタン生成活動が起こっていてメタンの起源となっていると解釈した。二酸化炭素の炭素同位体比が深くなるに従って、重くなる傾向は、変形フロントからの距離に関連しており、変形フロントに近いU1326やU1325では、5%増加し、最も西側のU1329では、40%増加していた。



これらの違いは、堆積有機物の続成反応が原因であり、最も増加していた U1329 では、有機物の続成作用が進行し、メタン生成に利用される反応性の高い有機物が少なかったと解釈した。彼らは、続成反応として、有機物の好氣的或いは嫌氣的分解を考え、堆積速度がそれらの反応の程度を決めていると考えた。

ガス分析以外の地化学研究においても微生物活動について評価している。Kaneko *et al.* (2010, 2013) は、U1327 と U1328 の堆積有機物の分析を行い、地下微生物の特徴について考察した。Kaneko *et al.* (2010) は、嫌氣的メタン酸化古細菌 (ANME) やメタン生成菌のバイオマーカーである pentamethyl icosane (PMI) を検出し、その炭素同位体比の値 (-46.4%) が、堆積有機物 TOC (-24.6%) とメタン (-62.7%) の間であることから嫌氣的メタン酸化菌とメタン生成菌の両方の脂質が混合していると解釈した。Kaneko *et al.* (2013) は、古細菌の脂質に含まれる glycerol dialkyl glycerol tetraether (GDGT) 由来のバイオマーカーについて、炭素同位体比が約 -20‰ で深度 130 mbsf から 230 mbsf の間に多いことを発見した。彼らは、両サイトの間隙水中のアンモニウムイオンやリン酸イオンの濃度について、深度が大きくなるに従い増加する傾向があることから、従属栄養の古細菌が多くなり堆積有機物を分解していると解釈した。さらに、この有機物分解帯 (130 m ~ 230 mbsf) では、GDGT 由来の monocyclic biphytane の炭素同位体比が -48.8‰ 程度と低いことからメタン生成菌由来と解釈し、深度の増加に伴いその濃度が増加していることからその深度帯で堆積有機物の分解反応を利用したメタン生成活動が起こっていると解釈した。Heuer *et al.* (2009) は、U1329 の間隙水中の酢酸、DOC、DIC、メタンの炭素同位体比を測定することによって、酢酸分解経路によるメタン生成が起こっている可能性を示した。

微生物研究については、メタン生成や酸化活動に関する微生物の研究が行われた。Yoshioka *et al.* (2010) は、U1327 と U1329 において、堆積物から DNA を抽出しメタン生成菌が特徴的に持つ機

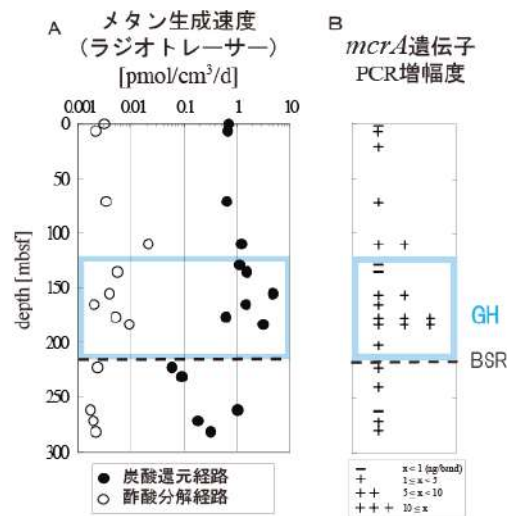
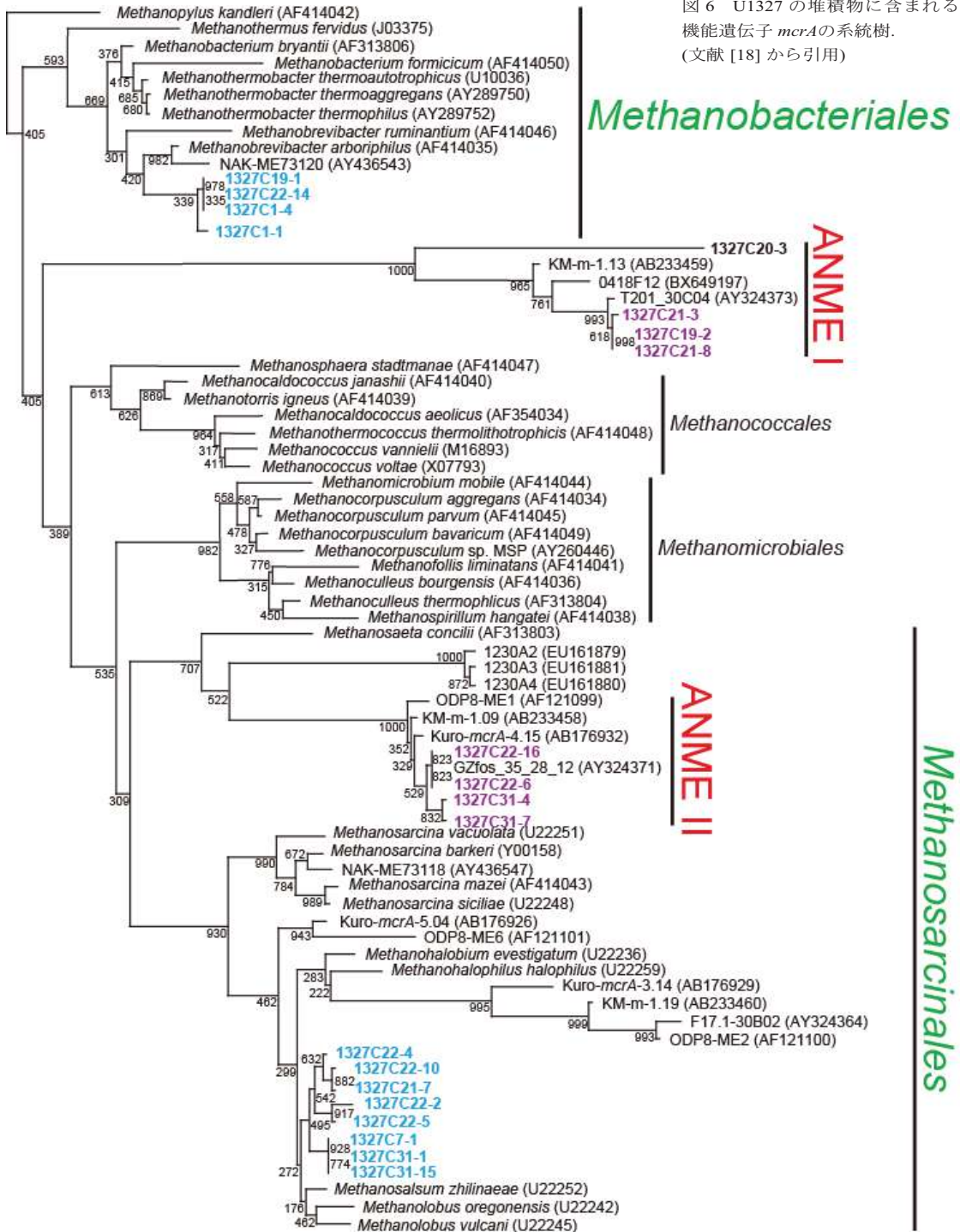


図5 U1327の微生物によるメタン生成速度 (A) とメタン生成古細菌の機能遺伝子 *mcrA* の増幅率 (B) の深度分布。(文献 [18] から引用・改変)

能遺伝子 *mcrA* を検出し、その PCR 増幅率の強さによってメタン生成菌の量を見積もった。また、同じ深度の堆積物試料を用いてメタン生成速度を評価した (図 5)。その結果、U1327 では、GH の分布領域でメタン生成菌が多く、かつ CO<sub>2</sub> 還元経路のメタン生成速度が相対的に高かった (約 0.1 ~ 数 pmol/cm<sup>3</sup>/d)。酢酸分解経路のメタン生成活性も検出されたものの、CO<sub>2</sub> 還元経路に比べて 1 桁から 2 桁低かった。また、*mcrA* の塩基配列を解読したところ *Methanosarcina*, *Methanobacteriale* の系統のものが検出された (図 6)。これは、ODP の Leg164 の試料を用いた Marchesi *et al.* (2001) の結果と調和的であり、深度によってメタン生成菌の系統が異なることはなく、むしろ、表層近くと深度 200 m 付近でありあまり変わらない結果であった。GH の分布域でメタン生成菌が多く、メタン生成活性が高い特徴は、Kaneko *et al.* (2013) の結果と調和的であった。しかし、ODP Leg 204 において Hydrate Ridge の堆積物を用いて見積もられたメタン生成速度 (Colwell *et al.* 2008) と大きく特徴が異なっている。彼らは、3 つのサイトで 48 試料を分析した結果、BSR の下部で最も高いメタン生成速度 (11 nmol/cm<sup>3</sup>/d) が検出された他、

図 6 U1327 の堆積物に含まれる機能遺伝子 *mcrA* の系統樹。  
(文献 [18] から引用)



0.1

数カ所でメタン生成活性を検出しているが、多くの場合 *mcrA* が増幅せず、検出限界 (4.25 fmol/cm<sup>3</sup>/d) 以下であると結論付けている。つまり、堆積物のメタン生成活性には大きな不均質性があるとしている。Yoshioka *et al.* (2010) は、嫌氣的メタン酸化古細菌 Anaerobic methanotrophic Archaea (ANME) のタイプ I と II の遺伝子も検出している (図 6)。これらの微生物は、深部において GH の形成や分解プロセスに関与している可能性がある。

一方、GH の見つからなかった最も大陸側のサイト U1329 において、BSR を挟む 70 – 140 mbsf 付近でメタン菌の遺伝子が GH の分布域と同じぐらい検出され、炭酸還元経路がメインのメタン生成活性が検出された。U1327 と U1329 の両サイトにおける微生物的な特徴の違いは見つからなかった。それにもかかわらず、一方には GH はなく、もう一方には GH が分布している事から、GH の分布は微生物の特徴以外の要因が関係していると考えられる。その 1 つとして、堆積層の違いが考えられた。GH のある地域は、第四系からなる堆積物であり主にタービダイトで構成され、砂層に伴って GH が検出されることが多かった。なお、これらのタービダイト性の堆積層は岩相での識別はあまり顕著ではなく、むしろ含有される珪藻化石群集に反映されており、これらの堆積層では浅海性珪藻と淡水生珪藻の産出頻度が大きく変動するのが観察された。これに対して U1329 の第四系に見られる珪藻化石群集はほとんどが浅海性珪藻のみからなっていることから、タービダイト性の堆積物が少ないと推定された (Akiba *et al.*, 2009)。粒形の大きい砂層が堆積層の中に空間を作り出し GH の貯留層となることから、貯留層としてのタービダイトの有無が GH の分布の違いをもたらしたと考えられる。また、エルセイドと丸山らは、U1327 の GH 層のコア試料を用いてメタゲノム解析を行い、独自の方法でインテグロンとそれに付随するジーンカセット領域を検出し、この環境への適応機能を担う遺伝子群の解明に成功した。その多くは新規性の高いもので、メタンや硫黄

の代謝に係る酸化・還元酵素関連遺伝子等もあり、この海底下の特殊環境に適応した微生物群集の特徴をよく反映する結果と見なされた。 (Elsaied *et al.*, in press)。

航海で得られたデータを利用し、Cascadia Margin の堆積条件で GH 形成の数値シミュレーションが行われた (Malinverno *et al.*, 2008 ; 2010)。ただし、彼らは、地化学でよく用いられる深度に依存したメタン生成速度のモデル (SMI の直下でメタン生成速度が高く、深度が増加するに従って指数関数的に減少する) を用いている (Bernier, 1980 ; Davie and Buffett, 2001)。Malinverno *et al.* (2008) は、3 サイト (U1326, U1325, U1327) において、堆積速度の違いと脱水による流体の移流の違いによって、GH の深度分布が大陸に近いほど深くなる傾向が説明できることを示した。Malinverno (2010) は、砂泥互層の砂層に GH が濃集していることに注目して、U1325 において、泥層で生成されたメタンが拡散によって砂層に移動して GH が形成されることを示し、深部からのメタン供給は、GH 形成に必要なものとしている。

### 3. まとめ

本航海によって、沈み込み帯の付加体構造に分布する GH の産状や特徴が明らかになり、形成メカニズムについて各段に理解が進んだと言える。Hyndman and Davis (1992) のモデルは、単純に深部からの流体移動を考えていたが、沈み込み帯の広い範囲を調査することによって、流体移動は変形フロントからの距離に関連していた。地化学や微生物研究によって堆積条件や場所、深度によってメタン生成の特徴が異なることが分かった。

### 4. おわりに

研究以外について、航海中、低気圧の影響で頻繁に雨が降り、船が揺れることが多く、時には掘削が中断され、船酔いに苦しむ日々であった。加えて微生物研究者は、微生物へのダメージを少なくするため、ラボデッキとは別の cold room (冷蔵室) の中で作業しなければならなかったので体

力や思考能力が低下し大変過酷な環境であった(その後、JR号は改修されて微生物研究用のスペースは改善された)。長期間の航海で気が滅入る時もあったが、日本人乗船者が6人と多かったので、お互い声をかけて励ましあった。時には、海上でマンボウやイルカを見つけ気を紛らせた。秋葉がマンボウやアホウドリ、イカをあしらった航海ログ案を手書きで作り、好評を得て採択されたのは楽しい思い出である。また、航海直前8月末に大型ハリケーン・カトリーナがアメリカ南東部を襲い多大な被害が生じ、航海に影響するのではないかと心配されたが、事前に送った荷物が大幅に遅れて届く等のトラブルはあったものの航海そのものは予定通り行われた。航海の成功は、IODP スタッフの臨機応変な対応と忍耐の賜物といえる。ここに深く感謝の意を表したい。

#### 参考文献

- [1] Akiba, F., Inoue, Y., Saito-Kato, M., and Pohlman, J. (2009) Data report : diatom and foraminiferal assemblages in Pleistocene turbidite sediments from the Cascadia margin (IODP Expedition 311), northeast Pacific. In Riedel, M., Collett, T. S., Malone, M. J., and the Expedition 311 Scientists, Proc. IODP, 311 : Washington, DC (Integrated Ocean Drilling Program Management International, Inc.).
- [2] Colwell, F. S., Boyd, S., Delwiche, M. E., Reed, D. W., Phelps, T. J., and Newby, D. T. (2008) Estimates of biogenic methane production rates in deep marine sediments at Hydrate Ridge, Cascadia margin. *Appl. Environ. Microbiol.*, 74 (11) : 3444-3452.
- [3] Elsaied H., Stokes H. W., Yoshioka H., Mitani Y., Maruyama, A. (in press) Novel integrons and gene cassettes from a Cascadian submarine gas hydrate-bearing core. *FEMS Microbiology Ecology*.
- [4] Hashimoto, Y., and Minamizawa, S. (2009) Data report : quantitative analysis of grain size distribution for coarse sediments in an accretionary prism : an example from the Cascadia accretionary prism. In Riedel, M., Collett, T. S., Malone, M. J., and the Expedition 311 Scientists, Proc. IODP, 311 : Washington, DC (Integrated Ocean Drilling Program Management International, Inc.).
- [5] Heuer, V. B., Pohlman, J. W., Torres, M. E., Elvert, M., and Hinrichs, K. -U. (2009) The stable carbon isotope biogeochemistry of acetate and other dissolved carbon species in deep seafloor sediments at the northern Cascadia margin. *Geochim. Cosmochim. Acta*, 73 (11) : 3323-3336.
- [6] Hyndman, R. D., and Davis, E. E. (1992) A mechanism for the formation of methane hydrate and seafloor bottom-simulating reflectors by vertical fluid expulsion. *J. Geophys. Res.*, [Solid Earth], 97 (B5) : 7025-7041.
- [7] Kaneko, M., Naraoka, H., Takano, Y., and Ohkouchi, N. (2013) Distribution and isotopic signatures of archaeal lipid biomarkers associated with gas hydrate occurrences on the northern Cascadia Margin. *Chemical Geology*, 343, 76-84.
- [8] Kaneko, M., Shingai, H., Pohlman, J. W., and Naraoka, H. (2010) Chemical and isotopic signature of bulk organic matter and hydrocarbon biomarkers within mid-slope accretionary sediments of the northern Cascadia margin gas hydrate system. *Mar. Geol.*, 275 (1-4) : 166-177.
- [9] Marchesi, J. R., Weightman, A. J., Cragg, B. A., Parkes, R. J., Fry, J. C. (2001) Methanogen and bacterial diversity and distribution in deep gas hydrate sediments from the Cascadia Margin as revealed by 16S rRNA molecular analysis. *FEMS Microbiology Ecology*, 34, 221-228.
- [10] Malinverno, A. (2010) Marine gas hydrates in thin sands that soak up microbial methane. *Earth Planet. Sci. Lett.*, 292 : 399-408.
- [11] Malinverno, A., Kastner, M., Torres, M.E., and Wortmann, U.G. (2008) Gas hydrate occurrence from pore water chlorinity and downhole logs in a transect across the northern Cascadia margin (Integrated Ocean Drilling Program Expedition 311). *J. Geophys. Res.*, 113 (B8) : B08103.
- [12] Riedel, M., Collett, T. S., Malone, M. J., and the Expedition 311 Scientists. (2006) Proc. IODP, 311 : Washington, DC (Integrated Ocean Drilling Program Management International, Inc.).
- [13] Pohlman, J. W., Kaneko, M., Heuer, V. B., Coffin, R. B., and Whiticar, M. (2009) Methane sources and production in the northern Cascadia margin gas hydrate system. *Earth Planet. Sci. Lett.*, 287 (3-4) : 504-512.
- [14] Suess, E., Torres, M.E., Bohrmann, G., Collier, R.W., Greinert, J., Linke, P., Rehder, G., Tréhu, A., Wallmann, K., Winckler, G., and Zuleger, E. (1999) Gas hydrate destabilization : enhanced dewatering, benthic material turnover and large methane plumes at the Cascadia convergent margin. *Earth Planet. Sci. Lett.*, 170 (1-2) : 1-15.
- [15] Torres, M. E., and Kastner, M. (2009) Data report : clues about carbon cycling in methane-bearing sediments using stable isotopes of the dissolved inorganic carbon, IODP Expedition 311. In Riedel, M., Collett, T. S., Malone, M. J., and the Expedition 311 Scientists, Proc. IODP, 311 : Washington, DC (Integrated Ocean Drilling Program Management International, Inc.).
- [16] Tréhu, A. M., Bohrmann, G., Rack, F. R., Torres, M. E., et al. (2003) Proc. ODP, Init. Repts., 204 : College Station, TX (Ocean Drilling Program).
- [17] Westbrook, G. K., Carson, B., Musgrave, R. J., et al. (1994) Proc. ODP, Init. Repts., 146 (Pt. 1) : College Station, TX (Ocean Drilling Program).
- [18] Yoshioka, H., Maruyama, A., Nakamura, T., Higashi, Y., Fuse, H., Sakata, S., and Bartlett, D. H. (2010) Activities and distribution of methanogenic and methane-oxidizing microbes in marine sediments from the Cascadia margin. *Geobiology*, 8 (3) : 223-233.