

令和 5 年 6 月 1 日現在

機関番号：14501

研究種目：基盤研究(B)（一般）

研究期間：2020～2022

課題番号：20H04315

研究課題名（和文）海底泥火山活動を介した地下深部生命、炭素の海洋への拡散・循環モデルの構築

研究課題名（英文）Construction of a model for the diffusion and circulation of deep subsurface life and carbon to the ocean via submarine mud volcanism

研究代表者

井尻 暁 (Ijiri, Akira)

神戸大学・海事科学研究科・准教授

研究者番号：70374212

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 13,500,000円

研究成果の概要（和文）：本研究では、海底泥火山活動を介した地圏-水圏-生命圏の相互作用を明らかにすることを目的として、2021年12月から2022年1月に研究航海を実施し、種子島沖海底泥火山群から海水・堆積物試料を採取した。以前の航海で採取された試料も併せて溶存態有機物やメタンの分析および微生物叢解析を行い、泥火山から放出される炭素物質・微生物の起源を明らかにし、これらの海洋中の挙動を調べ、泥火山の活動度との関連について定量的な解析を行った。さらに、泥火山堆積物から抽出した水、ガスの化学分析により種子島沖海底泥火山群の活動によって海底に噴出した堆積物・流体の起源を明らかにした。

研究成果の学術的意義や社会的意義

海底泥火山上の水柱から採取した海水試料の分析により、泥火山から溶存態有機物が放出されていることを明らかにし、さらにそのフラックスを求め、世界で最も溶存態有機物の放出量が多い海底メタン湧水域と同等の放出量であることを明らかにした。これは海底泥火山からの溶存態有機物の放出が海洋の炭素循環に無視できない影響を与えている可能性を示す。また、泥火山の堆積物と流体の化学分析から、泥火山の噴出堆積物の起源層よりも深部から流体が供給されていること、このような現象は、沈み込み帯の泥火山において共通の現象であることを明らかにした。このことは沈み込み帯における物質循環について新たな知見を与えるものである。

研究成果の概要（英文）： This study aims to reveal the interactions between the geosphere, hydrosphere, and biosphere through submarine mud volcano activity. During a research expedition conducted from December 2021 to January 2022, water and sediment samples were collected from the submarine mud volcanoes off Tanegashima Island. The origin of carbon substances and microbes released from the mud volcano was revealed through the analysis of dissolved organic matter, methane, and microbial community analysis. The behavior of these substances in the marine environment was investigated, and a quantitative analysis was performed to examine their relationship with mud volcano activity. Furthermore, the origin of the sediment and fluids erupted onto the seafloor due to the activity of the submarine mud volcanoes off Tanegashima Island was revealed through chemical analysis of the extracted water and gases from the mud volcano sediments.

研究分野：生物地球化学、安定同位体地球化学

キーワード：海底泥火山 希ガス 溶存態有機炭素 メタンハイドレート 深部流体 海底下生命圏

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

泥火山は、地下深部に埋没し続成過程を経た地質時代の堆積物が泥ダイアピルとして上昇し海底に噴出した地形である。多くは大陸縁辺域に広く分布し、その活動はプレート沈み込みに伴う地震・深部流体の移動と密接に関係すると考えられている。また、海洋・大気への深部物質の放出源として注目されている。特に温室効果ガスの一つであるメタンの放出量は大きく、陸上および大陸棚上の海底泥火山から放出されるメタンの放出量は現在の大気中の化石メタン（放射性炭素 ^{14}C を含まないメタン）の 9% をを占めると見積もられている。大陸棚以深の海底泥火山は陸上よりも多く分布していることから、全体でのメタンの放出量はさらに大きく陸上・浅海の 4 倍以上と見積もられている。その大部分は海水中に溶存し、微生物によって酸化されて二酸化炭素に変換され、海洋への炭素の放出源となっていると考えられている (Milkov et al., 2003, GRL)。

メタンと並び、海洋への影響が大きいと考えられるのが溶存態・懸濁態有機物である。近年、海底表層のメタン湧水域(海底からメタンを含む水が噴き出している湧水)においてメタンと共に海底にしみ出す溶存態有機炭素(DOC)が、海洋に存在する DOC の大きな放出源となっているという説が提唱されている (Pohlman et al., 2011, *Nat. Geosci.*)。海洋の DOC は地球上の巨大炭素リザーバーの一つ(700 GtC)である。大部分が難分解性であり、海洋大循環スケール (~1000 年)をはるかに超える 4000~6000 年の滞留時間をもつ(DOC 放射性炭素同位体比: -390~-525‰; 年代に換算すると 4000~6000 年)。その起源については海洋表層で光合成プランクトンによって生産された有機物が食物連鎖を経て深層へ沈降する粒子状有機物の微生物分解であると考えられている。しかし、湧水中の DOC の炭素安定同位体比と放射性炭素同位体比の分析により、化石メタンの嫌氣的酸化の過程で副生成物として形成された高濃度の DOC(1~3 mM)が海洋中に放出されている(0.1~14 GtC/y)ことが明らかにされており(Pohlman et al., 2011)、海洋の古い(4000~6000 年)の DOC の生産に貢献している可能性が指摘されている。また、放出される DOC は海洋深層に生息する微生物のエネルギー源となっている可能性も指摘されている。メタンの放出量が多い海底泥火山でも同様の過程で DOC が生成し大量に海洋に放出されていると考えられる。さらに泥火山では地下深部の堆積物が海底まで噴出してきているため、海底下で続成作用や微生物分解によって生成した高濃度の DOC(>3 mM) (Ijiri et al., 2012, *Org. Geochem.* など)も一緒に放出され、通常メタン湧水域の DOC の放出量を遙かにしのぐ可能性が高い。しかし、泥火山から放出されている DOC についてはその起源も量も明らかになっていない。

我々は、2015 年に、種子島沖の海底泥火山群の調査を行い、第 1 と第 4 と番号をつけた泥火山において噴出堆積物を採取し泥火山上で鉛直採水を行い、この結果、第 1、第 14 泥火山の山頂から 30m と 60m 上方で横にたなびくメタンブルームを確認した。また、泥火山の堆積物と直上の海水の微生物群集構造解析の結果、Atribacteria に属する種が堆積物と海水中に共通して存在しメタンブルームの上下で多いことを発見した (Hoshino et al., 2017, *Frontiers in Microbiology*) (図 1)。Atribacteria は、有機物に富む海底堆積物に優先的に存在する嫌気性地下微生物であり、海水中には通常存在しておらず、泥火山直上の海水中での分布は Atribacteria がメタンと共に泥火山から放出され拡散していることを強く示唆する。これは、海底泥火山が、海洋と地下生命圏を繋ぐ地質学的な生命移動・拡散経路となっていること示す初めての発見である。しかし、この調査航海では、それぞれの泥火山の直上の 1 採水地点でしか採水を行っておらず、泥火山の活動度と、海底下微生物の拡散規模の関連は明らかになっていない。

2. 研究の目的

本研究は、種子島沖海底泥火山群の調査航海を行い、採取された海水・堆積物試料中の炭素含有物質(メタン、有機物)の濃度・炭素同位体分析および微生物叢解析により、泥火山から放出される炭素物質・微生物の起源を明らかにする。また、これら炭素含有物質の海洋中の挙動(拡散、反応過程)を調べ、微生物活動と泥火山の活動度との関連について定量的に把握することにより、泥火山活動を介した地圏-水圏-生命圏の相互作用を解き明かすことを目的とする。

3. 研究の方法

種子島沖海底泥火山群の調査により採取された海水・堆積物試料中の炭素含有物質(メタン、有機物)の炭素安定同位体および微生物叢解析により、泥火山から放出される炭素物質・微生物の起源を明らかにする。また、これら炭素含有物質の海洋中の挙動(拡散、反応過程)を調べ、微生物活動との関連について定量的に把握することにより、泥火山活動を介した地圏-水圏-生命圏の相互作用を解き明かすことを目的とする。

4. 研究成果

1) 種子島沖海底泥火山群調査

2021 年 12 月~2022 年 1 月に東北海洋生態系調査研究船「新青丸」KS-21-27 次航海を実施し、種子島沖海底泥火山群を調査した。第 8、第 10、第 15 泥火山にて、CTD ロゼット採水システムにより海水試料を採取し、ピストンコアラールによって堆積物コアを採取した。第 15 泥火山の山

頂付近で採取された堆積物試料からはメタンハイドレートが発見された。日本周辺の海域において南海トラフよりも南西の琉球海溝でメタンハイドレートが発見されたのはこれが初めてである。

2) 種子島沖海底泥火山から放出される溶存態有機物フラックスの見積もり

海底泥火山からの DOC の放出の有無を明らかにすることを目的として、第 8、第 10、第 15 泥火山から得られた海水試料と堆積物から抽出した間隙水試料中の DOC 濃度を、高温接触酸化法を用いた全有機炭素計により誤差 $\pm 1.8\%$ の高精度で測定した。また、海水試料については、溶存メタン濃度とその炭素同位体比を測定した。

海水中の DOC 濃度は、第 8 泥火山の 2 点の採水地点 (M8-1 [山頂直上]、M8-2 [山頂から南西 200 m]) では、海底付近で最も高く、水深の浅い方向に向かって減少していた。この鉛直分布は、海底からの DOC 放出を示している。定常状態での渦拡散を仮定し、DOC の濃度勾配から求めた鉛直方向への DOC フラックスは M8-1 が $42 \times 10^3 \mu\text{mol m}^{-2} \text{d}^{-1}$ 、M8-2 が $20 \times 10^3 \mu\text{mol m}^{-2} \text{d}^{-1}$ であった。M8-1 と M8-2 の平均 DOC フラックスで山体から一様に DOC が染み出していると仮定し、M8-1 を中心に M8-1 から M8-2 の距離を半径とした円状の範囲 (0.32 km^2) の DOC 放出量を求めると、 $1.2 \times 10^2 \text{ kg C d}^{-1}$ であった。この値は、世界で最も DOC 放出量が多いバンクーバー沖のメタン湧水域 (0.5 km^2) の DOC 放出量 ($5.6 \times 10^2 \text{ kg C d}^{-1}$) と同程度である。一方、第 10、第 15 泥火山では明らかな DOC 濃度の上昇が見られず、DOC の放出が確認できなかった。

間隙水中の DOC 濃度は、調査を行った全ての泥火山で、海底付近で最も低く、深度の増加に伴って高くなっていった、この鉛直分布は、泥火山からの DOC の放出を示している。定常状態での堆積物中の分子拡散を仮定し、海底表層の DOC の濃度勾配から求めた DOC フラックスは、第 8 泥火山は $36 \mu\text{mol m}^{-2} \text{d}^{-1}$ 、第 10 泥火山は $182 \mu\text{mol m}^{-2} \text{d}^{-1}$ 、第 15 泥火山は $21 \mu\text{mol m}^{-2} \text{d}^{-1}$ であり、他の海域で報告されている通常海底堆積物からの DOC フラックスと比較して大きく変わらなかった。

海水中の溶存メタン濃度は、第 8 泥火山では、海底付近での濃度変化が見られず、第 10、第 15 泥火山では、海底付近で濃度の極大を示した。この鉛直分布は、第 8 泥火山からはメタンがほとんど放出されておらず、第 10、第 15 泥火山からはメタンが放出されていることを示唆する。

種子島沖海底泥火山からの DOC 濃度分析の結果により、間隙水試料からは全ての泥火山から DOC の移流が確認され、第 10 泥火山が最もフラックスが大きかった。これに対して、海水試料からは第 8 泥火山でのみ DOC の放出が確認された。これらの違いは、第 10、第 15 泥火山の堆積物から放出された DOC が易分解性であり、海底表層または海水中で速やかに分解され、海水中では検出されなかった可能性を示す。一方、海水中へのメタンの放出は、第 8 泥火山からは確認されず、第 10、第 15 泥火山からは確認されたため、海水中へのメタンの放出と DOC の放出は関連しないことが明らかとなった。

本研究により、DOC が海底泥火山から放出されていることを初めて発見した。各泥火山の堆積物試料から求めたフラックスと海水試料から求めたフラックスは大きく異なり、放出されている DOC の分解性が異なることが示唆された。泥火山から放出されている DOC が難分解性であれば、海洋深層の DOC の長い滞留時間 (約 4000~6000 年) に寄与し、易分解性の DOC であれば、海水中の微生物の重要なエネルギー源となっていると考えられる。

また、同航海で得られた海水試料の微生物群集構造解析の結果、堆積物中に生息する Atribacteria に属する種が、海底付近に多く分布していることが明らかになった。Atribacteria は DOC と同じく第 8 泥火山で最も多く、Atribacteria と DOC はメタンの放出が少ない泥火山から放出されている可能性がある。この理由については今後の検討課題である。

3) 種子島沖海底泥火山群の表層堆積物中から抽出した希ガス分析による流体の起源

2015 年と 2019 年に種子島沖にて実施された学術研究船「白鳳丸」による研究航海で第 1、第 2、第 3、第 14 泥火山から採取された表層堆積物から抽出した希ガスの分析を行った。この分析結果により、希ガスの溶解平衡温度が第 1 では 83~230、第 14 では 91~168 であると見積もることに成功した。この地域における地温勾配は、25 /km であることと報告されていることから、得られた溶解平衡温度を深度に換算すると、3~9 km 程度であることが明らかとなった。このことから種子島沖海底泥火山の希ガスの起源深度は海底下 3~9 km であり、海底下 18 km 付近にあるとされているプレート境界までは達していないことが示唆された (Mitsutome et al., 2023)。

4) 種子島沖海底泥火山群の噴出堆積物と流体の起源

第 1、第 2、第 3、第 14 泥火山から得られた堆積物コアを用いて、堆積物の特性と炭化水素ガス、水の起源について調べた。堆積物試料は、X 線 CT による内部構造観察、加速器質量分析器を用いた ^{10}Be 年代測定、石灰質ナノ化石による微化石年代に供し、ビトリナイトの反射率測定から堆積物の温度履歴を推定した。また、炭化水素ガスについては、メタン/エタン濃度比 (C_1/C_2)、メタンガスの炭素同位体比の測定を行い、その起源を推定した。さらに堆積物から抽出した間隙水の化学分析により水の起源を推定した。

堆積物は、全体に多くの泥礫を含む粘土質の堆積物であった。第 2、第 3 の微化石年代と ^{10}Be 年代結果は整合的であり、様々な年代を示したが、主に中期中新世以降を示した。一方、第 14 は表層に第四紀の堆積物が被覆していた。これは、現在は堆積物の噴出が停止しており、活動的な泥火山でないことを示す。種子島周辺には、白亜紀～中新世前期の地層から成る四万十帯が分布しているが、本研究による年代測定の結果から、泥火山堆積物の起源は四万十帯より上位の堆積層由来であると考えられる。堆積物の全岩鉱物組成は、全体的に石英、イライト、斜長石を多く含み、各泥火山による違いは見られなかった。粘土鉱物はイライトに富んでおり、各山、各深度において組成による大きな違いは見られなかった。また、XRD 回折パターン、粘土鉱物組成、イライト含有量が各泥火山で類似していたことは、種子島沖における泥火山噴出堆積物の起源となる層が同じである可能性を示す。一方、4 つの泥火山から計 180 点以上についてビトリナイト反射率を測定した結果、反射率は 0.42～0.44% であり、各泥火山で似通った反射率が得られた。得られた反射率から、Easy%Ro 法により見積もられた経験温度は 77～84 を示した。

泥火山から採取された炭化水素ガスは、第 1、第 2、第 3 のメタンの炭素同位体比は $-42 \sim -57\text{‰}$ 、 C_1/C_2 比は 30～50 であり、熱分解起源メタンの特徴を示した。一方、第 14 は、炭素同位体比は $-57 \sim -77 \text{‰}$ 、 C_1/C_2 比は 700～4000 であり、微生物起源メタンの特徴を示した。第 14 は活動的でない泥火山であることから、熱分解起源の炭化水素ガスが、生物起源の炭化水素ガスに置き換わっていることが考えられる。堆積物から得られたビトリナイトの反射率 (0.42～0.44%) と熱分解起源炭化水素ガスが生成される反射率 (2.0%以上) を比べると、泥火山の堆積物は、熱分解起源炭化水素ガスを生成する温度を経験しておらず未熟性であることを示す。

間隙水の化学組成は海水よりも低い Cl^- 濃度 (海水中の濃度の約 40%) を示した。間隙水の水素・酸素安定同位体比は Cl^- 濃度が低いほど酸素同位体比は大きく、水素同位体比は小さくなる粘土鉱物の脱水由来の水の特徴を示した。この相関関係から見積もった粘土鉱物の脱水由来の水 (端成分) の水素・酸素安定同位体比と既知の粘土鉱物-水間の同位体分別から、粘土鉱物の脱水反応は 60-190 で起こったと見積もられ、スメクタイト-イライト反応の起こる温度と一致した。堆積物中の脱水反応に関わる粘土鉱物であるスメクタイトとイライトの含有量は、脱水反応により間隙水中の Cl^- 濃度を海水の 40% まで下げるほど高くはなく、粘土鉱物の脱水反応により生成した水は、堆積物よりも深く温度の高い場所で生成したと考えられる

以上の結果から、水と炭化水素ガスは、泥火山の堆積物の起源層よりも深い地層から供給されていると結論された。このような深部からの流体の泥火山堆積物の起源層への注入は紀伊半島沖熊野海盆に分布する泥火山群でも報告されており、同現象は沈み込み帯の泥火山に共通の特徴であると考えられる (Ijiri et al, *In revision*)

4) 第 15 泥火山から採取されたメタンハイドレートの起源

第 15 泥火山の堆積物中から得られたメタンハイドレートの起源を推定するために、メタンハイドレートを融解させて得られた水と周囲の間隙水、およびハイドレートを融解させて得られた炭化水素ガスの化学・同位体分析を行った。

間隙水の Cl^- 濃度は、104～143 cm below seafloor (cmbfsf) では海水の値 560 mM よりも低く 271～340 mM であった。海水の Cl^- 濃度の低下は海水由来の間隙水に、何らかの形で淡水が加わり希釈されたことを示す、酸素・水素安定同位体比は Cl^- 濃度の低下とともに大きくなり強い相関を示した。 Cl^- 濃度を 0 mM に外挿して得られた淡水の酸素・水素同位体比 (端成分) を求めたところ D 値が $+20\text{‰}$ 、 ^{18}O 値が $+4\text{‰}$ であった、これはメタンハイドレート中の水分子の同位体の特徴である。このことから、間隙水の Cl^- 濃度の低下は堆積物回収時にメタンハイドレートが融解して放出された水による希釈であることが示された。 Cl^- 濃度の低下の割合は、メタンハイドレートの融解水が加わった量を示すため、 Cl^- 濃度の低下から見積もったメタンハイドレートの飽和度は 42～55% であった。堆積物の空隙率を 50%、MV#15 の山頂の面積を 350 m とすると、求めた飽和度から第 15 泥火山のメタン含有量は約 190 万 m^3 と見積もられた。

メタンハイドレート形成時の水 メタンハイドレート間の同位体分別係数からメタンハイドレートを構成する水の水素・酸素同位体比を求めたところ、粘土鉱物の脱水由来の水を含むことが明らかになった。

メタンハイドレートを融解して得られたメタンの炭素安定同位体比 ($-54 \sim -47\text{‰}$)、水素安定同位体比 ($-205 \sim -171\text{‰}$) は熱分解起源メタンであることを示した。

メタンの生成温度の指標となる凝集同位体比から見積もられた見かけの生成温度は 141 ($+39/-32$) であった。この温度はハイドレート中のメタンがほぼ熱分解起源であることを示唆する。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計2件（うち査読付論文 2件/うち国際共著 1件/うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 Mitsutome Yuki, Toki Tomohiro, Kagoshima Takanori, Sano Yuji, Tomonaga Yama, Ijiri Akira	4. 巻 13
2. 論文標題 Estimation of the depth of origin of fluids?using noble gases in the surface sediments of submarine mud volcanoes off Tanegashima Island	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Scientific Reports	6. 最初と最後の頁 5051-5051
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1038/s41598-023-31582-z	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 該当する

〔学会発表〕 計5件（うち招待講演 0件/うち国際学会 1件）

1. 発表者名 瀬戸口亮眞, 井尻 暁, 山形武靖, 松崎浩之, 萩野恭子, 濱田洋平, 多田井修, 谷川亘, 芦寿一郎, 村山雅史
2. 発表標題 堆積物の熱履歴解析による種子島沖泥火山群の噴出機構の解明
3. 学会等名 日本地質学会第128年学術大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 瀬戸口亮眞, 井尻暁, 山形武靖, 松崎浩之, 萩野恭子, 芦寿一郎, 村山雅史
2. 発表標題 種子島沖海底泥火山から採取された噴出堆積物の特徴と起源
3. 学会等名 Japan Geoscience Union Meeting 2021
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Akira Ijiri, Ryoma Setoguchi, Yohei Hamada, Yuki Mitsutome, Tomohiro Toki, Kyoko Hagino, Masafumi Murayama, Fumio Inagaki
2. 発表標題 Different depths of sedimentary and fluid origins in submarine mud volcanoes off Tanegashima Island, Japan
3. 学会等名 Goldschmidt 2022（国際学会）
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 井尻 暁、土岐 知弘、村山 雅史、星野 辰彦、瀬戸口 亮眞、満留 由来、宮本 洋好、田代 昂士、安村 幸真、小林 祐大、山田 貴太郎、吉崎 結衣、大塚 宏徳、加藤 萌
2. 発表標題 種子島沖海底泥火山群の総合調査 (KS-21-27次航海) 速報
3. 学会等名 Japan Geoscience Union Meeting 2022
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 星野 辰彦、土岐 知弘、野口 拓郎、芦 寿一郎、村山 雅史、井尻 暁
2. 発表標題 海底下泥火山微生物群集の起源と直上海水との相互作用
3. 学会等名 Japan Geoscience Union Meeting 2022
4. 発表年 2022年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究 分担者	星野 辰彦 (Hoshino Tatsuhiko) (30386619)	国立研究開発法人海洋研究開発機構・超先鋭研究開発部門(高知コア研究所)・主任研究員 (82706)	
研究 分担者	乙坂 重嘉 (Otosaka Shigeyoshi) (40370374)	東京大学・大気海洋研究所・准教授 (12601)	
研究 分担者	村山 雅史 (Murayama Masafumi) (50261350)	高知大学・教育研究部総合科学系複合領域科学部門・教授 (16401)	

6. 研究組織（つづき）

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究分担者	土岐 知弘 (Toki Tomohiro) (50396925)	琉球大学・理学部・准教授 (18001)	
研究分担者	野口 拓郎 (Noguchi Takuro) (90600643)	高知大学・教育研究部総合科学系複合領域科学部門・准教授 (16401)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関