

学位論文題名

Geochemical studies on the origin of methane in
crustal fluids using carbon isotopes of methane and
carbon dioxide as tracers

(炭素同位体比を指標に用いた地下深部流体中の
メタンの起源に関する地球化学的研究)

学位論文内容の要旨

海底熱水系には多様な温度及び酸化還元状態があることから、豊富な地下生物圏が存在していると考えられてきている。とくに、高温で還元的な状態は原始地球の環境と類似していることから、生命が海底熱水系から誕生したのではないかと近年注目されている。地下生物圏における生物の活動を評価するために、生物の代謝過程に関わるメタンに着目した。メタンは生物の代謝過程の中で、消費する過程にも関わりかつ生成する過程にも関わる熱水特有の成分である。両過程を区別するために、メタンの濃度のみならず炭素同位体比を測定した。生物の適温環境を考えると低温熱水の方が、微生物の活動はより活発であると考えられるが、試料採取の困難さと海水との混合によって超微量しか含まれないメタンを高感度で測定できるシステムがこれまで存在しなかった。そこで、本研究では、低温熱水を貯留してから採取する「貯留式採水器」を開発し、また超微量のメタンの炭素同位体比を測定できるシステムを構築することによって、低温熱水中における生物の代謝過程を評価することを目的とした。

水曜海山は伊豆小笠原島弧の中の七曜海山列のほぼ中央に位置し、東峰と西峰のふたつの峰を持つ海山である。西峰の頂上には長径 1500 m、比高 500 m の火口カルデラが存在し、火口カルデラ底には南北約 300 m、東西約 100 m の活発な熱水噴出域が分布している。熱水噴出域には小型ながら活発なチムニーが多数散在し、噴出する熱水の温度は 315℃に達する。

新日本海事の新世丸航海及び JAMSTEC の「なつしま」航海において、「はくよう 2000」及び「しんかい 6500」を用いて水曜海山熱水域から高温熱水及び低温熱水を採取した。試料は船上でただちに、pH、アルカリ度、アンモニア濃度、シリカ濃度を測定し、また、Cl⁻濃度、SO₄²⁻濃度、溶存メタン濃度、全炭酸濃度、メタン・全炭酸の炭素同位体比を北海道大学において測定した。

高温熱水中のメタンの炭素同位体比は均一であり、高温熱水中における生物活動の証拠は得られなかった。低温熱水試料は貯留式採水器を用いたことにより、海水との混合を補正することができ、その結果求められた純粋な熱水のメタン濃度は高温熱水から得られたメタン濃度よりも高く、メタン生成が起きていることを示唆していた。一方、メタンの炭

素同位体比は低温熱水中のメタンの方が質量数 13 の炭素を多く含んでおり、微生物によるメタン生成の可能性を否定している。このことから、水曜海山海底熱水系においてはメタンが無機的な反応を介して生成していることが示された。

学位論文審査の要旨

主 査 教 授 蒲 生 俊 敬

副 査 教 授 鈴 木 徳 行

副 査 助教授 角 皆 潤

副 査 助教授 石 橋 純一郎 (九州大学大学院理学研究院)

学 位 論 文 題 名

Geochemical studies on the origin of methane in crustal fluids using carbon isotopes of methane and carbon dioxide as tracers

(炭素同位体比を指標に用いた地下深部流体中の
メタンの起源に関する地球化学的研究)

地球環境におけるメタンガスの挙動は、メタンが強い地球温暖化気体であること、海底下のメタンハイドレートが将来のエネルギー源として有望であることなどの理由により、近年大きな注目を集めている。しかし地球環境の7割を占める海洋におけるメタンガスの分布と挙動についての知見は、観測と分析の難しさから極めて乏しく、特にメタンガスの起源についてはほとんど明らかにされていない。本研究は、日本周辺における陸域から海洋の様々な環境下に存在するメタンガスを丹念に調査し、メタンガスの起源と挙動、およびこれらの多様性を初めて明らかにしたものである。メタンガスの濃度のみならず炭素同位体比を有効に活用することによって、メタンガスの生成過程と分解過程の両面について多くの新しい知見を得ることに成功している。

メタンガスの生成は還元環境で進行し、酸化環境ではメタンの分解が進行する。それぞれのプロセスにおいてメタンの炭素同位体比は特徴的な変化を示す。したがって還元環境と酸化環境が隣り合せになっているような境界域では、メタンガスの濃度と同位体比は生成と分解のバランスによって大きく変化する。そこで濃度と同位体比を精密に分析することによって、メタンの起源、メタンを含む海底湧水の起源、メタンに関わる微生物の代謝過程などについて多彩な情報を得ることが期待できる。本論文は、(1)伊豆小笠原弧水曜海山の海底熱水系におけるメタンの挙動と地下生物圏の代謝活動、(2)相良油田における原油生成に伴うメタンガスの挙動、(3)南海トラフ熊野沖および第二渥美海丘の海底冷湧水中のメタンの挙動と冷湧水の起源、(4)三宅島近海の海底火山に伴うメタンの挙動、についてまとめている。いずれも重要なメタン発生源であり、本研究で初めて詳細な調査研究が実施されたものである。

従来は分析が困難であったごく低濃度のメタンガスを計測するために、本研究では海底湧出水を貯留してから採取する「貯留式採水器」を開発し、また超微量のメタンの炭素同位体比を測定する分析システムを構築している。その結果、100 pmolの極微量炭素があれば炭素同位体比が測定できるようになった。

水曜海山海底熱水系では、高温熱水と低温熱水の両方について測定を実施した。それぞれの熱水のエンドメンバーのメタン濃度を比較したところ、後者のエンドメンバーの方がメタン濃度が高くかつ炭素同位体比も高いことが明らかになった。微生物によってメタンの生成及び酸化の両反応が起きている可能性が指摘された。微生物による両反応の寄与率を定量的に見積った結果、熱水の温度が高いほど生成及び酸化いずれの反応も活発に行われていたことがわかり、高温の熱水中において微生物活動がより活発であることが本研究によって初めて明らかにされた。

その他、相良油田においては微生物起源のメタンでなく、有機物の熱分解に由来する深部起源のメタンを検出した。南海トラフでは、微生物起源のメタンと熱分解起源のメタンの両方を検出し、地殻内流体の起源がバラエティーに富むことを明らかにした。三宅島周辺海域では、海水中のメタンが大気からの供給とバクテリアによるメタン酸化分解の影響を強く受けていることを示した。

以上のように、本研究で得られた多くの新知見は、地球環境における今後のメタン研究にとって先導的役割を果たす貴重なものであり、高く評価することができる。

よって著者は、北海道大学博士（理学）の学位を授与される資格あるものと認める。