

安定同位体比を用いたメタンハイドレート賦存海域に生息する生物群集の食物網解析  
Analysis of benthic community food web at gas hydrate deposits using stable isotope analysis

\*福田 朱里<sup>1</sup>、沼波 秀樹<sup>2</sup>、鈴木 庸平<sup>3</sup>、松本 良<sup>1</sup>

\*AKARI FUKUDA<sup>1</sup>, HIDEKI Numanami<sup>2</sup>, Yohey Suzuki<sup>3</sup>, Ryo Matsumoto<sup>1</sup>

1. 明治大学研究・知財戦略機構、2. 東京家政学院大学家政学部家政学科、3. 東京大学理学研究科地球惑星科学専攻

1. Organization for the Strategic Coordination of Research and Intellectual Properties, Meiji University, 2. Department of Home Economics, Faculty of Home Economics, Tokyo Kasei-Gakuin University, 3. Department of Earth and Planetary Science, Graduate School of Science, the University of Tokyo

メタンハイドレート賦存海域の生物群集の生態系を明らかにするため、上越沖および最上トラフにおいて採取した堆積物試料および生物試料の炭素・窒素・硫黄安定同位体比の測定を行った。さらに、食物網の解析およびハイドレート賦存域の底層水において炭素と硫黄の物質循環について考察を行った。

2013年9月と2014年10月にハイドレート賦存域とメタン湧出域ではないレファレンスサイトにおいて、スラープガンやクマデを用いて底生生物をサンプリングした。また、MBARI採泥器を用いて表層0~2.5, 2.5~5 cmの堆積物試料のサンプリングを行った。大型底生生物試料は船上で解剖し、分析まで冷凍保存した。小型底生生物試料はふるいにかけて冷凍保存した。研究室に持ち帰った試料は、凍結乾燥により粉末状にした。塩酸溶液により無機炭酸を除去し水酸化ナトリウムで中和した後、同位体比質量分析計 (Flash 2000/Delta V IRMS, Thermo Scientific社) により炭素および窒素の安定同位体比の測定を行った。硫黄安定同位体比は、乾燥した生物試料と酢酸亜鉛と塩化バリウム溶液で生成した沈殿物をろ過したサンプルを用いて同様に測定を行った。

その結果、ベニズワイガニとノロゲンゲ、ホッコクアカエビ、ヨコエビは、メタン湧出の影響のないレファレンスサイトとメタンハイドレート賦存海域のシープサイトの両サイトで採取したが、その炭素・窒素安定同位体比の値に有意な違いはなかった。ベニズワイガニらは、メタンシープ周辺に生息する個体においても主に光合成由来の炭素や海水由来の硫黄に依存していることが示された。一方、化学合成細菌由来の炭素や硫黄を利用しているキヌタレガイやヒゲムシなどの底生生物の存在も示された。

本研究は経済産業省のメタンハイドレート開発促進事業の一環として実施されたものである。

キーワード：メタンハイドレート、底生生物、食物網、安定同位体比

Keywords: methane hydrate, benthic fauna, food web, Stable isotope signatures

表層型メタンハイドレート広域調査で得られた日本海及び北海道周辺海盆域の海底地形  
Detailed Topographic survey on basin areas of the Japan Sea and around Hokkaido

\*佐藤 幹夫<sup>1</sup>、大井 剛志<sup>2</sup>、弘松 峰男<sup>3</sup>、松本 良<sup>2</sup>

\*Mikio Satoh<sup>1</sup>, Takeshi Oi<sup>2</sup>, Mineo Hiromatsu<sup>3</sup>, Ryo Matsumoto<sup>2</sup>

1.産業技術総合研究所 地質調査総合センター 地圏資源環境研究部門、2.明治大学 研究・知財戦略機構、3.海洋研究開発機構 地球情報基盤センター

1.Institute for Geo-Resources and Environment, Geological Survey of Japan, AIST, 2.Organization for the Strategic Coordination of Research and Intellectual Properties, Meiji University, 3.Center for Earth Information Science and Technology, JAMSTEC

表層型メタンハイドレートの資源量把握のための調査の一環として、日本海及び北海道周辺の表層型メタンハイドレートの賦存が期待される海盆域で、マルチビーム測深器 (MBES) 及び表層構造探査装置 (SBP) を用いた広域地形地質調査を実施した。調査は、隠岐西方から奥尻海盆までの日本海と日高沖、十勝沖、網走沖の計10海域で、2013年43日 (7K13航海)、2014年62日 (7K14航海)、2015年75日 (7K15航海) の3航海計180日実施された (松本ほか, 2014; 松本・佐藤, 2015)。使用船舶は調査船「第七開洋丸」 (海洋エンジニアリング (株) 所有, 499トン)、使用機器は同船搭載のEM302及びTOPAS PS18 (ともにKongsberg社製) である。地形調査は、経度2分 (約3km) 間隔の南北測線を基本とし適宜補測線を追加、船速6~7ノット、最大スワス角度は片舷75度、最大スワス幅は片舷1800mを基本として観測を行った。取得したデータは、データ処理ソフトウェア (Marine Discovery ver.4) でフィルター処理・ノイズ除去を行い、25mメッシュの水深グリッドデータ、等深線、後方散乱強度分布図を作成した。またSurfer 11を用いて25mメッシュデータから海底地形陰影図を作成した。これらのデータは表層型メタンハイドレートの資源量把握のための基礎データとして使用されたが、本発表では、この調査で得られたデータのうち海底地形データについて海底地形陰影図を示し、各海域について崩落崖、地滑りシート、海底谷などの海底地形の特徴を整理し、そこから読み取れる海盆埋積作用について推定を行う。

隠岐西方 (対馬海盆南東縁)、隠岐トラフ、隠岐北東方 (大和海盆南西端) では、陸側斜面部に見られる崩落崖とその下部に位置する海盆底の地滑りシートのセットが多く認められ、特に隠岐トラフ南西部ではトラフ底はほぼ全てが地滑りシートで埋め尽くされている。一部海域の斜面上部には、円弧滑りに伴う溝状地形が認められる。一方、隠岐トラフ北東部では、南東縁の斜面では崩落崖とスライドシートのセットが分布するが、その他のトラフ底の地形は平坦で、半遠洋性堆積物による埋積が示唆される。これらの海盆では顕著な海底谷が存在しない、陸側斜面上部で構造的隆起が認められる、泥質堆積物が卓越するという共通の特徴が見られる。富山トラフでは、中央部に富山深海長谷によるchannel-levee systemが発達し、その外側には平坦なトラフ底が広がっている。また海域南東部には、烏ヶ首海脚、海鷹海脚、上越海丘などの構造的高まりの雁行配列が認められる。最上トラフは、烏海礁 (とりみぐり) より南の南部と北の中部、男鹿半島西方の北部に分けられるが、中部から北部には最上深海長谷が南から北に断続的に続いている。また、烏海礁などの地形的高まりの雁行配列が認められ、これらはテクトニックインバージョンにより形成された背斜構造と考えられている (岡村ほか, 1996a,b)。富山トラフの上越沖や佐渡西方、最上トラフの陸側斜面では崩落崖とスライドシートのセットからなる海底地滑り地形が認められるが、両海域ともトラフ内で卓越しているわけではない。西津軽海盆及び奥尻海盆は、海盆南または北の海底谷と平坦な海盆底で特徴づけられ、海底面からの反射強度は他の海域と比べ強く、海底谷起源のタービダイトが卓越していることが示唆される。日高トラフでは、西側斜面 (下北~渡島東方) 及び北東側斜面 (日高沖) で崩落崖とスライドシートのセットからなる海底地滑り地形が認められ、トラフ底の埋積に重要な役割を果たしていると考えられる。網走沖では、海域西側の北見大和堆と東側の知床半島の間には北側の千島海盆の深海盆が南に向かって湾入したような形状をしており、海域西部には網走海底谷と斜里海底谷が南から北に流れ、海域東部には高まりが南北方向に伸びている。両海底谷の間には南北方向の細長い海脚状地形が複数認められる。

本研究は経済産業省メタンハイドレート開発促進事業の一環として実施されたものである。

文献:

岡村行信・森尻理恵・土屋信之・佐藤幹夫（1996a） 粟島周辺海底地質図，海洋地質図47，地質調査所。

岡村行信・森尻理恵・佐藤幹夫（1996b） 秋田西方海底地質図，海洋地質図48，地質調査所。

松本 良・弘松峰男・青木伸輔・柳本 裕・佐藤幹夫・中嶋 健（2014） 広域地形地質調査：ガスチムニーの広域マッピング，表層メタンハイドレート・フォーラム 表層メタンハイドレートの資源化を目指して，3-1。

松本 良・佐藤幹夫（2015） 広域調査7K14報告：ガスチムニー構造のタイプと分類について，表層メタンハイドレート・フォーラム2014 資源量評価・2年目の成果，02。

キーワード：海底地形図、海底地滑り、海底谷

Keywords: marine topographic map, submarine slide, submarine channel

## 日本海東縁に分布する海底下砂質堆積物薄層の堆積環境および初期続成作用

## Sedimentary Environment and Early Diagenesis of Thin Sandy Sediment Layers below Sea Floor in the Eastern Margin of Japan Sea

\*内田 隆<sup>1</sup>、坂井 啓貴<sup>1</sup>、堀内 瀬奈<sup>1</sup>、松本 良<sup>2</sup>

\*Takashi Uchida<sup>1</sup>, Hiroki Sakai<sup>1</sup>, Sena Horiuchi<sup>1</sup>, Ryo Matsumoto<sup>2</sup>

1.秋田大学大学院工学資源学研究科、2.明治大学研究知財戦略機構

1.Akita University Faculty of Engineering and Resource Science, 2.Meiji University

2010年に実施したマリオン航海（MD179）で採取した泥質堆積物について、初期続成作用を把握するために孔隙率と孔径分布を測定しそれらの深度変化を検討した。さらに、2014年の白嶺航海（HR14）および2015年のポセイドン航海（PS15）で採取されたコア試料についても、孔隙率と孔径分布を測定し同様の検討を行った。これらの堆積物は暗緑灰色～オリーブグレイの色を呈するシルト～粘土サイズ堆積物を主体とし、しばしば砂薄層およびラミナが夾在する。顕微鏡観察の結果、石英や長石などの碎屑粒子のほかに#3304（海鷹海脚中央）と#3299（海方海脚東方）のコア試料に有孔虫（大きさ0.2～0.4mm）が確認できた。また、いずれのコア試料でも珪藻およびその破片が多いことが確認できた。珪藻は、形が保持されたものもあったが、多くが破片状のものであった。#3299（海鷹海脚東方）、#3304（海鷹海脚中央）および#3317（上越海丘南方）のコア試料では、極細粒の砂質堆積物が確認できた。また、各サイトおよび深度の大きな変化はないが、珪藻やフランボイダル黄鉄鉱が特徴的に産している。孔隙率測定では、ほとんどのコア試料で孔隙率は深度が深くなるにつれて、やや減少あるいは大きな変化が見られないといった結果が多い中で、#3304とHR14、PS15の一部のコアなどにおいては深度につれて孔隙率がやや増加する傾向が認められた。これは、珪藻の形状と含有量の影響が大きいと思われる。また、夾在する砂薄層およびラミナについて、これらを構成する砂粒の種類と含有量を分析し、粗粒堆積物の堆積環境および供給源について検討中である。

本研究は、経済産業省メタンハイドレート開発促進事業の一環として実施されたものである。

## 日本海東縁のガスハイドレート胚胎海域における堆積速度の特徴

Characteristics of sedimentation rates around hydrate seep area in the eastern part of Japan Sea

\*大井 剛志<sup>1</sup>、秋葉 文雄<sup>2</sup>、松本 良<sup>1</sup>

\*Takeshi Oi<sup>1</sup>, Fumio Akiba<sup>2</sup>, Ryo Matsumoto<sup>1</sup>

1.明治大学 研究知財戦略機構、2.有限会社 珪藻ミニラボ

1.Organization for the Strategic Coordination of Research and Intellectual Properties, Meiji University, 2.Diatom Minilabo Akiba Company Limited

### 背景

日本海東縁に分布するメタンハイドレート胚胎海域上で採取されたコア堆積物では、ハイドレートやカーボネイトなどが含まれることで堆積層序比較に有効なTL層が認定しづらく、堆積年代の予測が難しい。大井ほか(2015MS)により、飛島西方海域最上トラフでのハイドレートを介在するコアとリファレンスコアに認められる明瞭な堆積年代の違いがハイドレートの成長による周辺の堆積物を押し広げたことにあると予察した。

### 研究目的

本研究では、2015年8月～10月にかけて実施された掘削航海において、上越市沖海鷹海脚および隠岐トラフに分布するメタンハイドレート胚胎海域で集中掘削された長さ数十mの堆積物コアの年代層序を、①放射性炭素年代、②珪藻化石による推定年代によるイベント年代の2つの指標から明らかにした。さらに、昨年度の最上トラフで採取された約60mの長尺コア(大井ほか, 2015)と堆積速度の変遷について比較検討する。

### 手法

放射性炭素同位体(<sup>14</sup>C)年代測定には、船上でサンプリングした貝殻片や植物片および泥質堆積物から抽出した浮遊性有孔虫殻10mg分(約1000個体)を使用した。各試料の測定では、塩酸や超純水で汚染部を除去後、(株)加速器分析研究所所有の<sup>14</sup>C-AMS専用装置(NEC社製)でシュウ酸(HOx II)を標準試料とし、 $\delta^{13}\text{C}$ 補正と年代校正を行った(Reimer et al. 2013; Bronk Ramsey 2009)。珪藻化石分析には、海底コア中の泥質試料と塊状～層状のハイドレートに含まれる泥質部を用いた未処理散布スライド(秋葉ほか, 1982)を使用した。化石帯の認定は、北太平洋地域で広域に適用される標準層序区分のYanagisawa and Akiba (1989)と日本海の上第四系層序区分の秋葉ほか(2014)に従った。

### 考察

2015年度掘削調査で採取した試料より30個の<sup>14</sup>C年代測定が実施され、コア上位の堆積速度を推定した。その結果、上越沖海鷹海脚(28-47cm/kyr)では隠岐トラフ(11-19cm/kyr)や先行研究の最上トラフ飛島西方海域(約20cm/kyr; 大井ほか, 2015)に比べて、過去50kaで平均して2~3倍の堆積速度を有することが判明した。これらの違いは陸からの距離の差に関係していると推測される。珪藻化石の*Proboscia curvirostris*の絶滅層準が示す標準的な層序区分面(30万年前)を各コアで追跡した結果、隠岐からは複数のコアの20-25mbsfに認められたのに対し、堆積速度の速い海鷹海脚からは約88mbsfだった。最上トラフでは約42mbsfであったため堆積速度の遅い隠岐トラフと速い海鷹海脚という特徴が顕著に表れている。本発表では、メタンハイドレートを含むその他のコアについての年代層序についても議論する。なお、本調査研究は経済産業省のメタンハイドレート資源開発促進事業の一環として実施されたものである。

### 引用文献

秋葉ほか, 2014. 石油技術協会誌. 79,130-139. 秋葉ほか, 1982. 地調月報, 33, 215-239. Bronk Ramsey C. 2009. Radiocarbon 51(1),337-360. 大井ほか, 2015. 堆積学会, つくば大会. Reimer P.J. et al. 2013. Radiocarbon 55(4):1869-1887. Yanagisawa, Y. and Akiba, F., 1998. Jour. Geol. Soc. Japan, 104, 395-414.

キーワード: メタンハイドレート、堆積年代、微化石

Keywords: methane hydrate, sediment age, microfossils



## Ecology and stable isotope composition of benthic foraminifera associated with cold seeps on the Hidaka Trough, northwestern Pacific

\*Mahsa Saeidi Ortakand<sup>1</sup>, Ryo Matsumoto<sup>1</sup>

1.Meiji Univ.

Benthic foraminifera at cold seeps on the Hidaka Trough, northwestern Pacific were studied to investigate the effects of methane on the geochemistry and faunal characteristics of benthic foraminifera assemblages and to discuss potential applications of foraminifera for reconstruction of methane release in the past and present. Sediment cores for this research were collected from eight chimney sites and one reference site with gravity corer in July 2015. Calcareous forms dominate benthic assemblages, accounting for 90 percent or more of the benthic populations for most samples. Results from Rose Bengal staining method indicate that certain species inhabit seep sites in the study area. *Rutherfordoides cornuta*, which is related to high methane gas content of the sediments and reported as methanophilic taxa from methane seepages at Sagami Bay (Akimoto et al., 1994; Kitazato, 1996), found alive (cytoplasm containing specimens) within surface sediments at four chimney sites in our study area including cores at the center of chimney. Other calcareous foraminiferal assemblages associated with chimney sites were typically infaunal species including *Brizalina pacifica*, *Bolivina spissa*, *Chilostomellina fimbriata*, *Globobulimina auriculata*, *Nonionella globosa*, *Nonionella stella*, *Stainforthia fusiformis*, and *Uvigerina akitaensis*, which can inhabit below water-interface and are also abundant in organic-rich oxygen-depleted environments. Geochemical analyses of living (stained) benthic foraminifera in our research sites doesn't show highly negative  $\delta^{13}\text{C}$  values comparable to those fossil (unstained) benthic foraminifera that are reported from seep sites such as the Gulf of Mexico (Sen Gupta and Aharon, 1994) or Monterey Bay (Martin et al., 1999); however differences in  $\delta^{13}\text{C}$  values for living benthic foraminifera of a given species were observed within a single core or between cores at chimney sites, which are unusual. For instance chimney site cores contain live specimens of *B. spissa* with  $\delta^{13}\text{C}$  values ranging from -0.43‰ to -1.07‰, -0.71‰ to -1.97‰, and -0.37‰ to -0.94‰, respectively. In contrast, at reference core the  $\delta^{13}\text{C}$  composition of *B. spissa* varies little and remains approximately constant around -0.70‰ over the length of the core. Variable carbon isotope values are also evident in other species such as *U. akitaensis*. These results suggest that  $\delta^{13}\text{C}$  values of foraminifera tests are influenced by methane seepage and different pore-water chemistry. Therefore, variations in isotopic composition can suggest temporal variations in seep activities and the differences in carbon isotope values will be expect to increase with the activity of the seeps. A good comprehending on ecology and stable isotope composition of modern benthic foraminifera at cold seeps may help identify paleo-seeps and will enhance our knowledge of climatic and oceanographic changes. This study was conducted as a part of the shallow methane hydrate exploration project of METI.

Keywords: Benthic foraminifera, Cold seeps, Hidaka Trough, Methanophilic taxa, Northwestern Pacific, Stable isotopes

表層型メタンハイドレートに伴う炭酸塩コンクリーションの組成と生成年代  
Isotopic composition and U-Th age of methane derived authigenic carbonates

\*松本 良<sup>1</sup>、蛭田 明宏<sup>1</sup>、柿崎 喜宏<sup>1</sup>

\*Ryo Matsumoto<sup>1</sup>, Akihiro Hiruta<sup>1</sup>, Yoshihiro Kakizaki<sup>1</sup>

1. 明治大学研究知財戦略機構

1. Organization for the Strategic Laboratory of Research and Intellectual Properties, Meiji University

表層型メタンハイドレートが炭酸塩コンクリーションを伴うことは良く知られている。これは表層付近においてメタンが海水中の硫酸によって酸化されアルカリ度を上昇させるAOM反応によるものであり、海底下数m~10数mのSMT深度付近で活発に反応すると考えられている。日本海東縁の表層型メタンハイドレート分布域のコンクリーションの大きさは数mm未満から数10cm、時に数m以上のものも珍しくない。高Mgカルサイト、アラゴナイトあるいはそれらの混合物からなる事が多い。酸素同位体組成の特徴から高Mgカルサイトは酸素同位体比が海水よりやや軽い間隙水から、アラゴナイトはやや重い間隙水から生成したと推定されるが、生成温度が明らかでないので間隙水の進化については更なる検討を要する。炭酸塩の出現頻度は海底付近でのAOM強度つまりメタンフラックス強度を反映しており、炭酸塩コンクリーションの出現頻度から過去のメタンフラックスの強度変動を復元する事が出来る。本研究では炭酸塩鉱物中のU-Th放射非平衡年代法で炭酸塩生成年代を決定することとした。日本海における先行研究(渡辺・中井、2006; 山王ほか、2008MS; 鈴木ほか、2010MS)により、海底付近で採取されたコンクリーションの年代は2万年付近に集中することが分かっており最終氷期の海水準低下との関係が議論されている。本研究では、コアリング掘削で得られた浅部から深部までの炭酸塩コンクリーションの生成年代を決める事により、日本海の表層型メタンハイドレート形成に関わる時間制約を得ることが期待される。なお、本研究は、経済産業省メタンハイドレート開発促進事業の一環として実施されたものである。発表許可に対して謝意を表したい。

Y. Watanabe, S. Nakai, R. Matsumoto, A. Hiruta, K. Yoshida, U-Th dating of carbonate nodules from methane seeps off Joetsu, Eastern Margin of Japan Sea, Earth and Planetary Science Letters, vol. 272, pp. 89-96. 2008.

山王梨紗., 2008MS. 修士論文, 東京大学地球惑星科学専攻

鈴木麻希., 2008MS. 修士論文, 東京大学地球惑星科学専攻

キーワード: メタン誘導自生炭酸塩、表層型メタンハイドレート、U-Th 放射非平衡年代

Keywords: MDAC methane derived authigenic carbonates, shallow gas hydrates, U-Th isotopic disequilibrium



上越沖・海鷹海脚から産出した炭酸塩ノジュールの炭素・酸素・ストロンチウムの同位体組成  
Isotopic compositions of Carbon, Oxygen, and Strontium in authigenic carbonates from  
Umitaka Spur, off-Joetsu, southeast of Japan Sea

\*柿崎 喜宏<sup>1</sup>、石川 剛志<sup>2</sup>、川合 達也<sup>3</sup>、蛭田 明宏<sup>1</sup>、松本 良<sup>1</sup>

\*Yoshihiro Kakizaki<sup>1</sup>, Tsuyoshi Ishikawa<sup>2</sup>, Tatsuya Kawai<sup>3</sup>, Akihiro Hiruta<sup>1</sup>, Ryo Matsumoto<sup>1</sup>

1. 明治大学 研究知財戦略機構 ガスハイドレート研究所、2. 海洋研究開発機構 高知コア研究所、3. マリン・ワーク・ジャパン 海洋地球科学部

1. Gas Hydrate Research Laboratory, Organization for Strategic Coordination, Meiji University,  
2. Kochi Institute for Core Sample Research, JAMSTEC, 3. Department of Marine & Earth Sciences,  
Marine Works Japan Ltd.

日本海のカスハイドレート胚胎域の堆積物からは、メタンの嫌氣的酸化によって形成された炭酸塩ノジュールが産出する。本発表では、上越沖の海鷹海脚から採取された炭酸塩ノジュールの炭素・酸素の同位体比、およびストロンチウム(Sr)の同位体比について報告する。

海鷹海脚の炭酸塩ノジュールの炭素同位体比は上越海丘、飛島西方沖の値よりも高く、その値域は熱分解由来のメタンの炭素同位体比の値域(Bernard et al., 1978)に相当する。一方、海鷹海脚の炭酸塩ノジュールの酸素同位体比は上越海丘、飛島西方沖の値とほぼ一致しており、大きな差は見られない。

炭酸塩ノジュールのSr同位体比は浅部では現在の上越沖の表層海水と同じ値を示し、深部のSr同位体比ほど低い傾向にある。その傾向は第四紀の汎世界的な海水中のSr同位体比の変動傾向(Farrell et al., 1996)とほぼ一致する。このことから、炭酸塩ノジュールのSr同位体比は形成当時の海水のSr同位体比を反映していると判断される。一方、間隙水のSr同位体比は炭酸塩ノジュールに比べて一律に低い値を示しており、このことは間隙水が続成作用によって軽いSrを取り込んでいる可能性を示唆する。

謝辞：本研究は経済産業省メタンハイドレート開発促進事業の一環として実施されたものである。ストロンチウム同位体比の分析はJAMSTECの外来研究員制度を利用して、高知コアセンターにて実施された。ここに記して感謝する。

キーワード：炭酸塩ノジュール、表層型ガスハイドレート、日本海

Keywords: authigenic carbonates, shallow gas hydrate, Japan Sea

## 北海道日高沖における間隙水、溶存ガス、堆積物の地球化学特性

Geochemistry of pore water, dissolved gas, and sediment from offshore Hidaka area, Hokkaido

\*中島 亮佑<sup>1</sup>、戸丸 仁<sup>1</sup>、松本 良<sup>2</sup>、本多 祐樹<sup>1</sup>

\*Ryousuke Nakajima<sup>1</sup>, Hitoshi Tomaru<sup>1</sup>, Ryo Matsumoto<sup>2</sup>, Yuki Honda<sup>1</sup>

1. 千葉大学大学院理学研究科、2. 明治大学研究知財戦略機構

1.Chiba University, 2.Meiji University

北海道日高沖では海底面近傍に上越沖と同様にガスチムニーや後方散乱の強反射が確認されており、海底への卓越したメタン供給量によって特徴づけられる地形が発達している。本研究では7K14および7K15航海で日高沖の海域でガスチムニー周辺のほか海盆斜面部からグラビティコアラで採取した堆積物および堆積物中の間隙水と溶存ガス濃度を測定し、主にメタンを中心とする反応に着目し、海底面近傍での海底環境とガスハイドレートの形成可能性について検証した。回収した堆積物にはガスハイドレートは含まれていなかったが、硫酸イオン濃度は嫌氣的メタン酸化により浅部で急激に濃度が低下していると同時に、メタン濃度も高く、それらの濃度勾配から見積もられるメタン供給量は海鷹海脚や上越海丘の頂部に匹敵することが明らかになった。また、ガス湧出が見られる海底では炭酸塩が生成しやすいが、日高沖の堆積物の多くからはほとんど検出されず、海域によって表層堆積物中の化学的な環境が大きく異なっていることが示唆された。

本研究は経済産業省メタンハイドレート開発促進事業の一環として実施されたものである。

## 最上トラフ海底に発達するガスチムニー中の間隙水溶存ガスの地球化学的特徴

## Geochemistry of dissolved gas around gas chimney structures in the Mogami Trough, Japan

\*亀田 凌平<sup>1</sup>、廣瀬 奈津美<sup>1</sup>、戸丸 仁<sup>1</sup>、松本 良<sup>2</sup>

\*Ryohei Kameda<sup>1</sup>, Hirose Natsumi<sup>1</sup>, Hitoshi Tomaru<sup>1</sup>, Ryo Matsumoto<sup>2</sup>

1.千葉大学大学院理学研究科、2.明治大学研究知財戦略機構

1.Faculty of Science, Chiba University, 2.Organization for the Strategic Laboratory of Research and Intellectual Properties, Meiji University

最上トラフの海底に発達するマウンドやポックマーク、表層型ガスハイドレートを伴うガスチムニー上とその周辺部で採取した海底堆積物中の溶存ガス濃度や炭素安定同位体比を測定し、その組成がガスチムニーからの水平距離に応じてどのように変化するか、ガスチムニーの構造をガスの地球化学的特徴から考察した。

メタン・エタン濃度、メタン/エタン比、メタンの炭素同位体比にはガスチムニーからの水平距離に応じて変化しており、ガスチムニー中心部に近づくほど浅部でメタン・エタン濃度は高くなり、メタン/エタン比は大きくなった。これはガスチムニーに近いほど深部からのガス（エタン）の供給量が多くなると同時に、硫酸還元帯が浅化し、浅部でのメタン生成菌による微生物起源ガス（メタン）の相対的な寄与が大きくなったためである。炭素同位体比はガスチムニー中心部ほど大きくなることから、ガスチムニーを中心に熱分解起源ガスが供給されていることが明らかになった。また、マウンドを伴うガスチムニーではポックマークを伴うガスチムニーに比べて浅部でメタン濃度が高く、ガスチムニー活動の強度が地形にも反映されうることを示唆する。

## 最上トラフにおけるガスチムニーの分布と堆積物間隙水の地球化学

## Geochemistry of pore waters around gas chimney structures in the Mogami Trough, Japan

\*廣瀬 奈津美<sup>1</sup>、亀田 凌平<sup>1</sup>、戸丸 仁<sup>1</sup>、松本 良<sup>2</sup>

\*Natsumi Hirose<sup>1</sup>, Ryohei Kameda<sup>1</sup>, Hitoshi Tomaru<sup>1</sup>, Ryo Matsumoto<sup>2</sup>

1.千葉大学大学院理学研究科、2.明治大学研究知財戦略機構

1.Department of Science, Chiba University, 2.Organization for the Strategic Laboratory of Research and Intellectual Properties, Meiji University

日本海東縁に分布する表層型ガスハイドレートはガスチムニー構造を伴って発達することが多く、ガスハイドレートの探査だけでなく、ガスハイドレートの分布や賦存状態を解明するためにも、ガスチムニー内部のガスや間隙水の化学的な構造を解明することは重要である。本研究では、最上トラフにおけるガスチムニー直上とその周囲の堆積物間隙水の化学分析を行い、ガスチムニー内の間隙水の地球化学的特徴をあきらかにするとともに、その特徴がガスチムニーの周辺でどのように変化していくのかを、ガスチムニーからの距離と化学成分の比較を行い定量的に明らかにすることを目的とした。ガスチムニーからの距離とアルカリ度の濃度勾配およびSMI深度の変化には強い相関が見られ、ガスチムニー直上または内側から遠ざかるほどに減少した。また、ガスに富む流体の影響がおよぶ範囲はガスチムニーの規模によって異なり、同じ最上トラフ内でもガスチムニーの活動度が海域によって異なることが明らかになった。

キーワード：ガスハイドレート、ガスチムニー

Keywords: Gas Hydrate, Gas chimney

## 対馬海盆東縁および隠岐トラフにおける海水・間隙水の地球化学

Geochemistry of seawater and interstitial water from Tsushima Basin and Oki Trough, Japan

\*本多 祐樹<sup>1</sup>、戸丸 仁<sup>1</sup>、尾張 聡子<sup>1</sup>、松本 良<sup>2</sup>\*Yuki Honda<sup>1</sup>, Hitoshi Tomaru<sup>1</sup>, Satoko Owari<sup>1</sup>, Ryo Matsumoto<sup>2</sup>

1.千葉大学大学院理学研究科、2.明治大学研究知財戦略機構

1.Chiba University, 2.Meiji University

The characteristic seafloor topography associated with gas hydrates in shallow sediments was reported in the seafloor of the SE margin of Tsushima Basin and Oki Trough, Japan. Interstitial water and seawater collected from these areas during the UT14 cruise were analyzed for characterizing the fluid geochemistry responsible for methane migration toward the seafloor and formation of hydrates. In the eastern margin of Tsushima Basin, high concentrations of sulfate and alkalinity in interstitial water reflect very shallow SMI depths (~1.7mbsf), strong methane fluxes, and methane generation due to the decomposition of organic matters in shallow sediments. The low concentrations of silicate dissolved in seawater indicate that the buried old organic matters are responsible for the formation and distribution of gas hydrates near the seafloor.

## 日本海海鷹海脚ガスハイドレート胚胎域における間隙水の時系列変動解析

Time-series analysis of pore water from shallow gas hydrate area on the Umitaka Spur,  
Japan Sea

\*尾張 聡子<sup>1</sup>、戸丸 仁<sup>1</sup>、松本 良<sup>2</sup>

\*Satoko Owari<sup>1</sup>, Hitoshi Tomaru<sup>1</sup>, Ryo Matsumoto<sup>2</sup>

1.千葉大学大学院 理学研究科、2.明治大学 ガスハイドレート研究所明治大学研究知財戦略機構

1.Chiba University, 2.Organization for the Strategic Laboratory of Research and Intellectual  
Properties, Meiji University

Active gas venting (seepage) from the seafloor and outcropping of massive gas hydrate have been observed on the Umitaka Spur in the eastern margin of the Japan Sea. Submersible observation revealed that the strength and location of gas venting had changed within a few days, geochemical environment near gas venting including gas hydrate might have also changed within a short period compared to geological time scale. We have deployed a long-term osmotic fluid sampler (OsmoSampler) near the gas venting site on the Umitaka Spur from September 2013 to March 2014 (160 days, NT13-E02 and NT14-E03 cruises) and collected pore waters continuously to examine the potential changes of pore water geochemistry and the impacts on the near-surface environments.

Concentrations of dissolved ions change shortly, for 3-5 days, through the entire sampling period, which are controlled by the input of saline water from gas hydrate formation and of fresh water from gas hydrate dissociation. Gas venting was observed 10 m away from OsmoSampler, however, concentrations of methane dissolved in pore water were low during the first 20 days and occasional high methane concentrations were observed only from the 20th to 40th day. Rapid gas hydrate formation caused by high gas flux might plug the path delivering gas-rich fluids to the seafloor, contrary, the reduced gas flux (venting) caused the dissociation of gas hydrate. After the 70th day on, methane concentration was constant at low level, <1 mM, indicating that the location of gas venting had been moved due to the gas hydrate plugging. Significant concentrations of ethane during that period also indicate the gas hydrate plugging and subsequent change of major gas source from biogenic-rich to thermogenic-rich. Geochemistry of pore water has changed dynamically and shortly in response to the change of gas venting activity.

This study was conducted as a part of the shallow methane hydrate exploration project of METI.

キーワード：時系列解析、間隙水、表層型ガスハイドレート、ガス湧出

Keywords: Time-series analysis, pore water, Shallow gas hydrate, gas venting

## 日本海の表層型メタンハイドレート胚胎域における海水の溶存メタン濃度分布

## Distribution of methane in seawater from shallow gas hydrate areas in the Japan Sea

\*近田 みのり<sup>1</sup>、戸丸 仁<sup>1</sup>、松本 良<sup>2</sup>

\*Minori Chikada<sup>1</sup>, Hitoshi Tomaru<sup>1</sup>, Ryo Matsumoto<sup>2</sup>

1.千葉大学理学研究科、2.明治大学研究知財戦略機構

1.Faculty of Science, Chiba University, 2.Organization for the Strategic Laboratory of Research and Intellectual Properties, Meiji University

We have analyzed the concentrations of methane dissolved in the bottom seawaters collected from shallow gas hydrate occurrences including active gas venting and the associated distribution of carbonates/bacterial mats during the NT15-E03 expedition in the Japan Sea. Methane concentrations are close to the normal bottom water level over the mud seafloor, however, they increase typically near the gas venting, carbonate, and bacterial mat sites; gas venting had only been active during the formation of carbonates and bacterial mats. Contrary, the number of benthos does not correlate with the concentration of dissolved methane, it probably reflects the location and seafloor condition, not the present concentration of methane. The concentration of methane rapidly decreases with shallowing depth due to the oxidation and diffusion of methane ejected from the seafloor in water column, reaching normal seawater level at the intermediate depth. Environmental impacts of the gas venting, possibly gas explosion on the seafloor, are very limited near the seafloor. This study was conducted as a part of the shallow methane hydrate exploration project of METI.

## オホーツク海網走沖の天然ガスハイドレートの特徴

Characteristics of natural gas hydrate retrieved off Abashiri, the Sea of Okhotsk

\*八久保 晶弘<sup>1</sup>、竹谷 敏<sup>2</sup>、小西 正朗<sup>1</sup>、坂上 寛敏<sup>1</sup>、山崎 新太郎<sup>1</sup>、南 尚嗣<sup>1</sup>、山下 聡<sup>1</sup>、高橋 信夫<sup>1</sup>、庄子 仁<sup>1</sup>\*Akihiro Hachikubo<sup>1</sup>, Satoshi Takeya<sup>2</sup>, Masaaki Konishi<sup>1</sup>, Hirotohi Sakagami<sup>1</sup>, Shintaro Yamasaki<sup>1</sup>, Hirotsugu Minami<sup>1</sup>, Satoshi Yamashita<sup>1</sup>, Nobuo Takahashi<sup>1</sup>, Hitoshi Shoji<sup>1</sup>

1.北見工業大学、2.産業技術総合研究所

1.Kitami Institute of Technology, 2.National Institute of Advanced Industrial Science and Technology (AIST)

In the area of southwestern margin of the Sea of Okhotsk, an existence of natural gas hydrate has been expected using seismic data. Yamamoto et al. (2002) suggested existence of natural gas hydrate off Shiretoko, the Sea of Okhotsk, by a long piston coring. Recovery of sediment core for gas hydrate started in the cruise of TK11 in 2011 in the framework of joint research between Kitami Institute of Technology and University of Tokyo, and obtained gas-rich sediment cores off Abshiri. Gas hydrate crystals were first retrieved in the cruise of UT12 (T/S Umitaka-Maru) in 2012. New hydrate-bearing sites were also discovered in the cruise of NT13-20 (R/V Natsushima in 2013). We planned operations using T/S Oshoro-Maru, and obtained sediment cores and gas hydrates at this area in the cruise of OS249 (2012), OS263 (2013), and C020 (2015).

Gas hydrate crystals were obtained and stored in liquid nitrogen for Raman spectroscopic analysis and calorimetry. Samples of hydrate-bound gas were obtained onboard and stored in 5-mL vials, and sediment gas were also obtained using a headspace gas method. We measured molecular and stable isotope compositions of these samples. We summarized the results as follows:

- 1) Gas hydrates belong to the cubic structure I, containing methane (more than 99%) and hydrogen sulfide (less than 1%). C1/C2+ ranges from 5,500 to 5,800.
- 2) Hydration number is estimated as  $6.03 \pm 0.04$ , agrees well with  $6.04 \pm 0.03$  for synthetic methane hydrate (Sum et al., 1997).
- 3) Dissociation heat from hydrate to gas and water is estimated as  $55.1 \pm 0.3$  [kJ/mol], agrees well with  $54.19 \pm 0.28$  [kJ/mol] for synthetic methane hydrate (Handa, 1986).
- 4) Hydrate-bound gas is of microbial origin according to C1/C2+ and stable isotopes of hydrocarbons, however,  $\delta^{13}\text{C}$  of ethane seems relatively large.
- 5) Gas hydrate in the NT13-20 PC06 core contains trace amount of ethane (several ppm), whereas that in the NT13-20 PC02 core contains about 100ppm of ethane.
- 6) SMI (sulfate-methane interface) depth of the sediment cores are less than 1m, indicating high methane flux off Abashiri.

We appreciate the support of the crew onboard R/V Natsushima during the NT13-20 cruise, and T/S Oshoro-Maru during the cruises of OS249, OS263, and C020. This study was supported by the Grant-in-Aid for Scientific Research (B) 25289142 and 26303021 of the Japan Society for the Promotion of Science (JSPS).

Handa (1986) Compositions, enthalpies of dissociation, and heat capacities in the range 85 to 270 K for clathrate hydrate of methane, ethane, and propane, and enthalpy of dissociation of isobutane hydrate, as determined by a heat-flow calorimeter. J Chem Thermodyn 18: 915-921.

Sum et al. (1997) Measurement of clathrate hydrates via Raman spectroscopy. J Phys Chem B 101: 7371-7377.



キーワード：ハイドレート、オホーツク海、安定同位体

Keywords: hydrate, the Sea of Okhotsk, stable isotope

## 結晶構造II型のメタン・エタン混合ガスハイドレート生成時におけるエタン安定同位体分別

Isotopic fractionation of ethane at the formation of sII gas hydrate composed of methane and ethane

\*太田 有香<sup>1</sup>、八久保 晶弘<sup>1</sup>、竹谷 敏<sup>2</sup>

\*Yuka Oota<sup>1</sup>, Akihiro Hachikubo<sup>1</sup>, Satoshi Takeya<sup>2</sup>

1.北見工業大学環境・エネルギー研究推進センター、2.産業技術総合研究所

1.Environmental and Energy Resources Research Center, Kitami Institute of Technology, 2.National Institute of Advanced Industrial Science and Technology (AIST)

Methane and ethane mixed-gas hydrate of the cubic structure II exists at the central and southern Baikal Basin. We found "double structure gas hydrate" composed of the structure I and II in a same sediment core. The structure II gas hydrate contained 13-15% of ethane, on the contrary, the structure I has only several % of ethane. Subramanian et al. (2000a; 2000b) reported that a structure II forms in appropriate gas composition of methane and ethane. Hachikubo et al. (2009) showed that  $\delta D$  of hydrate-bound ethane in the structure II is smaller than that in the structure I, whereas  $\delta^{13}C$  of methane and ethane, and  $\delta D$  of methane are the same between the structure I and II. It has been unknown how the structure II concentrates light ethane in  $\delta D$  (hydrogen isotope).

In this study, synthetic mixed-gas (methane and ethane) hydrates were formed and checked isotopic fractionation between phases of hydrate and residual gas. We made a hydrate sample from methane and ethane mixed-gas (85% C1; 15% C2) in a pressure chamber (volume: 120 mL). Before the retrieval of gas hydrate sample, residual gas was also sampled. We measured isotopic compositions ( $^{13}C$  and D) of methane and ethane using CF-IRMS. Crystallographic structure of gas hydrate was determined using a Raman spectrometer.

The Raman spectra of C-C stretching mode of ethane in hydrate phase indicated that the sample belonged to structure II.  $\delta D$  of hydrate-bound ethane was several permil smaller than that of residual ethane, similar to the behavior of methane  $\delta D$  in the structure I. Although the mechanism of ethane fractionation at the formation process of the structure II is not fully understood, the results agree with the observation at the Kukuy K-2 mud volcano reported by Hachikubo et al. (2009).

Hachikubo et al. (2009) Model of formation of double structure gas hydrates in Lake Baikal based on isotopic data. *Geophys Res Lett* 36: L18504. doi:10.1029/2009GL039805

Subramanian et al. (2000a) Evidence of structure II hydrate formation from methane + ethane mixtures. *Chem Eng Sci* 55: 1981-1999. doi:10.1016/S0009-2509(99)00389-9

Subramanian et al. (2000b) Structural transitions in methane + ethane gas hydrates - part I: upper transition point and applications.

*Chem Eng Sci* 55: 5763-5771. doi:10.1016/S0009-2509(00)00162-7

キーワード：ガスハイドレート、安定同位体、エタン、バイカル湖

Keywords: gas hydrate, stable isotope, ethane, Lake Baikal

## バイカル湖天然ガスハイドレートの水和数の圧力依存性

## Effect of water depth on hydration number of natural gas hydrate in Lake Baikal

\*太田 有香<sup>1</sup>、八久保 晶弘<sup>1</sup>、Khlystov Oleg<sup>2</sup>、Kalmychkov Gennadiy<sup>3</sup>、De Batist Marc<sup>4</sup>、坂上 寛敏<sup>1</sup>、南 尚嗣<sup>1</sup>、山下 聡<sup>1</sup>、高橋 信夫<sup>1</sup>、庄子 仁<sup>1</sup>

\*Yuka Oota<sup>1</sup>, Akihiro Hachikubo<sup>1</sup>, Oleg Khlystov<sup>2</sup>, Gennadiy Kalmychkov<sup>3</sup>, Marc De Batist<sup>4</sup>, Hirotohi Sakagami<sup>1</sup>, Hirotsugu Minami<sup>1</sup>, Satoshi Yamashita<sup>1</sup>, Nobuo Takahashi<sup>1</sup>, Hitoshi Shoji<sup>1</sup>

1.北見工業大学、2.ロシア科学アカデミー陸水学研究所、3.ロシア科学アカデミー地球化学研究所、4.ゲント大学

1.Kitami Institute of Technology, 2.Limnological Institute, SB RAS, 3.Vinogradov Institute of Geochemistry, SB RAS, 4.Ghent University

Natural gas hydrates exist under the deep sea/lake or permafrost are considered to be a potential natural gas resource. Hydration number "n" of methane hydrate ( $\text{CH}_4 \cdot n\text{H}_2\text{O}$ ) decides the amount of methane in an unit volume/weight of crystal. In the case of ideal full-occupation of hydrate cages, the value of hydration number is 5.75 (Sloan and Koh, 2008). However, researchers have reported that the hydration number is around 6, because small amount of empty cages decrease the free energy and stabilize the crystal. Natural gas hydrates have been retrieved from lake-bottom sediment at Lake Baikal, where the water depths ranged from 450m to 1400m, and their main gas component is methane. Hydration number may change under various pressure condition, but it has not been examined yet. In this study, we report the pressure effect on hydration number of synthetic methane hydrate and natural gas hydrate of Lake Baikal.

Methane hydrate was synthesized under the pressure range between 3 MPa to 20 MPa. Natural hydrate samples were retrieved at the southern Baikal basin (Malenky, Bolshoy, Peschanka P-2, and Goloustnoye G-1) and central Baikal basin (Kukuy K-1, K-2, K-8, K-9, K-10, and Novosibirsk). Raman spectroscopic measurements were made to assess the hydration numbers of samples. Raman spectra were obtained at 123 K in the range 2,800-3,000  $\text{cm}^{-1}$  for the C-H stretching peaks of methane, and fitted using a Voigt function to obtain the integrated intensities of the two peaks corresponding to methane engaged in large and small cages of the cubic structure I. The cage occupancies and the hydration numbers were estimated from these peak intensities using a statistical thermodynamic model (Sum et al., 1997). Hydration number of synthetic methane hydrate decreased with pressure, from 6.05 (2.7 MPa) to 5.97 (20.9 MPa), and those of natural gas hydrate also decreased slightly with water depth.

We are grateful to the support of the crew onboard R/V Vereshchagin during the cruises in Lake Baikal (MHP project). This work was supported by funding agencies in Japan (Grant-in-Aid for Scientific Research 24404026 and 26303021 from the Japan Society for the Promotion of Science). Sloan and Koh (2008) Clathrate Hydrates of Natural Gases, 3rd ed., CRC Press: Boca Raton, FL, USA Sum et al. (1997) Measurement of clathrate hydrates via Raman spectroscopy. J Phys Chem B 101: 7371-7377.

キーワード：ハイドレート、水和数、バイカル湖、ラマン分光分析

Keywords: hydrate, hydration number, Lake Baikal, Raman spectroscopic analysis

## 部位試料の酸素同位体比を用いた堆積物中のガスハイドレート体積比の評価

Volume proportion of gas hydrate evaluated from oxygen isotope of water in locus sub-samples

\*宮原 玲奈<sup>1</sup>、森 大器<sup>1</sup>、狩野 彰宏<sup>1</sup>、尾張 聡子<sup>2</sup>、戸丸 仁<sup>2</sup>、柿崎 喜宏<sup>3</sup>、角和 善隆<sup>3</sup>、松本 良<sup>3</sup>

\*Miyahara Reina<sup>1</sup>, Taiki Mori<sup>1</sup>, Akihiro Kano<sup>1</sup>, Satoko Owari<sup>2</sup>, Hitoshi Tomaru<sup>2</sup>, Yoshihiro Kakizaki<sup>3</sup>, Yoshitaka Kakuwa<sup>3</sup>, Ryo Matsumoto<sup>3</sup>

1.九州大学大学院地球社会統合科学府、2.千葉大学、3.明治大学

1.Kyushu University Graduate School of Integrated Sciences for Global Society, 2.Chiba University, 3.Meiji University

日本近海に分布するガスハイドレートの資源量見積もりのために精力的な掘削調査が進められている。しかし、ハイドレートは低圧な船上に引き上げられると急速に分解するため、元々の資源量を見積もるのは容易ではない。そこで、コア内に見られる泥質堆積物とハイドレートの局所部位をサンプリングし、各々の酸素同位体比を測定する方法を考案した。これに加え、バルク間隙水の値と、堆積物の間隙率が得られれば、ガスハイドレートの体積比が計算出来る。

本研究は経済産業省メタンハイドレート開発促進事業の一環として実施されたものである。試料は、2015年8月～10月の期間に調査船Poseidonでの掘削航海により、隠岐沖および上越沖から回収したハイドレートと泥の混在堆積物である。船上では、なるべく速やかに泥とハイドレートの局所サンプルを各セクションから5個程度採集し、4.5 mLのガラスバイアルに入れて封入する。サンプルは冷暗所で保管し、持ち帰った後、バイアル内の大気をヘリウムで置換し、23°Cの条件で2日以上放置する。この間、泥堆積物中の間隙水から、二酸化炭素が放出し、水との間で同位体平衡が達成される。なお、ハイドレートが入ったバイアルには適量のCO<sub>2</sub>を加える。同位体測定はHeコンフローでCO<sub>2</sub>をGas Bench IIで分離し、Finnigan Delta Plusで行った (2SD = 0.15‰)。検討した29のセクションの結果は以下の通りである。

各セクションから採集したサブサンプル間の値のばらつきは、泥堆積物の方がハイドレートよりも大きい。これはハイドレート由来の水の滲み込みを避けることが困難なためである。コンタミが疑われるサブサンプルの結果を削除すると、泥堆積物中の間隙水の酸素同位体比は同じ層準で採集されたハイドレートの酸素同位体比よりも例外無く高かった。これはハイドレート形成時におこる同位体分別効果によるものである。ただし、2つの値の差は層準により異なり、1～4%の幅を持っており、ハイドレートの含有率の増加とともに減少する傾向が現れた。最終的には、部位毎のサブサンプル（泥堆積物、ハイドレート、バルク間隙水）の酸素同位体比の値から、28のコアセクションからハイドレートの体積比が計算された。値は概ね堆積物の産状と整合的であった。

キーワード：酸素同位体、ガスハイドレート

Keywords: Oxygen isotope, Gas hydrate

## 海底表層堆積物におけるメタン生成古細菌の分離とメタン関連微生物の群集構造

Isolation of methanogenic archaea and distribution of methanogenic and methanotrophic archaea in subseafloor sediment

\*今城 匠<sup>1</sup>、橋口 純平<sup>1</sup>、小林 武志<sup>1</sup>、今田 千秋<sup>1</sup>、寺原 猛<sup>1</sup>、松本 良<sup>2</sup>

\*Takumi Imajo<sup>1</sup>, Junpei Hashiguchi<sup>1</sup>, Takeshi Kobayashi<sup>1</sup>, Chiaki Imada<sup>1</sup>, Takeshi Terahara<sup>1</sup>, Ryo Matsumoto<sup>2</sup>

1.東京海洋大学大学院海洋科学技術研究科、2.明治大学

1.Graduate School of Marine Science and Technology, Tokyo University of Marine Science and Technology, 2.Meiji University

Shallow gas hydrates are estimated to be buried around Japan, especially in Japan Sea. The methane trapped in those hydrates are produced by biogenic (microbial) or thermogenic system. But the relationship between shallow gas hydrates and the methanogens are yet to be confirmed. So this study focuses on isolation and diversity of methanogenic and methanotrophic archaea.

Sediment samples were collected from the subseafloor (with or without specific structure) by the MBARI push corer, during an environment assessment cruise. Samples were collected from the top, middle, bottom of the recovered sediments of each push core. The samples were stored in different temperature for the microbiological cultivation experiment and microbiological diversity analysis, respectively.

For the methanogenic archaea isolation, cultivation was carried out by enrichment culture using methanogen medium. The cultures were cultivated by 15°C and 30°C, respectively. We successfully isolated several methanogenic archaea from the surface sediment. The result of the 16S rRNA gene sequence analysis showed the isolated strains identified as one of the order of the methanogen, Methanomicrobiales.

For the methanogenic and methanotrophic archaea diversity analysis, DNA was extracted from the sediment samples, using ISOIL kit. The methane related functional gene, the *mcrA* gene of methanogenic and methanotrophic archaea was chosen as the target gene. The genes were amplified by PCR method. The PCR products were purified by FastGene Gel/PCR Extraction Kit. The purified products were analyzed by clone library method. The result of the clone library analysis indicated that specific structure of the surface of the subseafloor have specific methanogenic and methanotrophic archaea structure.

This study was conducted as a part of the shallow methane hydrate exploration project of METI.

キーワード：表層ガスハイドレート、メタン生成古細菌、メタン酸化古細菌

Keywords: shallow gas hydrate, methanogenic archaea, methanotrophic archaea

日本海東縁の表層型ガスハイドレート賦存海域における浮遊・底生生物相の次世代シーケンサーを用いた解析

Pyrosequencing of planktonic and benthic biota above the sediment-water interface in methane hydrate-bearing areas in the eastern margin of the Japan Sea

\*幸塚 麻里子<sup>1</sup>、鈴木 庸平<sup>1</sup>

\*Mariko Kouduka<sup>1</sup>, Yohey Suzuki<sup>1</sup>

1. 東京大学大学院理学系研究科 地球惑星科学専攻

1. Department of Earth and Planetary Science, The University of Tokyo

日本海東縁の上越海盆では、海底に発達したポツツマーク付近から大量のメタンガスが湧出していることが確認されている。湧出域周辺にはバクテリアマットやベニズワイガニに代表される多様で大型の底生生物が棲息していることが確認されている。しかし、水塊と表層堆積物中に棲息する浮遊生物や底生の小型生物について、開発前のベースラインの多様性や分布について明らかにする必要がある。本研究では2013年度の調査航海で採取した海水および表層堆積物を対象に、次世代シーケンサーを用いた真核生物群集構造解析を行った。表層型ガスハイドレート賦存海域で活発なメタンの湧出やバクテリアマットをそれぞれ伴う2サイトとこれらを伴わない近傍のリファレンスサイトで生物相の比較を行った。その結果、水深~50メートルおよび~200メートルの水塊中では、渦鞭毛虫門の*Gyrodinium*属、節足動物門の*Centropages*属、放散虫の*Acanthochiasma*属などに分類される浮遊生物が検出され、生物相は互いに類似していた。しかし、水深~1000メートルの底層水中では、刺胞動物門の*Nanomia* 属や*Pantachogon* 属等に分類される浮遊生物がメタンの湧出やバクテリアマットを伴うサイトのみで検出され、リファレンスサイトとは明瞭な違いを示した。一方、表層堆積物はメタンの湧出やバクテリアマットを伴うサイトでは線形動物門の*Chromadorea*科に分類される底生生物が優占して検出されたが、構成種に関してはどのサイトも概ね類似していた。

本研究は経済産業省メタンハイドレート開発促進事業の一環として実施されたものである。

キーワード：メタンハイドレート、18S rRNA、次世代シーケンス解析、真核生物群集構造、DNA

Keywords: methane hydrate, 18S rRNA, Pyrosequencing, Eukaryotic communities, DNA

## サハリン沖ガスハイドレートサイトの微生物組成解析

## Investigation microbial community for gas-hydrate site off-Sakhalin Island

\*阿部 潤来<sup>1</sup>、八久保 晶弘<sup>1</sup>、南 尚嗣<sup>1</sup>、坂上 寛敏<sup>1</sup>、山下 聡<sup>1</sup>、高橋 信夫<sup>1</sup>、庄子 仁<sup>1</sup>、Young Jin<sup>3</sup>、Baranov Boris<sup>4</sup>、Obzhirov Anatoly<sup>2</sup>、小西 正朗<sup>1</sup>

\*Mizuki Abe<sup>1</sup>、Akihiro Hachikubo<sup>1</sup>、Hirotosugu Minami<sup>1</sup>、Hirotoshi Sakagami<sup>1</sup>、Satoshi Yamashita<sup>1</sup>、Nobuo Takahashi<sup>1</sup>、Hitoshi Shoji<sup>1</sup>、Jin K Young<sup>3</sup>、Boris Baranov<sup>4</sup>、Anatoly Obzhirov<sup>2</sup>、Masaaki Konishi<sup>1</sup>

1.北見工業大学、2.ロシア科学アカデミー極東支部 V.I.イリチヨフ太平洋海洋学研究所、3.韓国極地研究所、4.ロシア科学アカデミーP.P.シルシヨフ海洋研究所

1.Kitami Institute of Technology, 2.V.I. Il'ichev Pacific Oceanological Institute FEB RAS, Russia, 3.Koria Polar Research Institute, Koria, 4.P.P. Shirshov Institute of Oceanology, RAS, Russia

Gas hydrates (GH) are widely spread in the sediments under the subsea floor and form at high pressure and low temperature. GH oriented gas were grouped to thermogenic and microbial gas according to composition carbohydrate gas and isotopic molecular weight of methane. The role of microbial communities in the GH sites have been already investigated by several research groups. Isotopic composition of gas hydrate is often use to determine gas derivation such as thermogenic or microbial gases. However, combination study both isotopic gas analysis and microbial diversity have not been performed at all. Recently we successfully obtained mix gas-derived GH core sediment in the western Sakhalin slope off Sakhalin Island by exploration using ultrasonic wave sonar and gravity coring, in SSGH 15 project by using Russian research vessel *Akademik M. A. Lavrentyev*. We will demonstrate that results of investigating molecular and isotropic composition of the sediment gas, sulfate and sodium compositions, and microbial composition of a GH-bearing sediment core obtained in SSGH15.

Molecular composition ratio  $C_1/C_2+C_3$  below SMI were in the range between 116 and 225, while  $d^{13}C$  and  $dD$  values of methane were in the range of -48.9 and -45.7 permil, and of -165 and -149 permil, respectively. These results indicated that the gas compose of large amount of thermogenic gas and small amount of microbial gas.

Forty two individual clones have successfully analyzed, until we submit this article. Three *Aciduliprofundum* related clones, and three *Methanobrevibacter* related clones were detected. These sequences were clustered into oceanic methanogen in the phylum *Euriarcheota*. This result implied that these archaeon generate microbial methane in the core, and may correspond to decrease isotopic  $^{13}C$  ratio of methane and increase the  $C_1/C_2+C_3$  ratio. Slight amount of sequence in *Crenarcheota*, which may be involved anaerobic methane oxidation (annamox). Interestingly, heterotrophic bacteria in cluster of *Dehalococcoidetes*-related *Chloroflexi*, of *Candidatus artibacteria* (named as division JS1/OP9), and of *Planctomycetes* were frequently widespread in the core. The phylum *Chloroflexi* is a lineage for which the class '*Dehalococcoidetes*' was proposed to accommodate the tetrachloroethane respiring coccus *Dehalococcoides* (1). These bacteria may contribute to decomposition of difficultly degradable organic matters accumulated on deep sea floor. *Planctomycetes* have been often detected, and widespread in methane-seep (2), but the functional characters have been unknown. Recently, *Candidatus artibacteria* have been revealed to play significant role as symbiotrophic scavenger in artificial methanogenic bioreactor, by using single cell genome analysis (3). According to the study, *artibacteria* may support methanogen and *chloroflexi* through the by-product generation such as acetate, butyrate, and  $H_2$ . These results implied that thermogenic and microbial mixed-derived gas composition may be formed by symbiotic metabolism of those species, but not simply generated from inorganic gases such as  $CO_2$  and  $H_2$  by methanogen.

1)Maymo-Gatell, X., Chien Y., Gossett J. M., Zinder S. H. (1997) Isolation of bacterium that

reductively dechlorinates tetrachloroethane to ethane. *Science* 276: 1568-1571.

2) Yanagawa K., Kouduka M., Hachikubo A., Tomaru H., Suzuki Y. (2014) Distinct microbial communities thriving in gas hydrate-associated sediments from the eastern Japan Sea. *J Asia. Ear. Sci.* 90: 243-249.

3) Nobu M. K., Narihiro T., Rinke C., Kamagata Y., Tringe S. G., Woyke T. Liu W-T (2015) Microbial dark matter ecogenomics reveals complex synergistic networks in a methanogenic bioreactor. *ISME J.* 9: 1710-1722.